Kapitel 3

Experimentelles

In dieser Arbeit wurde die lineare ac-Suszeptibilität $\chi(\omega, T, \vec{B}) = \chi' - i\chi''$ von YBCO Filmen und einem YBCO Kristall gemessen. Ich werde zunächst die Proben in ihren wichtigsten Eigenschaften charakterisieren. Dazu werde ich die Methode der Schwerionenbestrahlung vorstellen, mit der kolumnare Defekte in die Filme eingebracht wurden. Danach werde ich die experimentellen Mittel darlegen, die benötigt werden, um zwischen 4.2 K und 200 K Suszeptibilitätsmessungen in statischen Magnetfeldern durchzuführen. Dies umfaßt die Einrichtungen zur Erzeugung der tiefen Temperaturen und die Beschreibung der verwendeten Magnete. Anschließend werde ich die in dieser Arbeit verwendeten Methoden zur Messung der ac-Suszeptibilität über einen großen Frequenzbereich und beispielhaft Meßergebnisse der dynamischen Suszeptibilität vor und nach der Schwerionenbestrahlung präsentieren. Zum Abschluß werde ich den Zusammenhang zwischen der ac-Suszeptibilität und dem dynamischen Widerstand herleiten.

3.1 Charakterisierung der Proben

In dieser Arbeit wurden mittels Laserablation auf (001)-$SrTiO_3$ [41, 42] und MgO Substrat [43] abgeschiedene YBCO Filme mit Dicken zwischen 100 nm und 250 nm untersucht. $SrTiO_3$ zeichnet sich durch eine besonders geringe Differenz der Gitterkonstanten von nur 1.2 % zu der von YBCO aus [44], was ein gutes Filmwachstum begünstigt. Hingegen haben MgO Kristalle größere Abweichungen der Gitterkonstanten von rund 9.4 %. Substrate aus MgO besitzen dafür hervorragende elektrische Eigenschaften bei hohen Frequenzen oberhalb 100 MHz. In diesem Bereich variiert die Dielektrizitätskonstante $\varepsilon(T)$ von $SrTiO_3$ stark mit der Temperatur, während ε für MgO praktisch unabhängig von der Temperatur ist [44, 45]. Deshalb eignen sich auf MgO gewachsene YBCO Filme besonders gut für Untersuchungen und Anwendungen bei Frequenzen im Mikrowellenbereich.

Tab. 3.1: *Charakteristische Parameter der YBCO Filme.*

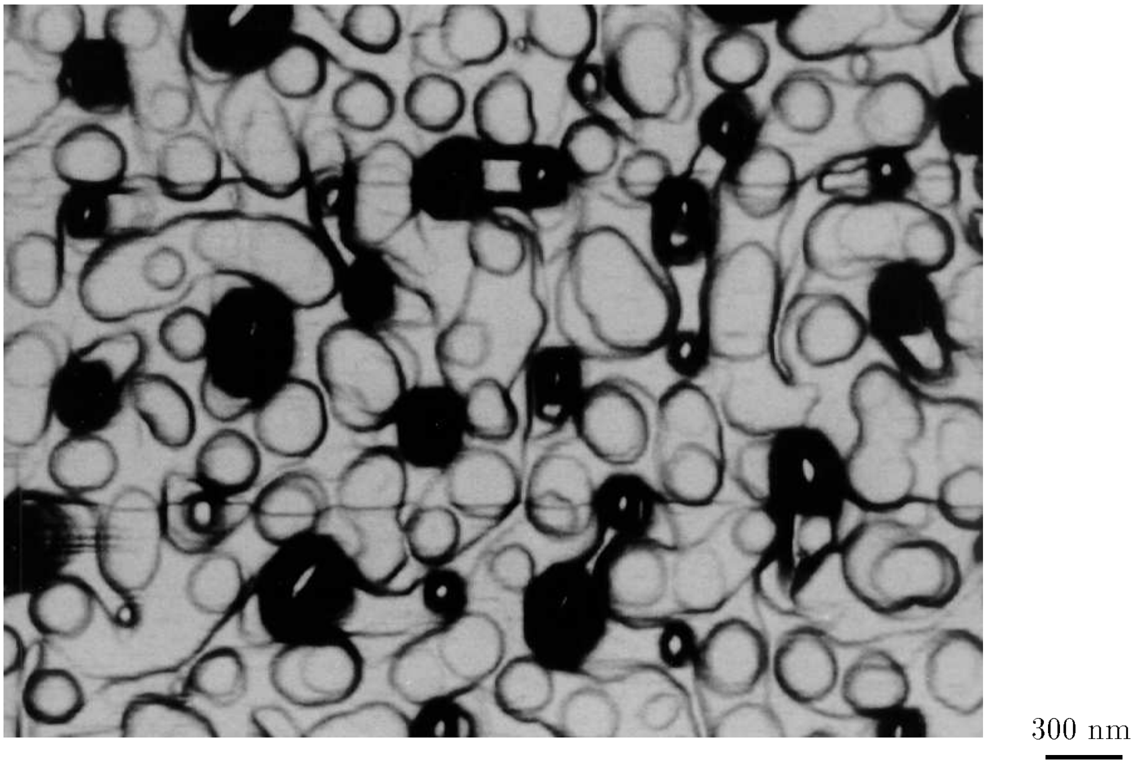
	Film A		Film B		Film C
Substrat	$SrTiO_3$	$SrTiO_3$	$SrTiO_3$	$SrTiO_3$	MgO
Geometrie	Kreis	Quadrat	Quadrat	Quadrat	Quadrat
	R=1.5 mm	2×2 mm^2	2×2 mm^2	2×2 mm^2	2×2 mm^2
Dicke	250 nm	250 nm	200 nm	200 nm	100 nm
Bestrahlung	–	2.7 GeV	–	2.3 GeV	–
	–	$^{238}U^{28+}$	–	$^{197}Au^{24+}$	–
Dosis	–	$B_\phi = 1$ T	–	$B_\phi = 4$ T	–
T_c	90.95 K	90.25 K	90.05 K	87.85 K	89.05 K
Hersteller	F. Goerke [41]		T. Steinborn [42]		A. Krämer [43]
	Universität Hamburg		TH Darmstadt		TU HH-Harburg

Der as-grown Film A wurde mit Hilfe eines Ultraschallbohrers in Form einer Scheibe mit Radius $R = 1.5$ mm aus einem $1 \times 1 \times 0.1$ cm^3 großen $SrTiO_3$ Substrat präpariert. Der zur Bestrahlung verwendete Teil des Films A und die Teile der Filme B bzw. C wurden mit Hilfe einer Diamantsäge zu $2 \times 2 \times 0.1$ mm^3 großen Quadern gesägt. Die Größe der Filme ist so gewählt, daß der Probendurchmesser kleiner als der Innendurchmesser (3.1 mm) der Meß-Spulensysteme ist. Die Wahl eines relativ kleinen Stücks der ursprünglich 1×1 cm^2 großen Filme stellt auch sicher, daß der untersuchte Teil (kein Randstück) gute supraleitende Eigenschaften hat, da über die Ausdehnung des Substrats Inhomogenitäten auftreten können [45].

Die Mikrostruktur der as-grown Filme wurde mit Polarisationslichtmikroskopie [46], atomarer Kraftmikroskopie (AFM) [47] und Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) [42] untersucht. Die Aufnahmen mit Polarisationslicht zeigen eine große Zahl hügelartiger Erhebungen mit Durchmesser $\approx$ 200 nm und einem mittleren Abstand der Erhebungen von etwa 500 nm. Aus AFM-Aufnahmen konnte die Dichte der Erhebungen verifiziert und deren mittlere Höhe auf $\approx$ 50 nm bestimmt werden [47], siehe Abb. 3.1(a). In beiden Aufnahmen sind keine Hinweise auf eine Zwillingsstruktur der Filme gefunden worden. Eine solche wird häufig in YBCO Kristallen beobachtet, und ist begründet in der endlichen Differenz der Länge der a- und b-Achse der YBCO-Einheitszelle, $b - a \approx 0.007$ nm. Die Zwillingsstruktur ist deshalb charakteristisch für die orthorombische Phase von YBCO.

Erst mit dem Einsatz von Transmissionselektronenmikroskopie [42] konnte die Mikroverzwillung eines Filmes aufgelöst werden. Es zeigte sich, daß der Abstand zweier Zwillingslamellen im Schnitt nur $t = 40$ nm beträgt und die Fläche gleichgerichteter Zwillingsdomänen $L^2 = 1$ μm^2 nicht überschreitet [42]. Dies ist in der Abb. 3.1(b) dargestellt. Die Größe der beobachteten Zwillingsdomänen ist in guter Übereinstimmung mit Ergebnissen für dünne YBCO Filme in der Literatur [48].

a)



b)

Abb. 3.1: *Aufnahmen in Aufsicht (a) des as-grown Films A mittels AFM [49] und (b) des as-grown Films B mittels TEM [42].*

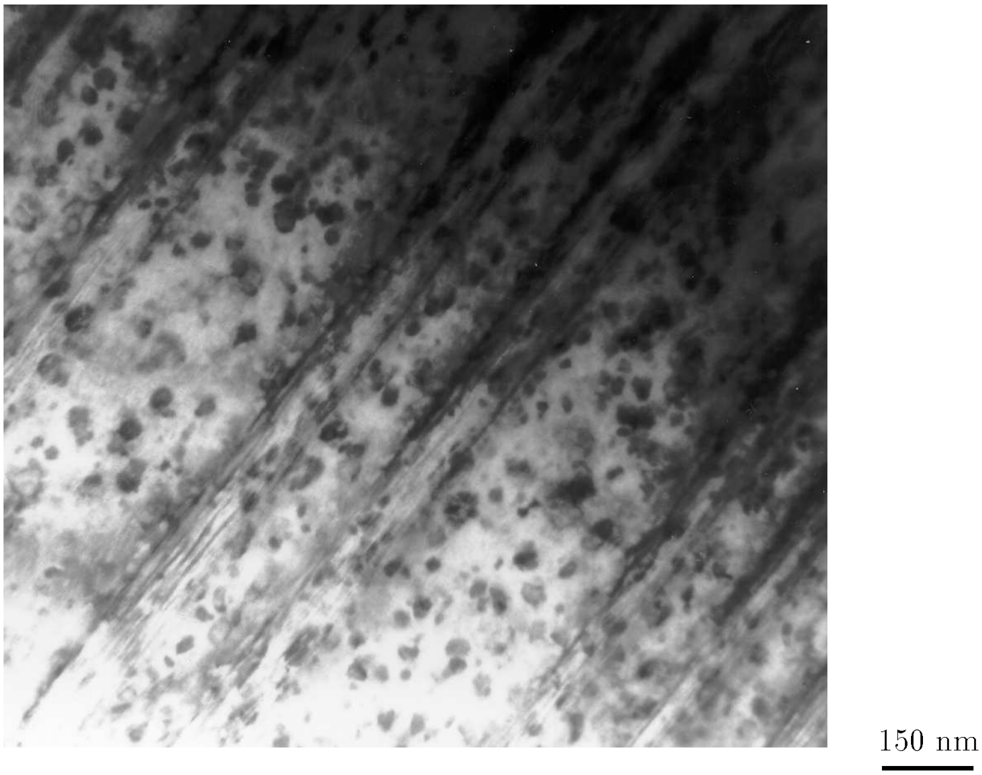


Abb. 3.2: *TEM-Aufnahme des stark verzwillingten Kristalls [52].*

Der stark verzwillingte YBCO Kristall wurde von W. Assmus [50] hergestellt. Der Kristall hat die Form eines flachen Zylinders mit Radius $R = 1.0$ mm und einer Dicke von 0.8 mm. Die kritische Temperatur beträgt 86.95 K. An diesem Kristall konnte eine Zwillingsstruktur sowohl in Polarisationslichtaufnahmen [51] wie auch in TEM-Aufnahmen [52] gefunden werden. Die Zwillingsstruktur des Kristalls wird charakterisiert durch ein Mosaik mit Ausdehnung $L^2 = 25 \times 25\ \mu\text{m}^2$ und einem mittleren Abstand zweier Zwillingsgrenzen von $t = 0.15\ \mu$m. Eine TEM-Aufnahme des Kristalls ist in der Abb. 3.2 wiedergegeben.

Im allgemeinen besteht ein Zusammenhang zwischen der Größe der Zwillingsdomänen L und dem mittleren Abstand der Zwillingsgrenzen t. Dies ist in dem Wechselspiel der Zwillingsgrenzenenergie und der Formänderungsenergie begründet. Dieses Wechselspiel führt zu einem mit der Domänengröße L steigenden Zwillingsabstand [53] $t \approx 20\ \text{nm} \times [L(\mu\text{m})]^{1/2}$. Setze ich die beobachteten Domänengrößen des Films B $L \approx 1\ \mu$m und des Kristalls $L \approx 25\ \mu$m in dieses empirische Gesetz ein, so erhalte ich für den mittleren Zwillingsabstand des Films $t \approx 20$ nm und für den Kristall $t \approx 100$ nm. Diese Abstände liegen sehr nahe bei den experimentell bestimmten Werten von rund 40 nm bzw. 150 nm für diese Proben.

3.2 Schwerionenbestrahlung

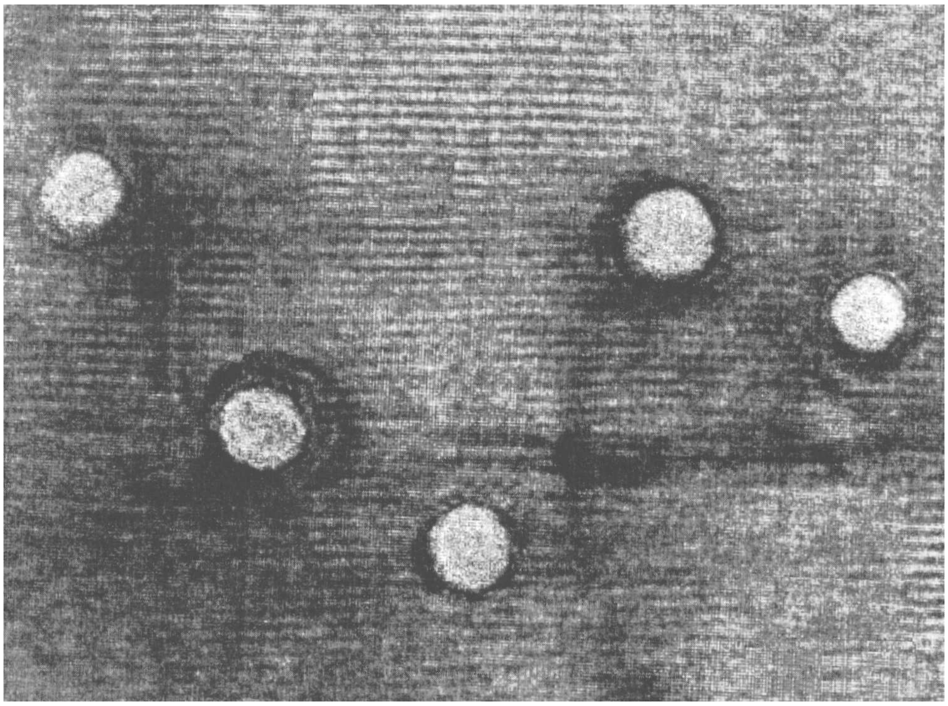
In diesem Abschnitt werde ich die Methode der Schwerionenbestrahlung vorstellen. Mit dieser ist es möglich, mikroskopische Defekte bekannter Form, Größe und Dichte in den Supraleiter einzubringen. Dazu werden schwere Ionen ($^{197}Au^{24+}$, $^{208}Pb^{26+}$, $^{238}U^{28+}$ u.a.) in Linearbeschleunigern, wie dem UNILAC der Gesellschaft für Schwerionenforschung (GSI) in Darmstadt, auf hohe Energien beschleunigt. Die erzielbaren Endenergien liegen im Bereich einiger GeV pro Ion, entsprechend einer Geschwindigkeit von etwa 10 % der Lichtgeschwindigkeit. Der Effekt der Bestrahlung mit hochenergetischen Schwerionen ist stark von dem Projektilelement und der -energie abhängig. Entscheidend für die Produktion kolumnarer Defekte ist der elektronische Energieverlust S_e des Ions durch inelastische und kollektive Wechselwirkung mit den Targetelektronen. Die von den Elektronen absorbierte Energie wird in einem zweiten Schritt auf das Atomgitter übertragen. In der Folge überschreitet die Temperatur des Supraleiters lokal dessen Schmelztemperatur. Ab einer Verlustrate von $S_e \approx 25$ keV/nm entstehen kontinuierliche Kernspuren aus amorphisiertem Material mit zylindrischer Ausdehnung entlang der Projektiltrajektorie [54]. Die Struktur und Ausdehnung der Defekte ist stark von der thermischen Leitfähigkeit des Materials beeinflußt [55]. Die amorphen Bereiche können Längen bis zu einigen 10 μm und Durchmesser bis etwa 10 nm erreichen. Auf Grund der endlichen Eindringtiefe der Schwerionen bieten sich insbesondere dünne Filme und Kristalle mit Dicken unter 20 μm für die Bestrahlung mit schweren Ionen an.

Die Dichte der Kernspuren im Supraleiter wird über die Zeitdauer der Bestrahlung mit einer festen Strahlintensität $\dot{n}_\phi \approx 10^8$ Ionen/cm^2/s gesteuert. Um die Kernspurdichte mit der Vortexdichte vergleichen zu können, wird die Fluenz in Einheiten eines Magnetfeldes angegeben. Dieses sogenannte Dosisäquivalentfeld B_ϕ erhält man aus der Fluenz n_ϕ bzw. dem mittleren Abstand d der Defekte gemäß

$$B_\phi = \Phi_0 \cdot n_\phi = \frac{\Phi_0}{d^2}\,. \tag{3.1}$$

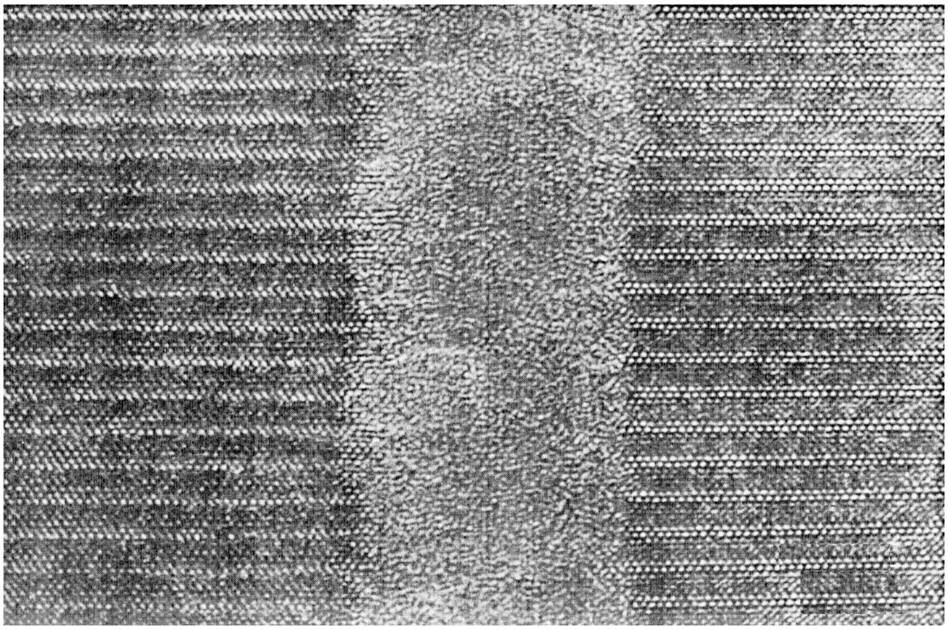
Beispielsweise entspricht das Dosisäquivalent von $B_\phi = 1$ T einer Fluenz von $n_\phi = 5 \cdot 10^{10}$ Ionen/cm^2 und einem mittleren Abstand der Defekte von $d = 45$ nm. In dieser Arbeit wurden $^{197}Au^{24+}$-Ionen und $^{238}U^{28+}$-Ionen mit 2.3 bzw. 2.7 GeV verwendet. Die Dosisäquivalentfelder betragen 1.0 bzw. 4.0 T, siehe auch Tab. 3.1. Die Richtung der Bestrahlung war immer parallel zu der c-Achse der Filme orientiert.

Die kolumnaren Defekte wurden von J. Wiesner [57] an YBCO und an $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ (BSCCO) Filmen mittels hochauflösender Transmissionselektronenmikroskopie (HRTEM) untersucht. Es zeigte sich, daß bei den verwendeten Energien kontinuierliche Kernspuren den gesamten Film durchziehen. Diese Beobachtung ist in Übereinstimmung mit Simulationen, die für Au- und U-Ionen der verwendeten Energie Eindringtiefen für das $SrTiO_3$ Substrat und den YBCO Film von rund 70 μm a)



10 nm

b)



4.0 nm

Abb. 3.3: *HRTEM-Aufnahmen von BSCCO Filmen [56] (a) in Aufsicht mit 2.6 GeV Au-Ionen der Dichte $B_\phi = 1.0$ T bestrahlt und (b) im Querschnitt nach Bestrahlung mit 1.4 GeV U-Ionen.*

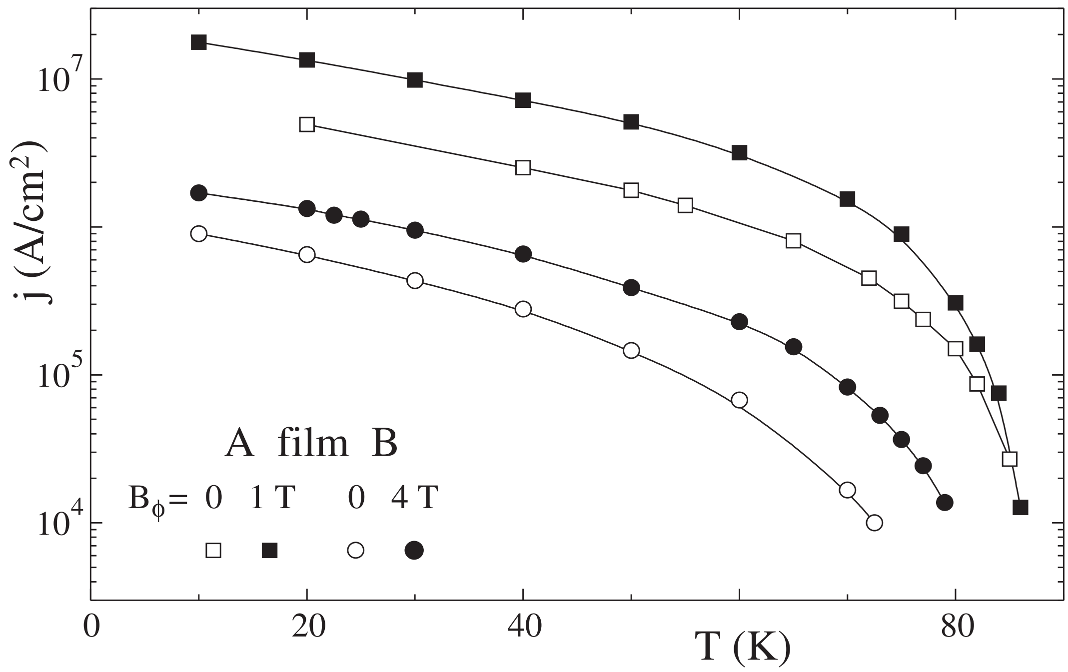


Abb. 3.4: *Stromdichte der YBCO Filme A und B auf $SrTiO_3$ gemessen in B = 0.4 T [60].*

vorhersagen [42]. Durch die hohen Energien der Ionen ist sichergestellt, daß diese den gesamten Film durchdringen, da dessen Dicke von 0.2 μm sehr viel kleiner als die Eindringtiefe der Ionen ist. Bei der verwendeten Energie der Ionen ist die elektronische Verlustrate $S_e > 40$ keV/nm. Dies bedeutet, daß ein hochenergetisches Ion genau einen kolumnaren Defekt erzeugt, was durch Auszählen der kolumnaren Defekte und Vergleich mit der nominellen Dosis gemäß Gl. (3.1) bestätigt worden ist. Der Durchmesser der kolumnaren Defekte, die mit den in dieser Arbeit verwendeten Ionen induziert worden sind, variiert zwischen 6.0 und 8.0 nm, wie Untersuchungen sowohl an BSCCO Filmen [57] wie auch an YBCO Filmen [42] zeigen. Dieser Wert des Defektradius $\delta = 3.5(5)$ ist in guter Übereinstimmung mit Radien schwerioneninduzierter kolumnarer Defekte in der Literatur für YBCO Kristalle [58, 59] und Filme [55]. Da HRTEM-Aufnahmen an BSCCO einen wesentlich besseren Kontrast und deutlichere Abbildungen der kolumnaren Defekte zeigen, sind in der Abb. 3.3 die durch Schwerionenbestrahlung induzierten kolumnaren Defekte von in dieser Arbeit verwendeten Ionen (UNILAC der GSI) in einem BSCCO Film wiedergegeben worden.

Ein wichtiger Anhaltspunkt zur Charakterisierung der Filme ist die Stärke der Abschirmströme. Diese gibt einen Hinweis auf die Stärke des Pinnings und damit auf die zugrundeliegende Mikrostruktur. Die Stromdichte $j(T)$ wurde von M. Baumann [60] aus Magnetisierungsmessungen mittels eines kommerziellen SQUID-Magnetometers ($MPMS_2$, Quantum Design) bestimmt. In Abb. 3.4 ist die Stromdichte der Filme A und B vor und nach der Schwerionenbestrahlung dargestellt. Der Wert der Abschirmströme der as-grown Filme A und B unterscheidet sich um annähernd eine Größenordnung. Daraus kann auf ein deutlich stärkeres Pinning in dem Film A geschlossen werden. Der YBCO Film C auf MgO-Substrat hat eine Stromdichte zwischen den Werten für Film A und B mit $j(20\ \mathrm{K}) = 3 \cdot 10^6\ \mathrm{A/cm^2}$.

Es ist interessant, bereits an dieser Stelle den Effekt der Schwerionenbestrahlung auf die Stromdichte $j(T)$ zu betrachten. Für schwerionenbestrahlte YBCO Kristalle berichten Civale et al. [61] über eine Erhöhung der kritischen Stromdichte bis auf das 12-fache des Wertes vor der Bestrahlung. Durch die Bestrahlung der Filme A und B wurde deren Stromdichte z.T. deutlich erhöht. Bei tiefen Temperaturen zeigt der Film A eine Verstärkung der Stromdichte um einen Faktor 3, während die Stromdichte des deutlich stärker bestrahlten Films B in diesem Temperaturbereich nur um einen Faktor 2 erhöht ist. Der Effekt der Bestrahlung ändert sich bei höheren Temperaturen, wo der Film B eine Verstärkung der Stromdichte um einen Faktor 5 erfährt, während der Film A fast keine Erhöhung zeigt. Dies deutet darauf hin, daß die intrinsischen Eigenschaften der Filme einen Einfluß auf die Effizienz der induzierten kolumnaren Defekte haben.

3.3 Kryotechnik und Magnete

In Abb. 3.5 ist ein Metallkryostat abgebildet, wie er in dieser Arbeit für Suszeptibilitätsmessungen bis 5 T benutzt worden ist. Der Kryostat besteht aus einem thermisch isolierten Tank für flüssiges Helium (LHe), dessen Fassungsvermögen zwischen 15 ℓ für den Glaskryostaten und 30 ℓ im Fall des 13 T-Suszeptometers variiert. In diesem Tank befindet sich ein supraleitender Magnet, mit dem ein homogenes Magnetfeld bis zu 13 T parallel zur c-Achse des Films angelegt werden kann. Mit Hilfe eines Helmholtzspulenpaares können in einem Glaskryostaten Magnetfelder bis zu 2 T senkrecht zur c-Ache angelegt werden, während das ac-Magnetfeld weiterhin parallel zur c-Achse orientiert ist. Das Material und die Feldkonstanten der in dieser Arbeit verwendeten Magnete sind in der Abb. 3.2 zusammengefaßt.

In das flüssige Helium wird ein doppelwandiger Zwischentemperatureinsatz aus Duran-Glas eingeführt und mit einer Quetschverschraubung am Kryostatenkopf befestigt. Der Glaseinsatz besteht aus einem äußeren Zwischenvakuum und einem zentralen Probenraum. Das Zwischenvakuum wird auf einen Druck von ungefähr $3 \cdot 10^{-5}$ mbar abgepumpt. Dieser Wert ist ein Kompromiß aus einer möglichst guten thermischen Abkoppelung des Probenraums von dem LHe-Tank, um den LHe Verbrauch zu minimieren und der Anforderung an die Kühlrate, um tiefe Temperaturen in akzeptabler Zeit zu erreichen.

Der Probenraum dient der Aufnahme des Probenstabes und wird im Betrieb mit He-Austauschgas durchflutet. Temperaturen oberhalb 4.2 K werden durch lokale Erwärmung des unteren Endes des Probenstabes, siehe Abb. 3.6, erreicht. Hierfür dient der Ohm'sche Widerstand ($\approx 30\ \Omega$) eines bifilar auf einen Saphir gewickelten Heizdrahtes aus Phosphor-Bronze. Die Messung verläuft folgendermaßen: Ausgehend von der Gleichgewichtstemperatur 4.2 K wird mit einem Heizstrom (0.3 A) die Starttemperatur von ungefähr 130 K angefahren. Diese liegt immer deutlich oberhalb der supraleitenden Übergangstemperatur T_c der Probe. Anschließend wird der Heizstrom auf 0.15 A herabgesetzt und durch kontinuierliche Reduktion der Heizleistung eine Sweeprate von 0.02 K/s eingestellt. Es wird durch diese Meßprozedur immer die feldgekühlte ('field-cooling') Suszeptibilität gemessen. Damit ist sichergestellt, daß bei T_c eine homogene Flußverteilung innerhalb der Probe vorliegt.

Tab. 3.2: *Parameter der Magnete.*

	SQUID	Metallkryostate		Glaskryostat	HMFL Grenoble
$\vec{B}$	$\parallel \vec{c}$	$\parallel \vec{c}$	$\parallel \vec{c}$	$\parallel, \perp \vec{c}$	$\parallel \vec{c}$
max. B (T)	1	5	13	2	20
B/I (mT/A)	40	63.1	157	36.4	0.76
Material	NbTi	NbTi	Nb_3Sn/NbTi	NbTi	Cu

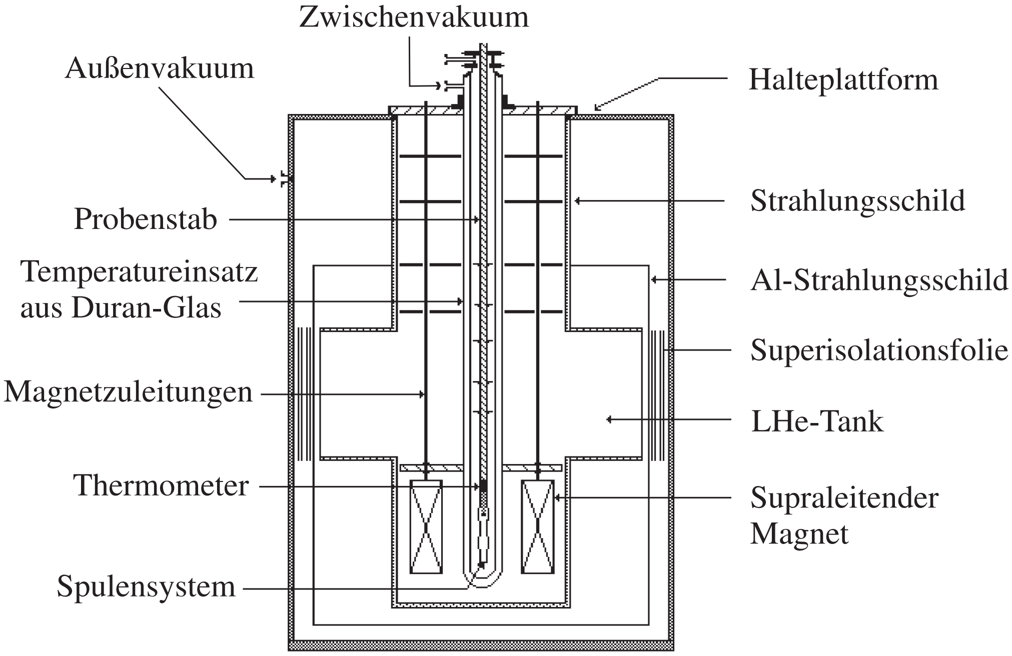


Abb. 3.5: *Metallkryostat mit 5 T-Magnet.*

Über einen IEEE-Bus werden von einem Meßrechner ungefähr 15 Werte der Temperatur und der Suszeptibilität pro Kelvin aufgenommen. Die Messung der Temperatur erfolgt mittels eines symmetrisch zur Probe an dem Saphir montierten CERNOX-Thermometers, siehe Abb. 3.6. Dieses zeichnet sich durch einen homogenen Widerstandsverlauf von rund 600 Ω bei 4.2 K auf rund 30 Ω bei Raumtemperatur und eine zu vernachlässigende Magnetfeldabhängigkeit ($\Delta T/T < 0.1$ % für $T > 20$ K und $B \leq 20$ T) aus.

Als Stromquelle der supraleitenden Magnete dienten PS 120 Stromquellen der Firmen Cryogenic und Oxford. Für die Untersuchungen in kleinsten Magnetfeldern $B < 0.1$ T wurde ein hochpräziser Knick-Stromgeber verwendet. Die Untersuchungen in höchsten Magnetfeldern $B = 15$ T und 19 T wurden mit Hilfe eines Bittermagneten im Hochfeldlabor (HMFL) in Grenoble durchgeführt. In diesem erzeugt ein starker Gleichstrom ($\leq$ 25 kA) in Cu-Scheiben Magnetfelder bis zu 20 T. In die Bohrung des Magneten wurde ein Kryostat eingebaut, in den wiederum der doppelwandige Glaseinsatz hineingehängt wurde. Ansonsten ist der Verlauf der Messung analog zu dem oben beschriebenen.

3.4 ac-Suszeptibilität

Um den großen Frequenzbereich der Suszeptibilität, der in dieser Arbeit untersucht wurde, zu erhalten, sind drei Meßverfahren angewandt worden. Über den größten Frequenzbereich und besonders umfangreich wurde die Gegeninduktionsmethode [62] benutzt. Diese liefert für Frequenzen zwischen 10 Hz und 50 MHz die Suszeptibilität $\chi(T)$ und wird im folgenden ausführlich besprochen.

Zu tieferen Frequenzen wurde ein kommerzielles SQUID-Suszeptometer ($MPMS_2$, Quantum Design) benutzt. Dies ermöglicht Suszeptibilitätsmessungen bis zu einer minimalen Frequenz von 0.3 mHz. Durchgeführt wurden in diesem Suszeptometer Messungen zwischen 3 mHz und 1 kHz. Bis hinab zu 30 mHz kann analog zu den Messungen bei höheren Frequenzen mit variabler Temperatur gemessen werden, während die stark anwachsende Meßzeit für Frequenzen unterhalb 30 mHz Messungen mit variabler Frequenz bei ausgewählten Temperaturen bedingt. Von M. Welters [63] und Chr. Stodte [45] konnte durch den Einsatz von Helixresonatoren der Frequenzbereich über 50 MHz auf 2 GHz erweitert werden. Hierzu diente das Mikrowellenfeld verschiedener Resonatoren bei den Frequenzen der Grundwellen (74 MHz, 330 MHz und 450 MHz), der 3. Oberwellen (220 MHz, 926 MHz und 1300 MHz) sowie der 5. Oberwelle (2060 MHz).

In dem mittleren Frequenzbereich von 10 Hz bis 50 MHz wurde die Suszeptibilität mittels der Gegeninduktionsmethode gewonnen. Eine Primärspule erzeugt ein magnetisches Wechselfeld $\vec{b}(\omega) = \vec{b}_0 e^{i\omega t}$ parallel zur c-Achse des Films, d.h. $\vec{b}_0 \parallel \vec{c}$. Das Sekundärspulensystem besteht aus zwei astatisch gewickelten Spulen, die beide diesem Wechselfeld ausgesetzt sind, siehe Abb. 3.6. In einer der Spulen befindet sich der Film, dessen komplexe Suszeptibilität $\chi' - i\chi''$ zu einer induzierten Spannung [62]

$$U' - iU'' = i2\pi f M I q A e^{i\alpha}(\chi' - i\chi'') + U_0 \tag{3.2}$$

in der Sekundärspule führt. Der Füllfaktor $q = V_{Probe}/V_{Spule}$ berücksichtigt die endliche Probengröße und der Korrekturfaktor $Ae^{i\alpha}$ die gegenüber einem idealen Spulensystem auftretenden Ohm'schen und kapazitiven Widerstände. Die Gegeninduktivität M ist durch die Geometrie des Spulensystems bestimmt. Ein schwach von der Temperatur abhängiger Untergrund wird durch U_0 berücksichtigt.

Parameter einer Messung sind die Frequenz f und der Strom I in der Primärspule. Mittels phasensensitiver Lock-In-Verstärker wird der in-Phase U'- und außer-Phase U''-Anteil der Spannung detektiert. Die Einsatzmöglichkeit des Spulensystems ist zu hohen Frequenzen durch die Eigenresonanzfrequenz der Spulen begrenzt. Zu tiefen Frequenzen sind die minimal detektierbare Spannung und die maximale Integrationszeit für einen Meßpunkt die begrenzenden Faktoren. Eingebaute Impedanzwandler der Lock-In-Verstärker EG&G 5301 und EG&G 5302 verbessern die Anpassung an das

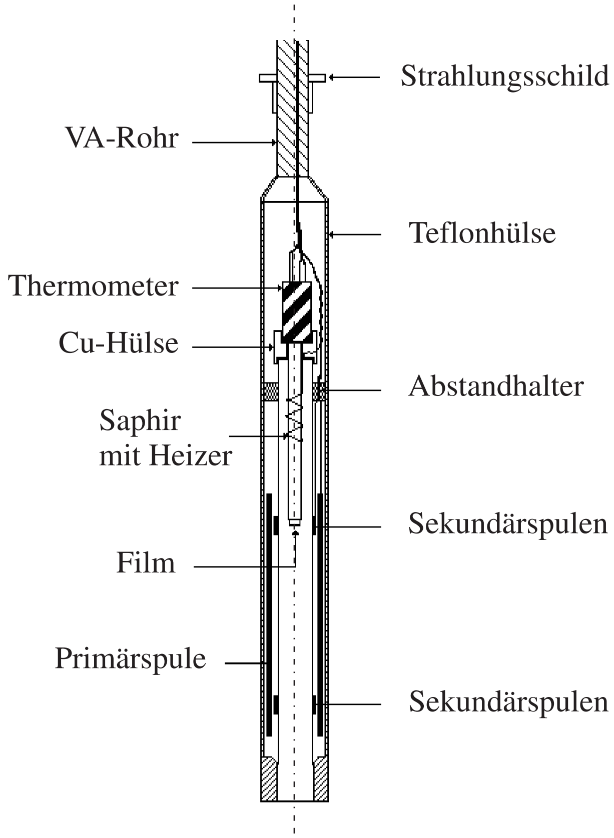


Abb. 3.6: *Probenstab mit Breitbandspulensystem.*

Breitbandspulensystem und ermöglichen so eine Frequenzbreite von sechs Dekaden. Für Frequenzen oberhalb 1 MHz bis 50 MHz wird ein Spulensystem mit einer besonders hohen Resonanzfrequenz und ein EG&G 5202 Lock-In-Verstärker benutzt.

Um beide Komponenten der komplexen Suszeptibilität angeben zu können, sind sorgfältige Eichmessungen an bekannten Proben und Untergrundmessungen erforderlich. Zur Eichung werden die ferromagnetischen Kristalle EuS und EuO, sowie Blei (Typ-I Supraleiter) benutzt. EuS zeigt bis etwa 200 MHz unterhalb der kritischen Temperatur $T_c = 15.6$ K ein Plateau in der Dispersion χ' und keine Absorption [64]. Blei eignet sich auf Grund des konventionellen Skineffektes nur für niedrige Frequenzen als Eichprobe. Durch die Eichung mit diesen Proben ist auch die Phase der Suszeptibilität bekannt, und ein Phasenfehler in den Messungen kann gegebenenfalls korrigiert werden. Der (temperaturabhängige) Untergrund durch den Fehlabgleich des Spulensystems wird durch Leermessungen (ohne Probe) bestimmt und von den Messungen abgezogen.

Um die lineare Suszeptibilität zu messen, ist es wichtig sicherzustellen, daß die Suszeptibilität unabhängig von der Anregungsamplitude b_0 ist. Dies wird in allen Magnetfeldern bei verschiedenen Frequenzen und Temperaturen überprüft und wurde für die untersuchten Proben erreicht durch ein ac-Feld von 0.5 μT.

Tab. 3.3: *Parameter der ac-Spulensysteme.*

Breitbandspulensystem	
Primärspule (1×)	Sekundärspule (2×)
Frequenzbereich:	10 Hz – 3 MHz
Länge: 40 mm	Länge: 2 × 5 mm
Durchmesser: 6.2 mm	Durchmesser: 6 mm
52 Windungen Cu-Draht	40 Windungen Cu-Draht
Feldkonstante: 2.1 mT/A	Eichfaktor: 22 nH/mm^3
	Resonanzfrequenz ≈ 8 MHz
Hochfrequenzspulensystem	
Primärspule (1×)	Sekundärspule (2×)
Frequenzbereich:	100 kHz – 50 MHz
Länge: 50 mm	Länge: 2 × 4 mm
Durchmesser: 6.2 mm	Durchmesser: 6 mm
8 Windungen Cu-Draht	4 Windungen Cu-Draht
Feldkonstante: 0.4 mT/A	Eichfaktor: 4 nH/mm^3
	Resonanzfrequenz ≈ 120 MHz
SQUID-Spulensystem	
Mittlere Spule (1×)	Äußere Spule (2×)
Frequenzbereich:	0.35 mHz – 1.5 kHz
Abstand mittlere – äußere Spule:	15 mm
Durchmesser: 20 mm	Durchmesser: 20 mm
2 Windungen	1 Windung

Die auf diese Weise bestimmte Suszeptibilität ist geometriebedingt größer als die Suszeptibilität einer unendlich großen Probe $\chi(T \rightarrow 0) = -1$. Im folgenden wurden die experimentellen Werte der Suszeptibilität auf $\chi'(T \rightarrow 0) = -1$ normiert. Eine quantitative Begründung für diese Normierung wird weiter unten gegeben. In der Abb. 3.7 ist die Suszeptibilität $\chi' - i\chi''$ des Films A beispielhaft für $B = 1$ T vor und nach der Bestrahlung mit Schwerionen der Dosis $B_\phi = 1$ T dargestellt. Der Realteil zeigt einen monotonen Abfall zu -1 bei tiefen Temperaturen, der mit zunehmender Frequenz zu höheren Temperaturen verschoben wird. Parallel zu dem Abfall von χ' zeigt der Imaginärteil $\chi''(T)$ ein ausgeprägtes Maximum und verschwindet bei tiefen und hohen Temperaturen. Wie man aus der Abb. 3.7 erkennt, ist infolge der Bestrahlung mit Schwerionen das Maximum der Absorption deutlich kleiner geworden. Interessanterweise ist auch die Frequenzabhängigkeit der Suszeptibität durch die Bestrahlung beeinflußt worden. Der bestrahlte Film zeigt eine deutlich reduzierte Variation von $\chi(T)$ mit der Frequenz.

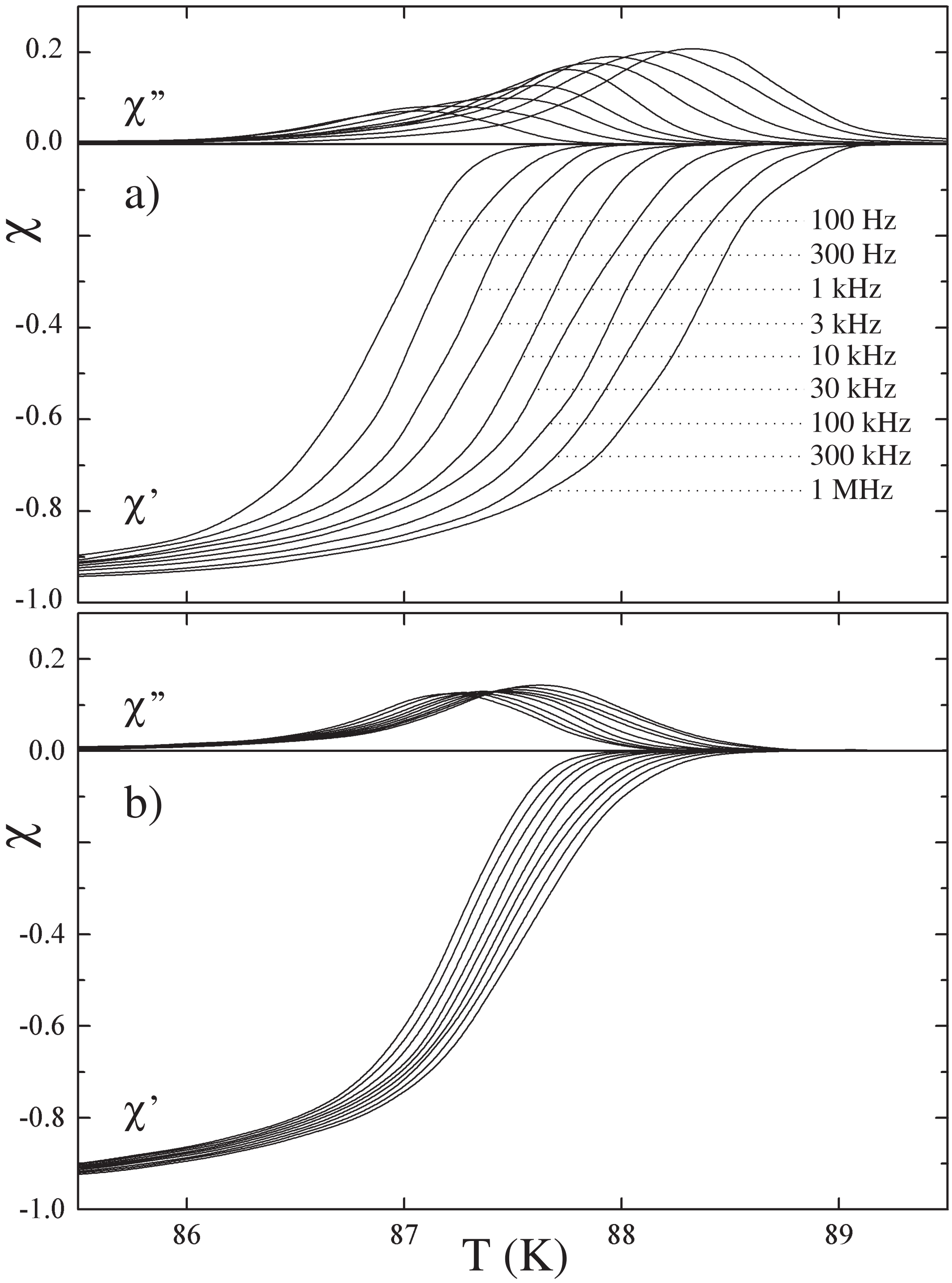


Abb. 3.7: *Lineare Suszeptibilität in $B = 1$ T des as-grown Films A (a) vor und (b) nach der Bestrahlung mit Dosisäquivalent $B_\phi = 1$ T.*

3.5 Dynamischer Widerstand

In diesem Abschnitt werde ich den Zusammenhang zwischen der dynamischen Suszeptibilität und dem Widerstand eines Supraleiters in einem magnetischen Wechselfeld darstellen. Zunächst werde ich die klassische Lösung für einen langen leitenden Zylinder herleiten, der einem Wechselfeld parallel zur Zylinderachse ausgesetzt ist. Anschließend werde ich die Suszeptibilität einer dünnen Scheibe in einem transversal zur Filmebene orientierten Wechselfeld vorstellen, welche kürzlich von E.H. Brandt [11, 65] berechnet worden ist. Dieses Ergebnis werde ich schließlich auf Filme mit endlicher Dicke verallgemeinern [66]. Die Geometrie ist in der Abb. 3.8 dargestellt.

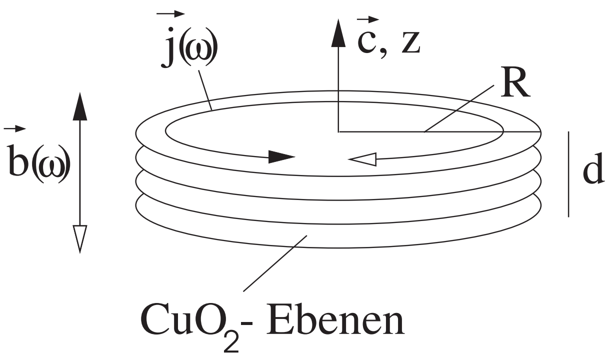


Abb. 3.8: *Anordnung des Supraleiters im magnetischen ac-Feld.*

a) Langer Zylinder: $d \gg R$

Ich betrachte einen langen Zylinder, $d \gg R$, in einem zeitlich veränderlichen Magnetfeld $\vec{b}(\omega) = \vec{b}_0 e^{i\omega t}$. Dieses induziert gemäß dem Induktionsgesetz ein elektrisches Feld $\vec{\nabla} \times \vec{e} = -\partial\vec{b}/\partial t$ und dieses Abschirmströme $\vec{j} = \vec{e}/\rho$. Diese Ströme erzeugen über das Ampère'sche Gesetz $\vec{\nabla} \times \vec{b} = \mu_0 \vec{j}$ ein Magnetfeld. Zusammengefaßt:

$$\frac{\partial \vec{b}}{\partial t} = \frac{\rho}{\mu_0} \Delta \vec{b}\,.$$

Diese Gleichung beschreibt die Diffusion des magnetischen Feldes mit der Diffusionskonstante ρ/μ_0 in den Zylinder. Unter Berücksichtigung der harmonischen Zeitabhängigkeit der Induktion gilt

$$\Delta \vec{b} = -\frac{k^2}{R^2} \vec{b} \tag{3.3}$$

mit

$$k^2 = \frac{i\omega R^2 \mu_0}{\rho(\omega)}\,.$$

Auf Grund der Zylindersymmetrie besitzt das Feld nur eine Radialkomponente $\vec{b} = b(r)\vec{e}_r$ und Gl. (3.3) vereinfacht sich zu

$$\frac{\partial^2 b}{\partial r^2} + \frac{1}{r}\frac{\partial b}{\partial r} - \frac{i\omega\mu_0 b}{\rho} = 0\,.$$

Die reguläre Lösung dieser Bessel'schen-Differentialgleichung [67] lautet $b \sim I_0(r/\lambda)$, wobei I_0 die modifizierte Besselfunktion erster Art und nullter Ordnung ist [68]. $\lambda = (i\omega\mu_0/\rho)^{-1/2}$ ist die effektive Eindringtiefe des Supraleiters. Unter Berücksichtigung der Randbedingung, $b(R) = b_0$, ist

$$b(r) = b_0 \frac{I_0(r/\lambda)}{I_0(R/\lambda)}.$$

Die Suszeptibilität ist gegeben durch

$$\chi = \frac{\mu_0}{V b_0}\int b\,dV - 1$$

und damit

$$\chi = \frac{2}{k}\frac{I_1(k)}{I_0(k)} - 1 \tag{3.4}$$

mit $I_0' = I_1$.

b) Dünne Filme: $d \ll R$

Im folgenden betrachte ich eine dünne Kreisscheibe mit Radius R und Dicke d in einem senkrecht zur Scheibenoberfläche angelegten ac-Feld. Es wird angenommen, daß das ac-Feld den Film in der gesamten Dicke durchdringt, d.h. $|\lambda| \geq d$. Aus der Bedingung $|\lambda| = d$ folgt eine untere Grenze für den Realteil der Suszeptibilität. Beispielsweise muß für einen Film mit Dicke $d = 200$ nm $\chi' > -0.9994$ gelten. Um die dynamische Suszeptibilität $\chi(\omega) = \mu_0/(2Vb_0)\int \vec{r}\times\vec{j}(r,\omega)\,\mathrm{d}^3r$ zu ermitteln, muß die Integralgleichung der nichtlokalen Diffusion der ab-Ebenen Stromdichte $\vec{J}(r,z) = \vec{j}(r,z)\cdot d$ gelöst werden. Die Integralgleichung folgt aus dem Ampère'schen Gesetz $\vec{\nabla}\times\vec{b} = \mu_0\vec{j}$, wenn dieses in das Induktionsgesetz $\vec{\nabla}\times\vec{e} = -\partial\vec{b}/\partial t$ unter Beachtung der Materialgleichung $\vec{e} = \rho\cdot\vec{j}$ eingesetzt wird. Die Integralgleichung lautet

$$J(r,\omega) = k^2(\omega)\left[\frac{\pi r b_0}{R\mu_0} + \int_0^R Q(r,u)\,J(u,\omega)\,\mathrm{d}u\right]$$

mit

$$k^2 = \frac{i\omega R d\mu_0}{2\pi\rho(\omega)}$$

und dem Integralkern

$$Q(r,u) = -\frac{1}{r}\int_0^{r/u}\left[\frac{K(l)}{1+v} + \frac{E(l)}{1-v}\right] v\,\mathrm{d}v\,.$$

$K(l)$ und $E(l)$ sind vollständige elliptische Integrale erster

$$K(l) = \int_0^{\pi/2} (1 - l \sin^2\theta)^{-1/2} d\theta$$

und zweiter Art

$$E(l) = \int_0^{\pi/2} (1 - l \sin^2\theta)^{1/2} d\theta$$

mit $l^2 = 4v/(1+v)^2$. Damit kann $J(r,\omega)$ nach Eigenfunktionen $f_n(r)$ des Eigenwertproblems

$$f_n(r) = -\Lambda_n \int_0^R Q(r,u)\, f_n(u)\, \mathrm{d}u$$

entwickelt werden. Dies ergibt die Stromdichte $J(r,\omega) = \sum_n a_n(\omega) f_n(r)$ mit

$$a_n(\omega) = \frac{\pi\, k^2}{1 + k^2/\Lambda_n} \int_0^R f_n(r) r^2 \,\mathrm{d}r$$

und damit die Suszeptibilität

$$\chi(\omega) = -\frac{\mu_0}{V b_0} \int_0^R J(r,\omega) r^2 \,\mathrm{d}r\,.$$

Die Eigenwerte sind $\Lambda_n \approx n - 0.123$ für $n = 1, 2, 3, \ldots \infty$. Das Ergebnis für $\chi(\omega)$ ist eine Darstellung als unendliche Reihe von Polen erster Ordnung

$$\chi(\omega) = -k^2 \sum_n \frac{c_n/\Lambda_n}{\Lambda_n + k^2} \tag{3.5}$$

mit

$$c_n = \frac{3\pi^2 \Lambda_n^2}{8} \left[\int_0^1 f_n(r') r'^2 \,\mathrm{d}r' \right]^2 .$$

Die numerische Auswertung von Gl. (3.5) wurde von E.H. Brandt stark vereinfacht, indem er diese Summe unendlich vieler Summanden durch eine endliche Reihe N nichtäquidistanter Polstellen genähert hat. Dazu diskretisiert man die kontinuierlichen Variablen r und u, worauf das Eigenwertproblem der Diagonalisierung einer $N \times N$ Matrix entspricht, welche gegeben ist durch

$$Q_{i \neq j} = k_j^2\, Q\,(u_i, u_j)\,, \quad Q_{jj} = k_j^2 \,\ln \frac{0.92363 k_j^2}{2\pi u_j}\,.$$

Diese Matrix hat genau N Eigenwerte Λ_n und Eigenfunktionen f_n. Durch Einsetzen erhält man die Amplituden c_n. Die Positionen Λ_n und Amplituden c_n sind in der Tab. 3.4 für $N = 30$ angegeben. Mit diesen Zahlen beschreibt

$$\chi(\omega) = -\frac{i\omega R d \mu_0}{2\pi\rho(\omega)} \sum_{n=1}^{N} \frac{c_n/\Lambda_n}{\Lambda_n + i\omega R d\mu_0/2\pi\rho(\omega)} \tag{3.6}$$

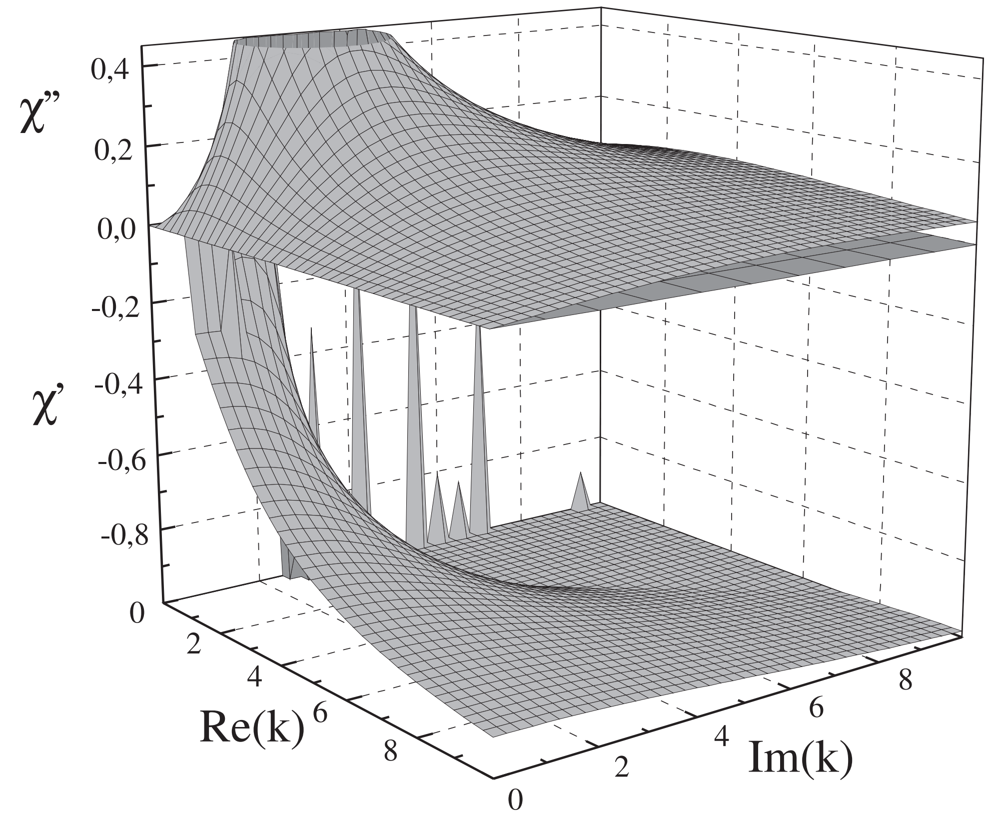


Abb. 3.9: *Suszeptibilität (3.6) eines dünnen Films mit* $\vec{b}_0 e^{i\omega t} \perp$ *Filmebene.*

die frequenzabhängige Suszeptibilität, dargestellt in Abb. 3.9, im Bereich $-0.9994 < \chi' < -0.0001$ und $\chi'' > 0$.

Die Suszeptibilität (3.6) ist gegenüber der vollständigen Abschirmung des langen Zylinders $\chi = -1$ um $8R/(3\pi d)$ erhöht. Diese Überhöhung kann analog dem bekannten Entmagnetisierungsfaktor $N = 1 - \pi d/R$ einer elliptischen Probe verstanden werden. Demnach ist die Suszeptibilität um den Wert $1/(1-N)$ erhöht. Für den langen Zylinder ist $N = 0$, und die gemessene Suszeptibilität nimmt den Wert -1 an. Für die in dieser Arbeit untersuchten Filme variiert die Suszeptibilität in Gl. (3.2) zwischen -3400 und -8400.

Der Ausdruck (3.6) wird im weiteren benutzt, um den dynamischen Widerstand des as-grown Films A, der die Form einer dünnen Scheibe hat, zu berechnen. Analoge Ausdrücke für die Suszeptibilität wurden von E.H. Brandt auch für dünne Filme mit quadratischer Fläche berechnet [65]. Während der funktionale Zusammenhang zwischen dem Widerstand und der Suszeptibilität nach Gl. (3.6) bestehen bleibt, ändern sich die Positionen und Amplituden der Polstellen mit der Form der Filme. Bedingt durch die aufwendigere Geometrie der Ecken des Quadrats liegen die Polstellen hier in äquidistanten Abständen vor. Daher sind in die Tab. 3.4 $N = 90$ Werte für die Polstellen Λ_n und Amplituden c_n aufgenommen worden. Diese werden verwendet, um den Widerstand der as-grown Filme B und C sowie der bestrahlten Filme A und B zu berechnen.

Tab. 3.4: *Position der Polstellen Λ_n und Werte der Amplituden c_n für die Suszeptibilität (3.6) einer dünnen Scheibe (oben) und eines dünnen Quadrats (unten).*

n	Λ_n	c_n	n	Λ_n	c_n	n	Λ_n	c_n
1	0.8768551	0.6355414	11	9.9596476	0.0218315	21	35.055186	0.0773592
2	1.8751352	0.2334135	12	10.652940	0.0246335	22	45.625953	0.0887028
3	2.8725246	0.1380313	13	11.565606	0.0303418	23	61.958086	0.1028391
4	3.8651025	0.0965691	14	12.125054	0.0000002	24	88.782297	0.1210893
5	4.8480195	0.0734911	15	12.775746	0.0357576	25	136.54610	0.1457075
6	5.8147181	0.0585680	16	14.355486	0.0411725	26	231.60502	0.1808932
7	6.7563510	0.0479884	17	16.420935	0.0468693	27	454.24227	0.2354904
8	7.6611613	0.0397497	18	19.151031	0.0530710	28	1131.9155	0.3319354
9	8.5126922	0.0328696	19	22.823289	0.0600117	29	4536.2877	0.5494628
10	9.2858252	0.0264066	20	27.880159	0.0679791	30	81104.991	1.5494668

n	Λ_n	c_n	n	Λ_n	c_n	n	Λ_n	c_n
1	0.8142882	0.5687835	31	8.9578741	0.0007902	61	14.645242	0.0228520
2	1.6995094	0.2424562	32	9.2815684	0.0003103	62	14.669743	0.0001514
3	2.1991756	0.0121936	33	9.3771847	0.0001354	63	14.702706	0.0020112
4	2.6687482	0.1345411	34	9.6401828	0.0324017	64	14.829652	0.0004839
5	3.0030291	0.0121904	35	9.6999812	0.0001458	65	15.024106	0.0001914
6	3.6566777	0.0939480	36	9.7300527	0.0028249	66	15.647485	0.0092533
7	3.9001718	0.0081875	37	9.9240785	0.0006622	67	15.648812	0.0131612
8	4.3812152	0.0018497	38	9.9995193	0.0001345	68	15.701271	0.0019281
9	4.6495133	0.0704376	39	10.217272	0.0003499	69	15.819915	0.0004839
10	4.8400941	0.0059336	40	10.640337	0.0296212	70	16.001798	0.0001966
11	5.0225314	0.0006873	41	10.721028	0.0024373	71	16.652403	0.0221613
12	5.2313415	0.0015362	42	10.776539	0.0001515	72	16.701568	0.0019402
13	5.6454122	0.0563995	43	10.897234	0.0006287	73	16.812352	0.0004618
14	5.7766563	0.0002592	44	11.058022	0.0001062	74	16.983129	0.0001934
15	5.8029861	0.0055671	45	11.163121	0.0002531	75	17.658852	0.0225602
16	6.1288205	0.0012266	46	11.640877	0.0273837	76	17.704181	0.0020157
17	6.4360916	0.0001728	47	11.714279	0.0022773	77	17.807207	0.0003318
18	6.6431838	0.0479946	48	11.874980	0.0005475	78	17.811663	0.0001425
19	6.7749946	0.0040549	49	11.936693	0.0001192	79	17.832249	0.0001057
20	7.0550395	0.0009767	50	12.118941	0.0002299	80	17.968173	0.0001753
21	7.1822063	0.0003764	51	12.441225	0.0001275	81	18.670676	0.0244462
22	7.4648922	0.0003253	52	12.641796	0.0255124	82	18.711913	0.0023768
23	7.6414601	0.0411042	53	12.708942	0.0020923	83	18.809618	0.0006100
24	7.7554028	0.0033626	54	12.857441	0.0005992	84	18.959417	0.0002193
25	7.8501939	0.0001574	55	13.081973	0.0002192	85	19.707243	0.0338786
26	8.0014625	0.0011022	56	13.643251	0.0241013	86	19.717935	0.0001813
27	8.3621184	0.0003131	57	13.705019	0.0019570	87	19.740988	0.0047538
28	8.6406153	0.0363018	58	13.745322	0.0001251	88	19.827818	0.0009745
29	8.7408522	0.0029525	59	13.842201	0.0005389	89	19.966591	0.0003330
30	8.8264182	0.0003074	60	14.050545	0.0001986	90	20.156694	0.0001832

c) Filme mit endlicher Dicke

Die Gültigkeit der $2D$-Inversion ist beschränkt auf dünne Filme, d.h. es muß $|\lambda| > d$ gelten. Diese Einschränkung kann jedoch fallengelassen werden. So erweiterte E.H. Brandt die $2D$-Inversion auf dicke Proben mit beliebigem Verhältnis von Dicke d zu Radius R [66]. Während sowohl für den langen Zylinder wie auch für die dünne Scheibe eine Variation der Stromdichte mit der Dicke vernachlässigt werden konnte, muß eine solche hier zugelassen werden. Der allgemeine Ansatz für die Stromdichte lautet:

$$j(\vec{r},t) = \frac{k^2(\omega)}{Rd}\left[\frac{rb_0}{2\mu_0} + \int_0^R dr' \int_0^d dz' Q(\vec{r},\vec{r}\,')j(\vec{r}\,',t)\right] \tag{3.7}$$

mit

$$k^2 = \frac{i\omega R d\mu_0}{(2\pi + d/R)\rho(\omega)}\,.$$

Der Integralkern ist

$$Q(\vec{r},\vec{r}\,') = f(r,r',z-z') + f(r,r',z+z')$$

mit

$$f(r,r',\eta) = \int_0^\pi \frac{d\varphi}{2\pi}\frac{r'\cos\varphi}{\sqrt{\eta^2 + r^2 + r'^2 + 2rr'\cos\varphi}}\,.$$

Im Grenzfall eines langen Zylinders, $d \gg R$, können die Beiträge der Enden vernachlässigt werden und die Stromdichte wird unabhängig von z. In diesem Fall reproduziert Gl. (3.7) die Diffusionsgleichung (3.3) und das klassische Ergebnis für die Suszeptibilität, Gl. (3.4) [66].

Für ein beliebiges Verhältnis d/R ist die numerische Auswertung von Gl. (3.7) analog zu dem Vorgehen bei dem dünnen Film, wobei die Koordinaten r und z diskretisiert werden. Die Anzahl der Stützstellen in radialer Richtung N_r und longitudinaler Richtung N_z werden entsprechend den räumlichen Dimensionen der Probe gewählt, d.h. $N_z/N_r = d/R$. Das Ergebnis ist auch in diesem Fall eine endliche Reihe, entsprechend Gl. (3.6),

$$\chi(\omega) = -\frac{i\omega R d\mu_0}{(2\pi + d/R)\rho(\omega)}\sum_{n=1}^{N}\frac{c_n/\Lambda_n}{\Lambda_n + i\omega R d\mu_0/((2\pi + d/R)\rho(\omega))} \tag{3.8}$$

mit Eigenwerten Λ_n und Amplituden c_n, die durch das Verhältnis d/R bestimmt sind.

Die Summen (3.6) und (3.8) werden im folgenden benutzt, um den dynamischen Widerstand $\rho(\omega)$ der Filme und des Kristalls kontaktfrei zu bestimmen. Dazu ist es nötig, die beiden Gleichungen zu invertieren, d.h. nach $\rho(\omega)$ als Funktion von $\chi(\omega)$ aufzulösen. Wie in Abb. 3.9 zu erkennen ist, durchläuft χ'' als Funktion von Re(k) und Im(k) ein Maximum, während χ' einen monotonen Verlauf zeigt. Durch letztere Eigenschaft wird

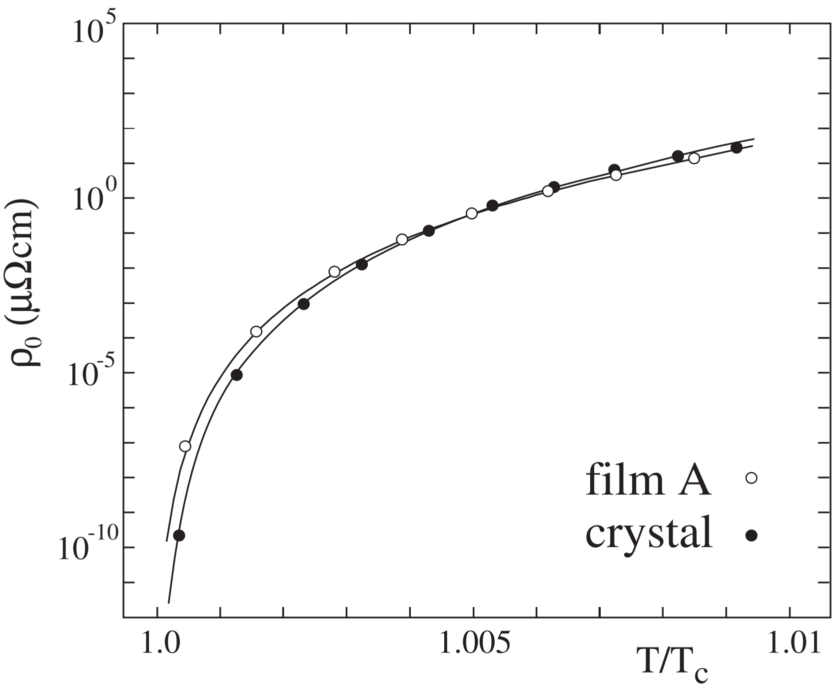


Abb. 3.10: *Statischer Widerstand des Films A und des Kristalls im Nullfeld.*

die Funktion $\chi(\rho)$ eineindeutig und eine Inversion der beiden Gleichungen möglich. Zu diesem Zweck habe ich ein FORTRAN-Programm geschrieben [46], welches bei Eingabe der Frequenz ω und der Suszeptibilität χ den Widerstand ρ numerisch berechnet. Die Genauigkeit der numerischen Inversion beträgt hinsichtlich eines akzeptablen Rechenaufwandes $\delta\chi \equiv |\chi_{exp} - \chi|/\chi_{exp} \approx 10^{-5}$, wenn die experimentelle Suszeptibilität χ_{exp} mit der nach den Gln. (3.6) oder (3.8) berechneten Suszeptibilität verglichen wird.

In der Abb. 3.10 ist der statische Widerstand $\rho(\omega \to 0) \equiv \rho_0$ des Films A und des Kristalls oberhalb der kritischen Temperatur T_c im Nullfeld dargestellt. Für den Film wurde der Widerstand gemäß der $2D$-Inversion ($d \ll \lambda$) nach Gl. (3.6) bestimmt. Für den Kristall wurde den Abmessungen entsprechend, $d = 0.8$ mm und $R = 1$ mm, Gl. (3.7) für $d/R = 1$ gelöst und der Widerstand gemäß Gl. (3.8) berechnet. Als interessantes Ergebnis ist der Widerstand oberhalb T_c trotz der sehr unterschiedlichen Werte der Dicke des Films (200 nm) und des Kristalls (0.8 mm) fast identisch. Die Linien in Abb. 3.10 folgen in beiden Fällen dem Potenzgesetz $\rho_0 \sim (T/T_c - 1)^{7.7}$, siehe auch Gl. (4.4).