

**Tunnelkontakte aus Hochtemperatursupra-
leitern: planare $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ - Kontakte mit
ferromagnetischer Tunnelbarriere und
 $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ - Korngrenzenkontakte**

DISSERTATION

der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Eberhard Karls Universität Tübingen

zur Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

vorgelegt von
ANDREAS STÖHR
aus Freudenstadt

Tübingen
2012

Tag der mündlichen Qualifikation: 13. September 2012
Dekan: Prof. Dr. W. Rosenstiel
1. Berichterstatter: Prof. Dr. Dieter Kölle
2. Berichterstatter: Prof. Dr. Reinhold Kleiner

Kurzfassung

In der vorliegenden Arbeit wurden zwei unterschiedliche aus Hochtemperatursupraleitern aufgebaute Tunnelkontakt-Systeme untersucht, die im Folgenden getrennt voneinander vorgestellt werden.

Teil I der Arbeit handelt von der Untersuchung des *long range proximity effects* (LRPE) an planaren Kontakten aus Trilagen des Kupratsupraleiters $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ und des Halbmetalls $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ (YBCO-LCMO-YBCO-Kontakte). Unter dem LRPE versteht man eine Kopplung der supraleitenden Wellenfunktion über eine ferromagnetische Barriere, die die Längenskala des gewöhnlichen Proximity-Effekts im Ferromagneten ξ_F um mehrere Größenordnungen übertreffen kann. Es existieren verschiedene Theorien für diese langreichweitige Kopplung wie etwa eine Singulett-Triplett-Konversion der Cooper-Paare an der Grenzfläche oder eine Kopplung über die Domänenwände. Im Jahr 2006 gelang es erstmals R.S. Keizer *et al.* einen Josephson-Strom über eine ferromagnetische CrO_2 -Schicht von mehreren 100 nm Länge zu messen [Kei06]. Auch unterschiedliche Systeme des Kupratsupraleiters YBCO und des Halbmetalls LCMO zeigten bereits Merkmale eines LRPE [Kal11, Peñ04]. Die Motivation dieses Projektes war es, den LRPE an planaren YBCO-LCMO-YBCO-Kontakten anhand einer Josephson-Kopplung über die 10-30 nm dicke LCMO-Schicht zu untersuchen. Dafür wurden 17 Proben mittels gepulster Laserablation, HF-Sputtern und Photolithographie mit anschließendem Ionenstrahlätzen hergestellt. Neben der Beschreibung der einzelnen Herstellungsschritte wird besonders auf die relevanten und nötigen Maßnahmen zur Erzeugung einer funktionierenden Trilage eingegangen. Eine erste Charakterisierung der Schichten der Trilage erfolgte hierzu mittels RHEED, XRD, AFM und Suszeptibilitätsmessungen. Transportmessungen an den fertig strukturierten Kontakten zeigten bei einigen Proben einen Josephson-Strom über bis zu

30 nm dicke LCMO-Schichten. Bei Messungen in niedrigen Magnetfeldern wurde der direkte Einfluss der LCMO-Schicht auf das Tunnelverhalten bzw. das Verhalten des kritischen Stromes im Magnetfeld sichtbar. Durch eine nachträgliche Bearbeitung der Kontakte mittels fokussiertem Ionenstrahl wurde ein genaueres Einblick auf den Aufbau der Kontakte ermöglicht und mögliche Kurzschlüsse über kritische Stellen konnten ausgeschlossen werden. Zuletzt zeigten Messungen bei hohen Magnetfeldern bis zu 5 Tesla zwei Oszillationen des kritischen Stroms. Eine große Oszillation mit hoher Modulationstiefe und einer Periode von mehreren Tesla wurde von einer kleineren Oszillation mit einer Periode von wenigen Millitesla überlagert. Als Erklärungsmodell hierfür wurde eine rechteckförmige Suprastromverteilung über die Randbereiche des Kontaktes gewählt.

In **Teil II** wurde mit dem Kuprat $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ (LCCO) ein einzelner Hochtemperatursupraleiter untersucht. Dabei handelt es sich um Messungen des Quasiteilchentunnels über LCCO-Korngrenzkontakte bei Variation der Magnetfeldorientierung. Bereits während einer vorausgegangenen Promotion waren die verwendeten Proben auf das Verhalten des *zero bias conductance peaks* (ZBCP) in hohen Magnetfeldern untersucht worden [Wag08a]. Das Ergebnis dieser Arbeit war eine Modifizierung des B-T-Phasendiagramms von LCCO durch Bestimmung des kritischen Magnetfelds B_{c2} über ein Verschwinden des ZBCP. In [Rah10] wurde die Struktur der LCCO-Filme über Röntgenbeugung und mit Hilfe eines Elektronenmikroskops genauer untersucht. Dabei wurden verschiedene bei der Filmherstellung entstandene LCCO-Minderheitsphasen sowie längliche entlang der Kristallachsen gerichtete Strukturen und Ausscheidungen entdeckt. Die Frage, die sich nun stellte, war, ob diese einen Einfluss auf die ZBCP-Bildung nehmen und dadurch der ZBCP zur B_{c2} -Bestimmung nicht verwendet werden darf. Da das Magnetfeld in [Wag08a] immer senkrecht zur Filmebene gerichtet war, lag die Motivation der folgenden Messungen des Quasiteilchentunnels darin, durch Drehungen des Magnetfeldes den Einfluss der gerichteten Strukturen und Minderheitsphasen auf den ZBCP sichtbar zu machen. Dafür wurde an den vier in [Wag08a] verwendeten Proben das Magnetfeld sowohl in Richtung der Filmebene als auch innerhalb der Filmebene jeweils um 360° gedreht. Als Ergebnis konnte klar gezeigt werden, dass die Bestimmung von B_{c2} über den ZBCP für Magnetfelder senkrecht zur Filmebene richtig war und nicht durch Minderheitsphasen oder Ausscheidungen beeinflusst wurde. Des Weiteren konnten interessante, teilweise nicht erwartete Entdeckungen des ZBCP-Verhaltens im Ma-

gnetfeld gemacht werden. So konnte gezeigt werden, dass die Richtung des Magnetfeldes in Bezug auf die CuO_2 -Ebenen von entscheidender Bedeutung für das Tunnelverhalten und die Bildung des ZBCP ist. Außerdem wird die Entwicklung der Energielücke und der Kohärenzpeaks bei einer Drehung in die Filmebene über die Anisotropie von B_{c2} erklärt. Das wohl erstaunlichste Ergebnis der Messungen allerdings war die starke Abnahme des ZBCP bei einer Drehung des Magnetfeldes in die Filmebene.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Allgemeine Grundlagen	3
2.1	Grundlegende Eigenschaften der Supraleitung	3
2.2	Supraleiter im Magnetfeld	7
2.3	Kupratsupraleiter	10
I	Planare $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ - $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ - $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ Kontakte	19
3	Einleitung Teil I	21
4	Grundlagen	25
4.1	Cooper-Paar-Tunneln	25
4.2	Ferromagnetismus	30
4.3	$\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$	32
4.4	Supraleitung und Ferromagnetismus	34
5	Probenherstellung	41
5.1	Filmherstellung und Charakterisierung	41
5.1.1	Gepulste Laserablation	41
5.1.2	Magnetronspütern	42
5.1.3	RHEED	43
5.1.4	Röntgendiffraktion	46
5.1.5	Rasterkraftmikroskopie	48
5.1.6	Suszeptibilitätsmessungen	51
5.2	Strukturierung	53

5.2.1	3-Punkt-Kontakte	53
5.2.2	4-Punkt-Kontakte	56
6	Messergebnisse	59
6.1	R(T)-Messungen	59
6.2	Niederfeldmessungen	62
6.3	Hochfeldmessungen	72
7	Zusammenfassung Teil I	79
II	La_{2-x}Ce_xCuO₄-Korngrenzkontakte	81
8	Einleitung Teil II	83
9	Grundlagen Quasiteilchentunneln	87
9.1	NIS - Tunnelkontakt	87
9.2	SIS - Tunnelkontakt	88
9.3	Andreev-Reflexion	90
9.4	Zero Bias Conductance Peak	91
10	Probenherstellung und Messtechnik	95
10.1	Probenherstellung	95
10.1.1	Filmherstellung	95
10.1.2	Strukturierung	96
10.1.3	XRD	97
10.1.4	SEM und EDX	98
10.2	Messtechnik	100
10.2.1	Probenhalter und Messstab	100
10.2.2	Magnetkryostat und Temperaturkontrolle	101
10.2.3	Messelektronik	103
11	Messergebnisse	105
11.1	Zusammenfassung von [Wag08a]	105
11.2	c-Achsen-Drehungen	107
11.3	in-plane-Drehungen	118
12	Zusammenfassung Teil II	127
13	Zusammenfassung und Ausblick	129

Anhang	131
A Herstellungparameter der planaren Kontakte	131
B Abkürzungen	139
Literaturverzeichnis	141

Kapitel 1

Einleitung

Bis zum heutigen Zeitpunkt existiert noch immer keine allgemein akzeptierte mikroskopische Theorie für das Phänomen der Hochtemperatursupraleitung. Die wohl am besten untersuchte Gruppe der Hochtemperatursupraleiter stellen die Kuprate dar, deren schichtartiger Aufbau mit den charakteristischen CuO_2 -Ebenen zu stark anisotropen Eigenschaften führt. Ein wichtiges Werkzeug zur Erforschung der intrinsischen Eigenschaften eines Supraleiters sind elektrische Transportmessungen über Tunnelbarrieren. Da als mögliche Ursache der Supraleitung in den Kupraten eine Kopplung über antiferromagnetische Spinfuktuationen vermutet wird, stellen Tunnelkontakte mit einer ferromagnetischen Barriere ein besonders interessantes Materialsystem für die Forschung dar. Wegen ihres Perowskit-ähnlichen Aufbaus ist es möglich, Mehrschichtstrukturen aus Kupraten und Perowskiten, wie dem in dieser Arbeit verwendeten Ferromagneten $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$, durch epitaktisches Wachstum herzustellen. Der erste Teil der Arbeit beschäftigt sich daher mit der Herstellung von planaren $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ - $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ - $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Kontakten (YBCO-LCMO-YBCO-Kontakte) und anschließenden Messungen des Tunneltransports in hohen und niedrigen Magnetfeldern.

Eine Folge der schichtartigen Struktur der Kuprate ist ein stark anisotropes Verhalten in einem angelegten Magnetfeld, welches sich zum Beispiel in der Richtungsabhängigkeit der kritischen Magnetfelder B_{c1} und B_{c2} zeigt. Auch die Tunneleigenschaften der Quasiteilchen hängen von der Richtung des Magnetfeldes ab und werden im zweiten Teil dieser Arbeit an Korngrenzenkontakten des Kupratsupraleiters $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ (LCCO)

untersucht. Um einen besseren Überblick zu bekommen, werden die beiden untersuchten Tunnelkontakt-Systeme in dieser Arbeit getrennt betrachtet. Eine Ausnahme bildet das nun folgende Kapitel, welches die für beide Teile geltenden allgemeinen theoretischen Grundlagen beinhaltet.

Anschließend folgt **Teil I** der Dissertation, beginnend mit einer Beschreibung der speziell auf die Untersuchung der planaren YBCO-LCMO-YBCO-Kontakte angepassten theoretischen Grundlagen. Diese sind das Cooper-Paar-Tunneln, der Ferromagnetismus im Halbmetall $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ und der *long range proximity effect* in Systemen aus Supraleitern und Ferromagneten. Ein besonderes Augenmerk wird bei den planaren Kontakten auf den Herstellungsprozess und die verschiedenen Charakterisierungsschritte gelegt. Das Kapitel der Messergebnisse wird nach Messungen in niedrigen und in hohen Magnetfeldern unterteilt.

Die theoretischen Grundlagen von **Teil II** setzen sich mit den Eigenschaften des Quasiteilchentunnelns und der Entstehung eines *zero bias conductance peaks* auseinander. Im darauffolgenden Kapitel werden die Charakterisierung der LCCO-Filme und die verwendeten Messtechniken beschrieben. Die Messergebnisse im letzten Kapitel werden nach Drehungen des Magnetfeldes innerhalb der Filmebene (in-plane-Drehungen) und senkrecht dazu (c-Achsen-Drehungen) aufgeteilt.

Kapitel 2

Allgemeine Grundlagen

Zum besseren Verständnis der Experimente dieser Arbeit, sollen in diesem Kapitel die allgemeinen theoretischen Grundlagen vermittelt werden. Die speziell auf die Materialien und Versuche der beiden Projekte dieser Arbeit angepassten Grundlagen-Kapitel finden sich jeweils zu Beginn der entsprechenden Abschnitte wieder.

2.1 Grundlegende Eigenschaften der Supraleitung

Die Supraleitung ist ein makroskopisches Quantenphänomen. Sie kann als thermodynamische Phase beschrieben werden, in die bestimmte Materialien bei einer spezifischen Temperatur T_c , in Form eines Phasenüberganges zweiter Ordnung übergehen [Gin50]. Die beiden charakteristischen Merkmale dabei sind:

- sprunghaftes Verschwinden des el. Widerstandes für $T \leq T_c$
- vollständige Verdrängung eines äußeren Magnetfeldes¹ für $B \leq B_{c1}(T)$

Beim Übergang in die supraleitende Phase entsteht aus einem zuvor unkorrelierten Elektronengas ein supraleitendes Kondensat, welches man sich als kohärente Überlagerung aller supraleitenden Ladungsträger vorstellen kann. Eine erste theoretische Beschreibung der mikroskopischen Ursa-

¹Meißner-Ochsenfeld-Effekt

che der Supraleitung in Metallen findet man in der BCS-Theorie [Bar57]. Dort wird die Bildung der sogenannten Cooper-Paare aus gepaarten Elektronen mit entgegengesetzt gerichteten Spins und Impulsen dargestellt. Die energieabsenkende Kopplung zwischen zwei Elektronen wird dabei durch den Austausch virtueller Phononen erreicht. Dieser Austausch erfolgt über die Coulomb-Wechselwirkung mit den, von den schnellen Elektronen ausgelösten, zeitlich retardierten Gitterschwingungen. Die Gesamtheit der Cooper-Paare kann über eine einzige makroskopische Wellenfunktion beschrieben werden:

$$\Psi = \sqrt{n_s} \cdot e^{i\varphi} \quad (2.1)$$

Ψ kann als Ordnungsparameter der Supraleitung verstanden werden [dG66], n_s entspricht der lokalen Cooper-Paar-Dichte und φ stellt die makroskopische Phase dar. In der Ginzburg-Landau-Theorie wird die Gibbsche freie Energiedichte g am Phasenübergang nahe T_c nach dem Ordnungsparameter Ψ entwickelt und liefert zwei für die Supraleitung charakteristische Längen :

- ξ_{GL} : Die GL-Kohärenzlänge ξ_{GL} gibt die kleinst mögliche Länge an, über die die Cooper-Paar-Dichte bzw. Ψ variieren kann.
- λ_L : Die Londonsche Eindringtiefe λ_L gilt als Maß für das exponentielle Abfallen eines Magnetfeldes am Rand eines Supraleiters infolge des Meißner-Ochsenfeld-Effekt.

An der Cooper-Paar-Bildung nehmen im wesentlichen die Elektronen nahe der Fermikante teil². Um den Phononenaustausch zu ermöglichen muss die kinetische Energie durch Umverteilung der Zustände nahe E_F zwar erhöht werden, jedoch wird die Gesamtenergie der Cooper-Paare durch die gewonnene Kondensationsenergie wieder verringert.

Quasiteilchen und Energielücke

Für $T > 0$ existieren immer auch elementare Anregungen aus dem Grundzustand der Cooper-Paare in Form ungepaarter Ladungsträger, die als Quasiteilchen bezeichnet werden. Um ein Cooper-Paar aufzubrechen und zwei Quasiteilchen zu erzeugen ist eine Mindestanregungsenergie von 2Δ erforderlich. Dadurch entsteht im Anregungsspektrum der Quasiteilchen

²etwa ein Promille aller Elektronen

um die Fermi-Energie eine Energielücke von Δ . Die Größe von Δ ist proportional zur Cooper-Paar-Dichte n_s . Für die Energie eines Quasiteilchens gilt:

$$E_{QT}(\vec{k}) = \pm \sqrt{\epsilon(\vec{k})^2 + |\Delta(\vec{k})|^2}, \quad (2.2)$$

Die Energien stehen immer relativ zur Fermi-Energie. ϵ steht für die Energie der Elektronen vor dem Übergang in die supraleitende Phase. Im Bereich um die Fermi-Energie gilt zwischen der Quasiteilchen-Zustandsdichte N_{QT} und der Zustandsdichte im normalleitenden Zustand N_n für $|\epsilon| \geq \Delta$ folgende Beziehung:

$$N_{QT}(\epsilon) = N_n(0) \frac{|\epsilon|}{\sqrt{\epsilon^2 - \Delta^2}} \quad (2.3)$$

Symmetrie des Ordnungsparameters

Die Symmetrie der Paarwellenfunktion (Ordnungsparameter) im k -Raum kann unterschiedliche Formen annehmen. Da Cooper-Paare aus jeweils zwei Fermionen bestehen, muss ihre Gesamtwellenfunktion bezüglich der Vertauschung der beiden Fermionen antisymmetrisch sein. Bei fast allen bekannten Supraleitern bestehen die Cooper-Paare aus antisymmetrischen Spin-Singulett Paaren mit einem Gesamtspin von $S=0$. Infolge dessen muss die Ortswellenfunktion symmetrisch sein und darf nur gerade Werte der Gesamtdrehimpulsquantenzahl annehmen.

Vor allem bei den elementaren Supraleitern stellt die s -Welle³ mit $L=0$ den energetisch günstigsten Zustand dar. Bei der isotropen s -Welle ist der Ordnungsparameter und die Phase im k -Raum konstant. Bei Übergang in die supraleitende Phase wird somit nur die Eichsymmetrie gebrochen. Man bezeichnet dies auch als *konventionelle Supraleitung*.

Unkonventionelle Supraleitung liegt dann vor, wenn außer der Eichsymmetrie noch weitere Symmetrien gebrochen werden [Tsu00]. Hier können Amplitude oder Phase des Ordnungsparameters von der Richtung im k -Raum abhängen. Bei den meisten Kupratsupraleitern stellt sich aufgrund ihres perowskitartigen Aufbaus mit CuO_2 -Ebenen eine $d_{x^2-y^2}$ -Wellen-Symmetrie ($L=2\hbar$) als energetisch günstigste Variante ein⁴. Bei ihr wechselt die Phase bei einer 90° Drehung im k -Raum das Vorzeichen. Außerdem können

³Bezeichnung in Anlehnung an die Orbitalphysik der Atome

⁴bei manchen Kupraten, z.B. YBCO, wird noch von einer kleinen Beimischung der s -Wellensymmetrie ausgegangen

in bestimmte k -Raum-Richtungen auch Quasiteilchen ohne Mindestanregungsenergie erzeugt werden. Dies führt zu Quasiteilchen-Anregungen innerhalb der Energielücke, was eine V-förmige Quasiteilchen-Zustandsdichte zur Folge hat. Im Vergleich zur s -Welle ist bei der d -Welle die Aufenthaltswahrscheinlichkeit zweier Elektronen am gleichen Ort kleiner. Abbildung 2.1 veranschaulicht die beiden am weitesten verbreiteten Ordnungssymmetrien der s - und d -Welle mit den entsprechenden dazugehörigen Quasiteilchen-Zustandsdichten [Kas00]. Diese werden ermittelt durch Integration der Anregungsenergien über alle möglichen Richtungen des k -Raums. $N_n(E)$ steht für die Quasiteilchen-Zustandsdichte in der normalleitenden Phase im Bereich der Fermi-Energie. Da nur ein kleiner Abschnitt um die Fermi-Energie betrachtet wird kann näherungsweise $N_n(E) = N_n(E_F)$ angenommen werden.

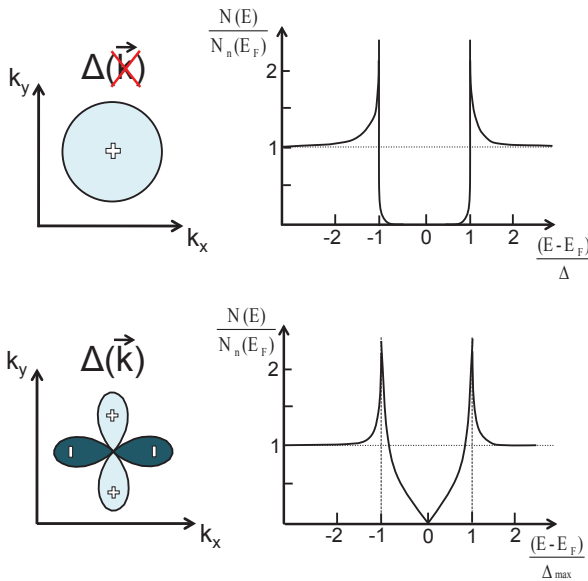


Abbildung 2.1:
oben: s -Wellen-Symmetrie mit U-förmiger normierter Quasiteilchen-Zustandsdichte.
 $\Psi(\varphi) = \Psi_0$
unten: $d_{x^2-y^2}$ -Wellen-Symmetrie mit V-förmiger Quasiteilchen-Zustandsdichte.
 $\Psi(\varphi) = \Psi_0 \cos(2\varphi)$

2.2 Supraleiter im Magnetfeld

Neben dem widerstandslosen Stromtransport ist der perfekte Diamagnetismus eine weitere charakteristische Eigenschaft eines Supraleiters. Bis zu einem bestimmten kritischen Magnetfeld befindet sich ein Supraleiter in der Meißner-Phase und versucht sein Inneres feldfrei zu halten. Dies gelingt, indem an der Oberfläche supraleitende Abschirmströme erzeugt werden, die dem äußeren Feld entgegenwirken. Im Bereich dieser Abschirmströme kann das Feld auf einer charakteristischen Länge, der Londonschen Eindringtiefe λ_L , in den Supraleiter eindringen und fällt vom Rand exponentiell ab (Abbildung 2.2 links). Für λ_L gilt:

$$\lambda_L = \sqrt{\frac{m_s}{\mu_0 q_s^2 n_s}} \quad (2.4)$$

m_s , q_s und n_s entspricht jeweils der Masse, Ladung und Dichte der supraleitenden Ladungsträger. Aus der Variation von n_s mit der Temperatur folgt die Temperaturabhängigkeit von λ_L :

$$\lambda_L(T) = \lambda_L(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_c} \right)^4 \right]^{-\frac{1}{2}} \quad (2.5)$$

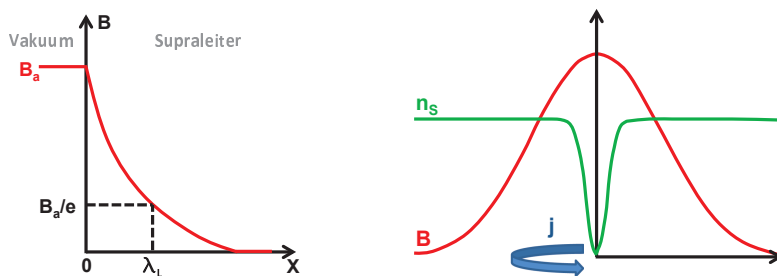


Abbildung 2.2: links: Londonsche Eindringtiefe in der Meißner-Phase am Rand eines Typ-1-Supraleiters.

rechts: Abrikosov-Vortex in der Shubnikov-Phase eines Typ-2-Supraleiters.

Gemäß ihres Verhaltens im Magnetfeld, lassen sich Supraleiter in zwei Klassen einteilen. Charakterisiert werden diese Supraleiter erster oder zweiter Art über den Ginzburg-Landau-Parameter $\kappa = \lambda_L/\xi_{GL}$:

- **Typ-1-Supraleiter** mit $\kappa \leq 1/\sqrt{2}$:
Oberhalb von B_c wird ein Typ-1-Supraleiter normalleitend⁵, da die Bildung einer supra-/normalleitenden Grenzschicht für ihn energetisch ungünstig ist⁶. B_c entspricht hier dem thermodynamischen kritischen Feld $B_{c,th}$, welches dann erreicht ist, wenn die Energie zur Feldverdrängung gerade der Differenz der freien Energien von normal- und supraleitendem Zustand entspricht. Da die Verdrängungsenergie proportional zu B_c^2 ist, spricht man auch von der Meißner-Parabel. Für die Temperaturabhängigkeit von B_c gilt näherungsweise:

$$B_c(T) = B_c(0) \cdot \left[1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^2\right]$$

- **Typ-2-Supraleiter** mit $\kappa \geq 1/\sqrt{2}$:
Da hier die Bildung einer supra-/normalleitenden Grenzschicht energetisch günstiger ist, dringt oberhalb des unteren kritischen Feldes B_{c1} ein Magnetfeld in Form von quantisierten Flussschläuchen in den Supraleiter ein. Diese werden als Abrikosov-Vortizes bezeichnet, haben einen normalleitenden Kern mit einem Durchmesser von $2\xi_{GL}$ und sind quantisiert mit dem magnetischen Flussquant $\Phi_0 \approx 2,07 \cdot 10^{-15}$ Wb. Erst bei Erreichen des oberen kritischen Feldes B_{c2} geht ein Typ-2-Supraleiter in den normalleitenden Zustand über. Der als Shubnikov-Phase bezeichnete Zwischenzustand für $B_{c1} < B < B_{c2}$ unterscheidet sich bei den verschiedenen Typ-2-Supraleitern noch einmal drastisch (siehe Abschnitt Kupratsupraleiter). Anschaulich ist B_{c2} erreicht, wenn der Abstand der Vortizes kleiner als ξ_{GL} wird und lässt sich bestimmen zu: $B_{c2} = \phi_0 / (2\pi\xi_{GL}^2)$

Unter Einbeziehung der Ginzburg-Landau-Theorie lässt sich für $\kappa \gg 1$ ein quantitativer Zusammenhang zwischen den kritischen Magnetfeldern B_{c1} , B_{c2} und $B_{c,th}$ herstellen [Buc04]:

$$B_{c1} = \frac{1}{2\kappa} (\ln(\kappa) + 0,08) B_{c,th} \quad (2.6)$$

$$B_{c2} = \sqrt{2}\kappa B_{c,th} \quad (2.7)$$

⁵Geometrische Effekte des Supraleiters können dazu führen, dass auch schon vor Erreichen von B_{c1} normalleitende Bereiche existieren

⁶größerer Wert von ξ_{GL} bedeutet mehr Verlust an Kondensationsenergie, kleinerer Wert von λ_L bedeutet mehr benötigte Feldverdrängungsenergie

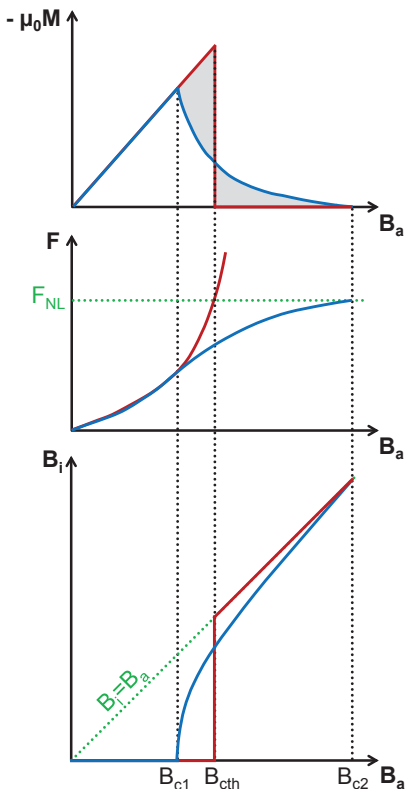


Abbildung 2.3: Magnetisierung M , freie Energie F und inneres Magnetfeld B_i eines Typ-1-Supraleiters (rot) und eines Typ-2-Supraleiters (blau) in Abhängigkeit des äußeren Magnetfeldes B_a . Der Übergang vom supraleitenden in den normalleitenden Zustand bei $B_{c,th}$ ist ein Phasenübergang 1. Ordnung bei dem das Magnetfeld sprunghaft in den Supraleiter eindringt. Die Übergänge in den normalleitenden Zustand bei T_c und B_{c2} hingegen sind Phasenübergänge 2. Ordnung, da hier die Cooper-Paar-Dichte stetig gegen null geht und daher kein Sprung der Entropie stattfindet.

Mit wachsendem κ wächst also auch der Abstand zwischen B_{c1} und B_{c2} .⁷ Zwei weitere kritische Felder sollten noch beachtet werden. An der Oberfläche des Supraleiters, bis zu einer Tiefe von ξ_{GL} , kann ein drittes Feld B_{c3} existieren unterhalb dessen die supraleitende Phase noch vorliegt [dG66]. Ab einem paarbrechenden kritischen Feld B_p wird die Zeeman-Aufspaltung so groß, dass die Spin-Singulett-Kopplung der Cooper-Paare zerstört wird.

$$B_{c3} \approx 1,7 \times B_{c2} \quad (2.8)$$

$$B_p \approx 1,84 \times T_c \quad (2.9)$$

⁷Die Bestimmung von B_{c1} und B_{c2} über λ_L und ξ_{GL} wird im Abschnitt der Kuprat-supraleiter im Magnetfeld erläutert.

2.3 Kupratsupraleiter

Erst 75 Jahre nach Entdeckung der Supraleitung in Quecksilber gelang J.G. Bednorz und K.A. Müller im Jahre 1986 die Entdeckung der Supraleitung in der Kuprat-Verbindung $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ [Bed86], wofür sie ein Jahr später mit dem Nobelpreis ausgezeichnet wurden. Zu diesem Zeitpunkt lag die höchste Sprungtemperatur noch bei 23 Kelvin im metallischen Supraleiter Nb_3Ge . Nur wenige Jahre später war bereits eine Vielzahl von Kuprat-Verbindungen mit Sprungtemperaturen von über 77 Kelvin bekannt, was eine Kühlung mit flüssigem Stickstoff möglich machte. Aufgrund dieser Eigenschaft spricht man bei den Kupraten auch von Hochtemperatursupraleitern (kurz HTSL-Kuprate). Im folgenden Abschnitt werden die besonderen Eigenschaften der Kuprate näher erläutert. Besonderes Augenmerk soll dabei auf die in dieser Arbeit verwendeten HTSL-Kuprate $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$ (LCCO) und $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (YBCO) gelegt werden.

Aufbau der Kuprate

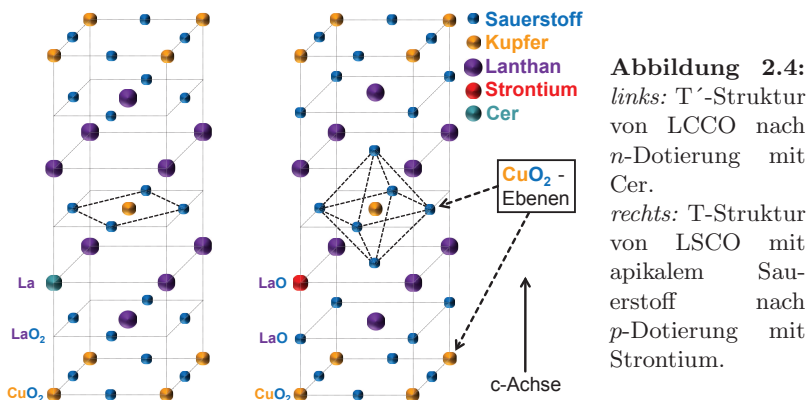
Kuprate besitzen eine tetragonal oder orthorhombische Kristallstruktur mit einem perowskitartigen Aufbau. Aufgrund ihrer keramischen Zusammensetzung sind sie im Vergleich zu konventionellen Supraleitern wie z.B. Niob sehr spröde, was die praktische Anwendung in vielen Bereichen erschwert. Die Schichtstruktur der Kuprate besteht aus senkrecht in c-Achsenrichtung übereinander gestapelten CuO_2 -Ebenen, welche durch isolierende Zwischenschichten getrennt sind. Die Supraleitung findet in diesen zweidimensionalen CuO_2 -Ebenen statt, was zur Folge hat, dass die supraleitenden Eigenschaften der Kuprate stark anisotrop sind. Die Zwischenschichten dienen dabei als Ladungsträgerreservoir. Über den Einbau von Fremdatomen durch entsprechende Dotierung kann über sie die Ladungsträgerdichte in den CuO_2 -Ebenen verändert werden [Lee06c].

Dünnschichten aus Kupraten werden durch epitaktisches Wachstum auf einem Substrat mit entsprechend passendem Kristallaufbau erzeugt. Aufgrund seines perowskitartigen Aufbaus mit einer Gitterkonstante von 0,39 nm eignet sich SrTiO_3 hervorragend als Substratmaterial für LCCO und YBCO. Alle in dieser Arbeit gemessenen Proben waren daher auch auf STO-Substraten mittels gepulster Laserablation oder Molekularstrahlepitaxie hergestellt worden. Genauere Informationen zur Dünnschichtherstellung auf STO-Substraten finden sich in [McC89],[Lec03] oder [Pis05].

$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ und $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$

Die Kupratsupraleiter LSCO und LCCO stellen aufgrund ihres vergleichsweise einfachen Aufbaus ein Musterbeispiel der Kupratsupraleiter dar. Sie entstehen durch Dotierung der Verbindung La_2CuO_4 mit Strontium oder Cer. Wegen der stöchiometrischen Zusammensetzung von Lanthan, Kupfer und Sauerstoff werden sie auch als 2-1-4-Kuprate bezeichnet.

Im **undotierten Fall** ist La_2CuO_4 ein antiferromagnetischer Mott-Isolator [Sca95]. Die CuO_2 -Ebenen sind aufgebaut aus den einfach besetzten $3d_{x^2-y^2}$ Orbitalen des Kupfers und den zweifach besetzten $2p$ -Orbitalen des Sauerstoffs. Durch p - d -Hybridisierung entsteht zwischen beiden eine kovalente Bindung. Trotz halb gefülltem Energieband bleiben die CuO_2 -Ebenen ohne Dotierung isolierend, da die Elektronen aufgrund ihrer starken Coulomb-Abstoßung am Kupfer lokalisiert bleiben. Ursache der antiferromagnetischen Ordnung sind virtuelle Hüpfprozesse der Elektronen, deren Spins sich gemäß dem Pauli Prinzip antiparallel einstellen.



Die Dotierung der Kuprate lässt sich unterscheiden durch die Art der supraleitenden Ladungsträger, die in der CuO_2 -Ebene erzeugt werden. Bei Elektronen spricht man von Elektronendotierung, bei Löchern von Lochdotierung. Im normalleitenden Bereich zeigen lochdotierte Kuprate in der Regel eine lineare Temperaturabhängigkeit des spezifischen Widerstandes. Elektronendotierte hingegen zeigen eine quadratische Abhängigkeit für den Temperaturbereich $T_c \leq T \leq T_{2d}$, wobei T_{2d} die Temperatur darstellt, unterhalb derer das 2-dimensionale Verhalten der CuO_2 -Ebenen sichtbar wird. Nach [Tsu89] lässt sich über das Modell einer Fermi-Flüssigkeit die

Elektron-Elektron-Streuung in den CuO_2 -Ebenen beschreiben und es gilt bei elektrondotierten Kupratsupraleitern:

$$\rho(T) = \rho_0 + \text{const} \cdot T^2 \quad (2.10)$$

Im Fall von La_2CuO_4 sind sowohl Loch- als auch Elektrondotierung möglich:

- **Lochdotierung:** Wird dreiwertiges Lanthan La^{3+} durch zweiwertiges Strontium Sr^{2+} ersetzt, so nehmen die Sr^{2+} -Atome von den O^{2-} -Ionen der CuO_2 -Ebene Elektronen auf und die CuO_2 -Ebene wird lochdotiert. Dadurch wird die antiferromagnetische Ordnung der Spins gestört und die Neel-Temperatur nimmt ab. Ab einem bestimmten Dotierungswert beginnt die supraleitende Phase mit einer maximal möglichen Sprungtemperatur von ca. 40 Kelvin. In der Einheitszelle bilden sich CuO_6 -Oktaeder mit dem charakteristischen apikalen Sauerstoff der T-Struktur.
- **Elektrondotierung:** Wird dreiwertiges Lanthan La^{3+} durch vierwertiges Cer Ce^{4+} ersetzt, so geben die Ce^{4+} Atome Elektronen an die CuO_2 -Ebene ab und sie wird elektrondotiert. Die Spinordnung wird hier durch das Auffüllen der d -Orbitale des Kupfers gestört und die Neel-Temperatur nimmt mit steigender Dotierung ab, allerdings langsamer als bei Lochdotierung. Supraleitendes LCCO bildet die T'-Struktur, bei der im Gegensatz zur T-Struktur von LSCO apikaler Sauerstoff fehlt [Tok89]. Die maximal mögliche Sprungtemperatur liegt bei etwa 30 Kelvin.

Die Dotierung lässt sich durch das T-x-Phasendiagramm in Abbildung 2.5 veranschaulichen. Die antiferromagnetische Phase erstreckt sich weit in den elektrondotierten Bereich, bis sie dann allmählich in die supraleitende Phase übergeht. Im lochdotierten Bereich fällt sie hingegen sehr schnell ab und bis zur supraleitenden Phase bildet sich ein Bereich, der als Pseudogap-Bereich bezeichnet wird. Hier ist auch bis zu einer bestimmten von der Dotierung abhängigen Temperatur über T_c noch eine Energielücke im Tunnelspektrum sichtbar. Die Existenz eines Pseudogaps im unterdotierten Bereich von LSCO wurde in [Yul07] gezeigt. Mögliche Ursache des Pseudogaps könnten nicht phasenkohärente Cooper-Paare oder ein anderer mit der Supraleitung konkurrierender Ordnungszustand sein [Nor05]. Nach [Wag08b] existiert in LCCO keine solche Pseudogap-Phase aber durch den um die Korngrenze resistiv werdenden Film kann ein Pseudogap vorgetäuscht werden. Die optimale Dotierung mit maximalem T_c beträgt $x = 0,16$ bei LSCO und $x = 0,1$ bei LCCO.

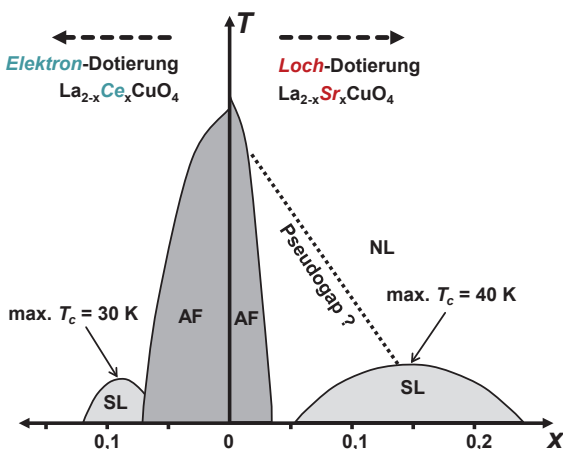


Abbildung 2.5: T-x-Phasendiagramm von LCCO und LSCO. AF = antiferromagnetische Phase, SL = supraleitende Phase, NL = normale leitende Phase

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$

Der wohl bekannteste und am meisten untersuchte Kupratsupraleiter ist das 1987 von Wu et al. entdeckte $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [Wu87]. Supraleitendes $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ entsteht durch Dotierung des antiferromagnetischen Mott-Isolators $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_6$ mit Sauerstoff. Die maximal mögliche Sprungtemperatur von 92 Kelvin wird bei einer Dotierung von $\delta = 0,05$ erreicht. Die Einheitszelle von optimal dotiertem YBCO ist in Abbildung 2.6 links dargestellt. Supraleitung findet in den jeweils durch ein Yttrium-Atom getrennten CuO_2 -Ebenen statt. Im oberen und unteren Bereich der in c-Achsenrichtung orientierten Einheitszelle⁹ befinden sich in Richtung der b-Achse verlaufende CuO -Ketten. Die Cu-Atome der CuO_2 -Ebene bilden mit den umgebenden Sauerstoff Atomen eine Tetraeder-Struktur. Die in die CuO -Ketten durch Dotierung eingebauten Sauerstoff Atome ziehen Elektronen aus den CuO_2 -Ebenen ab. Daher ist $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ wie LSCO ein lochdotierter Kupratsupraleiter.

Die rechte Abbildung stellt schematisch die Änderung von Kristallachsenlänge und Sprungtemperatur mit der Sauerstoff-Dotierung δ dar. Die nicht supraleitende tetragonale Phase bildet sich für eine Dotierung von

⁸oft wegen der stöchiometrischen Zusammensetzung von Y, Ba und Cu auch als YBCO-123 bezeichnet

⁹entscheidend für c-Achsen orientiertes Wachstum ist eine Substrattemperatur von über 700°C sowie ein Sauerstoff-Partialdruck von 0,1 bis 0,3 mbar

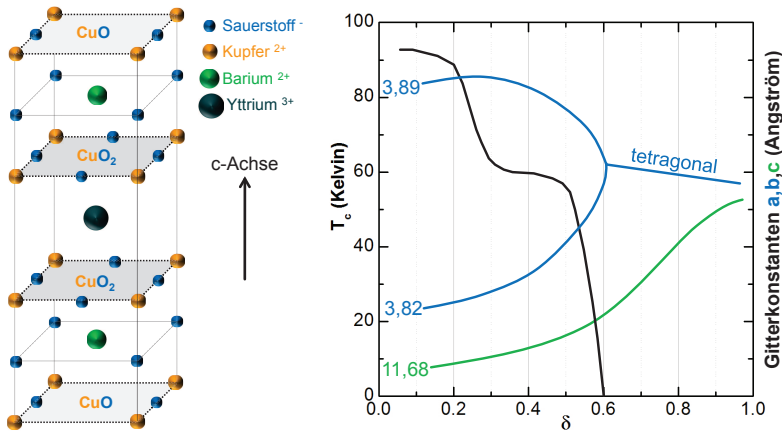


Abbildung 2.6: links: Einheitszelle von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, rechts: Sauerstoff-Dotierung von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ schematisch nach [Jor90]

1 bis 0,6. Ab einer Dotierung von $\delta = 0,6$ beginnt die Phasenumwandlung in die orthorhombische Struktur und YBCO fängt an supraleitend zu werden. Die Sprungtemperatur steigt dann für kleinere Werte von δ mit einem kurzen Plateau bei ca 60 Kelvin immer weiter an, bis sie den maximalen T_c -Wert von 92 Kelvin bei $\delta = 0,05$ erreicht [Jor90]. Da bei $\delta = 0$ alle Sauerstoff-Plätze der CuO-Ketten aufgefüllt sind, ist eine noch höhere Dotierung nicht möglich. Bei optimaler Dotierung bildet sich YBCO mit den Gitterkonstanten $a = 0,3823$ nm, $b = 0,3887$ nm und $c = 1,168$ nm. Daher eignet sich das in kubischer Perowskit-Struktur aufgebaute STO mit einer Gitterkonstante von 0,3905 nm besonders gut als Substratmaterial zum epitaktischen Wachstum.

	λ	ξ	κ	$B_{c1}(0)$	$B_{c2}(0)$
senkrecht zur c-Achse	150 nm	1,6 nm	90	53 mT	650 T
parallel zur c-Achse	800 nm	0,3 nm	2300	520 mT	140 T

Tabelle 2.1: Anisotrope Materialeigenschaften von YBCO-123 aus [Mar05] und [Ish98].

Der stapelförmige Aufbau von YBCO-123 führt zu stark anisotropen Materialeigenschaften (Tabelle 2.1). Diese können über einen Anisotropiepa-

parameter, der aus dem Quotienten der beiden Kohärenzlängen (oder Eindringtiefen) gebildet wird, beschrieben werden. Für $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ hat dieser etwa den Wert 5. Grund dafür ist die mehr oder weniger starke Kopplung zwischen den supraleitenden CuO_2 -Ebenen. Dies führt auch zu den großen Unterschieden in den kritischen Magnetfeldstärken für Magnetfelder parallel und senkrecht zur c -Achse.

Kupratsupraleiter im Magnetfeld

Bei Kupratsupraleitern mit schwach gekoppelten CuO_2 -Ebenen kann ein Magnetfeld in Form von Josephson-Vortizes zwischen den CuO_2 -Ebenen, und Abrikosov-Vortizes innerhalb der CuO_2 -Ebenen des Supraleiters verlaufen. Die in c -Achsenrichtung ausgerichteten Abrikosov-Vortizes¹⁰ sind dann über die in ab -Richtung verlaufenden Josephson-Vortizes schwach miteinander gekoppelt.

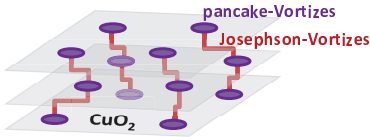


Abbildung 2.7: Pancake-Vortizes innerhalb der CuO_2 -Ebenen und deren Kopplung über Josephson-Vortizes.

Unter Einbeziehung der Ginzburg-Landau-Theorie lassen sich die kritischen Magnetfelder für $\kappa \gg 1$ auch rechnerisch bestimmen [Mar05].

$$B_{c1\parallel} = \frac{\Phi_0}{4\pi\lambda_{ab}^2} \cdot \left(\ln \left(\frac{\lambda_{ab}}{\xi_{ab}} \right) + 0,5 \right) \quad (2.11)$$

$$B_{c1\perp} = \frac{\Phi_0}{4\pi\lambda_{ab}\lambda_c} \cdot \left(\ln \left(\frac{\lambda_{ab}\lambda_c}{\xi_{ab}\xi_c} \right)^{\frac{1}{2}} + 0,5 \right) \quad (2.12)$$

$$B_{c2\parallel} = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_{ab}^2} \quad (2.13)$$

$$B_{c2\perp} = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_{ab}\xi_c} \quad (2.14)$$

Wie am Beispiel von YBCO schon gezeigt, unterscheiden sich Kupratsupraleiter in ihrem Verhalten im Magnetfeld sehr von den konventionellen Supraleitern. Neben den stark anisotropen Eigenschaften durch den

¹⁰ Aufgrund der Form des Magnetfelds und der Abschirmströme in den CuO_2 -Ebenen spricht man auch von *pancake-Vortizes*

Kristallaufbau sind hier vor allem die kleinen Werte der Kohärenzlänge entscheidend¹¹.

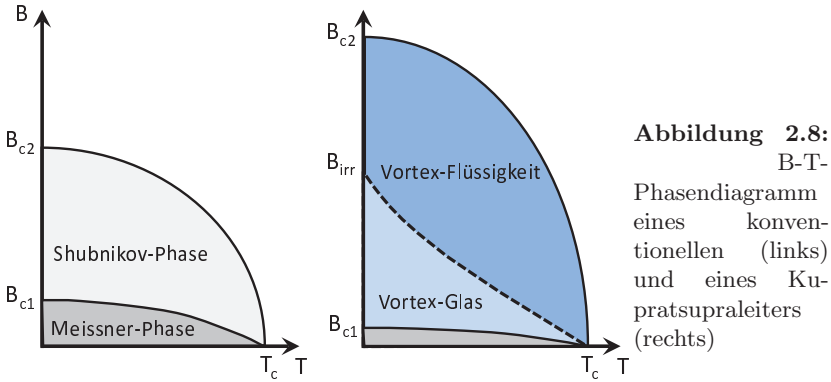


Abbildung 2.8:
B-T-
Phasendiagramm
eines konventionellen (links)
und eines Kupratsupraleiters
(rechts)

Betrachtet man einen konventionellen Typ-2-Supraleiter wie beispielsweise Niob, so dringen in der Shubnikov Phase für $B_{c2} > B > B_{c1}$ Flussschläuche in den Supraleiter ein. Diese Flussschläuche werden in einem realen Typ-2-Supraleiter durch vielfach vorhandene Störstellen, die als Haftpotentiale dienen, festgehalten¹². Dadurch wird bis zu einem Magnetfeld knapp unterhalb von B_{c2} die Bewegung der Flussschläuche durch eine vom angelegten Strom erzeugte Lorentzkraft unterdrückt. Ein Widerstand durch *flux flow* fällt also nicht ab, allerdings kann es teilweise trotzdem noch zu einem, als *flux creep* bezeichneten, Kriechen der Flussschläuche zwischen den Störstellen kommen.

Bei Typ-2-Supraleitern wie den Kupraten mit kleinen Kohärenzlängen spielen Fluktuationseffekte, die bei den konventionellen Typ-2-Supraleitern noch vernachlässigbar waren, eine entscheidende Rolle. Sie führen dazu, dass in der Shubnikov-Phase weitere Vortex-Phasen gebildet werden und der resistive Übergang unterhalb von B_{c2} stark verbreitert wird [Bla94]. Man unterscheidet zwischen einer Vortex-Glas-Phase und einer Vortex-Flüssigkeits-Phase. In der Vortex-Glas-Phase liegt eine statische Vortex-Verteilung vor und ein Spannungsabfall durch die Bewegung der Flussschläuche ist nicht möglich. Knapp unterhalb der Irreversibilitäts-Kennlinie beginnt die statische Vortex-Verteilung zu schmelzen und der Film wird resistiv. Oberhalb der Irreversibilitäts-Kennlinie ist die Magnetisierung dann

¹¹ ξ von Niob beträgt ca. 40 nm, ξ_{ab} von YBCO nur 1,6 nm

¹²auch als *pinning* bezeichnet

vollständig reversibel und der Supraleiter befindet sich in der Vortex-Flüssigkeits-Phase in der durch einen angelegten Strom ein Flux-Flow-Widerstand abfällt. Aus diesem Grund ist die Bestimmung von $B_{c2}(T)$ über $R(T)$ und $R(B)$ -Messungen keine gute Methode [Wag08a].

Mechanismus der Kupratsupraleitung

Bis zum jetzigen Zeitpunkt konnte die Natur des Paarungsmechanismus in den Kupraten noch nicht geklärt werden. Während in der konventionellen Supraleitung die Elektron-Phonon-Kopplung im Sinne der BCS-Theorie als gesichert gilt, sind die hohen T_c -Werte der Kuprate schwer über eine durch Phononen vermittelte Wechselwirkung zu erklären. Die attraktive Wechselwirkung der Elektronen über Phononen ist durch die entsprechende Debye-Frequenz nach oben beschränkt. Bei Nb beträgt die dadurch maximale Kopplungsenergie beispielsweise 21 meV. Dennoch gibt es Veröffentlichungen wie z.B. [Lee06a] die dies als Ursache vorschlagen. Eine erste theoretische Beschreibung der Hochtemperatursupraleitung findet man in der Resonating-Valence-Bond-Theorie von P.W. Anderson [And87]. Später wurde vielfach versucht, die Kopplung der Elektronen über einen magnetischen Paarungsmechanismus durch Spinfluktuationen zu erklären [Mon91]. Über die Austauschwechselwirkung in der Größenordnung von 100 meV wären so höhere Bindungsenergien und dadurch auch höhere Sprungtemperaturen möglich. Die $d_{x^2-y^2}$ -Symmetrie, die sowohl für loch- als auch für elektrondotierte Kupratsupraleiter mittlerweile als gesichert gilt¹³, unterstützt diese Art der Kopplung [Sca95]. Da die Spin-Wechselwirkung nur sehr kurzreichweitig ist, liefert sie auch eine Erklärung für die kurzen Kohärenzlängen in Kupratsupraleitern [Man11].

¹³Hinweise deuten auf eine leichte Beimischung der s -Wellen-Symmetrie hin [Lee06b, M6B99]

Teil I

Planare $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ - $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ - $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ Kontakte

Kapitel 3

Einleitung Teil I

Motivation

In einer ersten Betrachtung erscheinen Supraleitung und Ferromagnetismus als zwei Ordnungsphänomene, die sich gegenseitig ausschließen. Der Ferromagnetismus ist gekennzeichnet durch eine parallele Ausrichtung der magnetischen Momente unterhalb der materialspezifischen kritischen Temperatur T_{Curie} . Ursache dafür sind quantenmechanische Austauschwechselwirkungen, die zu einer Energieabsenkung des Systems bei paralleler Spinausrichtung führen. Bei der konventionellen Supraleitung kommt es unterhalb der kritischen Temperatur T_c zur Bildung von Cooper-Paaren mit antiparallel ausgerichteten Spins. Die energieabsenkende Kopplung zweier Ladungsträger zur Bildung eines Cooper-Paars wird bei konventionellen Supraleitern über Gitterschwingungen vermittelt [Bar57]. Im Falle von Hochtemperatursupraleitern ist die Wechselwirkung, die für die hohen Sprungtemperaturen verantwortlich ist, auch mehr als 20 Jahre nach ihrer Entdeckung noch immer nicht eindeutig geklärt. Als wahrscheinlichste Ursache wird bisher ein magnetischer Paarungsmechanismus über Spinfluktuationen vermutet [Mon91]. Diese Theorie wird besonders durch die Nähe verschiedener magnetischer Phasen zur supraleitenden Phase in den Phasendiagrammen der Hochtemperatursupraleiter unterstützt. Mehrschichtsysteme aus Kupratsupraleitern, der größten Gruppe der Hochtemperatursupraleiter, und Ferromagneten sind daher ein interessantes System um neue Erkenntnisse über das Zusammenspiel von Magnetismus und Supraleitung zu gewinnen.

Eine schon länger bekannte Eigenschaft der Grenzfläche zwischen einem Supraleiter und einem Ferromagneten ist die exponentielle Abnahme und Oszillation der supraleitenden Wellenfunktion beim Eindringen in den Ferromagneten im Bereich der Kohärenzlänge ξ_F . Diese Kohärenzlänge ξ_F liegt bei starken Ferromagneten im Bereich von nur wenigen Angström, während sie bei schwachen Ferromagneten mehrere Nanometer betragen kann. Aufgrund dieses Proximity-Effekts lassen sich wahlweise 0- oder π -Josephsonkontakte bei entsprechender Dicke einer schwach ferromagnetischen Zwischenschicht herstellen [Buz82, Bul77, Rya01]. Im Jahre 2006 gelang es R.S. Keizer *et al.*, einen Josephson-Strom über eine ferromagnetische CrO_2 -Schicht von mehreren 100 nm zu messen [Kei06]. Die supraleitenden Elektroden waren dabei aus NbTiN. Eine solche Josephson-Kopplung über Längen weit größer als ξ_F wird als Long Range Proximity Effekt (kurz LRPE) bezeichnet und muss vom gewöhnlichen Proximity Effekt unterschieden werden [Ber05]. Im Laufe der letzten Jahre wurden viele theoretische Beschreibungen des LRPE veröffentlicht. Einige gehen von einer Kopplung über die Domänenwände durch gekreuzte Andreev-Reflexionen aus [Aro05, Asu06]. Die am weitesten verbreitete Theorie ist eine Singulett-Triplett-Konversion der Cooper-Paare an der Grenzfläche, wodurch diese unempfindlich gegenüber der Austauschenergie im Ferromagneten werden [Esc08, Esc11, Hou07]. Besonders bedeutend wird diese Theorie bei starken Ferromagneten wie Halbmetallen mit 100% Spinpolarisation. An Systemen des Kupratsupraleiters YBCO und des Halbmetalls LCMO wurde der LRPE bereits mehrfach beobachtet [Kal11, Peñ04, Wer10, Sef03].

Motivation dieser Arbeit war die Untersuchung des LRPE an planaren Trilagen-Kontakten des Kupratsupraleiters YBCO mit einer 10 bis 30 nm dicken ferromagnetischen Zwischenschicht des Halbmetalls LCMO. Ziel war es, eine Josephson-Kopplung in c-Achsenrichtung über die LCMO-Barriere zu erzielen. Dazu wurden mehrere Proben durch epitaktisches Wachstum mittels *Pulsed Laser Deposition* hergestellt. Nach ausführlicher Charakterisierung der Kristallstrukturen und verschiedener Filmeigenschaften, wurde das Cooper-Paar-Tunneln über die LCMO-Barriere bestimmt. Die Messungen wurden sowohl im abgeschirmten Bereich bei niedrigen Magnetfeldern als auch bei hohen Feldern von mehreren Tesla durchgeführt.

Gliederung

Der folgende erste Teil dieser Arbeit gliedert sich in vier Kapitel:

Kapitel 4 beinhaltet die theoretischen Grundlagen, die für das Verständnis der Messungen an den planaren Kontakten benötigt werden. Zu Beginn werden die Grundlagen des Cooper-Paar-Tunnelns erklärt. Dabei wird vor allem auf das Verhalten im Magnetfeld und den Einfluss unterschiedlicher Kontakt-Geometrien eingegangen. Im weiteren Teil werden verschiedene Eigenschaften des Ferromagnetismus erklärt. Hierbei wird speziell das verwendete Halbmetall LCMO und der *Colossal Magnetoresistance* (CMR-Effekt) betrachtet. Der letzte Teil befasst sich mit dem Verhalten an Grenzflächen von Supraleitern und Ferromagneten und beschreibt verschiedene Modelle zur Erklärung des LRPE.

Kapitel 5 ist in zwei Bereiche unterteilt. Der erste Teil beschreibt den Herstellungsprozess und die Charakterisierung der Trilagen. Im zweiten Teil werden die verschiedenen Strukturierungsschritte bis zum fertigen Kontakt in chronologischer Reihenfolge aufgeführt und es wird ein Überblick über den Aufbau der planaren Kontakte gegeben. Im **Anhang** findet sich ein Überblick über die relevanten Parameter des Herstellungsprozesses und den Aufbau der unterschiedlichen Proben.

Kapitel 6 stellt die Messergebnisse dar. Zu Beginn werden in $R(T)$ -Messungen verschiedener Proben die Curie- und Sprungtemperaturen der YBCO- und LCMO-Schichten miteinander verglichen. Der nächste Abschnitt zeigt die Messungen im Niederfeld, insbesondere den Einfluss der LCMO-Schicht auf das Cooper-Paar-Tunneln. Anschließend werden Ergebnisse der Niederfeldmessungen nach Bearbeitung der Kontakte per FIB (*Focused Ion Beam*) dargestellt. Zum Schluss werden die Ergebnisse der Messungen im Hochfeld präsentiert und mit Simulationen einer Stromverteilung über den Kontaktrand verglichen.

Kapitel 7 gibt eine Zusammenfassung der wesentlichen Ergebnisse der Messungen und stellt einen Ausblick auf mögliche weitere Experimente an den planaren Kontakten.

Kapitel 4

Grundlagen

4.1 Cooper-Paar-Tunneln

Ihre quantenmechanische Wellennatur ermöglicht es Cooper-Paaren sich auch in klassisch verbotenen Bereichen aufzuhalten. Durch Überlappung ihrer makroskopischen Wellenfunktionen ist dadurch ein Tunneln über eine dünne, nicht supraleitende Barriere zwischen zwei Supraleitern möglich. Dieser Effekt wird nach seinem Entdecker auch als Josephson-Effekt, die Barriere als Josephsonkontakt, bezeichnet [Jos62]. Durch Einsetzen von Ψ in den allgemeinen Ausdruck der quantenmechanischen Stromdichte, folgt ein Zusammenhang zwischen Suprastromdichte \vec{j}_s und eichinvariantem Phasengradienten $\vec{\gamma}$:

$$\vec{j}_s = \frac{q_s n_s \hbar}{m_s} \vec{\gamma} \quad \text{mit} \quad \vec{\gamma} = \nabla\varphi - \frac{2\pi}{\Phi_0} \vec{A} \quad (4.1)$$

Der Einfluss eines Magnetfeldes wird über das Vektorpotential \vec{A} beschrieben. Bei der Integration von \vec{j}_s über die Barriere wird aus dem eichinvariantem Phasengradienten $\vec{\gamma}$ die eichinvariante Phasendifferenz δ . Aufgrund der Eindeutigkeit von Ψ und der Bedingung $I_s(0)=0$, lässt sich der Cooper-Paar-Tunnelstrom I_s nach Integration von \vec{j}_s über die Barriere darstellen durch:

$$I_s = \sum I_n \sin(n\delta) \quad \text{mit} \quad n \in \mathbb{N} \quad (4.2)$$

Bei Vernachlässigung der höheren Harmonischen folgt die 1. Josephson Gleichung. Sie beschreibt die Abhängigkeit des Suprastroms I_s über die

Barriere¹ vom sinus der Phasendifferenz δ :

$$I_s = I_c \sin(\delta) \quad (1. \text{ Josephson Gleichung}) \quad (4.3)$$

Der maximal mögliche Suprastrom I_c hängt von den Eigenschaften der Barriere ab. Übersteigt I_s den Wert von I_c so fällt über den Kontakt eine Spannung V ab². Der Strom wird dann neben einem oszillierendem AC-Anteil von Cooper-Paaren auch durch einen DC-Anteil an Quasiteilchen getragen. Dieser sogenannte AC-Josephson-Effekt wird in der 2. Josephson Gleichung beschrieben:

$$\frac{d\delta}{dt} = \frac{2e}{\hbar} V \quad (2. \text{ Josephson Gleichung}) \quad (4.4)$$

Aufgrund ihrer festen Frequenzabhängigkeit von 483,6 GHz/mV, werden Josephsonkontakte auch als Spannungsnormale verwendet. Die Dynamik punktförmiger Josephsonkontakte lässt sich gut über das RCSJ-Modell³ beschreiben [Ste68]. Ein Josephsonkontakt wird hier als Parallelschaltung

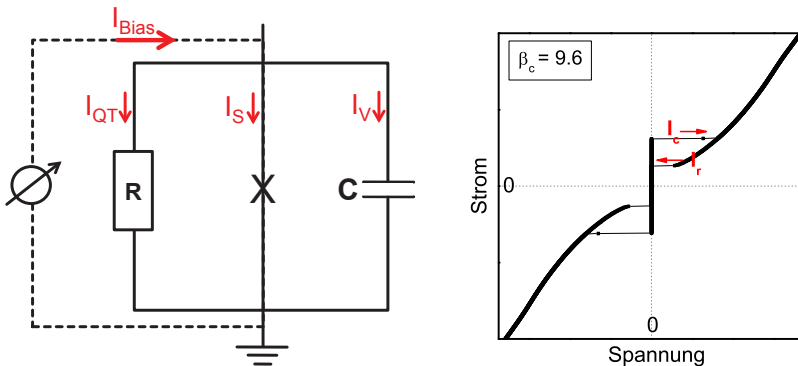


Abbildung 4.1: links: RCSJ-Modell eines punktförmigen Josephsonkontaktes. rechts: Hysteretische IV-Kennlinie am Beispiel eines Josephson-Rampenkontaktes. I_r wird als Rücksprungstrom bezeichnet.

mit Kapazität C und Widerstand R dargestellt. Für den Transportstrom über den Kontakt gilt somit:

$$I_{ges} = I_s + I_{QT} + I_V = I_c \sin(\delta) + V/R + C\dot{V} \quad (4.5)$$

¹ auch als Josephson-Strom bezeichnet

² V beschreibt immer den zeitlichen Mittelwert der Spannung

³ Resistively and Capacitively Shunted Junction

Das Einsetzen der Josephson-Gleichungen führt zu einem Potential des Kontakts in Form eines verkipperten Waschbretts [Buc04, S.361ff].

Die wichtigsten Eigenschaften der Josephsonkontakte können über folgende Parameter charakterisiert werden:

- **Stewart-McCumber-Parameter:**

$$\beta_c = \frac{2\pi I_c R^2 C}{\Phi_0} \quad (4.6)$$

β_c ist ein Maß für die Dämpfung des Kontakts [McC68]. Für $\beta_c > 1$ folgt ein hysteretisches Verhalten (unterdämpfter Kontakt), für $\beta_c < 1$ ein nicht-hysteretisches Verhalten der $I(V)$ -Kurven (überdämpfter Kontakt). Bei stark unterdämpften Kontakten gilt $\beta_c = (4I_c/\pi I_r)^2$.

- **Rauschparameter:**

$$\Gamma = \frac{2\pi k_B T}{I_c \Phi_0} \quad (4.7)$$

Γ stellt das Verhältnis von thermischer Energie $k_B T$ zur Josephson-Kopplungs-Energie dar und beschreibt die Empfindlichkeit von I_c gegenüber thermischen Fluktuationen. Hohe Werten von Γ führen zu rauschverrundeten $I(V)$ -Kennlinien, daher sollte Γ möglichst klein sein ($\Gamma \leq 0,2$ nach [Cla04]).

- **Josephson-Eindringtiefe:**

$$\lambda_J = \sqrt{\frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0 j_0 t_{eff}}} \quad (4.8)$$

λ_J beschreibt die Längenskala, auf welcher Eigenfeldeffekte, aufgrund der räumlichen Ausdehnung der Kontakte, relevant werden. Ist die Kontaktbreite kleiner als $4 \lambda_J$, so spricht man von kurzen Kontakten und Eigenfeldeffekte aus der Ortsabhängigkeit der Phase können vernachlässigt werden. j_0 entspricht der kritischen Stromdichte im Nullfeld, t_{eff} der effektiven Dicke aus Gleichung (4.11).

Josephsonkontakte im Magnetfeld

Im Limit kurzer Kontakte folgt aus $\vec{\gamma}(\vec{A})$ (siehe Gleichung 4.1) die Ortsabhängigkeit der Phasendifferenz in äußeren Magnetfeldern B_a :

$$\delta(x) = \delta(0) + \frac{2\pi}{\Phi_0} B_a \Lambda x \quad (4.9)$$

Mit der Barrierendicke t und der Elektrodendicken $D_{1,2}$ gilt für die magnetische Eindringtiefe Λ in den Kontakt:

$$\Lambda = t + \lambda_{L1} \cdot \tanh\left(\frac{D_1}{2\lambda_{L1}}\right) + \lambda_{L2} \cdot \tanh\left(\frac{D_2}{2\lambda_{L2}}\right) \quad (4.10)$$

Λ ist nicht zu verwechseln mit der effektiven Dicke t_{eff} aus Gleichung (4.8) für die gilt:

$$t_{eff} = t + \lambda_{L1} \cdot \coth\left(\frac{D_1}{\lambda_{L1}}\right) + \lambda_{L2} \cdot \coth\left(\frac{D_2}{\lambda_{L2}}\right) \quad (4.11)$$

$\delta(x)$ führt über die 1. Josephson Gleichung zu einer Oszillation des Suprastroms entlang des Kontaktes, was wiederum zu einer Modulation des maximalen kritischen Stroms in Abhängigkeit des Magnetfeldes führt (Abbildung 4.2).

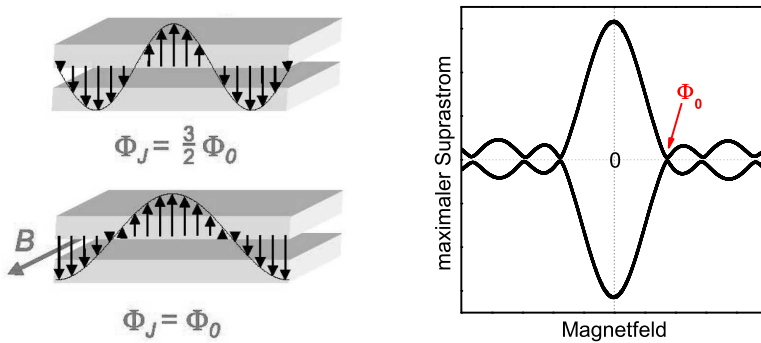


Abbildung 4.2: links: Modulation des Suprastroms für verschiedene Magnetfelder [Köl103]. rechts: $I_c(B_a)$ -Modulation des Rampenkontaktes.

Der magnetische Fluss Φ_J durch den Kontakt wird aus dem Produkt von äußerem Feld B_a , Kontaktbreite b , magnetischer Eindringtiefe Λ und möglichem Flussfokussierungs-Faktor f gebildet. Bei räumlich homogener Verteilung der kritischen Stromdichte über die Kontaktfläche folgt eine Fraunhofer-artige $I_c(B_a)$ -Modulation:

$$I_c(B_a) = I_c(0) \cdot \text{sinc}\left(\frac{\pi\Phi_J}{\Phi_0}\right) \quad (4.12)$$

Einfluss der Kontakt-Geometrie

Im Falle langer Josephsonkontakte (d.h. $w > 4\lambda_J$) spielt die Kontakt-Geometrie für den Verlauf des Stromes und magnetischen Flusses eine entscheidende Rolle. Die Dynamik der ortstabhängigen Phasendifferenz $\delta(x, t)$ wird über die Sinus-Gordon-Gleichung beschrieben. Die in dieser Arbeit verwendeten planaren Kontakte mit einer Fläche von $5 \times 30 \mu\text{m}^2$ stellen bei Bestimmung von $\lambda_J \approx 3,5 \mu\text{m}$ über Gleichung (4.8) entlang der $30 \mu\text{m}$ Seite lange und entlang der $5 \mu\text{m}$ Seite kurze Kontakte dar. Geometrisch sind die Kontakte eine Mischung aus *overlap* und *inline junction* (siehe Abbildung 4.3). Der Stromfluss in die obere Elektrode lässt sich mit dem einer

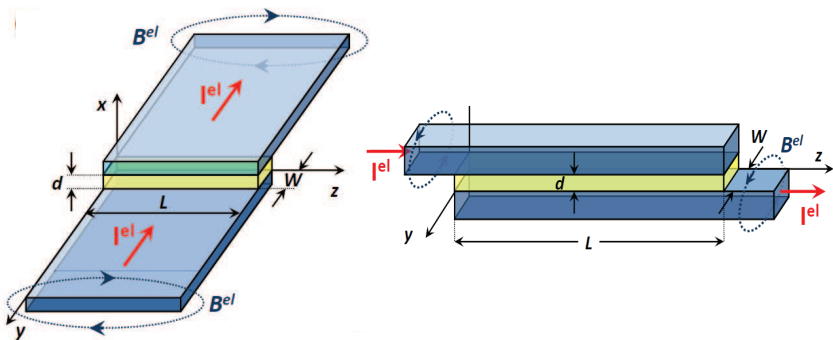


Abbildung 4.3: Aufbau und Stromverlauf mit daraus resultierendem magnetischen Fluss bei einer *overlap junction* (links) und einer *inline junction* (rechts) aus [Gro10].

inline junction vergleichen, während das Abfließen in die untere Elektrode dem einer *overlap junction* gleicht. Im Falle einer *inline junction* spielt die Einstreuung des magnetischen Feldes des Stroms B_{el} in den Kontakt eine bedeutende Rolle und muss zusätzlich zum extern angelegten Feld B_a mit einberechnet werden. Die dadurch entstehenden Eigenfeldeffekte haben Einfluss auf das $I_c(H)$ -Muster. In Abbildung 4.4 sind aus [Gro10] berechnete $I_c(H)$ -Muster für verschiedene lange Kontakte dargestellt. Eine Eigenschaft, die bei einem hohen Eigenfeld des Stromes beobachtet werden kann, ist eine Punktsymmetrie des $+I_c(H)$ - mit dem $-I_c(H)$ -Muster [Yam67]. Ohne solche Eigenfeldeffekte sind $+I_c(H)$ und $-I_c(H)$ symmetrisch zur y -Achse.

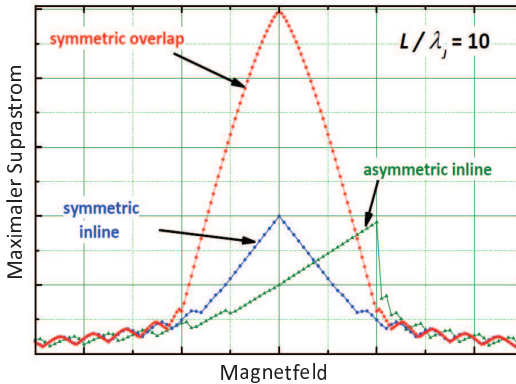


Abbildung 4.4: $I_c(H)$ -Muster verschiedener langer Kontakte. *Asymmetric inline* bedeutet eine antiparallele Orientierung von ein- und abfließendem Strom.

4.2 Ferromagnetismus

Bei dia- und paramagnetischen Substanzen wird, im Gegensatz zu ferromagnetischen Materialien, ein äußeres Magnetfeld H_{ext} benötigt, um eine Magnetisierung zu induzieren. Im Falle des Paramagnetismus richten sich die magnetischen Momente der Gitteratome parallel zum angelegten Magnetfeld aus und verstärken dieses. Bei nicht allzu großen Feldern gilt $B = \mu_0 \cdot \mu_r \cdot H_{ext}$ und man findet für die paramagnetische Permeabilitätszahl $\mu_{r,para} > 1$. Liegt kein Feld an, so sind die atomaren Momente zufällig orientiert und die Magnetisierung ist null.

Rein diamagnetische Substanzen besitzen keine solchen atomaren magnetischen Momente. Hier induziert ein angelegtes Magnetfeld einen Strom in den Elektronenhüllen, der nach der Lenzschen Regel der Ursache entgegengerichtet ist. Dadurch wird das äußere Feld leicht abgeschwächt und es gilt $\mu_{r,dia} < 1$.

Bei ferromagnetischen Materialien kommt es auch ohne ein äußeres Magnetfeld zu einer spontanen Ordnung der magnetischen Momente der Gitteratome. Grund dieser spontanen Magnetisierung ist die quantenmechanische Austauschwechselwirkung. Man unterscheidet zwischen direkter und indirekter Austauschwechselwirkung. Bei der direkten liegt ein Überlapp der Elektronenhüllen benachbarter Atome vor. Das Pauli-Prinzip verlangt eine antisymmetrische Gesamtwellenfunktion. Da die Elektronenverteilung einer antisymmetrischen Ortsfunktion energetisch günstiger ist, muss die entsprechende Spinfunktion symmetrisch sein, was zu einer spontanen Ma-

gnetisierung führt. Makroskopisch besteht ein Ferromagnet aus Domänen⁴ mit einheitlicher Magnetisierungsrichtung. Würde ein Ferromagnet aus einer einzigen Domäne bestehen, so wäre zwar die Austauschenergie minimal, die Feldenergie außerhalb jedoch maximal. Zusätzlich muss für die Ausrichtung der magnetischen Momente in eine weniger günstige Kristallrichtung, deren Ursache die Spin-Bahn-Kopplung ist, noch die sogenannte Anisotropie-Energie aufgebracht werden. Die Bilanz von Austausch- und Anisotropie-Energie, sorgt für eine Breite der Domänenwände von oft nur wenigen nm. Man unterscheidet zwei Arten von Domänenwänden. In Dünnschichten dreht sich die Magnetisierung wegen des starken Streufeldes an der Oberfläche immer innerhalb der Filmebene und bildet eine sogenannte Neel-Wand. In Bulk-Materialien befinden sich, wegen des größeren Volumens und dem geringeren Oberflächenanteil, meist Bloch-Wände, bei denen sich die Magnetisierung aus der Magnetisierungsebene herausdreht und die kein Entmagnetisierungsfeld aufweisen.

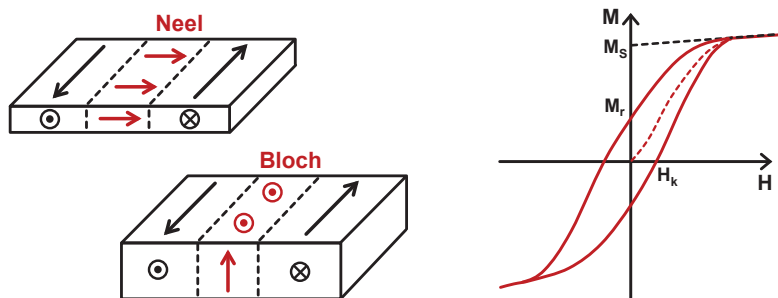


Abbildung 4.5: links: Skizze der Magnetisierungsrotation in einer Neel-Wand (oben) und einer Bloch-Wand (unten).

rechts: schematische Hysteresekurve $B(H)$ eines Ferromagneten.

Mit steigender Temperatur nimmt die thermische Bewegung der Atome und damit der magnetischen Momente zu, bis oberhalb einer spezifischen Temperatur (T_{Curie}) die spontane Magnetisierung verschwindet und das Material paramagnetisch wird. Der Übergang bei T_{Curie} stellt bei Ferromagneten einen Phasenübergang 2. Ordnung dar mit der spontanen Magnetisierung als Ordnungsparameter. Wird für $T < T_{Curie}$ ein äußeres Magnetfeld immer weiter erhöht, so beginnen zuerst die parallel zum Feld ausgerichteten Domänen durch Wandverschiebungen zu wachsen, anschlie-

⁴auch als Weiss-Bezirke bezeichnet

hend dreht sich die Magnetisierung in Richtung des angelegten Feldes. Bei weiterer Felderhöhung verhält sich ein Ferromagnet nach Erreichen der Sättigungsmagnetisierung M_S paramagnetisch. Wird das Magnetfeld wieder abgeschaltet, so bleibt eine remanente Magnetisierung M_r im Ferromagneten zurück und kann erst durch Anlegen eines Koerzitivfeldes H_k in entgegengesetzte Richtung wieder auf Null gebracht werden. Das Verhalten eines Ferromagneten im angelegten Magnetfeld wird durch die Hysteresekurve $B(H)$ sichtbar und es gilt $\mu_{r,ferro} \gg 1$.

4.3 $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$

Aufbau und Eigenschaften

$\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ gehört zur Gruppe der Übergangsmetalloxide mit Perowskitstruktur. In Abbildung 4.6 ist die ideale kubische Perowskitstruktur einer Einheitszelle von $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ dargestellt. An den Ecken befinden sich, abhängig von der Dotierung, abwechselnd La^{3+} - und Ca^{2+} -Kationen. Die O^{2-} -Anionen sitzen flächenzentriert und bilden mit den gemischtvalenten Mn^{3+} - und Mn^{4+} -Kationen Oktaeder. Die Dotierung des in dieser Arbeit verwendeten $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ lag bei $x=1/3$, was zu einer nahezu kubischen Struktur mit einer Gitterkonstanten von 0,386 nm führte [Coe99]. Durch die Dotierung verändern sich auch die elektrischen und magneti-

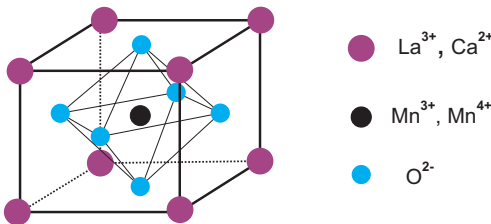


Abbildung 4.6:
Perowskitstruktur
der Einheitszelle von
 $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$

schen Eigenschaften [Mil98]. So geht Bulk- $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ bei $T_{Curie} = 260$ K in die ferromagnetische Phase über [Sch95]. Bei Dünnschichten ist T_{Curie} nochmals herabgesetzt. Gleichzeitig mit dem Übergang in die magnetische Phase, findet bei T_{Curie} auch ein Isolator-Metall-Übergang statt. Der Widerstand steigt mit fallender Temperatur zuerst an, hat bei T_{Curie} ein Maximum und sinkt dann wieder ab. Die Ursache dieses Verhaltens liegt in der indirekten Austauschwechselwirkung zwischen den Mn^{3+} - und Mn^{4+} -Ionen und wird im folgenden Abschnitt näher erläutert.

Kolossaler Magnetwiderstand - CMR

Die fünf $3d$ -Orbitale der $Mn^{3+/4+}$ -Ionen haben in Bezug auf die O^{2-} -Orbitale in den MnO_6 -Oktaedern unterschiedliche Orientierung. Die e_g -Orbitale $d_{3z^2-r^2}$ und $d_{x^2-y^2}$ sind entlang der Kristallachsen ausgerichtet und erfahren durch Coulomb-Abstoßung der O^{2-} -Orbitale eine Erhöhung ihrer Energie im Kristallfeld. Die t_{2g} -Orbitale d_{xy} , d_{xz} und d_{yz} sind entlang der Achsendiagonalen ausgerichtet und spüren durch den größeren Abstand zu den O^{2-} -Orbitalen eine geringere Coulomb-Abstoßung. Diese energetische Aufspaltung der d -Orbitale auf ein t_{2g} - und ein e_g -Niveau wird als Kristallfeldaufspaltung bezeichnet. Gemäß der 1. Hundtschen Regel des maximal möglichem Gesamtspins, kommt es beim Mn^{4+} -Ion mit der Elektronen-Konfiguration $[Ar] 3d^3$ zur Besetzung der drei t_{2g} -Orbitale mit Gesamtspin $S=3/2$. Beim Mn^{3+} -Ion besetzt das vierte Elektron der Konfiguration $[Ar] 3d^4$ aufgrund der starken Hundtschen Kopplung das $d_{3z^2-r^2}$ -Orbital, welches durch die Gitterverzerrung des Jahn-Teller-Effektes energetisch tiefer liegt als das $d_{x^2-y^2}$ -Orbital.



Abbildung 4.7: Kristallfeldaufspaltung der d -Orbitale von Mn.

Die Kopplung von ferromagnetischer Ordnung und guter Leitfähigkeit erklärt das Modell des Doppelaustausches [Zen51]. Der Elektronentransport findet vom e_g -Niveau des Mn^{3+} -Ions auf das leere e_g -Niveau des Mn^{4+} -Ions statt. Dabei geht ein Elektron vom O^{2-} -Ion auf das Mn^{4+} -Ion über, während der frei gewordene Platz vom Elektron des Mn^{3+} -Ions besetzt wird. Das Pauli-Prinzip verlangt eine antiparallele Ausrichtung der beiden Elektronen im O^{2-} -Orbital. Zusätzlich müssen die vier Spins der Elektronen in den d -Orbitalen eines Mn^{3+} -Ions aufgrund der Hundtschen Kopplung parallel zueinander stehen. Bei Betrachtung von Abbildung 4.8 ist ein Ladungstransport also dann möglich, wenn die Gesamtspins der t_{2g} -Elektronen von Mn^{3+} und Mn^{4+} parallel zueinander ausgerichtet sind. Die Ausrichtung der magnetischen Momente durch ein angelegtes Magnetfeld und die resultierende Verringerung des Widerstandes wird als CMR-

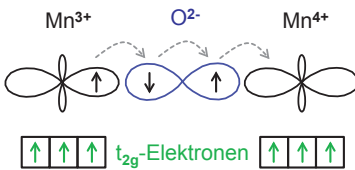


Abbildung 4.8: Ladungstransport in gemischtvalenten Manganaten im Doppelaustausch-Modell. Zusammenhang von ferromagnetischer Ordnung und guter Leitfähigkeit.

Effekt⁵ bezeichnet [Jon50]. Dieser negative Widerstandseffekt kann nahe T_{Curie} bei hohen Magnetfeldern mehrere Größenordnungen betragen. Er ist auf ein kleines Intervall nahe T_{Curie} beschränkt, da bei hohen Temperaturen durch thermische Unordnung zu hohe Magnetfelder erforderlich sind und bei zu tiefen Temperaturen schon ein geordnetes Spinsystem vorliegt. Eine weitere bedeutende Eigenschaft von $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ ist seine nahezu vollständige Spinpolarisation $P = \frac{N_{\uparrow} - N_{\downarrow}}{N_{\uparrow} + N_{\downarrow}} \approx 1$, wodurch es zur Gruppe der Halbmetalle gezählt wird [Par98]. N_{\uparrow} stellt die Zustandsdichte der Majoritätsladungsträger an der Fermi-Energie mit parallelem Spin dar, N_{\downarrow} die der Minoritätsladungsträger.

4.4 Supraleitung und Ferromagnetismus

Auf den ersten Blick schließen sich die Ordnungsphänomene des Ferromagnetismus und der Supraleitung gegenseitig aus. Beim Ferromagneten kommt es unterhalb von T_{Curie} durch die Austauschwechselwirkung vorzugsweise zu einer parallelen Ausrichtung der Elektronenspins, während bei konventionellen Supraleitern die Elektronen unterhalb von T_c zu Cooper-Paaren aus je zwei Elektronen mit antiparallelem Spin kondensieren. Dabei handelt es sich um Phasenübergänge 2. Ordnung mit der Magnetisierung bzw. Cooper-Paar-Dichte als die jeweiligen Ordnungsparameter. Zunächst soll eine Supraleiter-Normalleiter Grenzfläche betrachtet werden.

Supraleiter - Normalleiter Grenzfläche

Wird ein Supraleiter mit einem Normalleiter in Kontakt gebracht, so wird die Cooper-Paar-Dichte im Supraleiter im Bereich der BCS-Kohärenzlänge ξ_S zur Grenzfläche hin herabgesetzt. Gleichzeitig wird auf der Seite des Normalleiters eine endliche Cooper-Paar-Dichte induziert, die im Bereich

⁵colossal magneto resistance

der Kohärenzlänge ξ_N abfällt. Dieser exponentielle Abfall der supraleitenden Wellenfunktion beim Eindringen in den Normalleiter wird auch als Proximity-Effekt bezeichnet. Abhängig von deren Durchlässigkeit, kann es an der SN-Grenzfläche auch noch zu einem Sprung der Wellenfunktion kommen. Ist die mittlere freie Weglänge l der Elektronen groß gegenüber

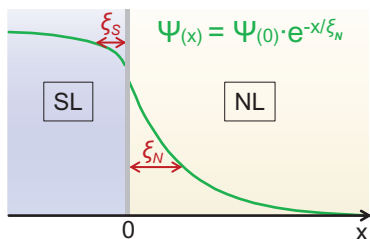


Abbildung 4.9: Verlauf der supraleitenden Wellenfunktion an einer Supraleiter-Normalleiter-Grenzfläche (Proximity-Effekt).

der Ausdehnung eines Cooper-Paares so spricht man vom *clean limit*, im entgegengesetzten Fall vom *dirty limit*. Mit der Fermi-Geschwindigkeit v_F , der supraleitenden Energielücke Δ und der Diffusionskonstanten $D = v_F l / 3$ gelten für die beiden Kohärenzlängen folgende Beziehungen:

- *clean limit*:

$$\xi_N = \frac{\hbar v_F}{2\pi k_B T} \qquad \xi_S = \frac{\hbar v_F}{\pi \Delta} \qquad (4.13)$$

- *dirty limit*:

$$\xi_N = \sqrt{\frac{\hbar D}{2\pi k_B T}} \qquad \xi_S = \sqrt{\frac{\hbar D}{\pi \Delta}} \qquad (4.14)$$

Supraleiter - Ferromagnet Grenzfläche

Beim Eintreten eines Cooper-Paares in einen Ferromagneten spüren die beiden antiparallelen Spins das Austauschfeld und werden in ihrer Energie um den Betrag $2E_{ex}$ verschoben. Dadurch kann es durch Verschiebung der Zustandsdichten zu einer Spinpolarisation bei der Fermi-Energie kommen. Außerdem kommt es zu einer Verschiebung der entgegengesetzt gerichteten Impulse der beiden Elektronen eines Cooper-Paares an der Fermi-Energie. Majoritätsspins erfahren eine Erhöhung ihres Impulses, Minoritätsspins eine Erniedrigung. Somit bekommt ein Cooper-Paar im Ferromagneten einen Schwerpunktsimpuls von $\pm Q$ (siehe Abbildung 4.10). Für die Amplitude der Paarwellenfunktion bedeutet dies eine Oszillation im Ferromagneten

mit dem Faktor $e^{\pm iQ \cdot x}$. Die Kohärenzlänge im Ferromagneten wird nun komplex und lässt sich in Real- und Imaginärteil aufspalten. Dies führt sowohl zum exponentiellen Abfall als auch zur Oszillation der Paaramplitude im Ferromagneten:

$$\xi_F = \sqrt{\frac{\hbar D}{2(\pi k_B T + i E_{ex})}} \Rightarrow \psi(x) = \psi_0 \cdot e^{-x/\xi_{F1}} \cdot e^{-ix/\xi_{F2}} \quad (4.15)$$

Geht man von einem reinen Singulett-Zustand ($\uparrow\downarrow - \downarrow\uparrow$) im Supraleiter aus, so folgt daraus außerdem eine Mischung von Singulett- und Triplett-Zustand im Ferromagneten:

$$\uparrow\downarrow e^{iQ \cdot x} - \downarrow\uparrow e^{-iQ \cdot x} = (\uparrow\downarrow - \downarrow\uparrow) \cos(Q \cdot x) + i(\uparrow\downarrow + \downarrow\uparrow) \sin(Q \cdot x) \quad (4.16)$$

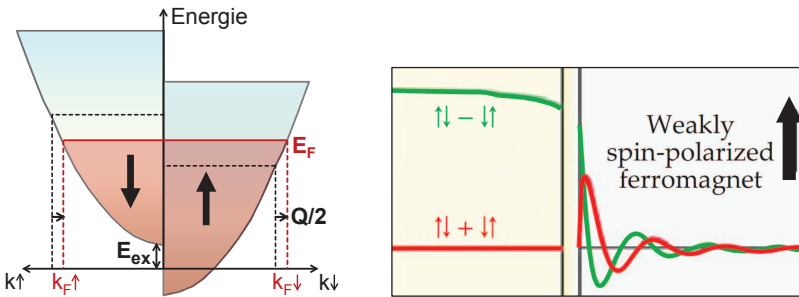


Abbildung 4.10: *links:* Entstehung des Schwerpunktsimpulses eines Cooper-Paares im Austauschfeld eines Ferromagneten. *rechts:* FFLO-Phase der Singulett- und Triplett-Paaramplitude beim Eindringen in einen schwach spinpolarisierten Ferromagneten.

Dieser Zustand wird auch als *FFLO-Phase*⁶ bezeichnet [Ful64, Lar64] (siehe Abbildung 4.10 rechts aus [Esc11]). Die Oszillation der Wellenfunktion ermöglicht die Erzeugung eines 0- oder π -Josephsonkontaktes durch Wahl einer passend dicken ferromagnetischen Barriere bei entsprechender Temperatur [Obo06, Rya01, Kon02]. Je stärker die Spinpolarisation im Ferromagneten ist, desto stärker ist auch der exponentielle Abfall der Paarwellenfunktion. Bei starker Polarisation können die Cooper-Paare nur noch wenige Atomlängen in den Ferromagneten eindringen.

⁶nach den Entdeckern P. Fulde, R. Ferrel, A. Larkin und Y. Ovchinnikov

Long-Range Proximity Effect

In den letzten Jahren wurde vielfach eine Kopplung des supraleitenden Ordnungsparameters durch ferromagnetische Barrieren gezeigt, die mehr als eine Größenordnung breiter als die Kohärenzlänge im Ferromagneten waren [Sef03, Peñ04]. Diese Kopplung wird als LRPE⁷ bezeichnet und kann sich in Form einer supraleitenden Energielücke oder eines Zero Bias Conductance Peaks in der Tunnelkennlinie zeigen [Kal11, Asu06]. Mehrfach wurde sogar ein Suprastrom über die Barriere beobachtet [Kei06, Kha09, Anw10]. Für das Auftreten eines LRPE existieren verschiedene Erklärungen.

Crossed Andreev-Reflection Effect

In [Asu06] und [Aro05] wurde über Tunneltransport-Messungen an YBCO-SrRuO₃-Bilagen und Trilagen gezeigt, dass der supraleitende Ordnungsparameter nur in den lokalen Bereichen der Domänenwände mehrere 10 nm tief in den Ferromagneten reicht. Als Erklärung dieses lokalen LRPE wird der CARE⁸-Effekt vorgeschlagen. Hier ermöglichen Andreev-Reflexionen an den antiparallel ausgerichteten Domänen das Eindringen von Singulett-Zuständen in den Ferromagneten (Abbildung 4.11 aus [Asu06]). Allerdings

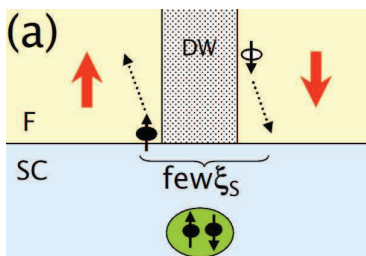


Abbildung 4.11: CARE-Effekt entlang einer Domänenwand mit einer Dicke von wenigen ξ_S

könnte auch die reduzierte Spinpolarisation in den Domänenwänden die konventionelle Andreev-Reflexion, so wie beim Supraleiter-Normalleiter-Kontakt, ermöglichen. Bedingung für das Auftreten des CARE-Effekts ist eine geringe Domänenwand-Dicke in der Größenordnung von wenigen ξ_S . Bei YBCO-LCMO Kontakten sollte der CARE-Effekt aufgrund der ca. 20 nm breiten Domänenwände in LCMO keine bedeutende Rolle spielen [Kal11].

⁷Long-Range Proximity Effect

⁸crossed Andreev reflection effect

Spin-Triplett Suprastrom

Cooper-Paare mit parallelen Spins im Spin-Triplett Zustand erhalten im Ferromagneten durch das Austauschfeld keinen Schwerpunktsimpuls. Daher kommt es hier nicht zur Oszillation des Ordnungsparameters wie in der *FFLO*-Phase und die Eindringtiefe ist, wie bei einem Supraleiter-Normalleiter-Kontakt, langreichweitig. Verschiedene Theorien zur Konversion von Spin-Singulett in Spin-Triplett-Zustände findet sich in [Esc08, Esc11, Tri10, Ali10, Ber05]. Bei stark spinpolarisierten Ferromagneten, wie z.B. dem Halbmetall LCMO, können Cooper-Paare wegen der hohen Austauschenergie⁹ nur auf wenige Atomlängen in den Ferromagneten eindringen. Gleichzeitig spüren sie aber schon im Supraleiter die starke Polarisation des Ferromagneten und erfahren in der Nähe der Grenzfläche spin-abhängige Phasenverschiebungen. Dadurch kommt es zu der in Gleichung (4.16) beschriebenen Singulett-Triplett-Mischung, die bei paralleler Magnetisierung von Grenzfläche und innerem Ferromagneten sofort wieder auf Null abfällt (siehe Abbildung 4.12 links aus [Esc11]). Ein anderes Ver-

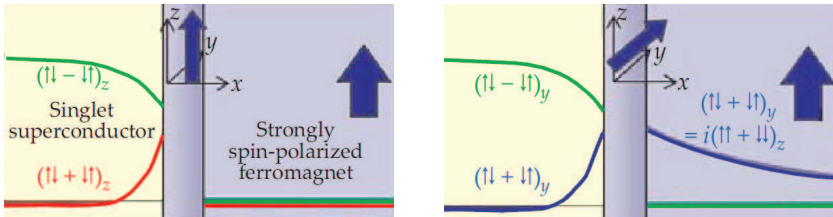


Abbildung 4.12: Singulett-Triplett Konversion nahe der Grenzfläche eines stark spinpolarisierten Ferromagneten und Eindringen von parallelen Spin-Paaren bei gedrehter Grenzflächen-Magnetisierung.

halten ergibt sich bei Drehung der Magnetisierungsrichtung in der Grenzfläche. Die Singulett-Zustände verhalten sich aufgrund ihrer Rotations-symmetrie gleich, die Triplett-Zustände allerdings können in verschiedene Basis-Zustände umgewandelt werden. Im Beispiel wird aus dem $(\uparrow\downarrow + \downarrow\uparrow)$ -Zustand in der y -Basis der $i(\uparrow\uparrow + \downarrow\downarrow)$ -Zustand in der z -Basis. Diese Paare mit parallelem Spin können tief in den Ferromagneten eindringen und ermöglichen so den LRPE.

In schwach polarisierten Ferromagneten können Bloch-Domänenwände,

⁹Bei LCMO liegt die Austauschenergie bei ca. 3 eV, während sie bei schwachen Ferromagneten wie z.B. NiPd mit 10 % Ni nur bei 10 meV liegt [Qui98].

wegen ihrer spiralförmigen Rotation der Magnetisierung, ebenfalls eine Mischung der drei Spin-Triplett-Komponenten erzeugen und damit einen LRPE hervorrufen. Da LCMO ein Halbmetall mit fast 100 % Spinpolarisation ist und zudem bei Dünnschichten Neel-Wände statt Bloch-Wände vorhanden sind, kann diese Variante bei Kontakten mit LCMO als Barriere ausgeschlossen werden.

Kapitel 5

Probenherstellung

5.1 Filmherstellung und Charakterisierung

5.1.1 Gepulste Laserablation

Der erste Schritt in der Herstellung der planaren SFS-Tunnelkontakte war die Erzeugung der YBCO-LCMO-YBCO-Trilage mittels gepulster Laserablation (kurz PLD¹). Die PLD ermöglicht das epitaktische Wachstum komplexer Oxide wie YBCO oder LCMO auf Substraten mit passender Gitterstruktur. Um ein c-Achsen-orientiertes Wachstum von YBCO zu gewährleisten, wurden in den meisten Prozessen (100)-SrTiO₃-Substrate mit minimalem Fehlschliff verwendet. Für die Herstellung reiner Filme war ein guter Hintergrund-Druck der PLD-Kammer im Bereich 10⁻⁸ mbar unabdingbar. Mittels eines Excimerlasers² wurden kurze Laserpulse von 20 ns mit einer Spitzenleistung von 10 MW und einer Frequenz von 2 Hz auf ein YBCO- oder LCMO-Target geschossen. Bei Wahl der passend hohen Energiedichte im Bereich von wenigen J/cm² kommt es an der Oberfläche zu einem stöchiometrisch korrekten, explosionsartigen Abtragen des Target-Materials und der Bildung eines Plasmas in Form einer Keule³. Ist die Energiedichte zu hoch, so können größere Partikel (sogenannte Droplets) entstehen, die sich sichtbar auf dem Substrat ablagern. Ist sie zu gering gewählt, kann es durch thermisches Verdampfen zu einem nicht-

¹pulsed laser deposition

²Ein Krypton-Fluor-Gemisch als Lasergas führte zu einer Wellenlänge von 248 nm

³auch als Plume bezeichnet

stöchiometrischen Abtragen, aufgrund der verschiedenen Dampfdrücke, kommen. In einem Abstand von ca. 6 cm oberhalb des Targets und innerhalb der sichtbaren Plume befindet sich das zu beschichtende Substrat (siehe Abbildung 5.1). Für die Herstellung eines c-Achsen-orientierten und

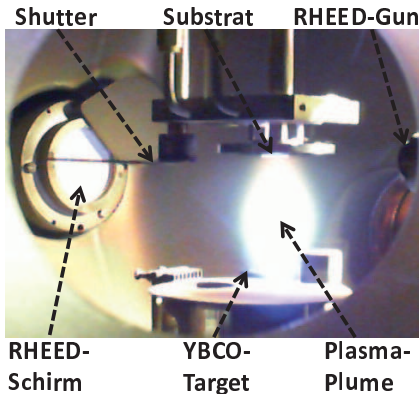


Abbildung 5.1: Aufnahme der PLD-Kammer während der Ablation einer YBCO-Schicht.

supraleitenden YBCO-Films sind sowohl die Substrat-Temperatur als auch der Sauerstoff-Partialdruck während des Wachstums zwei entscheidende Parameter. Die Erwärmung des Substrats erfolgt mittels eines 90 Watt Heizlaser-Diodenarrays, dessen Heizleistung über eine Glasfaser zum Substratmanipulator geführt wird und dort auf die Rückseite des Probenhalters trifft. Die Proben wurden mit Leitsilber auf einem, zur besseren thermischen Isolierung geschlitzten, Inconel-Halter befestigt. Zur Bestimmung der Probentemperatur wurde ein Pyrometer, welches aus der von der Oberfläche abgestrahlten Leistung die Temperatur bestimmt, verwendet. Da der Emissionsgrad jedoch von verschiedenen Faktoren abhängt und sich während der Ablation ändern kann, ist eine genaue Temperaturbestimmung schwierig und es muss zusätzlich immer auch die Leistung des Heizlasers beachtet werden. Nach abgeschlossener Ablation der YBCO-LCMO-YBCO-Trilage wurde der Film noch bei 550°C für 1 Stunde unter 500 mbar Sauerstoffdruck getempert. Die Prozess-Parameter der einzelnen Proben finden sich in Tabelle A.4 im Anhang.

5.1.2 Magnetronsputtern

Anschließend wurde auf die Trilage in-situ noch eine Goldschicht von 20 nm aufgebracht. Dazu wurde die Probe, nach Einbringen eines Kühlstempels

hinter den Probenhalter, entweder in die ESV⁴-Kammer oder die Sputterkammer durch die UHV-Anlage geschleust. Anfangs wurde das Gold noch über ESV erzeugt. Das ESV-Gold konnte zwar in seiner Dicke mit Hilfe eines Schwingquarzes exakt bestimmt werden, jedoch war dies für diese Proben nicht relevant. Die Goldschicht sollte in erster Linie zum Schutz bei der Strukturierung und vor einer Oxidation der YBCO-Schicht dienen. Da das ESV-Gold empfindlich war und sich im Ultraschallbad teilweise von der YBCO-Schicht löste, wurde fortan nur noch Sputter-Gold verwendet. Das Sputtern erfolgte über planare Magnetronsputterquellen mit Argon als Prozessgas. Mittels Hochfrequenz wurde durch den sogenannten Self-Biasing-Effekt gleichzeitig ein Plasma erzeugt und in Richtung der Probenoberfläche extrahiert. Die Magnetfelder der Magnetrons sorgen für eine spiralförmige Bahn der Ladungsträger. Dadurch erhöht sich die effektive Stoßzahl, welche zu einer höheren Ionisationszahl und damit höheren Sputterrate bei geringem Prozessdruck führt. Dies ermöglicht Sputtern von sehr reinen Filmen. Die Wachstumsrate betrug bei Gold 1 nm/s, beim Sputtern von Niob in einem späteren Herstellungsschritt lag sie bei 1,77 nm/s. In Tabelle A.3 im Anhang finden sich die genaueren Prozess-Parameter. Für detailliertere Informationen zum Aufbau und der Funktionsweise des gesamten PIT2-UHV-Systems wird [Bac07] oder [Tur07] empfohlen.

5.1.3 RHEED

Eine erste Charakterisierung der YBCO- und LCMO-Schichten erfolgt bereits während der Ablation mittels eines Hochdruck-RHEED⁵-Systems. Beim RHEED-Prozess wird mittels einer RHEED-Gun ein energiereicher⁶ monochromatischer Elektronenstrahl erzeugt, der unter einem Einfallswinkel von 1°-3° auf die Probenoberfläche trifft und dort gebeugt wird. So entsteht ein Beugungsbild der Oberfläche, das über einen fluoreszierenden Schirm sichtbar gemacht werden kann. Man kann zwischen zwei Arten von RHEED-Aufnahmen unterscheiden:

- Aufnahme eines Beugungsbildes zwischen den Ablationsprozessen
- Aufnahme von RHEED-Oszillationen während der Ablation

Das durch elastische Streuung an der Oberfläche entstandene Beugungsbild ermöglicht eine Interpretation der Oberflächenrauigkeit. Bei einer

⁴Elektronenstrahlverdampfung

⁵Reflection High-Energy Electron Diffraction

⁶U=40kV, I=1.5-1.7mA

ideal glatten Oberfläche entsteht ein Bild von auf Halbkreisen angeordneten Punkten. Die Punkte entsprechen dem zweidimensionalen Bild der Schnittlinien der Ewald-Kugel mit den Ebenen des reziproken Gitters. Bei Stufen in der Oberfläche (Terrassenbildung) kommt es zu Variationen des optimalen Einfallswinkels und die Punkte werden zu senkrechten Strichen. Bei Inselwachstum und einer dadurch sehr rauen Oberfläche verschwindet das halbkreisförmige Bild und es entsteht ein sogenanntes Durchstrahlungsbild mit regelmäßigem Gittermuster. In Abbildung 5.2 sind am Bei-

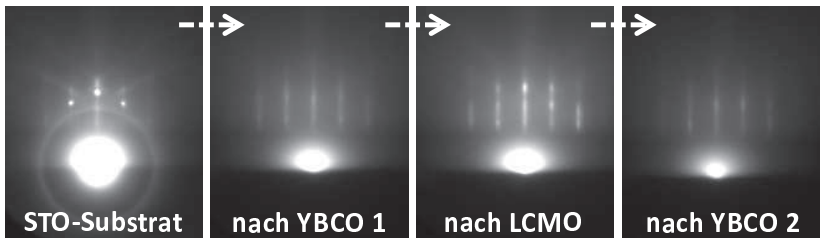


Abbildung 5.2: Beugungsbilder vor und nach den entsprechenden Ablationsschritten am Beispiel von Probe YLY17.

spiel von Probe YLY17 vier RHEED-Bilder dargestellt. Ganz links befindet sich das zweidimensionale Bild der glatten STO-Substratoberfläche, das nach Ablation der ersten 50 nm dicken YBCO-Schicht (1013 Pulse) durch Inselbildung in ein Durchstrahlungsbild übergeht. Nach Ablation der 10 nm dicken LCMO-Schicht (416 Pulse) werden vor allem die zentralen Reflexe wieder als Punkte sichtbar, was auf eine durch die Perowskitstruktur von LCMO wieder hergestellte glatte Oberfläche hindeutet. Das letzte RHEED-Bild ganz rechts, das nach Ablation der oberen 30 nm dicken YBCO-Schicht (608 Pulse) aufgenommen wurde, gleicht wieder dem zweiten Bild. Die geringere Intensität der Reflexe liegt vermutlich an der durch die zweite Ablation dickeren gesamten Schicht und der dadurch stärkeren Abschattung des Elektronenstrahls.

Abbildung 5.3 zeigt RHEED-Oszillationen der unteren und oberen YBCO-Schicht⁷, jeweils in der Anfangsphase des Wachstums. Dazu wurden zu Beginn die drei stärksten Reflexe des STO-Substrats ausgewählt und anschließend deren Intensität über die Zeit aufgetragen. Der Zeitpunkt null entspricht dabei dem ersten Laserpuls. Die hohe Intensität zu Beginn ist

⁷im folgenden jeweils als YBCO 1 und YBCO 2 bezeichnet

Folge der hier noch glatten Oberfläche des STO-Substrats. Die periodischen Oszillationen der Intensität der drei Reflexe sind ein deutliches Zeichen für ein Lage-für-Lage-Wachstum⁸ in der Anfangsphase der Ablation. Die Intensitäts-Minima erscheinen bei einer maximalen Filmrauigkeit, die Intensitäts-Maxima bei glatten Oberflächen. Dies ist immer genau dann der Fall, wenn eine halbe oder eine ganze Monolage aufgewachsen ist. So kann aus der Oszillationslänge die Wachstumsrate bestimmt werden. Im Falle von YBCO wurden pro Monolage 12 Sekunden benötigt, was bei einer Pulsfrequenz von 2 Hz gerade 24 Pulsen entspricht. Bei einer Länge der Einheitszelle in c-Achsenrichtung von 1,17 nm, sind für eine 50 nm dicke YBCO-Schicht also etwas mehr als 1000 Laserpulse nötig. Beim Übergang des Lage-für-Lage-Wachstums von YBCO in ein Inselwachstum⁹, was meist bei etwa 10 Monolagen stattfand, verschwanden die Oszillationen. Die stark vom Substrat-Target-Abstand abhängige Wachs-

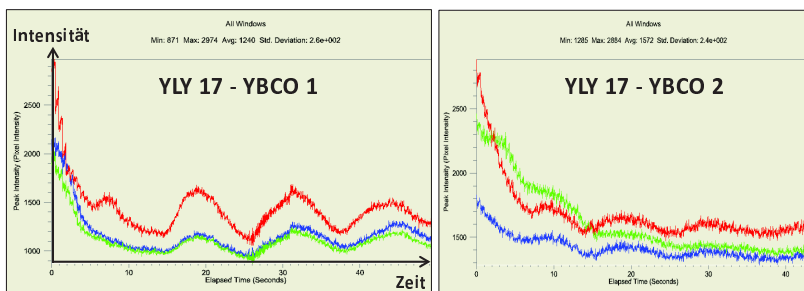


Abbildung 5.3: RHEED-Oszillationen beim Wachstum der beiden YBCO-Schichten von Probe YLY17.

tumsrate von LCMO lag bei ca. 16 Pulsen pro Einheitszelle. Da LCMO durch seine Perowskitstruktur eine Einheitszellenlänge von nur 0,3846 nm besitzt, können die entstandenen Lücken im YBCO wieder aufgefüllt werden und der Film wird glatter. Dies konnte teilweise an wieder auftretenden schwachen RHEED-Oszillationen beim LCMO-Filmwachstum erkannt werden. Ein weiteres deutliches Zeichen, dass der Film nach Ablation der LCMO-Schicht wieder bedeutend glatter geworden war, sind die wieder sichtbaren Oszillation der Intensität zu Beginn des Wachstums der oberen YBCO-Schicht (siehe Abbildung 5.3 rechts).

⁸auch Frank-van-der-Merwe Wachstumsmodus genannt

⁹auch Stranski-Krastanow Wachstumsmodus genannt

5.1.4 Röntgendiffraktion

Noch vor dem ersten Strukturierungsschritt wurde die Kristallstruktur mit Hilfe eines Röntgendiffraktometers untersucht. Das Diffraktometer war nach der Bragg-Brentano-Geometrie aufgebaut. Ein Vierkreis-Goniometer ermöglichte die Rotation der Probe und des Detektors relativ zur fest montierten Röntgenröhre. Bei der monochromatischen Röntgenstrahlung handelt es sich um $\text{Cu-K}\alpha$ -Strahlung mit einer Wellenlänge von ca. 0,154 nm. Die Leistung der Röhre betrug bei allen Messungen 20 mA bei 45 kV. Als erste Messung wurde jeweils ein $2\Theta/\omega$ -scan von 0° bis 90° durchgeführt. ω entspricht hierbei dem Winkel zwischen eintreffendem Röntgenstrahl und Probenoberfläche und 2Θ dem Winkel zwischen einfallendem und gebeugtem Röntgenstrahl. Als Referenz für den Winkel ω diente der (002)-Peak des STO-Substrats. Zu Beginn wurde über abwechselnde ω -scans und z-scans um diesen Peak der Offset zwischen ω und Θ eingestellt. Anschließend wurde der $2\Theta/\omega$ -scan über 90° durchgeführt (Abbildung 5.4 links). Dabei wurde der Winkel 2Θ genau doppelt so schnell durchgeföhren wie der Winkel ω .

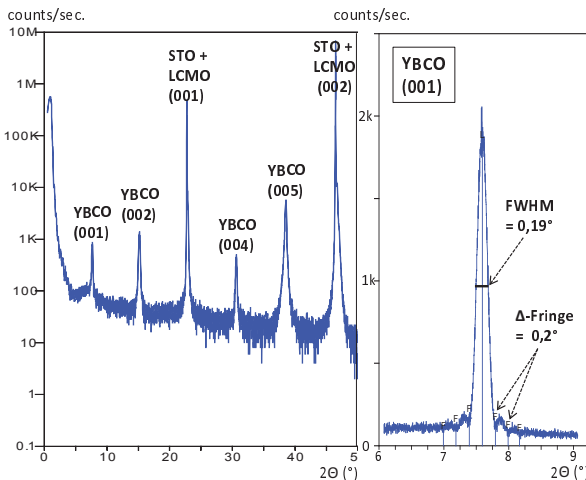


Abbildung 5.4:
links: $2\Theta/\omega$ -scan von Probe YLY 12 über 90° ,
rechts: Beobachtung von Fringes beim $2\Theta/\omega$ -scan des YBCO-(001)-Peaks

Bei bekannter Wellenlänge liefert die Bragg-Gleichung (5.1) einen Zusammenhang zwischen Netzebenenabstand d und Winkel Θ :

$$2d \sin \Theta = n\lambda \quad \text{mit } n \in \mathbb{N} \quad (5.1)$$

Eine Auswertung der Winkelpositionen der erscheinenden Peaks eines $2\Theta/\omega$ -

scans ermöglichen eine erste Charakterisierung des Filmwachstums. So kann aus der Lage der Peaks z.B. festgestellt werden, ob Anteile von a-Achsen-orientiertem Wachstum des YBCO-Films vorhanden sind. Aufgrund der konstant hohen Temperaturen bei der YBCO-Herstellung war dies bei keiner dieser Proben der Fall. Nach dem Scan über 90° wurde noch ein separater Scan um den (001)-Peak von YBCO durchgeführt (Abbildung 5.4 rechts). Neben dem Hauptmaximum sind noch weitere, als Fringes oder Laue-Oszillationen bezeichnete, Nebenmaxima in einem Abstand von jeweils $0,2^\circ$ erkennbar. Das Erscheinen solcher Fringes ist zum einen ein Zeichen für ein ebenes, homogenes Filmwachstum, zum anderen lässt sich aus dem Winkelintervall die Schichtdicke bestimmen. Dies erfolgt über die Formel (siehe [Kle01b]):

$$N \cdot d = \frac{(j - i) \lambda}{\sin(\Theta_j) - \sin(\Theta_i)} \quad (5.2)$$

Da bei diesen Proben zwei voneinander getrennte YBCO-Schichten vorliegen ist eine Interpretation der YBCO-Schichtdicke schwer. Als Maß für die Kristallqualität der hergestellten Filme wurden zwei *Rocking-Kurven*, der

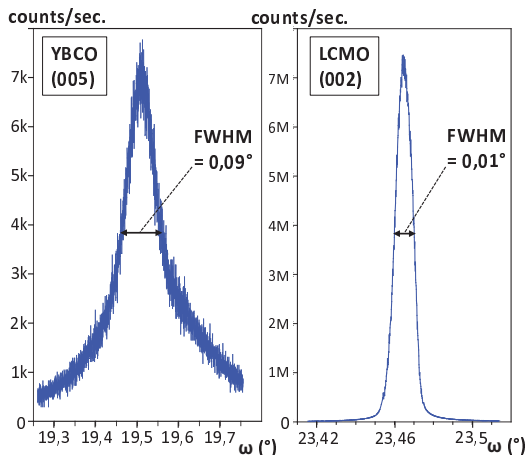


Abbildung 5.5:
links: ω -scan des YBCO-(005)-Peaks,
rechts: ω -scan des LCMO-(002)-Peaks von Probe YLY 12

(005)-Peak von YBCO und der (002)-Peak von LCMO, verwendet. Als *Rocking-Kurven* werden ω -scans bei festgehaltenem Winkel Θ bezeichnet. Besteht ein Kristall aus verschiedenen, leicht verkippten Bereichen (Domänen), so äußert sich dies in einer Verbreiterung des ω -scans, da die Beugungswinkel der Maxima für die einzelnen Domänen leicht variieren.

Die Halbwertsbreite (FWHM) diente daher als Maß für die Kristallqualität und lag bei den meisten Proben im Bereich von $0,1^\circ$ bzw. $0,01^\circ$ (Abbildung 5.5). Dies entspricht sehr guten FWHM-Werten für mittels PLD hergestellte YBCO- und LCMO-Filme. Die FWHM-Werte der einzelnen Proben finden sich in Tabelle A.4 im Anhang.

5.1.5 Rasterkraftmikroskopie

Während die Röntgendiffraktion Informationen über die gesamte Schichtstruktur lieferte, konnten mit Hilfe eines Rasterkraftmikroskops¹⁰ Informationen über die Oberflächentopografie einzelner Schichten gewonnen werden. Die Aufnahme erfolgt mit Hilfe einer sehr feinen Siliziumspitze, die wiederum an der Spitze einer als Cantilever bezeichneten Blattfeder angebracht ist und die Oberfläche lateral abtrastert. Ein Laserstrahl wird auf die Rückseite der Blattfeder direkt hinter der Spitze fokussiert und von dort auf vier quadratisch angeordnete Photodioden reflektiert. Eine kleine Auslenkung der Spitze von weniger als 1 nm wird so in eine große Auslenkung des reflektierten Strahls umgewandelt, und kann detektiert werden. Die Aufnahme der Oberflächenbilder erfolgte im Kontakt-Modus, bei dem die Spitze in direktem Kontakt mit der Oberfläche steht. Die Wechselwirkung zwischen Spitze und Oberfläche erfolgt durch ein Zusammenspiel von quantenmechanischem Pauli-Prinzip und abstoßender Coulombkraft der Elektronenhüllen und wird durch das Lennard-Jones-Potential beschrieben. Über einen piezoelektrischen Regelkreis wird die Höhe der Spitze über der Oberfläche konstant gehalten¹¹ und gleichzeitig die Probe lateral abgerastert. So können bis zu $900 \mu\text{m}^2$ große AFM-Bilder aufgenommen und deren Rohdaten anschließend über eine entsprechende Software¹² ausgewertet werden. Für die Charakterisierung der Oberfläche wichtige Kenngrößen waren der Höhenunterschied zwischen Maximum und Minimum einer Oberfläche (h_{max}) und die über den RMS¹³-Wert bestimmte Rauigkeit. Der RMS-Wert berechnet sich als mittlere quadratische Abweichung vom Mittelwert der Höhe:

$$\text{RMS} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (h_n - \bar{h})^2} \quad (5.3)$$

¹⁰auch AFM für atomic force microscope mit Beschreibung in [NB10]

¹¹constant height mode

¹²WSxM 4.0 DEVELOP 13.0

¹³root mean square

Für die Charakterisierung der Oberflächenstruktur wurden verschiedene YBCO-Filme, ein LCMO-Film und eine Bilage aus YBCO und LCMO hergestellt. Abbildung 5.6 zeigt als Beispiel die AFM-Aufnahme einer $100 \mu\text{m}^2$ großen Fläche von Probe YLas01 mit 3D-Ausschnitt und $8 \mu\text{m}$ Linescan.

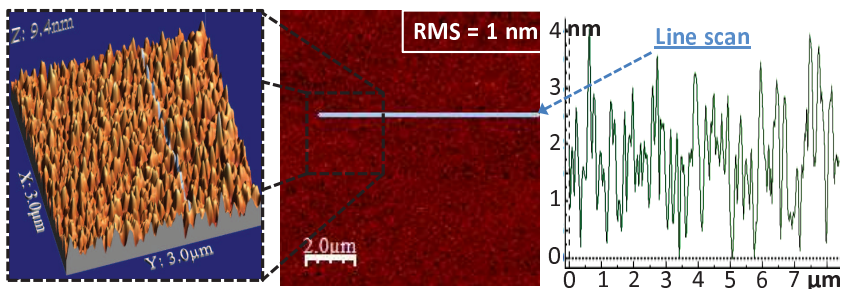


Abbildung 5.6: AFM-Bilder der Probe YLas01 aus 40 nm YBCO und 20 nm LCMO.

Probe	Yas01	Yas02a	Yas02b	Las01	YLas01
d_{YBCO} (nm)	30	100	50	-	40
d_{LCMO} (nm)	-	-	-	20	20
Fläche (μm^2)	100	100	100	25	100
h_{max} (nm)	28	300	37	3,5	17
RMS (nm)	1,0	3,6	1,6	0,2	1,0

Tabelle 5.1: Vergleich der Oberflächen-Rauigkeiten verschiedener YBCO- und LCMO-Filme. Yas02b entspricht der mit Ar-Ionen 50 nm tief geätzten Fläche von Yas02a.

Die wesentlichen Ergebnisse sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst. Die Schichtdicke der bei den Trilagen verwendeten LCMO-Schichten lag bei 10-30 nm, daher wurde bei Probe Las01 eine 20 nm dicke LCMO-Schicht gewählt. Der ermittelte RMS-Wert von nur 0,2 nm gibt das glatte und gleichmäßige Aufwachsen der perowskitartigen Struktur von LCMO wieder. Auf der gesamten Probenoberfläche (1 cm^2) waren keine Droplets erkennbar, was auch den geringen Wert von h_{max} erklärt. Aufgrund der in c-Achsenrichtung fast dreimal so langen Einheitszelle, war bei den YBCO-Filmen die Rauigkeit entsprechend höher. RHEED-Aufnahmen hat-

ten bereits gezeigt, dass das Aufwachsen einer LCMO-Schicht wieder zu einer glatteren Oberfläche führt, was sich hier beim Vergleich von Yas01 mit YLas01 zeigt. Bei der Herstellung der unteren YBCO-Schicht war es wichtig, eine Bildung von Droplets, die möglicherweise durch die LCMO-Schicht hindurchreichen könnten, zu vermeiden. Die Ursache der Droplet-Bildung kann eine verunreinigte Targetoberfläche, eine Aufrauung des Targets während der Ablation, oder eine zu hohe Energie des Ablationslasers sein. Um die Targetoberfläche möglichst rein und glatt zu halten, wurde sie regelmäßig mit immer feiner werdendem Schleifpapier abgeschliffen und vor jedem Ablationsschritt mit 200 Laserpulsen gereinigt. Um eine Aufrauung des Targets zu vermeiden, wurden für dickere YBCO-Schichten mehrere Beschichtungsintervalle auf verschiedenen Stellen des Target vorgenommen. Der Ablationsvorgang betrug immer maximal 25 nm pro gereinigtem Targetbereich. Dies war der wichtigste Punkt zur Vermeidung von Dropletbildung, da schon bei einer in einem Ablationsvorgang hergestellten 50 nm dicken YBCO-Schicht Droplets vorhanden waren. Abbildung 5.7 zeigt die starke Dropletbildung an einem 100 nm dicken YBCO-Film, der in einem einzigen Ablationsvorgang ohne Wechseln des Targetbereichs hergestellt wurde. Durch regelmäßiges Wechseln des Lasergases und reini-

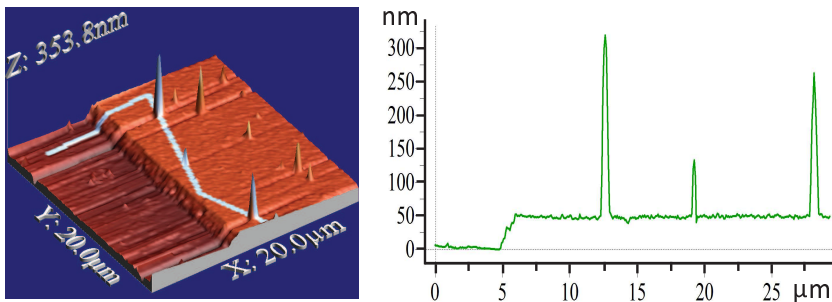


Abbildung 5.7: *links:* Die beiden Bereiche des in einem Ablationsschritt hergestellten 100 nm dicken Yas02a und des 50 nm angeätzten Bereichs von Yas02b, *rechts:* Linescan über 3 Droplets auf Yas02a

gen des Lasereintrittsfensters gelang es, die Energie relativ konstant bei 150 mJ zu halten. Für die 100% sichere Vermeidung von Dropletbildung müssten bestimmte Verfahren wie z.B. die *off-axis PLD* [Hol92] angewandt werden, was an dieser UHV-Anlage allerdings nicht möglich ist.

Die Frage stellt sich nun, ob solche Droplets zu supraleitenden Kurz-

schlüssen über die Barriere führen können. Droplets sind Bruchstücke des gesinterten Targetmaterials, welche zwar die stöchiometrische Zusammensetzung, jedoch nicht die Gitterstruktur des beim epitaktischen Wachstum in c-Achsenrichtung aus dem Plasma gebildeten YBCO-123 besitzen. Zur Bildung von supraleitendem YBCO ist noch die Einbindung von Sauerstoff während des Wachstums- und Temperprozesses notwendig. Die instabile Kristallstruktur der Droplets zeigte sich, als in Bereiche der 100 nm dicken YBCO-Schicht von Probe Yas02a 50 nm tief mit Ar-Ionen geätzt wurde. Die AFM-Bilder zeigten in den angeätzten Bereichen fast keine Droplets mehr (siehe Abbildung 5.7). Diese, im Vergleich zum Film, um mindestens den Faktor 6 höhere Ätzrate der ca. 1 μm breiten und bis zu 300 nm hohen Droplets ist ein klares Zeichen ihrer instabilen Struktur. Das wichtigste Argument gegen die Bildung eines supraleitenden Kurzschlusses über ein Droplet ist das glatte Aufwachsen des LCMO-Films. Eine Erhöhung der LCMO-Dicke führte daher auch immer zu einer Verringerung der Supraströmdichte der verschiedenen Filme. Außerdem ist zu beachten, dass ein supraleitender Kurzschluss über ein einziges YBCO-Droplet eine um mehrere Größenordnungen höhere Stromdichte ergeben müsste, als die in dieser Arbeit gemessene.

5.1.6 Suszeptibilitätsmessungen

Im letzten Charakterisierungsschritt, noch vor der Strukturierung, wurde der supraleitende Phasentübergang des gesamten Films über seine Suszeptibilitätsänderung bestimmt. Dazu wurde die Probe in einen Halter aus zwei Spulen und einem Temperatursensor eingebaut und über einen motorgesteuerten Messstab in einer Heliumkanne abgekühlt. Eine Spule (Anregespule) befand sich direkt über der Probe und sorgte für ein magnetisches Wechselfeld konstanter Frequenz. Die zweite Spule (Auslesespule) detektierte die von diesem Wechselfeld induzierte Spannung über einen Lock-In-Verstärker. Die Änderung der Suszeptibilität im supraleitenden Phasentübergang führt zu einer Änderung des Magnetfeldverlaufs um die innerhalb der Auslesespule platzierte Probe. Die Sprungtemperatur des gesamten Films kann somit bestimmt werden. Eine resistive Messung gibt immer nur die Sprungtemperatur des ersten gebildeten supraleitenden Kanals wieder, während andere Bereiche des Films noch im normalleitenden Zustand sein können. Aus der Breite des supraleitenden Phasentüberganges bei einer Suszeptibilitätsmessung lassen sich daher, im Gegensatz zu den resistiven Messungen, auch Aussagen über die Homogenität des Films

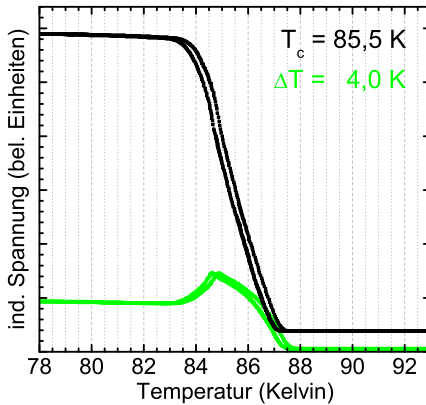


Abbildung 5.8: Suszeptibilitätsmessung an Probe YLY 10. Temperaturverlauf der induzierten Spannung (schwarz) und Spannungsänderung zur Bestimmung der Breite des Phasenübergangs (grün).

machen. In Abbildung 5.8 ist am Beispiel von Probe YLY 10 eine Suszeptibilitätsmessung dargestellt. Da zwischen Probe und Temperatursensor ein leichter Temperaturgradient besteht, kommt es zur Verschiebung der beiden Kurven beim Abkühlen und Aufwärmen. Da die Probe aus zwei, durch eine LCMO-Schicht getrennte, YBCO-Schichten bestand, sollte man bei Abweichungen der supraleitenden Eigenschaften eigentlich zwei Übergänge beobachten können. Diese Beobachtung konnte allerdings nicht gemacht werden, da beide Schichten parallel übereinander lagen und dadurch beim Übergang der zweiten Schicht keine messbare Änderung des Magnetfeldverlaufs mehr stattfand. Gemessen wurde hier also immer die bessere der beiden YBCO-Schichten mit der höheren Sprungtemperatur, wobei man nicht sagen konnte ob es sich dabei um die untere oder obere YBCO-Schicht handelte.

5.2 Strukturierung

Nachdem die YBCO-LCMO-YBCO-Trilagen hergestellt und ausreichend charakterisiert waren, begann die Strukturierung der planaren Kontakte. Die ersten 13 hergestellten Proben wurden in einer 3-Punkt-Anordnung strukturiert. Die dafür erforderlichen Lithographie-Masken waren bereits für planare Transportmessungen in den Arbeiten [Tom12] und [Wer11] verwendet worden und werden in [Tho11] ausführlich beschrieben. Da bei 3-Punkt-Messungen immer der Widerstand einer Zuleitung in Reihe mitgemessen werden muss, wurden noch entsprechende Masken entwickelt, mit denen sowohl 4-Punkt- als auch 3-Punkt-Messungen möglich waren. Ab Probe YLY 14 wurde dann die 4-Punkt-Strukturierung durchgeführt. Die unterschiedlichen Schichtdicken der hergestellten Proben finden sich im Anhang in Tabelle A.5.

5.2.1 3-Punkt-Kontakte

In Abbildung 5.9 ist der schematische Aufbau eines 3-Punkt-Kontaktes dargestellt. Die planare Kontaktfläche lag bei allen 21 auf einer Probe strukturierten 3-Punkt-Kontakten bei jeweils $150 \mu\text{m}^2$. Eine detaillierte Beschreibung der Strukturierung findet sich in [Hep12]. Die Strukturierung der 3-Punkt Kontakte wird im folgenden in vier Schritten beschrieben.

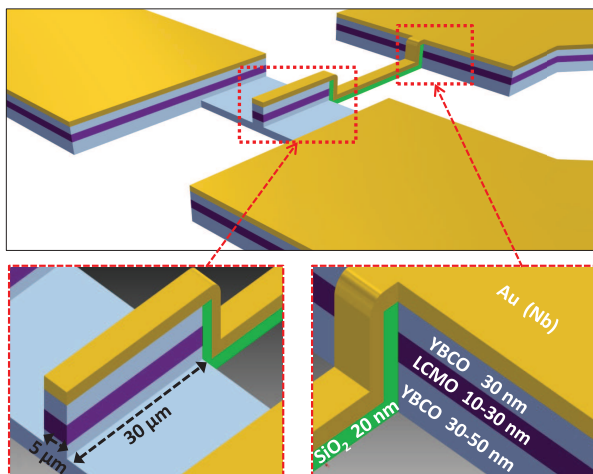


Abbildung 5.9:
Schematischer Aufbau eines 3-Punkt-Kontaktes.

Schritt 1: Kontaktierungs-Struktur

Beim ersten Strukturierungsschritt wurden die Flächen zur späteren Kontaktierung definiert. Die Strukturierung erfolgte über Photolithographie

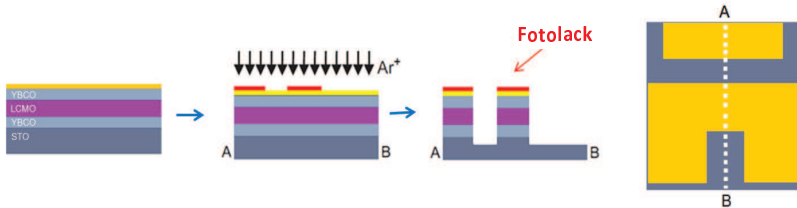


Abbildung 5.10: Erster Strukturierungsschritt: Definition der Kontaktierungs-Flächen durch Ionenstrahlätzen bis ins Substrat.

und anschließendes Argon-Ionenstrahlätzen. Die genauen Prozessparameter hierzu finden sich im Anhang A und gelten auch für nachfolgende Strukturierungsschritte. Um mögliche supraleitende Kurzschlüsse zu vermeiden, wurde vor der Lithographie jeweils eine Randentlackung durchgeführt und beim anschließenden Ionenstrahlätzen immer noch einige nm tief ins Substrat geätzt. Die beiden verwendeten Masken sind in Abbildung A.1 im Anhang dargestellt.

Schritt 2: Isolierung der Seitenflächen

Um später einen möglichen Stromfluss in a-b-Richtung zu verhindern, mussten die entstanden Kanten und Seitenflächen der Kontakte isoliert werden. Dies wurde durch sputtern von 20-40 nm SiO_2 erreicht. Dafür wur-

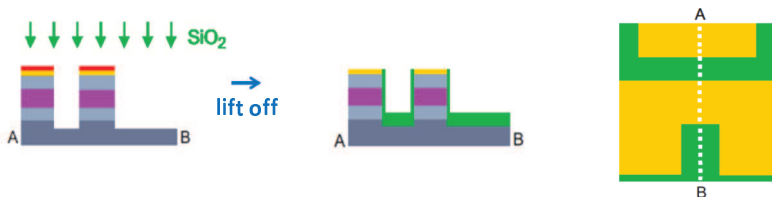


Abbildung 5.11: Zweiter Strukturierungsschritt: Isolierung der Kanten durch sputtern von SiO_2 .

de die Probe kurz aus der Ätzkammer genommen und mit einer Kupferverlängerung ausgestattet um den Abstand zum SiO₂-Target zu verringern. Die Parameter des folgenden Sputterprozesses finden sich in Tabelle A.2 im Anhang. Nach sputtern von mindestens 20 nm SiO₂, wurde die Probe zum *lift off* des Lacks für mehrere Stunden in ein Acetonbad gelegt. Dies war eine, im Vergleich zum Ultraschallbad, schonendere Variante für die strukturierte Probe. Anfangs wurden noch 40 nm SiO₂ gesputtert, später wegen des dadurch sehr schwergängigen *lift offs* nur noch 20 nm, was aber für eine vollständige Isolierung ausreichend war.

Schritt 3: Gold-Kontaktierung der oberen Elektrode

Um eine Verbindung zwischen den Zuleitungen von oberer und unterer Elektrode herzustellen wurde, nach Reinigung der Probe in Isopropanol, eine für den folgenden *lift off* passende Lackstruktur aufgebracht (Abbildung A.1 rechts). Die Probe wurde anschließend in die Ätzkammer des

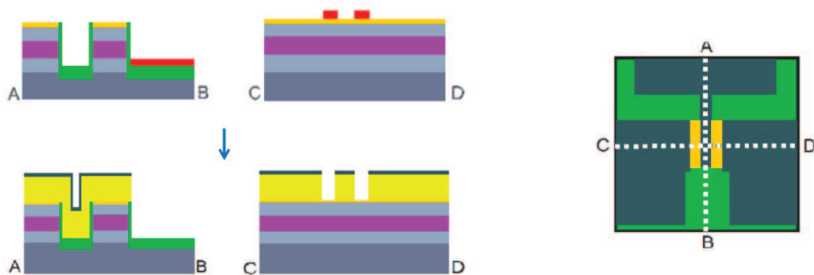


Abbildung 5.12: Dritter Strukturierungsschritt: Kontaktierung der oberen Elektrode durch sputtern von Gold/Niob und anschließendem *lift off*.

UHV-Systems eingeschleust. Dort wurde die 20 nm dicke Gold-Schicht 10 nm tief mit Argon-Ionen geätzt. Dieses *Anätzen* wurde eingeführt, um die Haftung der weiteren aufgesputterten Schichten auf der Gold-Schicht zu ermöglichen. Ohne diesen Schritt kam es nach dem letzten Ätzschritt im Acetonbad zu einem Ablösen der oberen Gold- und Niob-Schicht, besonders wenn es sich dabei um ESV-Gold handelte. Nach dem Anätzen wurde auf die Probe in-situ eine weitere Gold- und Niob-Schicht gesputtert und abschließend ein *lift off* im Acetonbad durchgeführt. Die obere Niob-Schicht diente als Maske für den letzten Ätzschritt, während die dicke

Gold-Schicht für die Kontaktierung der oberen Elektrode sorgte. Anfangs wurde noch auf die Gold-Schicht verzichtet und die Niob-Schicht sowohl als Ätzmaske als auch als supraleitende Zuleitung zur Kontaktierung verwendet, was sich bei den Messungen allerdings als Nachteil herausstellte.

Schritt 4: Ätzen der unteren Elektroden

Beim letzten Schritt wurde die obere YBCO- und LCMO-Schicht an den durch den vorhergehenden *lift off* strukturierten Stellen entfernt. Damit waren die unteren Zuleitungen strukturiert und die planaren Kontakte fertiggestellt.

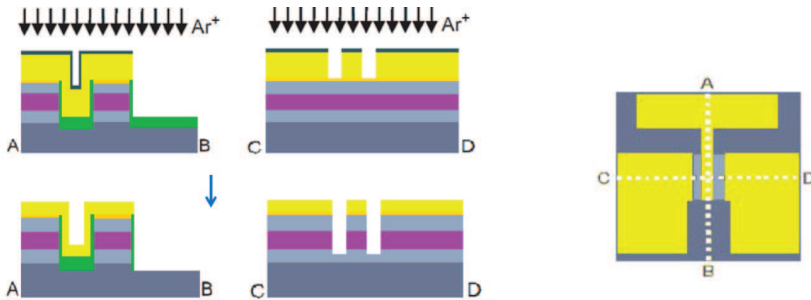


Abbildung 5.13: Vierter Strukturierungsschritt: Fertigstellen des planaren Kontakts durch Ionenstrahlätzen der oberen YBCO- und LCMO-Schicht im Bereich des vorhergegangenen *lift offs*.

5.2.2 4-Punkt-Kontakte

Um den Widerstand der Gold-Zuleitung auszuschließen und damit nur noch die Eigenschaften der Trilage messen zu können, wurden Masken für eine 4-Punkt-Messung angefertigt. Bei der Herstellung eines 4-Punkt-Kontaktes waren die ersten vier Prozessschritte dieselben wie bei den 3-Punkt-Kontakten. Als fünfter Schritt mussten noch die durchgehenden Gold-Zuleitungen der oberen Elektroden durchtrennt werden, um 4-Punkt-Kontakte zu erhalten. Bei der Lithographie war darauf zu achten die gesamte Breite der Zuleitung freizulegen, was durch mehrmaliges Belichten und Entwickeln des Lacks erreicht wurde. Beim Ionenstrahlätzen war darauf zu achten, die Ätzzeit so kurz wie möglich zu halten um die obere YBCO-Schicht nicht zu beschädigen.

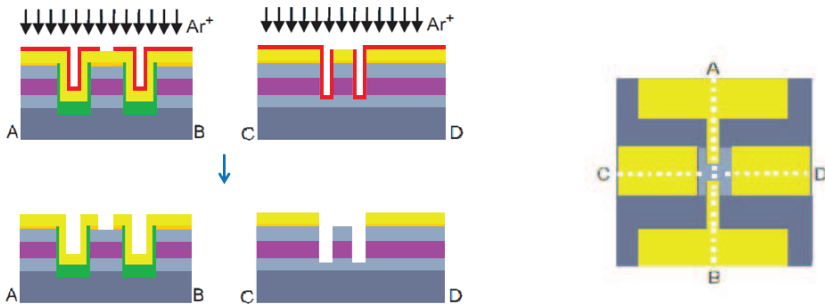


Abbildung 5.14: Zusätzlicher Strukturierungsschritt zur Herstellung eines 4-Punkt-Kontaktes.

Im Vergleich zu den 3-Punkt-Masken, bestanden die 4-Punkt-Masken (siehe Abbildung A.2 im Anhang) aus Kontakten unterschiedlicher Fläche und Orientierung. Eine fertig strukturierte Probe beinhaltete:

- vier 3-Punkt-Kontakte mit $5 \times 30 \mu\text{m}^2$ großer Kontaktfläche
- acht 4-Punkt-Kontakte mit $5 \times 30 \mu\text{m}^2$ großer Kontaktfläche
- sieben 4-Punkt-Kontakte mit $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ großer Kontaktfläche
- ein 4-Punkt-Kontakt zur Messung der Transports durch die Trilage in a-b-Richtung
- mehrere 3-Punkt-Strukturen zur Messung des Transports in a-b-Richtung durch die untere YBCO-Schicht

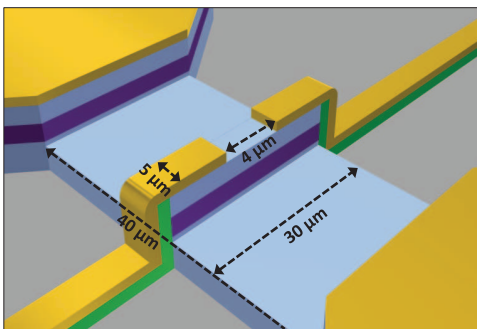


Abbildung 5.15: Schematischer Aufbau eines 4-Punkt-Kontaktes mit durchtrennten Gold-Zuleitungen.

Kapitel 6

Messergebnisse

Die Ergebnisse der Messungen an den planaren Kontakten werden in drei Abschnitte aufgeteilt. Zu Beginn wird der $R(T)$ -Verlauf sowohl in ab-Richtung über einzelne Schichten als auch in c -Achsenrichtung über die Kontakte der verschiedenen Proben gezeigt. Im nächsten Abschnitt werden $I(V)$ -Kennlinien und $I_c(H)$ -Kurven im Niederfeld bei Magnetfeldern von wenigen Millitesla untersucht. Hier wird vor allem auf den Einfluss der LCMO-Schicht und des angelegten Magnetfeldes auf das Tunnelverhalten der Kontakte eingegangen. Des Weiteren dienten Untersuchungen und Bearbeitungen des Aufbaus der Kontakte mittels FIB¹ dazu, Kurzschlüsse über kritische Stellen auszuschließen. Im letzten Abschnitt werden Hochfeldmessungen bei Magnetfeldern von mehreren Tesla gezeigt und mit den Ergebnissen im Niederfeld verglichen.

6.1 $R(T)$ -Messungen

Als erste Charakterisierung des Transportverhaltens der einzelnen Schichten, wurde der spezifische Widerstand in Abhängigkeit der Temperatur bestimmt. Die Messungen wurden in einem speziell zur $R(T)$ -Bestimmung angefertigten Probenstab durchgeführt. Die Proben waren über einen Kupferblock thermisch an einen Temperatursensor (Si-Diode DT-470) angekoppelt und wurden mit einem motorgesteuerten Messstab in einer Helium-Kanne langsam abgekühlt. Für die $R(T)$ -Charakterisierung wurden spe-

¹Focused Ion Beam

ziell drei Proben, mit zu den Trilagen vergleichbaren Parametern, hergestellt. Zwei Proben hatten je eine einzelne 30 nm dicke Schicht aus YBCO oder LCMO, die jeweils auf ein STO-Substrat aufgewachsen worden war. Die dritte Probe bestand aus einer Bilage mit einer unteren YBCO- und einer oberen LCMO-Schicht, die beide auch jeweils 30 nm dick waren. Die Proben waren wie die planaren Kontakte hergestellt, mit einer oberen Goldschicht als Kontaktierung. Gemessen wurde jeweils der spezifische Widerstand in ab-Achsenrichtung über die angeätzten Bereiche zwischen den beiden unteren Elektroden (siehe Abbildung 5.15).

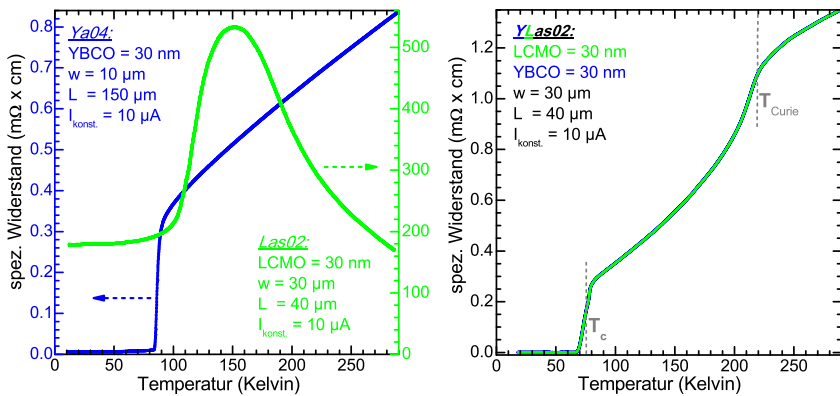


Abbildung 6.1: links: Spezifischer Widerstand einer einzelnen YBCO- oder LCMO-Schicht auf einem STO-Substrat.
rechts: Widerstandsverlauf einer Bilage aus YBCO und LCMO.

Die $R(T)$ -Kurve von Ya04 in Abbildung 6.1 zeigt den typischen Verlauf einer supraleitenden YBCO-Schicht mit einer Sprungtemperatur von ca. 86 Kelvin und einem spezifischen Widerstand bei Raumtemperatur von knapp $1 \text{ m}\Omega\text{cm}$. Der spezifische Widerstand der LCMO-Schicht ist um mehrere Größenordnungen höher als bei der YBCO-Schicht und die Curie-Temperatur (Maxima der $R(T)$ -Kurve) liegt bei nur 150 Kelvin. Der geringe Wert von T_{Curie} und der hohe Widerstand hängen sehr stark von der Dicke der LCMO-Schicht auf dem STO-Substrat ab. Durch die größere Gitterkonstante des STO-Substrates wird die dünne LCMO-Schicht gedehnt, was zu den beobachteten Eigenschaften führt (vgl. [Wer10]).

Die Eigenschaften einer LCMO-Schicht ändern sich drastisch, wenn sie auf YBCO aufgewachsen wird. Die kleineren Gitterkonstanten von YBCO sor-

gen hier für eine leichte Stauchung der LCMO-Schicht. Dies hat zur Folge, dass sich der Widerstand des auf YBCO aufgewachsenen LCMO stark verringert und gleichzeitig T_{Curie} ansteigt. In Abbildung 6.1 rechts erkennt man den Einfluss der LCMO-Schicht auf die YBCO-Schicht am Knick in der $R(T)$ -Kurve bei 220 K, was etwa T_{Curie} von LCMO entspricht. Zusätzlich führt die LCMO-Schicht zu einer Verbreiterung des supraleitenden Übergangs in der YBCO-Schicht und verschiebt T_c zu kleineren Temperaturen.

In Abbildung 6.2 sind $R(T)$ -Kurven verschiedener Proben dargestellt, die

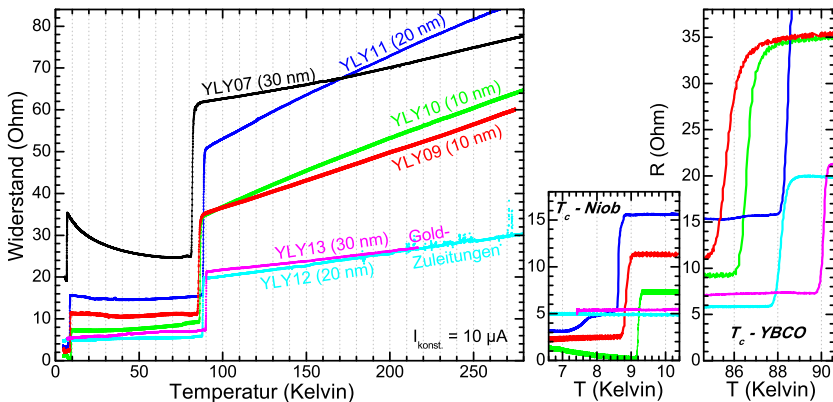


Abbildung 6.2: Über die planaren 3-Punkt-Kontakte gemessene $R(T)$ -Kurven.

jeweils durch 3-Punkt-Messungen über die planaren Kontakte in Richtung der c -Achse ermittelt wurden. Der Widerstand oberhalb von T_c hängt stark davon ab, ob Gold oder Niob zur Kontaktierung der oberen Elektrode verwendet worden war. Außerdem spielt noch die Dicke der LCMO-Schicht eine Rolle. Die Sprungtemperaturen von YBCO liegen fast alle im Bereich zwischen 85 und 90 Kelvin (siehe vergrößerter Ausschnitt rechts). Unter der Sprungtemperatur der Niob-Zuleitung (8,5 bis 9 Kelvin) kam es bei manchen Proben noch zu einem Ansteigen des Widerstands bei weiterer Absenkung der Temperatur. Dies könnte mit dem Öffnen der Niob-Energielücke zusammenhängen oder ein Effekt der Wechselwirkung von YBCO- und LCMO-Schicht sein [Sol07].

6.2 Niederfeldmessungen

Der größte Teil der Niederfeldmessungen wurde mit einem durch einen Kryoperm-Becher magnetisch abgeschirmten Probenstab in einer Helium-Kanne durchgeführt. Die Temperaturbestimmung erfolgte über eine Si-Diode². Innerhalb des Kryoperm-Bechers befand sich eine, um einen zweiten Becher gewickelte, supraleitende Spule, die in-plane-Magnetfelder bis zu 3 mT erzeugen konnte. Die Abschirmung hochfrequenter Störungen gelang mit Hilfe von RC-Tiefpassfiltern an den Enden der, in *twisted-pair*-Wicklung paarweise durch den Probenstab geführten, Kupferleitungen.

Einfluss der Niob-Kontaktierung

Bis einschließlich Probe YLY 11 wurde eine Niob-Zuleitung zur Kontaktierung der oberen YBCO-Elektrode mit einer ca. 10 nm dicken Gold-Zwischenschicht verwendet. In Abbildung 6.3 sind $I(V)$ -Kennlinien eines Kontaktes von Probe YLY 07 bei hohen Strömen und unterschiedlichen Temperaturen dargestellt. Es zeigen sich jeweils zwei Spannungssprünge.

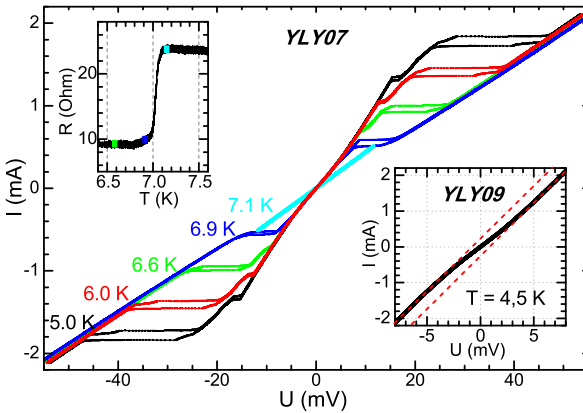


Abbildung 6.3: Normalleitender Übergang der Niob-Zuleitungen bei hohen Stromdichten und variabler Temperatur an YLY07. Tunnelartige $I(V)$ an YLY09.

Beim kleinen Sprung handelt es sich um den Supraleiter-Normalleiter-Übergang der zur oberen YBCO-Schicht führenden, 5 μm breiten, Niob-Zuleitung. Die geringe kritische Stromdichte von ca. 200 kA/cm^2 bei 4 K hängt hier auch mit dem geringen T_c von nur 7 K zusammen. Hochreine Niob-Dünfilme erreichen Werte bis 10000 kA/cm^2 . Wird der Strom weiter

²Modell: DT-470-SD-12A

erhöht, so wird auch noch der breitere Teil der Zuleitung normalleitend, was sich in Form des breiteren Sprungs zeigt. Der hysteretische Verlauf ist auf Heizeffekte im normalleitenden Zustand zurückzuführen. Dass dies ein reiner Effekt der Niob-Schicht ist, wird beim Vergleich der $R(T)$ -Kurve mit den $I(V)$ -Kennlinien bei Erhöhung der Temperatur deutlich. Direkt oberhalb von 7 Kelvin, dem T_c -Wert des Niobs von Probe YLY 07, wird die $I(V)$ -Kennlinie zu einer Geraden.

Bei einigen Proben, bei denen kein Tunneln von Cooper-Paaren beobachtet werden konnte, zeigte die $I(V)$ -Kennlinie dennoch tunnelartigen Charakter. Besonders ausgeprägt war dies an Probe YLY 09. Im rechten Inset erkennt man eine, möglicherweise durch Quasiteilchentunneln verursachte, Abnahme der Leitfähigkeit im Bereich zwischen -5 und $+5$ mV.

Cooper-Paar-Tunneln an Probe YLY10

Erste Messungen eines Cooper-Paar-Tunnelstroms gelangen an verschiedenen Kontakten der Probe YLY 10 mit einer 10 nm dicken LCMO-Schicht. Abbildung 6.4 links zeigt einen Suprastrom bis $20 \mu\text{A}$ über den YBCO-Au-Nb-Kontakt der oberen Elektrode mit der Zuleitung. Der Suprastrom über den YBCO-LCMO-YBCO-Kontakt betrug über $150 \mu\text{A}$ und blieb auch bei Erhöhung der Temperatur über 10 Kelvin noch erhalten, während

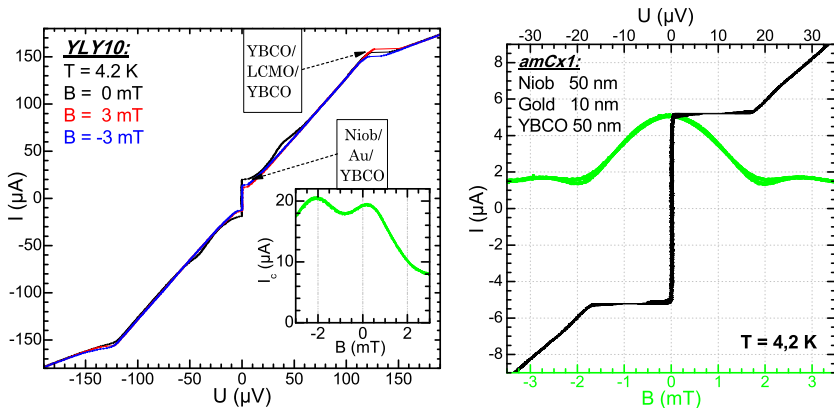


Abbildung 6.4: links: Durch Niob-Kontaktierung ergeben sich zwei in Reihe geschaltete planare Kontakte. Die $I_c(B)$ -Kurve des YBCO-Au-Niob-Kontaktes wird durch die vorhandene LCMO-Schicht unsymmetrisch. rechts: planarer YBCO-Au-Nb Kontakt mit symmetrischer $I_c(B)$ -Kurve.

der Niob-Kontakt in den resistiven Zustand übergang. Bei 4,2 Kelvin wurde das $I_c(H)$ -Verhalten in einem in-plane und senkrecht zur 30 μm langen Kontaktseite angelegten Magnetfeld untersucht. Der YBCO-Au-Nb-Kontakt zeigte im Magnetfeld eine unsymmetrische Modulation, was eindeutig auf den Einfluss des magnetischen Streufeldes der LCMO-Schicht zurückzuführen sein muss.

Den Beweis dafür lieferte der, mit denselben geometrischen Abmessungen hergestellte, planare Tunnelkontakt amCx1. Die Schichtdicken mit 50 nm YBCO, 10 nm Gold und ca. 50 nm Niob waren vergleichbar zu YLY12, allerdings fehlte die LCMO-Schicht unter der YBCO-Schicht. Hier ergab sich ein symmetrisches, fast Fraunhofer-artiges $I_c(H)$ -Muster (Abbildung 6.4 rechts). Eine Berechnung der Lage des ersten Minimums erfolgte über die beiden Formeln:

$$B_{min} = \frac{\phi_0}{L \cdot \Lambda} \quad (6.1)$$

$$\Lambda = t + \lambda_{L1} \cdot \tanh\left(\frac{D_1}{2\lambda_{L1}}\right) + \lambda_{L2} \cdot \tanh\left(\frac{D_2}{2\lambda_{L2}}\right) \quad (6.2)$$

Dabei entspricht t der Barrierendicke, D der Elektroden-Dicke und λ_L der Londonschen Eindringtiefe in die Elektroden. Die Barrierenlänge L beträgt bei allen Kontakten auf der längeren Seite 30 μm wobei sich durch die gedrehte Struktur hier eine vom Magnetfeld durchflossene Länge von 21 μm ergab. Als Londonsche Eindringtiefen in c-Achsenrichtung wurden 800 nm für YBCO und 39 nm für Niob angenommen. Für die Probe amCx1 folgte dadurch für B_{min} ein Wert von 1,7 mT was sehr gut mit der Messung aus Abbildung 6.4 rechts übereinstimmt.

Wegen des in Reihe geschalteten Niob-Au-YBCO-Kontaktes mit geringem I_c als beim YBCO-LCMO-YBCO-Kontakt, war eine direkte $I_c(H)$ -Bestimmung mittels eines Spannungskriteriums und Abziehen eines konstanten Widerstandes nicht möglich. Daher wurde fortan nur noch eine einzige dicke Gold-Schicht zur Kontaktierung der oberen YBCO-Schicht verwendet.

Probe YLY12 (reine Gold-Zuleitungen)

Die erste Probe mit ausschließlicher Gold-Kontaktierung war Probe YLY 12 mit einer 20 nm dicken LCMO-Barriere und einer 150 nm dicken oberen Gold-Zuleitung. Um die Spannungssprünge im Bereich des kritischen Stromes besser erkennen zu können, wurden die $I(V)$ -Kennlinien um den durch die 3-Punkt-Struktur bedingten seriellen Widerstand der Gold-Zuleitung

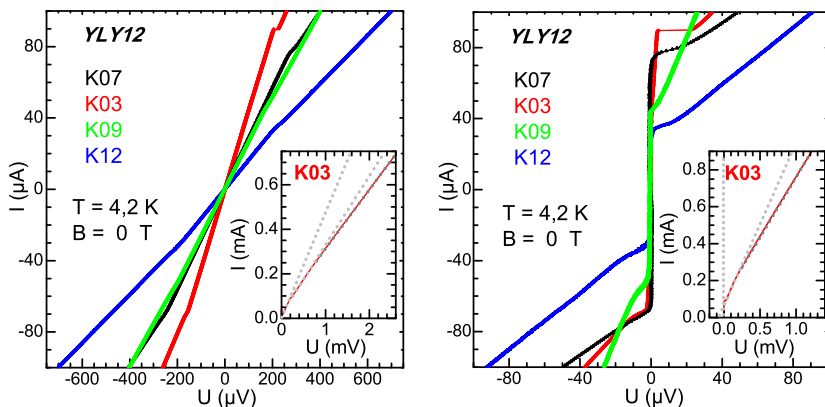


Abbildung 6.5: links: Unkorrigierte I(V)-Kennlinien von YLY12.
rechts: Um den seriellen Gold-Widerstand der oberen Zuleitung korrigierte I(V)-Kennlinien von YLY12.

korrigiert. Für die korrigierte Spannung gilt $U_{kor} = U_{unkor} - I \cdot R_{Au}$. In Abbildung 6.5 sind unkorrigierte (links) und dazugehörige korrigierte (rechts) I(V)-Kennlinien von 4 Kontakten dargestellt. Insgesamt 12 Kontakte auf Probe YLY12 zeigten unterschiedlich starke kritische Ströme mit einem Maximalwert von 110 μA . Im Durchschnitt lag I_c im Bereich von 40-80 μA . Einige Kontakte, wie beispielsweise der im folgenden Abschnitt untersuchte Kontakt K3, zeigten unsymmetrische Werte von $+I_c$ und $-I_c$. In den beiden Insetts von Abbildung 6.5 sind jeweils die I(V)-Kennlinien dieses Kontakts für höhere Ströme dargestellt. Man erkennt ein Abknicken innerhalb des resistiven Astes der I(V)-Kennlinie bei einer Stromstärke von ca. 250 μA .

YLY12-K3

Das Abziehen des Gold-Widerstandes ermöglicht zwar eine bessere Auswertung der I(V)-Kennlinien, mit echten 4-Punkt-Messungen kann es aber trotzdem noch nicht verglichen werden. Dies wird bei näherer Betrachtung der I(V)-Kennlinien von K3 in Abbildung 6.6 deutlich. Das linke Schaubild zeigt um 2,28 Ω korrigierte I(V)-Kennlinien bei konstanter Temperatur und variablem Magnetfeld. Man erkennt ein Abknicken der Spannung bei ca. 40 μA , unabhängig vom angelegten Magnetfeld. Wird die Tempera-

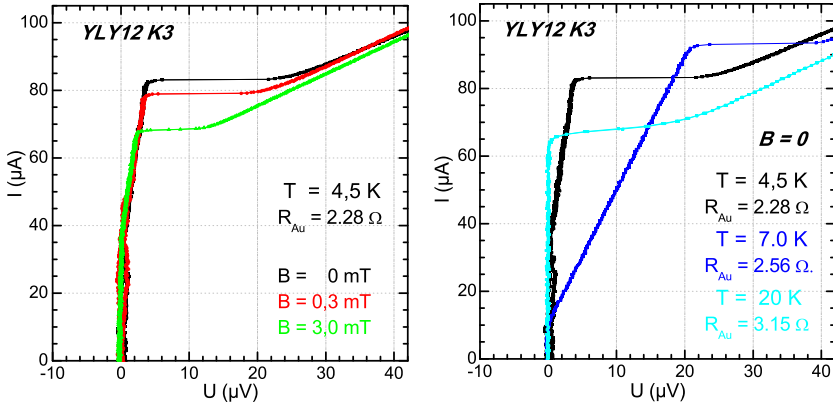


Abbildung 6.6: Korrigierte I(V)-Kennlinien von YLY12-K3 bei variablem Magnetfeld (links) und variabler Temperatur (rechts).

tur im Nullfeld erhöht, so erfolgt ein stärkeres Abknicken bei geringeren Strömen und R_{Au} erhöht sich. Dies sind zwei klare Anzeichen für eine, durch ohmsche Heizung verursachte und stark temperaturabhängige, Widerstandszunahme in der Gold-Zuleitung.

Das $I_c(H)$ -Verhalten von YLY12 soll am Beispiel der beiden Kontakte K3 und K10 gezeigt werden. In Abbildung 6.7 sind I(V)-Kennlinien bei verschiedenen in-plane Feldern senkrecht zur $30 \mu\text{m}$ langen Seite von K3 bei 4,2 Kelvin dargestellt. Das Magnetfeld wurde im Bereich von -3 mT bis $+3 \text{ mT}$ variiert, was zu einer Modulation des kritischen Stroms zwischen $66 \mu\text{A}$ und $85 \mu\text{A}$ führte. Dies entspricht einer Modulationstiefe von ca. 22%, bezogen auf den Maximalwert. Bei den Kontakten von YLY 12 variierte die Modulationstiefe zwischen 8% und 33%. Die über die beiden Gleichungen (6.1) und (6.2) berechnete Lage des 1. Minimums ergab $1,15 \text{ mT}$. Sie stimmte mit der Lage der Minima aus Abbildung 6.7 rechts gut überein. Allerdings kann bei den gemessenen Kontakten wegen der geringen Modulationstiefe und unsymmetrischen Lage der I_c -Maxima nicht von einem Fraunhofer-artigen $I_c(H)$ -Verhalten gesprochen werden. Die Lage der Maxima und Minima von $\pm I_c$ änderte sich bei mehrmaligem Durchfahren des Magnetfeldes von -3 mT nach $+3 \text{ mT}$ oder von $+3 \text{ mT}$ nach -3 mT nicht, wobei es bei einigen Kontakten zu Unterschieden zwischen $+I_c(H)$ und $-I_c(H)$ kam. Die Magnetfeldstärke von $\pm 3 \text{ mT}$ lag noch weit unter dem für LCMO-Dünnschichten bestimmten Koerzitivfeld von $10\text{-}30 \text{ mT}$ [Wer08], so

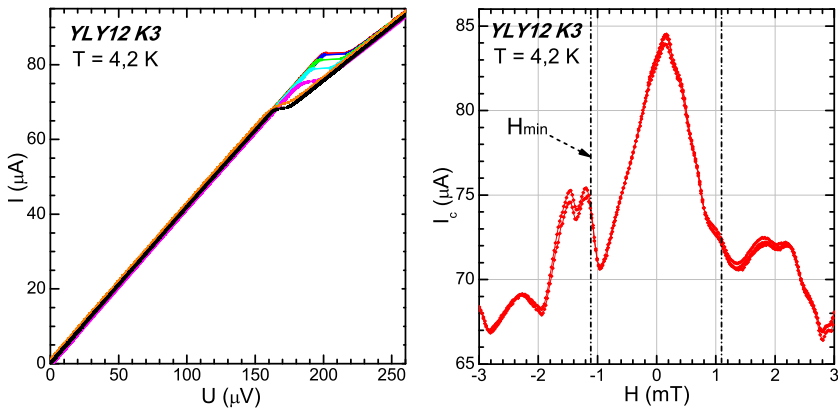


Abbildung 6.7: Modulation des kritischen Stromes im Magnetfeld und dazugehöriges $I_c(H)$ -Muster bei 4,2 Kelvin

das eine Umordnung der magnetischen Domänen durch das angelegte Feld hier nicht eintreten sollte.

YLY12-K10 (verschiedene Einkühlvorgänge)

Während die $I(V)$ -Kennlinie von K3 noch leicht unsymmetrisch in Bezug auf $+I_c$ und $-I_c$ war, zeigte K10 ein punktsymmetrisches Verhalten. Im Vergleich zu K3 war hier der serielle Widerstand R_{Au} unterhalb von I_c sehr konstant, was besonders an der korrigierten $I(V)$ -Kennlinie im Inset von Abbildung 6.8 links deutlich wird. Dadurch konnten bei diesem Kontakt auch problemlos $I_c(H)$ -Kurven aufgenommen werden. Ein weiterer Unterschied zu K3 war ein leicht hysteretisches Verhalten, welches im zweiten Inset sichtbar wird.

An K10 soll im Folgenden der Einfluss der Domänenstruktur auf das $I_c(H)$ -Verhalten untersucht werden. Abbildung 6.8 zeigt die Variation des $I_c(H)$ -Musters nach verschiedenen Abkühlvorgängen. Wurde die Probe über die Sprungtemperatur von YBCO aufgewärmt und wieder abgekühlt, so war noch dasselbe $I_c(H)$ -Muster zu erkennen. Es ergibt sich hier zwar eine Verschiebung der roten zur schwarzen $I_c(H)$ -Kurve nach dem erneuten Abkühlen, allerdings sind immer noch dieselben Maxima und Minima vorhanden. Wurde die Probe anschließend über die Curie-Temperatur von LCMO aufgewärmt, so zeigte sich ein anderes $I_c(H)$ -Muster. Dies lässt

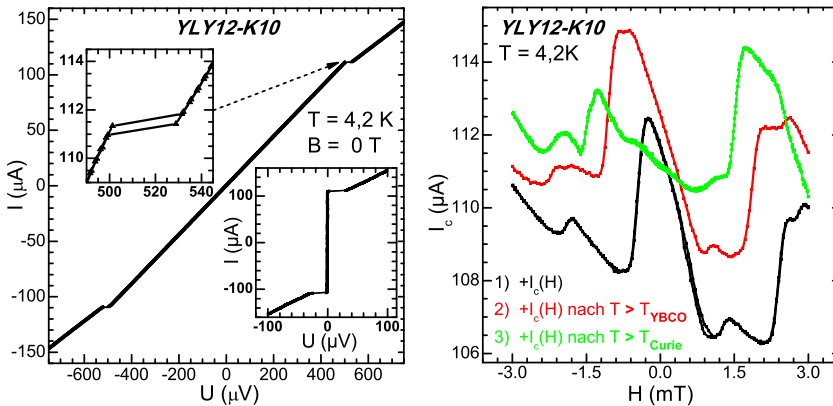


Abbildung 6.8: Variation des $I_c(H)$ -Musters bei verschiedenen Abkühlvorgängen am Beispiel von YLY12-K10.

darauf schließen, dass eine neue Anordnung der Domänen beim Abkühlen unter T_{Curie} einen Einfluss auf das $I_c(H)$ -Verhalten des Kontaktes nimmt. Eine Umordnung der Domänen hat eine Veränderung des magnetischen Streufeldes durch den Kontakt zur Folge, was sich dann direkt im $I_c(H)$ -Muster widerspiegelt.

YLY12-K10 ($I_c(T)$ -Verhalten)

Die Änderung des kritischen Stromes bei Variation der Temperatur kann einen Aufschluss über verschiedene Eigenschaften der Barriere geben. In [Esc08] wurde das $I_c(T)$ -Verhalten bei Variation der Dicke oder der mittleren freien Weglänge einer halbmetallischen Barriere simuliert. Ein Anstieg der Barrieren-Dicke hat dabei den gleichen Effekt auf das $I_c(T)$ -Verhalten wie eine geringere mittlere freie Weglänge in der Barriere. In beiden Fällen wird ein lokales Maximum von I_c zu tieferen Temperaturen verschoben und bei steigenden Temperaturen fällt der kritische Strom zuerst steil, dann flach ab und kann schon unter T_c verschwinden. Das Auftreten eines solchen lokalen Maximums von I_c wird über eine gebrochene Zeitumkehrinvarianz der Paarwellenfunktion bei Spin-Triplett-Paarung in einem Halbmetall erklärt (sogenanntes *odd frequency pairing*).

Der kritische Strom von YLY12-K10 bei verschiedenen Temperaturen wurde jeweils durch das erste Abknicken der $I(V)$ -Kennlinie von einer darüber

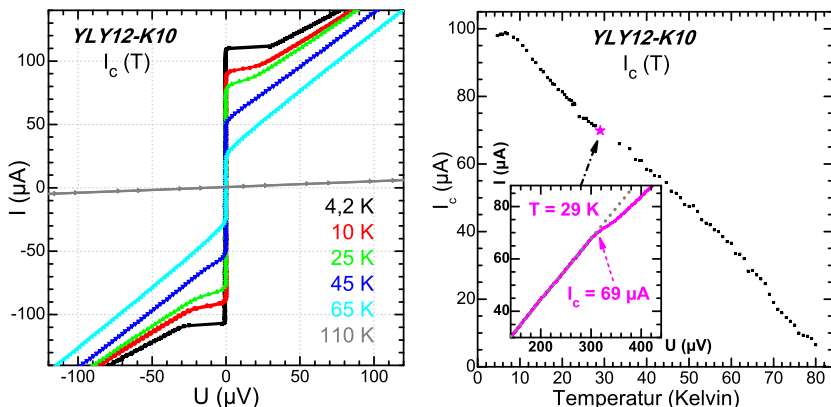


Abbildung 6.9: *links:* um R_{Au} korrigierte $I(V)$ -Kennlinien im Nullfeld bei verschiedenen Temperaturen. *rechts:* $I_c(T)$ -Verlauf von YLY12-K10 im Nullfeld.

gelegten R_{Au} -Fitgeraden bestimmt (Abbildung 6.9 Inset rechts). Die jeweils um R_{Au} korrigierten $I(V)$ -Kennlinien bei verschiedenen Temperaturen sind im linken Schaubild dargestellt. Ein schwaches lokales Maximum der $I_c(T)$ -Kurve ist bei ca. 7 Kelvin erkennbar. Bei weiterer Temperaturerhöhung ergab sich ein näherungsweise linearer Abfall des kritischen Stromes in der Form $I_c \approx (1-T/T_c)$. Der I_c -Verlauf von YLY12-K10 lässt sich nur schwer mit den Berechnungen aus [Esc08] vergleichen. Bemerkenswert ist allerdings das Auftreten des Maximums bei 7 Kelvin. Der Grund für dieses Maximum könnte, beim Vergleich mit Abbildung 6.8 rechts, in einer Variation des Magnetfeldes zu finden sein, welches auch I_c -Variationen bis zu 5 μA ermöglicht. Allerdings konnte auch bei K3 ein solches I_c -Maximum beobachtet werden. Bei 7 Kelvin stieg der kritische Strom um mehr als 10 μA im Vergleich zu 4,2 Kelvin an (siehe Abbildung 6.6 rechts). Möglicherweise könnte dies ein Hinweis auf die in [Esc08] beschriebene Spin-Triplett-Konversion sein.

YLY12-K10 (FIB-Bearbeitung)

Um sicher gehen zu können, dass ein Stromfluss innerhalb der breiten Zuleitung zur Trilage nur in der unteren YBCO-Schicht stattfand, wurde die Probe per Rasterkraft- und Rasterelektronenmikroskop genauer un-

tersucht. Das Ionenstrahlätzen im ersten Strukturierungsschritt erzeugte nicht, wie im Idealfall der linken Skizze von Abbildung 6.10, eine senkrechte Flanke der Trilage, sondern eine schräge Seitenwand. REM-Bilder zeigten, dass nach dem Aufspüttern und anschließendem *lift off* der 20 nm dicken SiO_2 -Schicht, noch Reste der SiO_2 -Schicht über die schräge Wand hinausragten und sich bis 1,5 μm weit auf die Trilage legten. Ein Vorteil dieser

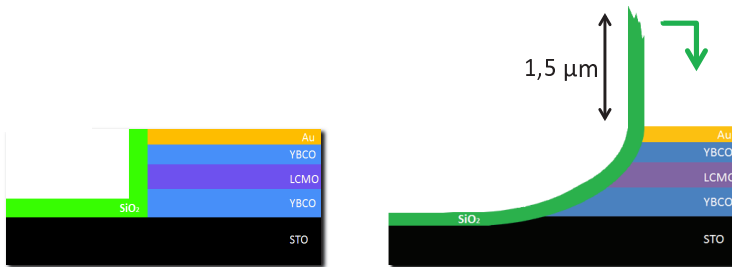


Abbildung 6.10: *links:* idealer Aufbau mit senkrechter Trilage. *rechts:* realer Aufbau mit schräger Seitenwand der Trilage und überstehenden SiO_2 -Resten durch den *lift off*.

leicht überstehenden SiO_2 -Bedeckung ist, dass dadurch die darüber verlaufende 5 μm breite obere Zuleitung noch besser von der Seitenwand der Trilage isoliert ist. Außerdem konnte auf den REM-Bildern eine homogene Bedeckung der Seitenwand festgestellt werden, so dass Kurzschlüsse durch die SiO_2 -Schicht unwahrscheinlich sind. Ein schwerwiegender Nachteil der überstehenden SiO_2 -Bedeckung könnte sein, dass bei einer zu geringen Ätzrate von SiO_2 beim Ätzen der oberen YBCO- und LCMO-Schicht am Rand noch zwei schmale Stege der Trilage übrig bleiben. Dadurch wären Kurzschlüsse direkt zwischen den oberen YBCO-Schichten der drei Zuleitungen möglich.

Um festzustellen, wie groß ein möglicher Einfluss dieser SiO_2 -Bedeckung auf das Tunnelverhalten ist, wurden die beiden unteren Zuleitungen von YLY12-K10 per FIB³ bearbeitet. An jeder der unteren Zuleitungen wurden mehrere μm des Randes weggeschnitten (siehe Abbildung 6.11 links). Dadurch kann man sicher gehen, dass der Strom nur über die untere YBCO-Schicht in die Trilage fließen kann und somit ein Kurzschluss ausgeschlossen ist. Ein Vergleich der $I(V)$ -Kennlinie vor der FIB-Bearbeitung mit derjenigen danach zeigt keine großen Veränderungen. Nur eine klei-

³focused ion beam

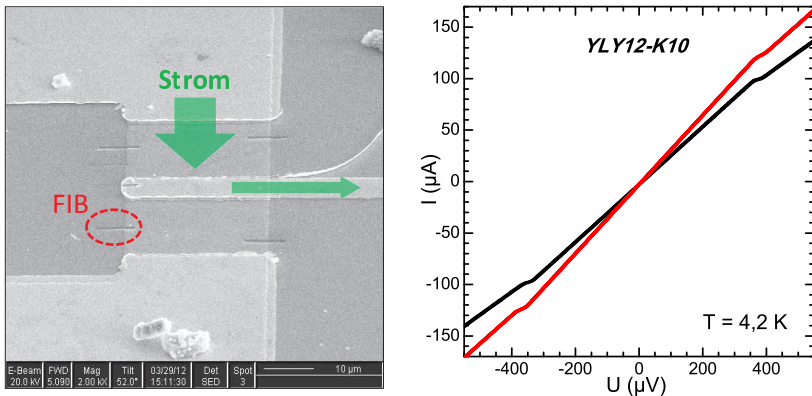


Abbildung 6.11: *links:* REM-Bild nach vier FIB-Schnitten durch die Seitenwände. *rechts:* $I(V)$ -Kennlinien vor (schwarz) und nach (rot) den FIB-Schnitten.

ne Änderung des Widerstands und des kritischen Stroms ist erkennbar. Die Erhöhung des kritischen Stroms nach der FIB-Bearbeitung kann als, aus Abbildung 6.8 bekannte, natürliche Variation nach Aufwärmen über T_{Curie} verstanden werden. Wäre der kritische Strom durch einen der vermuteten Kurzschlüsse zustande gekommen, so dürfte nach Durchtrennung der Seitenränder kein Sprung in der $I(V)$ -Kennlinie mehr erkennbar sein. Da dies hier eindeutig nicht der Fall ist, können diese Kurzschlüsse als mögliche Ursache des Suprastroms ausgeschlossen werden.

6.3 Hochfeldmessungen

Bei den Hochfeldmessungen wurde die Variation des kritischen Stromes bei Magnetfeldstärken von mehreren Tesla untersucht. Dazu wurde die Probe in die Mitte des Helmholtz-Spulenpaares im Heliumbad eines 7-Tesla-Magnetkryostaten eingebaut. Eine Drehung des Probenstabes ermöglichte es, das in-plane-Magnetfeld senkrecht zur langen oder senkrecht zur kurzen Kontaktseite auszurichten.

Zu Beginn wurden $I(V)$ -Kennlinien des im Niederfeld am ausführlichsten untersuchten Kontakts YLY12-K10 bei verschiedenen Magnetfeldstärken von 0 bis 3,6 Tesla aufgenommen. Das Magnetfeld war hierbei immer in-plane und senkrecht zur langen Kontaktseite ausgerichtet. Die Entwicklung der $I(V)$ -Kennlinien ist in Abbildung 6.12 dargestellt. Der kritische

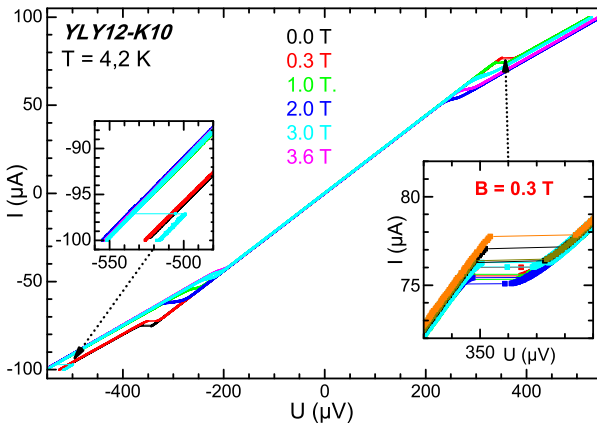


Abbildung 6.12:

Entwicklung der $I(V)$ -Kennlinien von YLY12-K10 bei hohen Magnetfeldstärken. Aufspaltung in zwei Abschnitte ober- bzw. unterhalb der maximalen kritischen Ströme.

Strom fiel bei höheren Magnetfeldstärken teilweise auf Werte bis weniger als 50% des I_c -Maximums ab. Dabei zeigten $+I_c$ und $-I_c$ ein unsymmetrisches Verhalten. Die $I(V)$ -Kennlinien wurden immer über ein Durchfahren des Strombereiches von $-I_{max}$ nach $+I_{max}$ und wieder nach $-I_{max}$ aufgenommen, um so gegebenenfalls auch hysteretische Effekte bestimmen zu können. Bei kleineren Variationen der Magnetfeldstärke von wenigen Millitesla um höhere konstante Magnetfelder, variierten die gemessenen kritischen Ströme in einem Bereich von ca. $4 \mu\text{A}$. Im rechten Inset ist dies am Beispiel von verschiedenen $I(V)$ -Kennlinien im Bereich um 300 mT gezeigt. Eine weitere Beobachtung war die Aufspaltung der $I(V)$ -Kennlinien in zwei parallel verlaufende Abschnitte, jeweils oberhalb von $+I_c$ und unterhalb

von $-I_c$. Im linken Inset wird das Überspringen einer $I(V)$ -Kennlinie bei 3 Tesla zwischen diesen beiden Abschnitten sichtbar. Dies konnte für bestimmte Feldstärken während einer Messung beobachtet werden. Ein solches Überspringen der Kennlinien legt zuerst die Vermutung nahe, dass es sich hierbei um den Übergang zwischen zwei entarteten Zuständen, so wie es z.B. auch bei Doppelmuldenpotentialen bekannt ist, handeln könnte. Genaueres zeigte sich bei den folgenden $I_c(H)$ -Messungen.

In Abbildung 6.13 ist die, zu den gezeigten $I(V)$ -Kennlinien gehörende, genaue Entwicklung der I_c -Werte bei variablem Magnetfeld in Form einer $I_c(H)$ -Kurve dargestellt. Dafür wurde die Magnetfeldstärke langsam in positive und negative Richtung erhöht oder verringert, während jeweils über ein Spannungskriterium, nach Abziehen des konstanten normalleitenden Gold-Widerstandes, der kritische Strom I_c bestimmt wurde. In Ab-

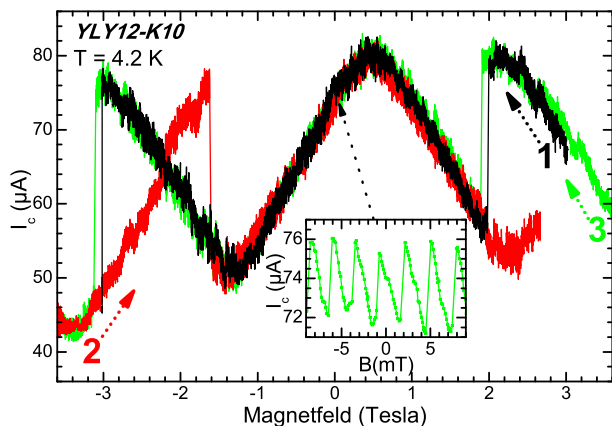


Abbildung 6.13:

Große Modulation des kritischen Stromes bei unterschiedlichen Richtungen der Variation der Magnetfeldstärke. Hysterese-artiger Verlauf der $I_c(H)$ -Kurve.

bildung 6.13 erkennt man eine große Modulation mit einer Periode von mehreren Tesla, die wiederum von einer kleinen Modulation (siehe Inset) mit einer Periode von wenigen Millitesla überlagert wird. Diese kleine Modulation war über dem gesamten Magnetfeldbereich von -3,6 bis +3,6 Tesla sichtbar und hatte eine Modulationstiefe von ca. 4 μA . Bei der großen Modulation zeigten sich Hysterese-artige Sprünge des kritischen Stroms, welche in Abbildung 6.13 bei -1,6 und -3 Tesla zu erkennen sind. So existieren für bestimmte Magnetfeldbereiche zwei Werte des kritischen Stromes, die gleichzeitig mit Erscheinen der Aufspaltung der $I(V)$ -Kennlinien auftraten. Der Beginn der Aufspaltung erfolgt erst ab Magnetfeldstärken größer als 1 Tesla, was auch in Abbildung 6.12 beobachtet werden kann. Abhängig

von der Vorgeschichte des Magnetfeldes lassen sich so bei bestimmten Magnetfeldstärken unterschiedliche Werte von I_c erreichen. Eine erste Vermutung legt nahe, dass es sich bei den Sprüngen um eine Ummagnetisierung der LCMO-Schicht handelt. Allerdings liegt die Koerzitivfeldstärke für LCMO-Dünnschichten in einem Bereich von nur 10-30 mT [Wer08]. Für die Sättigungsmagnetisierung von LCMO auf LaAlO_3 bei tiefen Temperaturen wurden in [Zie01] Werte von ca. 500 mT gefunden, daher sollte in diesem Fall eigentlich die gesamte Domänenstruktur schon ausgerichtet sein. Möglicherweise könnten auf YBCO aufgewachsene LCMO-Filme aber eine andere Magnetfeldabhängigkeit zeigen. Die starke Substrat-Abhängigkeit von LCMO-Dünnschichten zeigte sich ja bereits beim Vergleich der $R(T)$ -Kurven aus Abbildung 6.1.

$I_c(H)$ -Oszillationen mit kleiner Periode

Eine genauere Untersuchung der kleineren Oszillationen von I_c ergab eine Oszillationsperiode von ca. 3.3 mT bei Ausrichtung des Magnetfeldes senkrecht zur 30 μm langen Seite des Kontaktes und eine Amplitude von 3-4 μA (siehe Abbildung 6.14). Eine Magnetfelddrehung um 90° , senkrecht

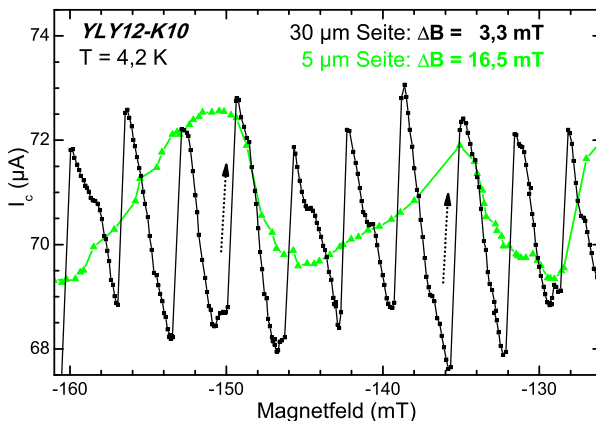


Abbildung 6.14:
Kleine $I_c(H)$ -Oszillationen mit Sprüngen von I_c , die genau einer Flussänderung von ϕ_0 durch die LCMO-Schicht entsprechen.

zur kurzen Kontaktseite, führte zu einer Vergrößerung der Oszillationsperiode auf 16,5 mT (grüne Kurve). Dies entspricht gerade einem Faktor 5, der sehr nahe am geometrischen Faktor 6 des $5 \times 30 \mu\text{m}$ Kontakts liegt und möglicherweise durch Flussfokussierung leicht abweicht. Wird der Verlauf der $I_c(H)$ -Kurve genauer betrachtet so kann man Sprünge von den lokalen

Minima zu den lokalen Maxima von I_c erkennen. Diese, hier durch schwarze Pfeile gekennzeichneten, I_c -Sprünge traten verstärkt entlang der langen Kontaktseite (schwarze Kurve) auf. Zu beachten ist, dass es sich bei der 30 μm Seite mit der Bedingung $W > 4\lambda_J$ und $\lambda_J = 3,5 \mu\text{m}$ bei homogenem Stromfluss um einen langen Kontakt handeln würde, bei der 5 μm Seite um einen kurzen. Hysteretische Effekte der $I_c(H)$ -Kurve konnten, wie auch schon bei den Niederfeldmessungen, nicht beobachtet werden. Bestimmt man die Dicke, die notwendig ist, um bei Variation des Magnetfelds um 3,3 mT senkrecht zur 30 μm langen Kontaktseite eine Flussänderung von ϕ_0 zu erhalten, so kommt man auf 21 nm. Die Oszillations-Periode würde also gerade einer Flussänderung von ϕ_0 durch die 20 nm dicke LCMO-Schicht entsprechen.

$I_c(H)$ -Oszillationen mit großer Periode

Zur Untersuchung der großen $I_c(H)$ -Oszillationen wurde das Magnetfeld im Bereich von -5.5 T bis 5.5 Tesla variiert und jeweils $+I_c$ und $-I_c$ bestimmt. Die schwarzen Kurven in Abbildung 6.15 wurden bei einem Magnetfeld senkrecht zur langen Kontaktseite aufgenommen. Auch bei mehrmaligem

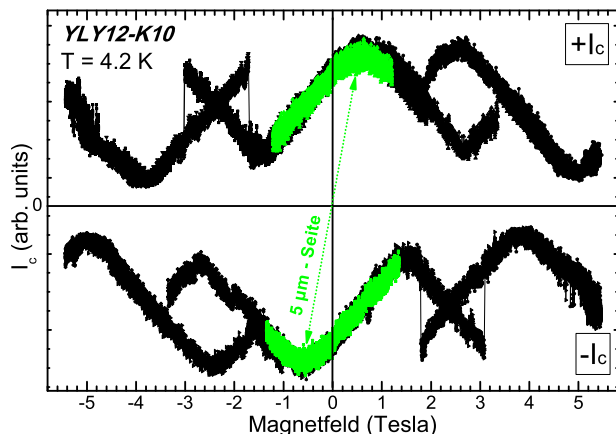


Abbildung 6.15:
Große $I_c(H)$ -Oszillationen bei Magnetfeldern senkrecht zur kurzen oder langen Kontaktseite. Punktsymmetrie von $+I_c(H)$ und $-I_c(H)$.

Durchfahren des Magnetfeldes änderte sich die Lage der großen Hysteresenartigen Sprünge nicht. Man kann sehr gut die Punktsymmetrie der $+I_c(H)$ - mit der $-I_c(H)$ -Kurve erkennen. Auch nach Aufwärmen über T_{Curie} und erneutem Abkühlen auf 4,2 K ließen sich beide Kurven wieder gut reproduzieren. Dies lässt darauf schließen, dass es sich hierbei um eine intrin-

sische Eigenschaft des Kontaktes handeln muss. Bei den grünen Kurven war das Magnetfeld senkrecht zur kurzen Kontaktseite ausgerichtet und wurde um den Faktor $1/3$ skaliert. Während bei den kleinen Oszillationen die Skalierung des Magnetfelds bei Drehung um 90° noch gut mit der Kontakt-Geometrie in Einklang gebracht werden konnte, ist hier eine deutliche Abweichung erkennbar.

Die gleichmäßige Oszillation mit einer Periode ΔB von ca. 4,3 Tesla ähnelt der $I_c(H)$ -Kurve eines SQUID. Jedoch ist der weitere Verlauf der Kurve für höhere Felder noch unklar, so dass eine sichere Festlegung nicht getroffen werden kann. Im Falle eines SQUID-artigen Verhalten ließe sich die entsprechende SQUID-Fläche über $\Phi_0/\Delta B$ abschätzen und würde 480 nm^2 entsprechen. Wird bei Bestimmung der SQUID-Fläche die LCMO-Dicke und die Eindringtiefen in die obere und untere YBCO-Schicht mit einbezogen, so würde sich daraus ein Abstand der zwei Josephsonkontakte eines solchen SQUID von nur etwa 10 nm ergeben.

Auswertung der Hochfeldmessungen

Bereits nach den ersten Messungen im Niederfeld stellt sich die Frage nach der Ursache der geringen Modulationstiefe der $I_c(H)$ -Kurve. Als erste Vermutung könnte man sich Excess-Ströme über makroskopische Kurzschlüsse, wie zum Beispiel einzelne Droplets, vorstellen. Eine weitere naheliegende Vermutung wäre ein Suprastrom über mikroskopisch kleine Defekte mit hoher Transparenz (sogenannte Pinholes). In beiden Fällen handelt es sich um zufällig über die Kontaktfläche verteilte Störstellen. Diese beliebige Verteilung sollte bei einer Drehung des Magnetfeldes nicht zu einer Skalierung der $I_c(H)$ -Oszillationsperiode führen. Auch die Tatsache, dass genau zwei Modulationen existieren und nicht eine Überlagerung aus beliebig vielen, spricht klar gegen mehrere Droplets oder Pinholes als Ursache der gemessenen $I_c(H)$ -Kurven.

Eine homogene Verteilung des Suprastroms über den ganzen Kontakt sollte schon wegen der geringen $I_c(H)$ -Modulationstiefe nicht vorhanden sein. Auch die beobachtete zweite Modulation im Hochfeld mit großer Periode dürfte bei einer homogenen Stromverteilung nicht vorhanden sein.

Eine denkbare Lösung wäre eine Verteilung des Suprastroms auf den Randbereich des Kontakts. Eine solche Verteilung wird in Abbildung 6.16 links schematisch dargestellt. Ein bevorzugter Suprastromfluss über den Rand der LCMO-Schicht könnte vor allem durch die folgenden zwei Punkte zustande kommen:

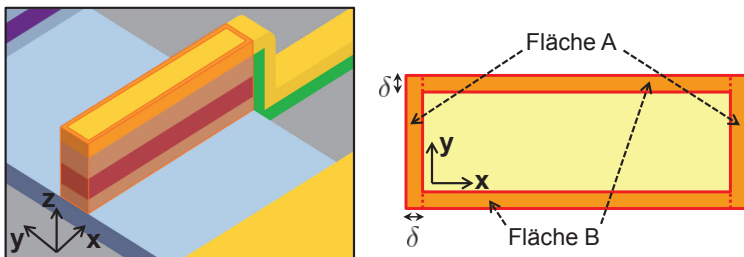


Abbildung 6.16: *links:* Schematische Skizze einer Suprastromverteilung über den Rand des Kontakts. *rechts:* Suprastromverteilung bei Draufsicht mit definierten Flächen.

- Durch die gestörte Gittersymmetrie sind die magnetischen Eigenschaften am Rand anders als im Bulk-Material. Dadurch kann sich in LCMO in einem schmalen Randbereich eine andere als die ferromagnetische Phase ausbilden. Dies könnte, gemäß des Phasendiagramms von LCMO, die antiferromagnetische oder die *charge ordered* Phase sein, welche nach [Moo02, Ich00] einen Suprastrom über den Rand denkbar machen würde.
- Während des Herstellungsprozesses kann es beim Ionenstrahlätzen, durch den Ionenbeschuss und die eingetragene Hitze, zu einer Degradation des Sauerstoffs im Randbereich kommen. Der Sauerstoffgehalt spielt für die magnetischen Eigenschaften und den Ladungstransport in LCMO eine bedeutende Rolle [Wil97].

Im folgenden Simulationsmodell wird von einer gleichmäßigen kritischen Stromdichteverteilung j_c über den gesamten Rand ausgegangen. Das Magnetfeld liegt parallel zur y -Achse, also senkrecht zur langen Kontaktseite. Mit Hilfe der Skizze in Abbildung 6.16 rechts lässt sich die in diesem Fall relevante, auf die x -Achse projizierte, Linienstromdichte $J_c(x)$ bestimmen. Das Verhältnis dieser kritischen Linienstromdichten von Fläche A und Fläche B hängt von der Dicke δ dieses Randbereichs ab. Es gilt:

$$\frac{J_{c,A}}{J_{c,B}} = \frac{j_c \cdot 5\mu m}{j_c \cdot 2\delta} \quad (6.3)$$

Abbildung 6.17 links zeigt eine Skizze des Verlaufs von $J_c(x)$ entlang der x -Achse. Mit Hilfe des Simulationsprogramms *StkJJ* wurden $I_c(H)$ -Kurven mit einer angenommenen Kontaktlänge von $10\lambda_J$ für verschiedene

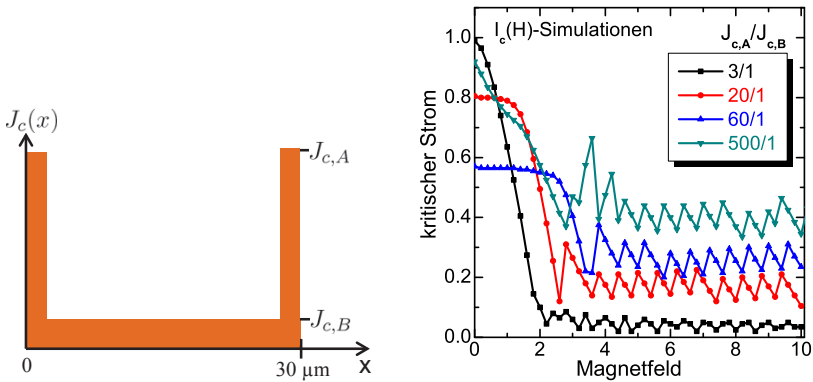


Abbildung 6.17: *links:* Linienstromdichte bei einem Magnetfeld senkrecht zur langen Kontaktseite. *rechts:* Simulation der $I_c(H)$ -Kurven bei verschiedenen $J_{c,A}/J_{c,B}$ -Verhältnissen.

Verhältnisse $J_{c,A}/J_{c,B}$ simuliert (Abbildung 6.17 rechts). Man kann bei sinkendem δ , also steigendem $J_{c,A}/J_{c,B}$, eine klare Tendenz hin zu einer SQUID-artigen Oszillation mit geringer Modulationstiefe erkennen. Das Verhältnis 500/1 würde gerade einer Länge von $\delta=5$ nm entsprechen. Dieses Simulationsmodell könnte also eine Erklärung für die kleinen I_c -Oszillationen und die geringe Modulationstiefe geben. Auch die beobachtete Skalierung der kleinen Oszillationen mit der Kontakt-Geometrie wäre durch die rechteckförmige Stromverteilung in diesem Modell erklärt. Als Frage bleibt nun noch die Herkunft der großen I_c -Oszillationen im Hochfeld. Möglicherweise unterscheidet sich die Suprastromverteilung von Fläche A und B. Der Rand von Fläche A wurde im Vergleich zu Fläche B beim Herstellungsprozess durch das Sputtern von SiO_2 und längeres Ionenstrahlätzen anders bearbeitet. Dadurch könnten starke Unterschiede sowohl in der Länge δ als auch in der Suprastromdichte auftreten, die dann eine zusätzliche Änderung des $I_c(H)$ -Kurve hervorrufen könnten.

Kapitel 7

Zusammenfassung Teil I

Ziel dieses Projektes war die Untersuchung des LRPE an planaren YBCO-LCMO-YBCO-Kontakten. Um einen brauchbaren planaren Kontakt zu erhalten waren viele Herstellungsschritte notwendig, die gut auf einander abgestimmt werden mussten. Die einzelnen Herstellungs- und Charakterisierungsschritte, sowie die dafür optimierten Parameter wurden im Kapitel Probenherstellung und im Anhang ausführlich dargestellt.

Der Nachweis des LRPE gelang durch die Messung von Supraströmen über bis zu 30 μm dicke LCMO-Schichten. Die wichtigsten Messergebnisse und Erkenntnisse sollen im Folgenden stichpunktartig festgehalten werden:

- Eine YBCO-LCMO-Bilage zeigt deutlich andere Eigenschaften als man von den einzelnen auf STO aufgewachsenen YBCO- oder LCMO-Filmen erwarten würde. T_{Curie} steigt während T_c fällt.
- Durch einen YBCO-Au-Nb-Vergleichskontakt wird der starke Einfluss der LCMO-Schicht auf das $I_c(H)$ -Verhalten bei Proben mit oberer Nb-Zuleitung sichtbar.
- Proben mit reiner Gold-Zuleitung zeigen, durch Erwärmen über T_{Curie} oder nur über T_c , den Einfluss des magnetischen Streufeldes der LCMO-Schicht auf das $I_c(H)$ -Verhalten.
- $I(V)$ -Kennlinien bei Variation der Temperatur zeigen Nachteile der 3-Punkt-Messungen mit reiner Gold Zuleitung gegenüber echten 4-Punkt-Messungen. Die $I_c(T)$ -Kurve zeigt bis T_c einen linearen Verlauf mit möglichem lokalem Maximum.

- Messungen bei Magnetfeldern bis 5 Tesla zeigen reproduzierbare große $I_c(H)$ -Oszillationen mit einer Periode von über 3 T und einer Modulationstiefe von über 50 %. Die $I_c(H)$ -Kurven sind punktsymmetrisch und zeigen hysteretische Sprünge.
- Überlagert werden die großen durch kleine $I_c(H)$ -Oszillationen mit einer Periode von 3,3 mT und einer Amplitude von 4 μA . Diese sind selbst bei Magnetfeldern im Tesla-Bereich noch sichtbar und skalieren bei einer Magnetfeld-Drehung mit der Kontakt-Geometrie.
- Als passendes Erklärungsmodell wurde die Verteilung der kritischen Stromdichte auf den Randbereich der LCMO-Schicht gefunden.

Neben den vielen gezeigten Eigenschaften der planaren Kontakte, die meist direkt auf die LCMO-Schicht zurückzuführen waren, bleibt die Ursache der großen Oszillationen im Hochfeld eine noch offene Frage. Messungen an den neu strukturierten 4-Punkt-Kontakten konnten, aufgrund aufgetretener Probleme im Herstellungsprozess, leider nicht die erhofften Ergebnisse bringen. Der für die Zukunft wohl wichtigste nächste Schritt in der Untersuchung solcher planarer Kontakte ist die Abbildung der Supraströmdichte durch die Barrierenfläche. Als mögliche Methoden hierfür würden sich Abbildungen mit einem TTRLM¹ oder einem TTREM² anbieten. Ein Vorteil des TTREM gegenüber dem TTRLM wäre die bessere Eindringtiefe des Elektronen- im Vergleich zum Laserstrahl, was vor allem bei dickeren oberen YBCO- und Gold-Schichten hilfreich wäre.

¹Tief-Temperatur-Raster-Laser-Mikroskop

²Tief-Temperatur-Raster-Elektronen-Mikroskop

Teil II

$\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ - Korngrenzkontakte

Kapitel 8

Einleitung Teil II

Motivation

Im Laufe der Doktorarbeit [Wag08a] wurden zahlreiche Transportmessungen an Korngrenzkontakten des Kupratsupraleiters $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ durchgeführt. Der Schwerpunkt der Arbeit lag in der Untersuchung des Quasiteilchentunnels bei hohen Magnetfeldstärken durch Ermittlung der Leitfähigkeit. Eine zentrale Rolle spielte dabei die Beobachtung eines ZBCP¹ bei der Fermi-Energie. Man ging davon aus, dass die Entstehung dieses ZBCP alleine auf der Bildung von ABS² beruhte, für die eine d -Wellensymmetrie des supraleitenden Ordnungsparameters in den LCCO-Filmen eine notwendige Voraussetzung war. In diesem Falle muss also mit dem Verschwinden der supraleitenden Phase in den LCCO-Filmen auch der ZBCP in der Leitfähigkeitskurve verschwinden. Daher wurde der ZBCP als Sonde für eine untere Grenze des kritischen Magnetfeldes B_{c2} verwendet. Über Leitfähigkeitskurven bei verschiedenen Temperaturen und Magnetfeldstärken konnte so das $B - T$ -Phasendiagramm von LCCO modifiziert werden. Bisherige Messungen über den Filmwiderstand von LCCO hatten deutlich geringere Werte für B_{c2} ergeben, was hier allerdings als Übergang einer Vortex-Glas-Phase in eine resistive Vortex-Flüssigkeits-Phase gedeutet wurde. Das Magnetfeld war bei allen Messungen stets parallel zur c -Achse gerichtet. In [Rah10] wurde die Struktur des LCCO-Films einer der verwendeten Proben über Röntgenbeugung und mit Hilfe eines

¹zero bias conductance peak

²Andreev bound states

Elektronenmikroskops genauer untersucht. Dabei zeigten sich rundliche Ausscheidungen, sowie entlang der a- oder b-Achse gerichtete längliche Strukturen, die über den ganzen Film verteilt waren. Da sie bis tief in den Film hineinreichen, müssen sie schon bei der Filmherstellung entstanden sein, was auch schon in anderen Arbeiten über die Filmherstellung von LCCO, wie z.B. in [Win08], beobachtet wurde. Des Weiteren wurden über Röntgenbeugung neben der in (001)-Richtung orientierten Hauptphase der T' -Struktur, noch zwei weitere Wachstumsrichtungen der T' -Struktur in (110)- und (103)-Richtung entdeckt. Nun stellte sich die Frage, ob diese beobachteten Strukturen, Ausscheidungen oder LCCO-Minderheitsphasen, Einfluss auf die Bildung eines ZBCP in der Leitfähigkeit nehmen. So wären z.B. auch supraleitende Kurzschlüsse über die Korngrenze in der Lage, einen ZBCP zu erzeugen. Diese Kurzschlüsse könnten möglicherweise über die länglichen Strukturen entlang der a- und b-Achse, oder über die CuO_2 -Ebenen der in (110)- oder (103)-Richtung weisenden Minderheitsphasen der T' -Struktur verlaufen. Die Motivation der folgenden Messungen lag darin, dies herauszufinden. Dazu wurde die Entwicklung des ZBCP unter Variation der Magnetfeldrichtung genauer untersucht. Sollten diese vom c-Achsen-orientierten LCCO-Film abweichenden Strukturen einen entscheidenden Einfluss ausüben, so müsste dies auch bei einer Magnetfeld-Drehung erkennbar sein. Beispielsweise sollte sich, wenn die länglichen Strukturen in Form von supraleitenden Kurzschlüssen einen Einfluss auf die ZBCP-Bildung nehmen, bei einer Magnetfeldrichtung parallel zur a- oder b-Achse, also parallel zu den länglichen Strukturen, ein Anwachsen des ZBCP zeigen. Um also eine Antwort auf die Frage zu bekommen, ob die ZBCP-Bildung in LCCO-Korngrenzkontakten nun mehr intrinsischen oder extrinsischen Ursprungs ist, wurden 360° -Magnetfeld-Drehungen sowohl senkrecht als auch parallel zur Filmebene durchgeführt. Dabei zeigten sich teilweise unerwartete Ergebnisse.

Gliederung

Die Ergebnisse dieses zweiten Teils der Doktorarbeit werden in vier Kapiteln dargestellt.

Kapitel 9 stellt die theoretischen Grundlagen des Quasiteilchentunnelns dar, die zum Verständnis der Messergebnisse notwendig sind. Zuerst werden verschiedene Arten von Tunnelkontakten vorgestellt. Im weiteren Teil

wird die Bildung eines ZBCP³ über Andreev-Reflexionen verständlich gemacht und Einflüsse verschiedener Parameter auf den ZBCP gezeigt. Insbesondere wird hierbei auf die Magnetfeldabhängigkeit des ZBCP in LCCO-Korngrenzkontakten eingegangen.

Kapitel 10 ist in zwei Bereiche aufgeteilt. Der erste Teil beinhaltet eine kurze Beschreibung der Herstellung und Strukturierung der LCCO-Proben und zeigt Ergebnisse der Charakterisierung mittels XRD, SEM und EDX. Im zweiten Teil wird ein Überblick über den verwendeten Messaufbau und die Messtechniken gegeben und eine erste Fehlerbeschreibung durchgeführt.

In **Kapitel 11** werden die experimentellen Messergebnisse vorgestellt. Zu Beginn wird eine kurze Zusammenfassung der wesentlichen Ergebnisse aus [Wag08a] gegeben. Die nächsten zwei Abschnitte sind aufgeteilt in Ergebnisse aus Drehungen des Magnetfeldes aus der Filmebene heraus und Drehungen des Feldes innerhalb der Filmebene.

Kapitel 12 gibt eine kurze Zusammenfassung der wesentlichen Ergebnisse der Messungen.

³zero bias conductance peak

Kapitel 9

Grundlagen Quasiteilchentunneln

Unter Tunneln versteht man den elektronischen Transport durch eine isolierende Barriere, der nur aufgrund der quantenmechanischen Wellennatur der Ladungsträger möglich ist. Um reines Quasiteilchen-Tunneln beobachten zu können, ist zum einen eine homogene, isolierende Barriere ohne Kurzschlüsse zwischen zwei Supraleitern notwendig, zum anderen müssen konkurrierende Effekte wie das Cooper-Paar-Tunneln verhindert werden. Dazu reichen meist schon kleine Magnetfelder aus, die auf das Quasiteilchen-Tunneln nur geringen Einfluss haben.

9.1 NIS - Tunnelkontakt

Die Messung der Quasiteilchen-Tunnelleitfähigkeit ist ein wichtiges Werkzeug zur Charakterisierung eines Supraleiters, da über sie Aussagen über die Zustandsdichte der Quasiteilchen gemacht werden können. Wir betrachten zunächst NIS-Kontakte¹. Bei vollständig elastischem Tunneln gilt nach dem sogenannten Halbleiter-Modell² für den Tunnelstrom folgende

¹Normalleiter-Isolator-Supraleiter-Kontakte

²zur genaueren Herleitung siehe [Tin04, S.73-78]

Beziehung:

$$I_{NIS} \sim \int_{-\infty}^{+\infty} |T(E)|^2 \cdot N_n(E - eU) N_s(E) [f(E - eU) - f(E)] dE \quad (9.1)$$

Das Tunnelmatrixelement $T(E)$ beschreibt die Tunnelwahrscheinlichkeit, N_n und N_s sind die elektronischen Zustandsdichten im Normalleiter bzw. Supraleiter und $f(E) = \frac{1}{e^{E/k_B T} + 1}$ stellt die Fermi-Verteilung dar. Die Energie E wird dabei immer auf die Fermi-Energie bezogen. Da N_n um die Fermi-Energie als konstant angenommen werden kann und für hohe Potentialbarrieren $T(E)$ unabhängig von der Energie ist, vereinfacht sich das Integral zu:

$$I_{NIS} \sim \int_{-\infty}^{+\infty} N_s(E) [f(E - eU) - f(E)] dE \quad (9.2)$$

Da die Fermi-Verteilung für $T = 0$ eine Stufenfunktion ist, deren Ableitung eine δ -Funktion bildet, folgt für die differentielle Leitfähigkeit:

$$\left(\frac{dI_{NIS}}{dU} \right)_{T=0} \sim \int_{-\infty}^{+\infty} N_s(E) \delta(E - eU) dE \sim N_s(U) \quad (9.3)$$

Die Quasiteilchen-Zustandsdichte des Supraleiters N_s lässt sich also über die Tunnelleitfähigkeit dI/dU bestimmen. dI/dU wird auf die Leitfähigkeit im normalleitenden Zustand normiert. Im Falle von $T > 0$ muss die Zustandsdichte noch mit der Fermi-Funktion gefaltet werden [Gia61].

9.2 SIS - Tunnelkontakt

Bei einem SIS-Kontakt³ kann keine der Zustandsdichten vor das Integral zur Berechnung des Tunnelstroms gezogen werden. Ursache ist die jeweilige Energielücke, die für eine Variation der Zustandsdichte im Bereich der Fermi-Energie sorgt. Für den Tunnelstrom folgt dann entsprechend:

$$I_{SIS} \sim \int_{-\infty}^{+\infty} N_{s1}(E - eU) N_{s2}(E) [f(E - eU) - f(E)] dE \quad (9.4)$$

³Supraleiter-Isolator-Supraleiter-Kontakt

Der Tunnelstrom entspricht in diesem Fall also einer Faltung der beiden Zustandsdichten.

zwei gleiche s -Wellen-Supraleiter

Abbildung 9.1 zeigt eine schematische Darstellung des Tunnelns von Quasiteilchen am Beispiel zweier gleicher s -Wellen-Supraleiter bei $T = 0$. Beim

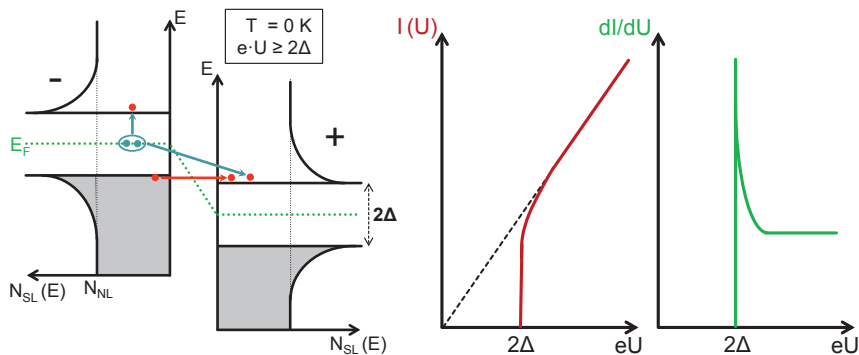


Abbildung 9.1: links: Verschiebung der Zustandsdichten zweier gleicher s -Wellen-Supraleiter in einem SIS-Kontakt bei $T=0$, rechts: Tunnelstrom und Leitfähigkeit

Anlegen einer Spannung kommt es zu einer Verschiebung der Fermi-Niveaus der beiden Supraleiter. Ein Tunneln von Quasiteilchen ist erst ab einer Spannung von $2\Delta/e$ möglich, da dann die besetzten Quasiteilchen-Zustände unterhalb der Energielücke des Supraleiters in Elektrode 1, den freien Zuständen oberhalb der Energielücke in Elektrode 2 gegenüber stehen. Neben dem direkten elastischen Tunneln der Quasiteilchen, steht dann auch genug Energie zur Verfügung um Quasiteilchen aus Cooper-Paaren zu erzeugen. Der Energiegewinn des tunnelnden Quasiteilchens kompensiert dann gerade den Energieaufwand des angeregten Quasiteilchens. Die Peaks der Zustandsdichten sorgen für einen zuerst sprunghaften, dann linearen Anstieg des Tunnelstroms. In der Tunnelleitfähigkeit zeigt sich dies als Peak mit nachfolgender konstanter Leitfähigkeit. Für $T > 0$ sind durch thermische Anregungen auch Quasiteilchenzustände oberhalb der Energielücke besetzt, was zu Tunnelströmen bei Spannungen knapp unterhalb $2\Delta/e$ führt. Dies äußert sich dann in einer U-förmigen Leitfähigkeitskurve mit verbreiterten Peaks.

zwei gleiche d -Wellen-Supraleiter

Der für diese Arbeit relevante Fall ist ein Tunnelkontakt aus zwei gleichen d -Wellen-Supraleitern in Form eines Korngrenzkontaktes des Kupratsupraleiters LCCO. In der Zustandsdichte eines d -Wellen-Supraleiters sind auch Quasiteilchen-Zustände innerhalb der Energielücke besetzt. Dadurch kann schon bei kleinen Spannungen ein Tunnelstrom beobachtet werden. Dies hat Auswirkungen auf die Tunnelleitfähigkeit und äußert sich in einer V-förmigen Leitfähigkeitskurve (schematische Darstellung in Abbildung 9.2). Auf die Entstehung eines ZBCP⁴ wird im folgenden noch genauer eingegangen.

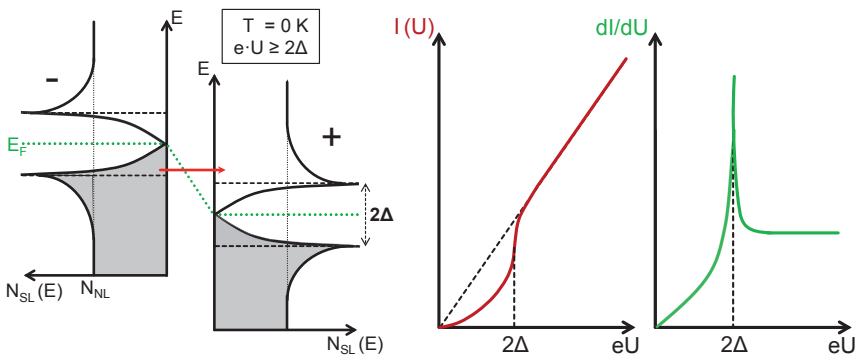


Abbildung 9.2: links: Verschiebung der Zustandsdichten zweier gleicher d -Wellen-Supraleiter in einem SIS-Kontakt bei $T=0$, rechts: Tunnelstrom und V-förmige Leitfähigkeit

9.3 Andreev-Reflexion

Um die Entstehung eines ZBCP zu verstehen, soll zuerst der Prozess der Andreev-Reflexion an der Grenzfläche zwischen einem Normalleiter und einem Supraleiter betrachtet werden. Trifft ein Quasiteilchen mit einer Energie $E < \Delta$ auf die Grenzfläche eines NS-Kontaktes so sind zwei Prozesse möglich. Der erste entspricht einer Normalreflexion des Elektrons oder Lochs an der Grenzfläche. Der zweite mögliche Prozess ist die Andreev-Reflexion. Im Falle eines Elektrons wird dieses dann als Loch

⁴Zero Bias Conductance Peak

reflektiert, welches mit dem Impuls $-\vec{k}$ auf der Bahn des einfallenden Elektrons zurückreflektiert wird. Wegen der dadurch gegebenen Ladungs- und Impulserhaltung ist die Bildung eines Cooper-Paares im Supraleiter möglich. Das BTK-Modell⁵ beschreibt über die Transparenz Z der Barriere den Anteil der Andreev-Reflexion am Ladungstransport. Dabei entspricht $Z = 0$ einer vollständig transparenten Barriere mit ausschließlicher Andreev-Reflexion und $Z \rightarrow \infty$ einer reinen Tunnel-Barriere.

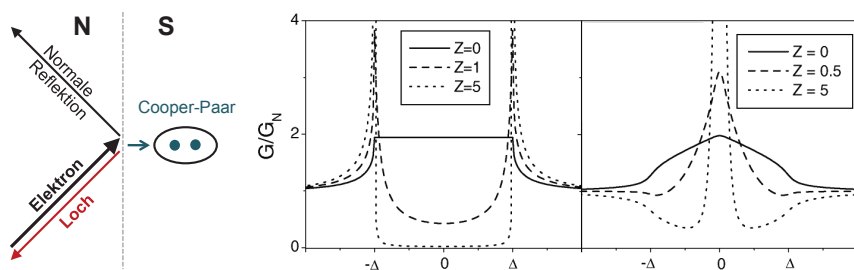


Abbildung 9.3: links: Normale Reflexion und Andreev-Reflexion an einer NS-Grenzfläche, rechts: BTK-Modell für einen s -Wellen- und einen d -Wellen-Supraleiter bei $T = 0$ aus [Bis02]

In Abbildung 9.3 sind nach dem BTK-Modell für verschiedene Z -Werte berechnete Leitfähigkeitskurven, die auf die Leitfähigkeit im Normalzustand normiert wurden, dargestellt. Der linke Graph zeigt einen s -Wellen-Supraleiter, dessen Leitfähigkeitskurven mit steigendem Z mehr und mehr die Form der Kurven eines NIS-Tunnelkontaktes annehmen. Ein d -Wellen-Supraleiter mit anisotropem Paarpotential und Vorzeichenwechsel der Phase, wie im Falle der $d_{x^2-y^2}$ -Wellen-Symmetrie, zeigt ein anderes Verhalten (rechter Graph). Für steigenden Z -Wert nimmt der ZBCP zu.

9.4 Zero Bias Conductance Peak

Die Ursache für die, als ZBCP bezeichnete, erhöhte Leitfähigkeit im Bereich um 0 Volt sind gebundene Zustände an der Fermi-Energie, die sogenannten Andreev bound states (kurz ABS). Für die Entstehung von ABS sind verschiedene Bedingungen notwendig. In Abbildung 9.4 ist die

⁵nach G.E. Blonder, M. Tinkham und T.M. Klapwijk

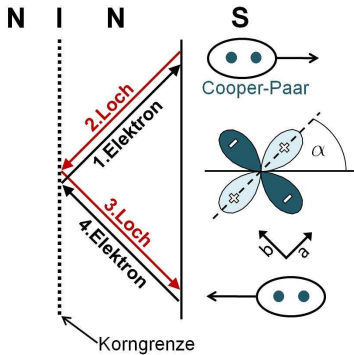


Abbildung 9.4: Entstehung von Andreev gebundenen Zuständen an der Fermi-Energie an einem Tunnelkontakt eines $d_{x^2-y^2}$ -Wellen-Supraleiters nach [Löf01]. Die Tunnelbarriere wird hier durch eine Korngrenze gebildet.

Bildung von ABS an einer Tunnelbarriere eines Supraleiters mit $d_{x^2-y^2}$ -Wellen-Symmetrie dargestellt.

Der günstigste Fall für die ABS-Bildung ist eine 45° -Orientierung der d -Welle in Bezug auf die NS-Grenzfläche, für kleinere Winkel nimmt der ZBCP linear ab und verschwindet bei 0° vollständig [Kas96, Igu00]. In Abbildung 9.4 wird eine $45^\circ/45^\circ$ -Korngrenze betrachtet, welche als Isolator angesehen werden kann, der über eine normalleitende Schicht in den Supraleiter übergeht. Der Ladungstransport in der ab-Ebene geht dadurch über eine NS- und eine IS-Grenzschicht. Die gebundenen Zustände entstehen durch konstruktive Interferenz der Quasiteilchen. Im Beispiel wird zuerst das Elektron durch eine Andreev-Reflexion in Richtung des Maximums des positiven Paarpotentials an der NS-Grenzfläche in ein Loch umgewandelt. Dieses Loch wird an der IN-Grenzfläche normal reflektiert und erfährt dann am negativen Paarpotential der NS-Grenzschicht eine erneute Andreev-Reflexion. Wird das gebildete Elektron dann wieder an der IN-Grenzschicht normal reflektiert, entsteht ein geschlossener Umlauf. ABS bei der Fermi-Energie entstehen nur durch die Phasensprünge von π bei 90° -Drehung der $d_{x^2-y^2}$ -Wellensymmetrie. Ohne diese Phasensprünge von π können zwar auch ABS entstehen, jedoch nicht bei der Fermi-Energie⁶. In [Aub92] wurde gezeigt, dass mit dem Verschwinden der Phasenkohärenz im Supraleiter auch der ZBCP verschwindet, wenn er durch ABS verursacht wurde. Aus diesen Beobachtungen entstand die Idee, den ZBCP als Indikator der supraleitenden Phase zu verwenden und so beispielsweise das kritische Feld zu bestimmen. Tiefgehende Erklärungen zur Entstehung von ABS bei d -Wellen-Supraleitern finden sich in [Löf01, Kle00, Hu94].

⁶Bei 0° wäre z.B. ein gebundener Zustand bei der Energie der Energielücke möglich

Temperaturabhängigkeit des ZBCP

Mit dem Verschwinden des d -Wellen-Paarpotentials der supraleitenden Elektroden, das für die Bildung von ABS notwendig ist, muss bei T_c auch der ZBCP verschwinden. Da im Bereich des Tunnelkontakts T_c oft reduziert ist, verschwindet der ZBCP allerdings meist schon unterhalb von T_c . Mehrfach wurde für die Größe des ZBCP eine $1/T$ -Abhängigkeit beobachtet [Dag00, Alf98].

Magnetfeldabhängigkeit des ZBCP

Vielfach konnte in einem Magnetfeld eine Aufspaltung des ZBCP beobachtet werden. Eine theoretische Erklärung für eine nichtlineare, auch als Doppler-shift bezeichnete, Aufspaltung gibt [Fog97]. Über die Abschirmströme im Bereich der Barriere koppelt das Magnetfeld an den kanonischen Impuls p_s , wodurch es zu einer Dopplerverschiebung des Anregungsspektrums der Quasiteilchen von $p_s v_F$ kommen kann. v_F entspricht dabei der Fermi-Geschwindigkeit der Quasiteilchen. In [Apr99] wurde der Doppler-Shift an (110)-YBCO/Pb-Kontakten untersucht. Bei einer Erhöhung des Magnetfeldes in c -Achsenrichtung zeigte sich sowohl eine nichtlineare Dopplerverschiebung, als auch eine Verringerung der ZBCP-Fläche, bei gleichzeitiger Auffüllung des supraleitenden Gaps. Eine Magnetfelderhöhung in ab -Richtung bis auf 5 Tesla zeigte keine nennenswerte Änderung der Tunnelleitfähigkeitskurve. Zu einer Aufspaltung des ZBCP kann es bei tiefen Temperaturen auch ohne Magnetfeld kommen. Dies wurde ebenfalls an (110)-YBCO/Pb-Kontakten beobachtet, und durch einen, neben der $d_{x^2-y^2}$ -Symmetrie, zusätzlichen subdominanten Ordnungsparameter in YBCO erklärt [Cov97].

Im Appelbaum-Anderson-Modell wird die Entstehung des ZBCP durch inelastisches Tunneln der Quasiteilchen über lokalisierte magnetische Momente in der Barriere beschrieben [App66, And66]. Der ZBCP wird hier im Magnetfeld linear unterdrückt und es kann durch eine Zeeman-Aufspaltung ebenfalls zu einer Doppler-Verschiebung des ZBCP kommen. Ein Zusammenhang zwischen der supraleitenden Phase der Elektroden und dem Auftreten eines ZBCP gibt es in diesem Modell allerdings nicht und daher kann es als Ursache der in dieser Arbeit durchgeführten Messungen des ZBCP ausgeschlossen werden.

Magnetfeldabhängigkeit des ZBCP in LCCO-Korngrenzkontakten

In [Che05] wurde die Entwicklung des ZBCP für verschiedene Magnetfeldstärken jeweils in Richtung der c -Achse oder der ab -Ebene von 30° -LCCO-Korngrenzkontakten untersucht. Im Vergleich zu den Beobachtungen in [Apr99] an YBCO, zeigte sich hier ein anderes Verhalten des ZBCP bei Erhöhung des Magnetfeldes in ab -Richtung. Für alle angelegten Magnetfeldstärken war die ZBCP-Fläche für Felder in c -Achsenrichtung größer als für Felder in ab -Richtung (gefüllte Kreise in Abbildung 9.5).

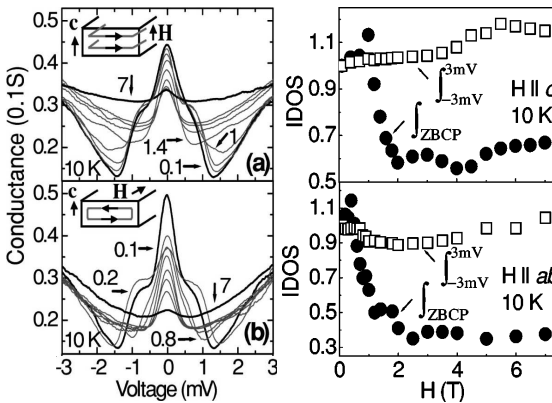


Abbildung 9.5:
Messungen aus [Che05] bei 10 Kelvin und 0-7 Tesla. Bei den oberen Graphen zeigt das B-Feld in c -Achsenrichtung bei den unteren in die ab -Ebene.

Als Erklärung für die stärkere Unterdrückung des ZBCP bei einem Magnetfeld in ab -Richtung werden die unterschiedlichen Richtungen der Abschirmströme oben und unten in der Barriere genannt (vgl. Inset Abbildung 9.5 links unten). Mit der Verringerung des ZBCP werden gleichzeitig Quasiteilchen-Zustände bei höheren Energien besetzt, daher bleibt die von -3 bis 3 mV integrierte Zustandsdichte (offene Quadrate in Abbildung 9.5) bei Magnetfelderhöhung nahezu konstant.

Kapitel 10

Probenherstellung und Messtechnik

10.1 Probenherstellung

10.1.1 Filmherstellung

Die LCCO¹-Proben wurden 2004/05 im Rahmen der Doktorarbeit [Wag08a] in den NTT-Laboren in Atsugi, Japan hergestellt und charakterisiert und anschließend am PIT 2 in Tübingen strukturiert. Die Filmherstellung erfolgte durch Molekularstrahlepitaxie (MBE). Ziel war es LCCO-Filme mit möglichst einphasiger T'-Struktur und zugleich hohem T_c zu erzeugen. Bei einem Hintergrunddruck von 10^{-8} mbar wurden gleichzeitig La, Ce und Cu thermisch verdampft und Ozon als Oxidationsgas für die Kupferoxidbildung eingesetzt. Die Substrattemperatur betrug 650°C-665°C, die Wachstumsrate 0,3 nm/s. Die Dotierung konnte über die Gasflussraten von La und Ce eingestellt werden und ergab für $x = 0,082$ den höchsten Wert für T_c . Mit Hilfe des RHEED Systems konnte *in-situ* über das Kationenverhältnis $k = \text{Cu}^{2+}/(\text{La}^{3+} + \text{Ce}^{4+})$ der Kupfergehalt bestimmt werden [Nai95]. Dabei zeigten leicht kupferreiche Filme (d.h. $k \geq 0,5$) die höchste Sprungtemperatur. Nach Abschluss des Wachstums wurden die Filme noch eine bestimmte Zeit lang bei ca 580°C im Vakuum reduziert [Kan07]. Zum Schutz und für eine gute Kontaktierung, wurde auf den 900

¹La_{2-x}Ce_xCuO₄

nm dicken LCCO-Film abschließend noch eine 50 nm dicke Goldschicht aufgebracht. Als Substrate wurden $10 \times 10 \text{ mm}^2$ SrTiO₃-Bikristalle mit einem Korngrenzwinkel 2α von 24° oder 30° verwendet. Tabelle 10.2 soll eine Übersicht über die wichtigsten Daten der Filmherstellung der fünf in dieser Arbeit verwendeten LCCO-Proben geben.

Name	Hersteller	2α	Dicke (nm)	Dotierung x	Cu-Gehalt	c-Achse (nm)	T_c (K)
308B	EC	30°	900	0,082	l.r.	1,2457	29,2
313S	S	24°	900	0,082	l.r.	1,246	29,1
313E	EC	24°	900	0,082	l.r.	1,246	29,1
315S	S	24°	900	0,082	r.	1,246	29,3
315E	EC	24°	900	0,082	r.	1,246	29,3

Tabelle 10.1: EC = Earth Chemical, S = Shinkosa, l.r. = leicht kupferreich, r. = kupferreich, T_c aus $\rho(T)$ Messungen an Testproben, c-Achsenlänge aus XRD-Messungen

10.1.2 Strukturierung

Die Strukturierung erfolgte in drei Schritten, jeweils durch optische Lithographie und anschließendes Ionenstrahlätzen. Als erster Schritt wurde der Film am Rand bis ins Substrat geätzt um so die Korngrenze für die weiteren Strukturierungsschritte sichtbar zu machen. Danach wurde die zur Kontaktierung notwendige Goldschicht strukturiert. Der letzte Schritt war die Übertragung der SQUID²-Strukturen auf den Film. Da die für SQUIDs bekannten Effekte mit der Unterdrückung des Cooper-Paar-Stroms bei hohen Magnetfeldern verschwinden, wird im Kapitel der Messergebnisse nur noch von Kontakten gesprochen. Aufgrund von Kurzschlüssen über die leitende Oberfläche des STO-Substrats war noch ein weiterer Nachstrukturierungsschritt erforderlich. Genaue Strukturierungsparameter finden sich in [Wag08a]. In Abbildung 10.1 sind Bilder einer fertig strukturierten Probe dargestellt. Die in der rechten Vergrößerung sichtbar werdenden, über den ganzen Film verteilten Punkte, sind ein bekanntes Nebenprodukt der Herstellung kupferreicher LCCO-Filme. Auf sie wird in den folgenden zwei Abschnitten noch genauer eingegangen.

²Superconducting QUantum Interference Device

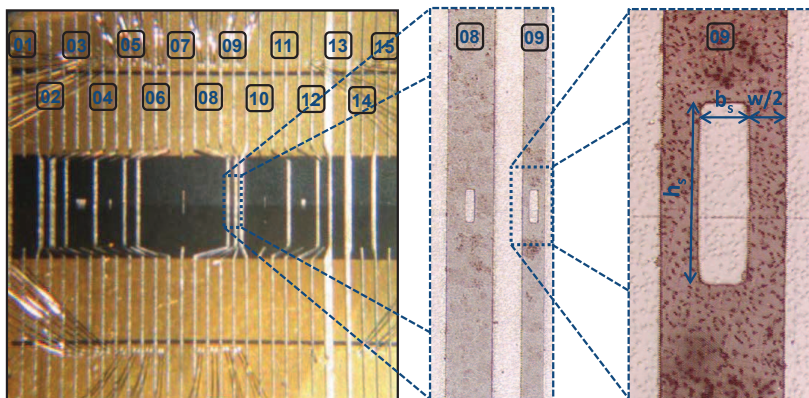


Abbildung 10.1: links: fertig strukturierte Probe 315E, rechts: SQUID-Kontakt 09 mit charakteristischen geometrischen Parametern und sichtbarer Korngrenze

	S01	S05	S06	S08	S09	S10	S11	S14	S15
$w/2$	275	275	100	50	20	500	250	200	275
b_s	50	50	50	20	20	20	100	50	50
h_s	76	200	76	76	76	300	200	76	76

Tabelle 10.2: Geometrische Daten der relevanten SQUID-Kontakte in μm (vgl. Abbildung 10.1)

10.1.3 XRD

Die LCCO-Schicht von Probe 315S wurde, im Rahmen von Untersuchungen der temperaturabhängigen Raman-Streuung an LCCO-Filmen, am MPI Stuttgart genauer untersucht [Rah10]. Um Aussagen über die beim Filmwachstum gebildete Gitterstruktur machen zu können, wurde ein XRD³- 2Θ - ω -scan durchgeführt. Dabei zeigte sich wie erwartet ein deutlicher Bragg-peak in (001)-Richtung, was auf die c-Achsen-orientierte T'-Struktur als Hauptphase des LCCO-Films schließen lässt. Allerdings konnten auch noch schwächere Bragg-peaks bei (110) und (103) ausgemacht werden, die auf zwei weitere Phasen der T'-Struktur in unterschiedliche Richtungen hin-

³X-ray diffraction

weisen (Abbildung 10.2). Ein Einfluss der (110)-CuO₂-Ebenen auf die ZBCP-Bildung sollte bei den in-plane-Magnetfeldwinkeln von 45°, 135°, 225° und 315° zwischen Magnetfeldrichtung und Korngrenze bemerkbar werden, ein Einfluss der (103)-CuO₂-Ebenen bei einem Winkel von 6°/51° oder 39°/84° zwischen Magnetfeldrichtung und c-Achse. Anzeichen für das Vorhandensein von Anteilen der T-Struktur konnten nicht gefunden werden. Des Weiteren zeigte sich Cu₂O als Fremdphase in Form von zufällig orientierten Cu₂O-Kristalliten. Ein Vergleich der Intensität der Bragg-peaks ergab einen Volumenanteil von Cu₂O, der eine Größenordnung unter dem von LCCO lag.

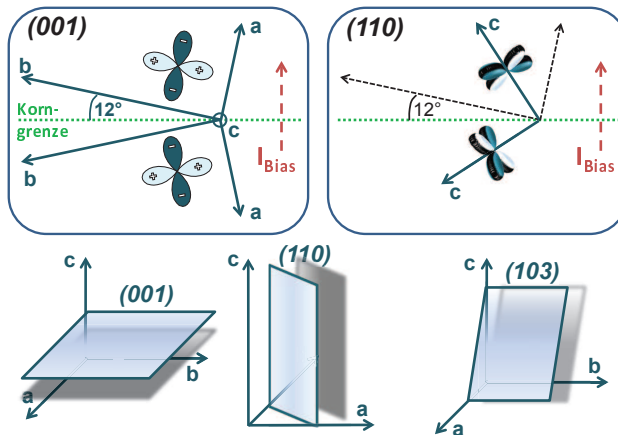


Abbildung 10.2: Verschiedene Phasen der T-Struktur und dazugehörige Lage der CuO₂-Ebenen (unten)

10.1.4 SEM und EDX

Zur weiteren Charakterisierung wurden in [Rah10] SEM⁴-Bilder von Probe 315S untersucht. Dabei wurden zwei verschiedene Arten von beim Filmwachstum entstandenen und bis tief in den Film hineinreichenden Strukturen sichtbar (Abbildung 10.3). Ca 18% der LCCO-Oberfläche war gleichmäßig mit rundlichen Ausscheidungen bedeckt, deren Durchmesser etwa 2-3 μm betrug. Des Weiteren waren längliche nadelförmige Strukturen in Richtung der a- und b-Kristallachsen erkennbar (siehe Abbildung 10.3 rechts). Die Bildung von solchen Ausscheidungen an mit MBE erzeugten LCCO-Filmen ist auch von anderen Arbeiten bereits bekannt. In

⁴scanning electron microscopy

[Win08] wird die LCCO-Filmherstellung genauer untersucht. Dort bildeten sich bei ebenfalls erhöhter Kupferverdampfungsrate $0.25 - 0.5 \mu\text{m}$ große Kupferinseln, die ca. 5 % der Oberfläche bedeckten. Längliche Strukturen waren hier allerdings weniger sichtbar. Eine EDX⁵-Analyse der LCCO-Schicht zwischen den rundlichen und nadelförmigen Strukturen ergab ein wie für reines LCCO erwartetes Verhältnis von $(\text{La}+\text{Ce}):\text{Cu} \approx 2$, unabhängig davon, ob die EDX-Messung nahe oder weit entfernt von der Korngrenze durchgeführt wurde. Die nadelförmigen Strukturen zeigten mit einem Verhältnis von $(\text{La}+\text{Ce}):\text{Cu} \approx 1.7$ einen leicht erhöhten Kupfergehalt. Sollten sie supraleitende Kurzschlüsse über die Barriere darstellen, so müsste dies bei einer in-plane-Magnetfeld-Drehung erkennbar werden. Bei einer Ausrichtung des Magnetfeldes parallel zur a- oder b-Achse, und damit auch parallel zu den länglichen Strukturen, sollte ein Anwachsen des ZBCP erkennbar werden. Die entsprechenden Winkel ergeben sich gemäß dem linken oberen Schaubild aus Abbildung 10.2. Sie sind natürlich auch abhängig vom Korngrenzwinkel der Probe, welcher hier ja in den meisten Fällen $12^\circ/12^\circ$ beträgt. Bei den rundlichen Ausscheidungen ergab sich mit einem durchschnittlichen Verhältnis $(\text{La}+\text{Ce}):\text{Cu} \approx 1$ ein deutlich erhöhter Kupfergehalt. Dies lässt darauf schließen, dass es sich bei ihnen um die Cu_2O -Fremdphase handelt.

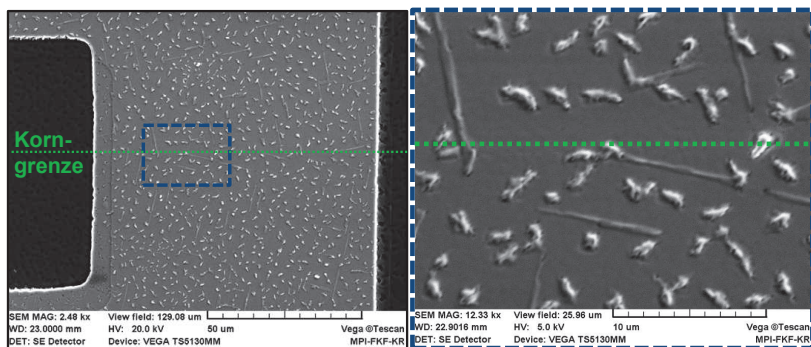


Abbildung 10.3: SEM-Bild von Probe 315S. In der Vergrößerung werden nadelförmige Strukturen und rundliche Ausscheidungen sichtbar.

⁵energy dispersive X-ray

10.2 Messtechnik

Ziel der Hochfeldmessungen an den LCCO Korngrenzkontakten war die differentielle Leitfähigkeit des Quasiteilchentunnels in Abhängigkeit von der Magnetfeldrichtung zu bestimmen. Für einen besseren Überblick werden im folgenden die Messungen immer in zwei Bereiche unterteilt:

- Drehung des Magnetfeldes aus der Richtung parallel zur c -Achse in Richtung der Filmebene parallel oder senkrecht zur Korngrenze (c -Achsen-Drehung)
- Drehung des Magnetfeldes innerhalb der a - b -Filmebene (in -plane-Drehung)

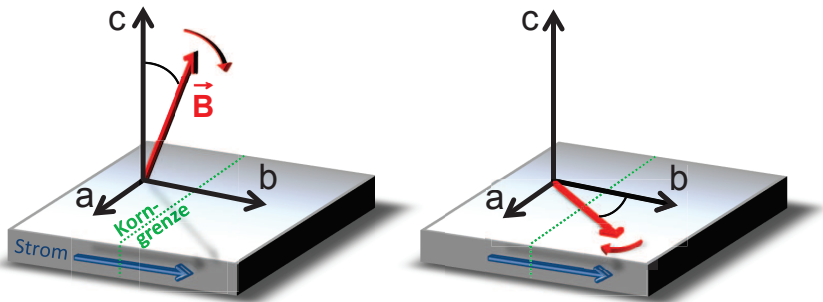


Abbildung 10.4: links: c -Achsen-Drehung, rechts: in -plane-Drehung

10.2.1 Probenhalter und Messstab

Um einen einfachen und schnellen Probenwechsel ohne Lötten gewährleisten zu können, waren die fertig strukturierten Proben mit Leitsilber auf LCC⁶-Chiphaltern befestigt, und durch Ultraschallbonden kontaktiert worden. Für die Drehungen wurden unterschiedliche Probenhalter (Abbildung 10.5) verwendet, die auf einen Messstab mit 24 jeweils paarweise verdrehten Kupferdrähten gesteckt wurden. Auf einen Tiefpass vor dem Probenhalter wurde verzichtet, da es dadurch bei den hochfrequenten Lock-In Signalen aufgrund der verwendeten Induktivitäten und Kapazitäten zu Verschiebungen der Strom-Spannungs-Phasendifferenz kam.

⁶Leadless-Chip-Carrier

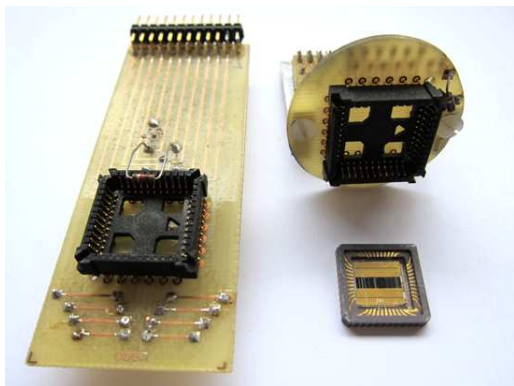


Abbildung 10.5:
links: Probenhalter für
 c-Achsen-Drehungen,
rechts: Probenhalter für
 in-plane-Drehungen und
 LCC Chiphalter mit
 kontaktierter Probe

10.2.2 Magnetkryostat und Temperaturkontrolle

Die Drehungen wurden in einem 7 Tesla Magnetkryostaten der Firma Janis durchgeführt. Das horizontal ausgerichtete Magnetfeld wurde durch ein supraleitendes Helmholtz-Spulenpaar erzeugt, welches sich im Heliumbad des Kryostaten befand. Zur Regelung der Temperatur wurde ein in den Kryostaten eingebauter *Adiabat* (siehe [Nac04]) verwendet, in dessen mit Heliumgas gefluteten Innenraum sich Probe und Probenstab befanden. Über einen Zwischenraum, mit durch Nadelventil und Vakuumpumpe regelbarem Helium-Druck, konnte der Innenraum ans Heliumbad des Kryostaten angekoppelt werden. Die meisten Messungen wurden bei einer Temperatur von 4,2 - 4,3 Kelvin durchgeführt, bei der der Zwischenraum vollständig mit Helium geflutet war. Sollten Messungen im Magnetfeld bei höherer Temperatur durchgeführt werden, so konnte über einen um den Innenraum gewickelten Konstantan-Heizdraht durch einen PID-Regler (Lakeshore 340) die Temperatur erhöht werden. Als Temperatursensor diente ein Allen-Bradley-Kohlewiderstand, der in Höhe der Probenmitte angebracht war und speziell für Magnetfeldmessungen in Temperaturbereichen unter 20 Kelvin geeignet war (Eichung: $R(293\text{ K})=1,07\text{ k}\Omega$, $R(4,2\text{ K})=31,6\text{ k}\Omega$). Fehler in der Temperaturbestimmung werden, bei derselben verwendeten Temperaturkontrolle, in [Wag08a] ausführlich diskutiert und als maximal 0,5 Kelvin angegeben. In dieser Arbeit wurden fast alle Messungen bei voll ans Heliumbad angekoppeltem Adiabaten und Stromwerten, bei denen die Spannung unter dem kritischen Wert für Heizeffekte bleibt, durchgeführt. Dadurch lagen immer vergleichbare Bedingungen vor und der Fehler in der Temperaturbestimmung (bei 4,2 K gilt $\Delta T \leq 0,1\text{ K}$) ist hier nicht relevant.

Magnetfeldeichung

Um Fehler bei der Bestimmung des Magnetfeldes abschätzen zu können, wurde in den c -Achsen und den in-plane-Probenhalter eine Hallsonde mit denselben geometrischen Maßen wie die gemessenen Proben eingebaut. Bei einem konstant angelegten Feld von 2 Tesla konnte während einer 360°-Drehung über die gemessene Hallspannung jeweils das auf die c -Achsenrichtung projizierte Magnetfeld bestimmt werden (Abbildung 10.6). Ein Vergleich der sinusförmigen Magnetfeldstärke in c -Achsenrichtung ergibt eine mittlere Verkippung des in-plane Probenhalters von 2.3° (d.h. weniger als 5% des angelegten Feldes werden bei einer in-plane-Drehung auf die c -Achse projiziert). Der Fehler beim Einbau der Probe in die Spulenmitte kann auf ± 1 cm abgeschätzt werden. Ein Vergleich mit Abbildung 10.6 rechts zeigt, dass damit der Fehler im Absolutwert des Magnetfeldes bei Verschiebung der Probe aus der Spulenmitte ($\Delta B < 1\%$) vernachlässigt werden kann.

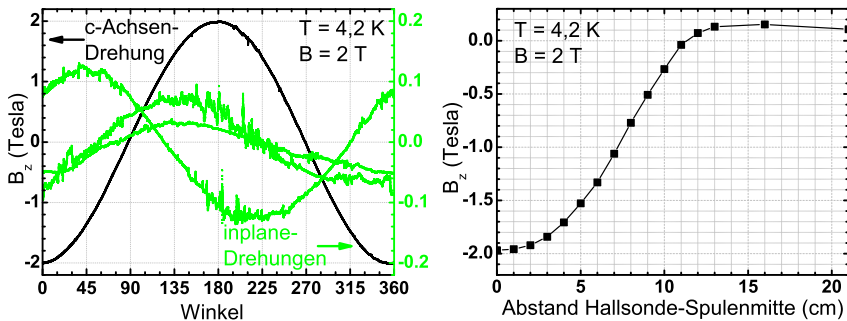


Abbildung 10.6: links: ein auf die c -Achsenrichtung projiziertes Magnetfeld bei einer Drehung mit dem in-plane-Probenhalter, rechts: Änderung der Magnetfeldstärke in c -Achsenrichtung beim Verschieben der Hallsonde aus der Spulenmitte heraus

Die Drehung erfolgte, indem über einen Kugellager-Einsatz der komplette Adiatat mit fest eingebautem Probenstab im konstanten Magnetfeld des Helmholtz-Spulenpaares gedreht wurde. Um die Richtung des Magnetfeldes zu bestimmen, wurde über den LCCO Film im Bereich der Zuleitungen ein konstanter Strom angelegt und die durch *Flux Flow*⁷ abfallende Spannung in Abhängigkeit der Magnetfeldrichtung gemessen. Bei konstanten

⁷durch die Lorentzkraft verursachte Bewegung der Flussschläuche

Parametern von Strom, Temperatur und Magnetfeldstärke konnte so bei einer Drehung des Magnetfeldes in Richtung der Filmebene aus dem Minimum der Flux-Flow-Spannung der Winkel 90° (Magnetfeld liegt in der Filmebene) bestimmt werden (Abbildung 10.7).

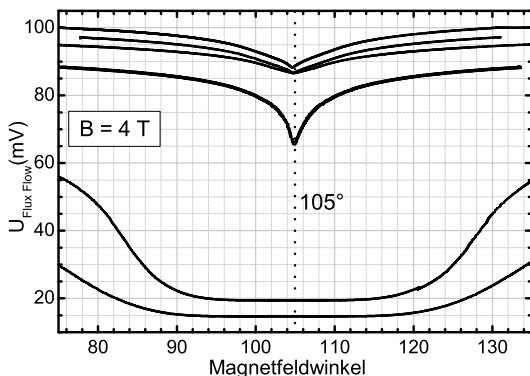


Abbildung 10.7:

Eichung der Magnetfeldrichtung einer c-Achsen-Drehung durch die über den LCCO-Film von 315E-S08 abfallende Flux-Flow-Spannung. Als Parameter wurden Temperatur oder Strom variiert. In diesem Beispiel: $105^\circ \rightarrow 90^\circ$

10.2.3 Messelektronik

Zur Erzeugung der $U(I)$ -Kennlinien wurden Stromquellen und Spannungsverstärker der Uni Tübingen verwendet, welche über netzunabhängige Akkus betrieben wurden. Mit Hilfe eines externen Frequenzgenerators wurde von der Stromquelle eine mehrere Minuten dauernde Stromrampe konstanter Steigung I_{DC} an den zu messenden Kontakt angelegt. Auf die langsame Stromrampe der Stromquelle wurde durch einen Lock-In-Verstärker ein kleiner, schnell oszillierender Wechselstrom I_{AC} von $1 \mu\text{A}$ gelegt. Die Einkopplung von I_{AC} erfolgte über einen $100 \text{ k}\Omega$ Widerstand bei einer vom Lock-In ausgegebenen sinusförmigen Wechselspannung von 100 mV bei $1,44 \text{ kHz}$. Durch die Detektion der Spannungsantwort U_{AC} konnte von dem Lock-In an jedem Punkt der $U(I_{DC})$ -Kennlinie die entsprechende Steigung $U_{AC}(I_{DC})/I_{AC}$ und daraus die Leitfähigkeit ermittelt werden. Die Zeitkonstante des Lock-In-Verstärkers musste dabei so gewählt werden, dass sie groß genug war, um die $1,44 \text{ kHz}$ Wechselspannung zuverlässig zu detektieren, aber auch klein genug, um nicht über verschiedene Stromwerte der langsamen I_{DC} Stromrampe zu mitteln. Als idealer Wert dafür wurde 10 ms gefunden, und bei allen Messungen verwendet. Über ein *Labview*-Programm konnte zeitgleich die an dem aktuellen Stromwert

abfallende Spannung und differentielle Leitfähigkeit, sowie die Temperatur und der Magnetfeldwinkel ausgelesen werden. Ein Vergleich der über den Lock-In direkt ermittelten Leitfähigkeit mit den numerisch ermittelten Leitfähigkeits-Kurven zeigt gute Übereinstimmung, wobei das Signal-Rausch-Verhältnis der Lock-In-Kurve um einiges besser ist (siehe Abbildung 10.8).

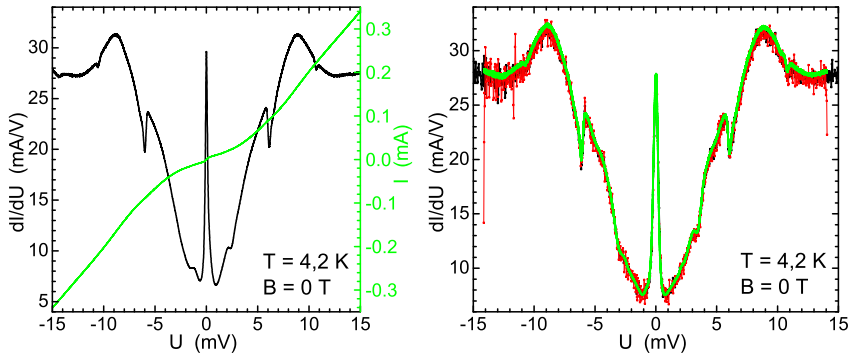


Abbildung 10.8: *links:* Zeitgleich aufgenommene U(I)- und Leitfähigkeits-Kennlinie von Kontakt 315E-S09, *rechts:* Vergleich der numerisch aus den U(I)-Kennlinien mit angeschlossenem Lock-In (rot) oder ohne angeschlossenem Lock-In (schwarz) ermittelten Leitfähigkeit mit der direkt über den Lock-In-Verstärker gemessenen Leitfähigkeit (grün)

Kapitel 11

Messergebnisse

11.1 Zusammenfassung von [Wag08a]

Bei allen im Laufe der Doktorarbeit [Wag08a] an den vier LCCO Proben durchgeführten Messungen wurde das Magnetfeld stets in Richtung der *c*-Achse senkrecht zur Filmebene angelegt. Der Schwerpunkt der Arbeit lag in der Beobachtung des Quasiteilchentunnels bei unterschiedlichen Magnetfeldstärken und Temperaturen.

In Abbildung 11.1 links ist die Entwicklung der für *d*-Wellen-Supraleiter typischen V-förmigen Tunnelleitfähigkeit bei variabler Temperatur im Nullfeld dargestellt. Es zeigt sich für $|U| \geq 15$ mV eine temperaturunabhängige linear ansteigende Leitfähigkeit. Möglicherweise ist dies ein intrinsischer Effekt der Kupratsupraleiter, der auf einer linearen normalleitenden Zustandsdichte, als Folge des Ladungstransportes über die gekoppelten CuO₂-Ebenen, beruht [Cuc96]. Der mögliche Einfluss von inelastischen Tunnelprozessen wird in [Gra97] untersucht. Mit steigender Temperatur verringern sich die lokalen Maxima bei $|U| \approx 9$ mV, sowie die Größe des ZBCP. Gleichzeitig nimmt die durch die supraleitende Energielücke verursachte Unterdrückung der Leitfähigkeit für $|U| \leq 9$ mV ab und die Leitfähigkeitskurve wird für $T \geq T_c$ V-förmig mit parabolischer Verrundung. Für $T \geq 30$ K wurden die entsprechenden Kennlinien noch um den resistiven Beitrag des Films korrigiert. Ähnliches Verhalten zeigt sich in Abbildung 11.1 rechts bei konstanter Temperatur von 5 K und Erhöhung des angelegten Magnetfeldes. Für $B \geq 6$ T wurde hier ebenfalls eine Korrektur der Leitfähigkeit um den resistiven Filmbeitrag durchgeführt. Selbst

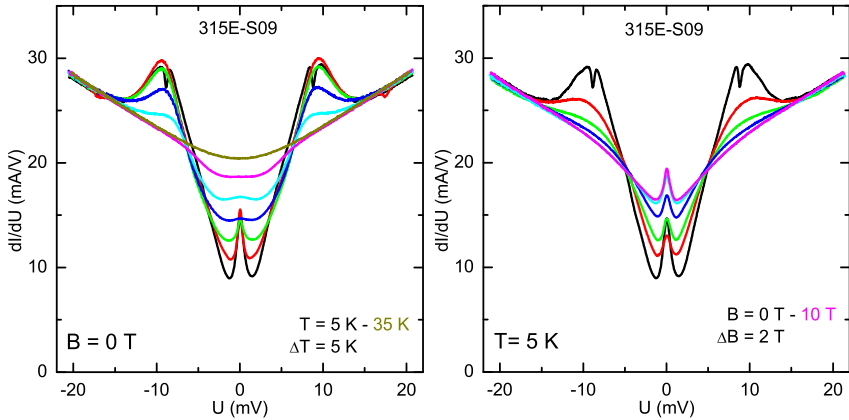


Abbildung 11.1: *links:* Leitfähigkeits-Kurven im Nullfeld bei verschiedenen Temperaturen, *rechts:* Leitfähigkeits-Kurven bei 5 K und verschiedenen angelegten Magnetfeldstärken in c -Richtung

bei Magnetfeldern von 16 T konnte bei 5 K der ZBCP nicht vollkommen unterdrückt werden.

Wichtigstes Ergebnis der Arbeit war die Erweiterung des $B - T$ -Phasendiagramms von LCCO (Abbildung 11.2). Da nach dem Verschwinden des ZBCP für $T \geq T_c$ auch immer andere Anzeichen der supraleitenden Phase wie Kohärenzmaxima und Energielücke verschwunden waren, wurde der ZBCP als Sonde für eine untere Grenze von $B_{c2}(T)$ verwendet. Dadurch ergab sich gegenüber der bisher verwendeten resistiven Bestimmung ein deutlich höherer Wert für B_{c2} von LCCO. B_{c2} wurde dabei über das Verschwinden der Fläche zwischen ZBCP und einem parabelförmigen Fit der Leitfähigkeitskurven ermittelt. Mithilfe der WHH-Theorie wurde die $B_{c2}(T)$ -Kurve für eine zylindrische Fermifläche bestimmt [Wer69] und über die experimentell bestimmten Werte in Abbildung 11.2 gelegt. Dadurch konnte $B_{c2}(0)$ auf ca. 24 T abgeschätzt werden. Über die resistiv ermittelten Werte konnte der Verlauf der Irreversibilitätslinie bestimmt werden, bei der für $\rho > 0$ eine statische Vortex-Glas-Phase in eine Art Vortex-Flüssigkeit übergeht. Als Folge dieser neuen Bestimmung von $B_{c2}(T)$ müssen Messungen wie etwa die in [Alf03] oder [Kle01a] resistiv ermittelte *Pseudogap*-Phase im T - x -Phasendiagramm von LCCO kritisch betrachtet werden.

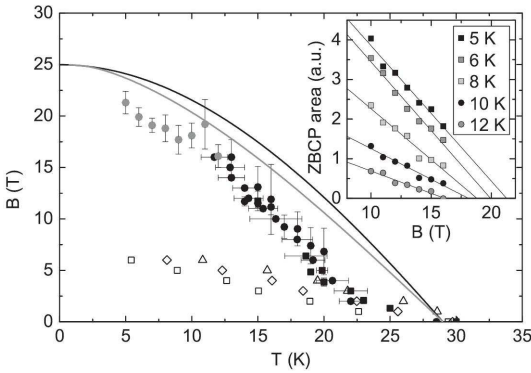


Abbildung 11.2: erweitertes B - T -Phasendiagramm von LCCO aus [Wag08b]. Gefüllte Kreise und Quadrate sind über den ZBCP ermittelte Werte für B_{c2} . Die offenen Dreiecke, Rauten und Quadrate sind resistiv bestimmte Werte von B_{c2} .

11.2 *c*-Achsen-Drehungen

In diesem Abschnitt sollen die Leitfähigkeitsmessungen bei Drehung des Magnetfeldes aus der *c*-Achsen-Richtung in die Filmebene dargestellt werden (siehe Abbildung 10.4). Es wurden insgesamt 25 Kontakte der bereits im Kapitel für Probenherstellung vorgestellten vier LCCO-Proben vermessen. Ein Vergleich der ersten durchgeführten Messungen mit den Messungen aus [Wag08a] zeigte, dass die LCCO-Proben auch nach mehr als drei Jahren Lagerung im Exsikkator nicht erkennbar degradiert waren. So konnten die Leitfähigkeitskurven noch problemlos reproduziert werden. Wie erwartet war die Ausprägung eines ZBCP von Kontakt zu Kontakt sehr unterschiedlich. Da jedoch alle Kontakte bezüglich der *c*-Achsen-Magnetfelddrehungen dieselben Eigenschaften zeigten, werden im folgenden zumeist die beiden Kontakte 315E-S09 und 313S-S05 (Abbildung 11.3), repräsentierend für die 25 gemessenen, gezeigt. Kontakt 315E-S09 ist mit $2 \times 20 \mu\text{m}$, der Kontakt mit der kleinsten Kontaktfläche. Er zeigte von allen vermessenen Kontakten den ausgeprägtesten ZBCP. Als zweiter Kontakt wurde 313S-S05 gewählt, der mit $2 \times 275 \mu\text{m}$ mehr als zehnmal so breit wie 315E-S09 war. Dadurch sollte sich auch, im Vergleich zu 315E-S09, der mögliche Einfluss einer einzelnen, in *a*- oder *b*-Richtung an die Korngrenze reichenden, länglichen Struktur minimieren (siehe Abbildung 11.3).

Alle Messungen wurden bei Magnetfeldern bis maximal 6 Tesla durchgeführt. Da die Temperatur in den meisten Fällen bei 4,2 Kelvin lag, befand sich der LCCO-Film in dem als Vortex-Glas bezeichneten Zustand des $B - T$ -Phasendiagramms unterhalb der Irreversibilitätslinie. Trotz der

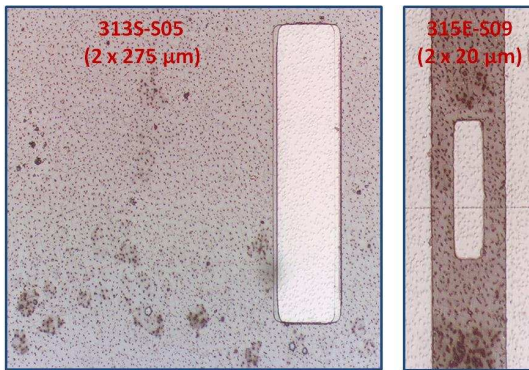


Abbildung 11.3:

Mit dem Lichtmikroskop aufgenommene Bilder der beiden am ausführlichsten untersuchten Kontakte 313S-S05 (links) und 315E-S09 (rechts).

angelegten Felder waren somit die Flussschläuche noch fest im supraleitenden LCCO-Film verankert. Daher war eine Korrektur der Leitfähigkeit der Barriere um einen resistiven Beitrag des Films, wie in [Wag08a] vielfach durchgeführt, nicht nötig.

In Abbildung 11.4 ist die Entwicklung der Leitfähigkeit bei einer Drehung des Magnetfeldes aus der c -Achsenrichtung (0°) in die Filmebene (90°) dargestellt. An allen 4 Proben wurden mehrere c -Achsen-Drehungen parallel zur Stromrichtung oder parallel zur Korngrenze durchgeführt. Dabei zeigten alle erhaltenen Leitfähigkeits-Kurven bei Drehung des Magnetfeldes in Richtung der Filmebene folgende charakteristischen Eigenschaften:

- Die Unterdrückung der Leitfähigkeit für $|U| \leq 9$ mV nahm gleichmäßig zu und hatte bei 90° annähernd dieselbe Form und Amplitude wie im Nullfeld.
- Besonders ab ca 45° wuchsen die lokalen Maxima bei $|U| = 9$ mV (*Kohärenzpeaks*) an und hatten bei 90° auch annähernd dieselbe Form und Amplitude wie im Nullfeld.
- Eine lineare Leitfähigkeit bei Spannungen oberhalb der lokalen Maxima [Cuc96]
- Die Größe des ZBCP im Bereich $|U| \leq 1$ mV nahm ab.

Es spielte dabei keine Rolle, ob das Magnetfeld parallel oder senkrecht zur Stromrichtung gedreht wurde.

Das Erscheinen und die Größe eines ZBCP hängt maßgeblich mit der Beschaffenheit der Tunnelbarriere, in diesem Fall der Korngrenze, zusam-

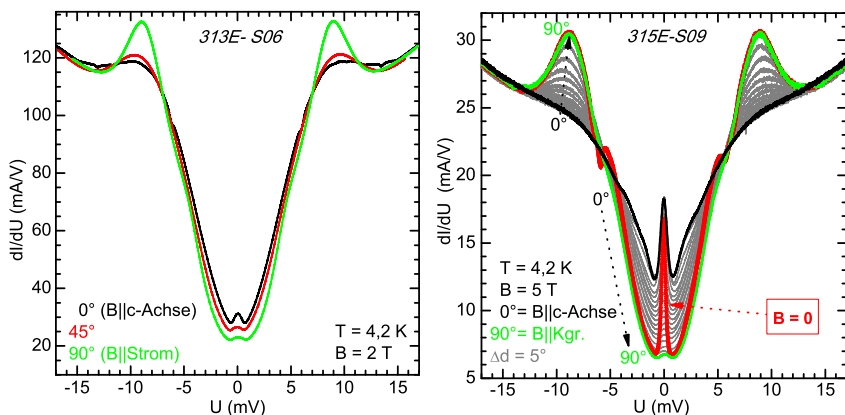


Abbildung 11.4: *links:* Magnetfelddrehung aus c-Achsenrichtung in die Filmebene parallel zur Stromrichtung an 313E-S06, *rechts:* Magnetfelddrehung aus c-Achsenrichtung in die Filmebene parallel zur Korngrenze an 315E-S09 und Vergleich mit Kurve im Nullfeld.

men. Die Qualität der Korngrenze wiederum hängt von der Qualität der Bikristall-Substrate ab, so dass es bei schlechten Substraten vorkommen kann, dass überhaupt kein ZBCP auftritt. Daher darf ein fehlender ZBCP auch nicht als Indiz für eine s-Wellen-Symmetrie gedeutet werden.

In Abbildung 11.5 sind Leitfähigkeits-Kurven ohne auftretenden ZBCP dargestellt. Der parabelförmige Verlauf bis zu einer bestimmten Spannung rechtfertigt die Charakterisierung der Größe und Fläche eines ZBCP über eine parabolische Näherung der Kennlinie im Bereich um den ZBCP. Im rechten Schaubild ist zu erkennen wie sowohl Fläche zwischen Parabel und ZBCP (A_{ZBCP}) als auch Differenz zwischen dem Maximum des ZBCP und dem Minimum der Parabel (L_{ZBCP}) bei der Drehung variieren. Abbildung 11.6 zeigt die Entwicklung des ZBCP während einer kompletten Drehung des Magnetfelds um 360° . Der ZBCP (graue Kurve, rote Punkte) zeigt deutliche Minima bei 90° und 270° , sowie Maxima im Bereich von 0° und 180° . Allerdings variieren auch die Minima der entsprechenden Fitparabeln (blaue Quadrate) in Form einer dreiecksförmigen Kurve mit Maxima und Minima an denselben Stellen. Zur Charakterisierung des ZBCP wurden daher die Fläche A_{ZBCP} (orange Quadrate) und die Länge L_{ZBCP} (grüne Quadrate) verwendet. Beide zeigen über den gesamten Winkelbereich vergleichbares Verhalten. Eine Änderung von A_{ZBCP} folgt also aus

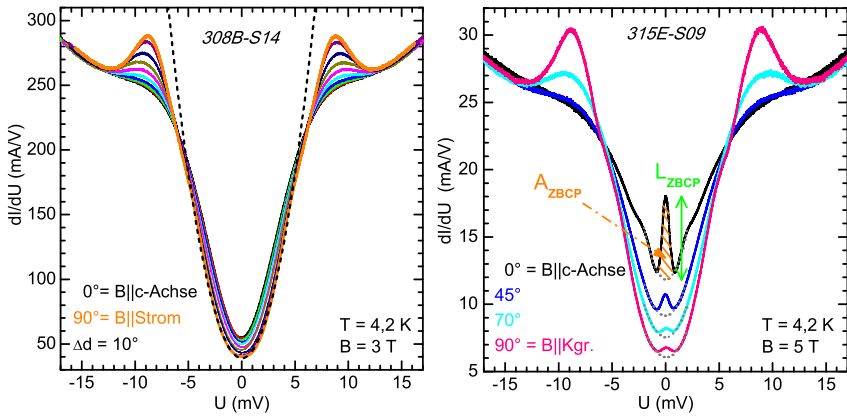


Abbildung 11.5: links: Leitfähigkeits-Kurven von 308B-S14 ohne ZBCP mit parabolischem Fit der 90° Kurve, rechts: Parabolische Näherungskurven an Leitfähigkeits-Kurven von 315E-S09

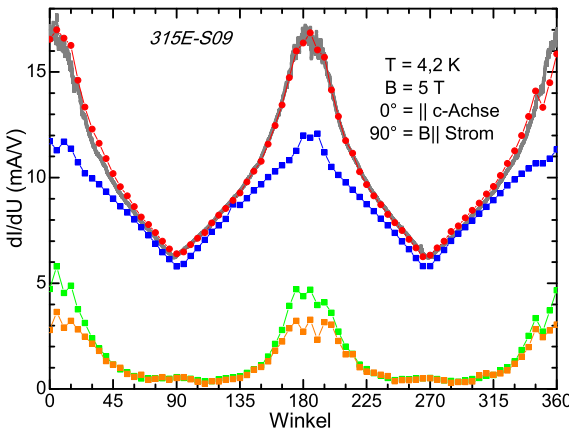


Abbildung 11.6: 360° Magnetfeldrotation an 315E-S09, grau: Leitfähigkeit bei $U=0$ V, rot: Maximum ZBCP, blau: Minimum Fitparabel, grün: L_{ZBCP} , orange: A_{ZBCP} in μA

einer Änderung von L_{ZBCP} und nicht aus einer Verbreiterung des ZBCP. Eine weitere Beobachtung, die an verschiedenen Tunnelkontakten gemacht werden konnte, war eine Einengung der Tunnelkennlinie für $|U| \leq 4$ mV im Bereich der Magnetfeldwinkel 0° und 180° (siehe Abbildung 11.7 links). Diese Einengung konnte sowohl für Drehungen parallel als auch senkrecht zur Korngrenze beobachtet werden. Sie liefert eine Erklärung für die Variation von A_{ZBCP} und L_{ZBCP} im Bereich von 0° bzw. 180° , da die Parabel-

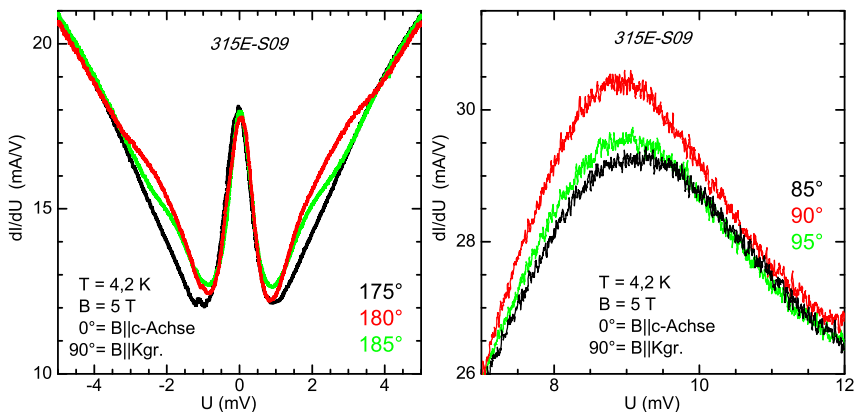


Abbildung 11.7: *links:* Variation der Leitfähigkeit um den ZBCP, *rechts:* Variation der lokalen Maxima bei $|U| = 9$ mV

fits jeweils für den inneren Bereich der Tunnelkennlinie gemacht wurden. Abbildung 11.7 rechts zeigt die lokalen Maxima (Kohärenzpeaks) bei $|U| = 9$ mV, die ihre größte Ausprägung bei den beiden in-plane-Winkeln 90° und 270° besitzen.

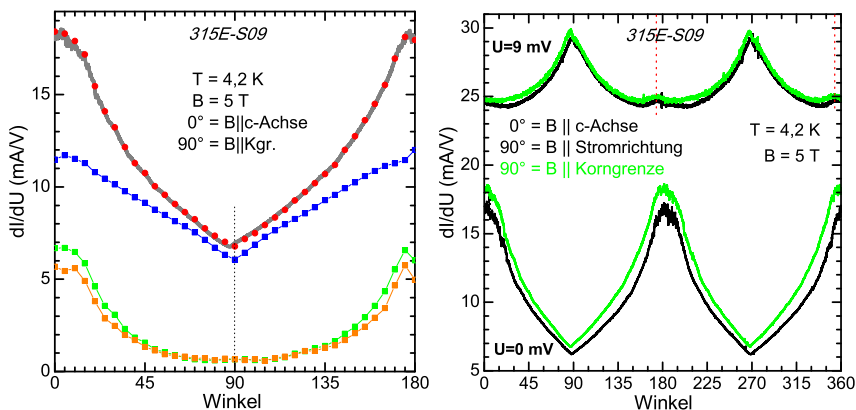


Abbildung 11.8: *links:* 180° Magnetfelddrehung in Richtung parallel zur Korngrenze an 315E-S09, *rechts:* Vergleich der beiden Magnetfelddrehungen aus der c-Achsenrichtung in die Filmebene

Abbildung 11.8 zeigt einen Vergleich der beiden Magnetfelddrehungen aus der c -Achse in Richtung der Filmebene. Es ist klar zu erkennen, dass die Lage der entsprechenden Maxima und Minima unabhängig davon war, ob das Magnetfeld parallel oder senkrecht zur Korngrenze gedreht wurde. Lediglich die absolute Größe des ZBCP unterschied sich bei den beiden Drehungen. Grund dafür war allerdings nicht die Drehrichtung, sondern das erneute Einkühlen der Probe vor der zweiten Messung, worauf später noch genauer eingegangen wird. Eine weitere Beobachtung, ist das kurze Anwachsen der Kohärenzpeaks bei 174° und 354° , was durch die beiden roten Linien in Abbildung 11.8 rechts markiert ist. 174° und 354° würden in etwa den Winkeln entsprechen, bei denen das Magnetfeld senkrecht zur CuO_2 -Ebene einer (103) -Minderheitsphase stehen könnte.

Kontakt 313S-S05

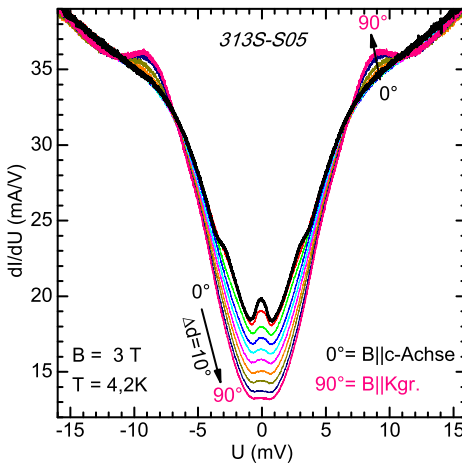


Abbildung 11.9: Drehung eines Magnetfeldes von 3 Tesla aus Richtung der c -Achse in die Filmebene parallel zur Korngrenze an 313S-S05. Die Kontaktbreite von 313S-S05 beträgt mehr als das zehnfache von 315-S09.

Als Vergleich zu den Messungen an 315E-S09 ist in Abbildung 11.9 eine c -Achsendrehung des Magnetfeldes an dem mehr als zehnfach so breiten Kontakt 313S-S05 dargestellt. Wie schon erwähnt sollte bei 313S-S05 dadurch auch eine statistisch ausgeglichene Verteilung der runden und länglichen Strukturen im Bereich der Korngrenze vorliegen (siehe Abbildung 11.3). Auch hier war eine deutliche Abnahme des ZBCP und Zunahme der lokalen Maxima bei Drehung des Magnetfeldes in Richtung der Filmebene zu erkennen, allerdings nicht so stark ausgeprägt wie bei 315E-

S09. Die bei 315E-S09 beobachtete Einengung der Tunnelkennlinie für $|U| \leq 4$ mV, um die Winkel 0° bzw. 180° , konnte auch hier bestätigt werden. Um die genaue Lage der Maxima und Minima bei einer c-Achsendrehung

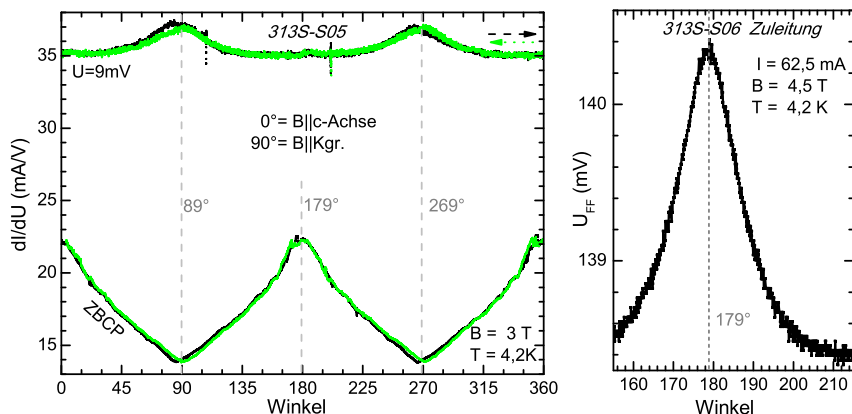


Abbildung 11.10: links: 360° Drehung des Magnetfeldes an 313S-S05, rechts: Eichung der Magnetfeldrichtung (179° im linken Schaubild entspricht also 180°)

zu bestimmen, wurde an 313S-S05 für $U = 0$ mV bzw. $U = 9$ mV die Tunnelleitfähigkeit in Abhängigkeit des Magnetfeldwinkels bestimmt. Die Drehung erfolgte von 0° auf 360° und wieder zurück auf 0° . Die Eichung der Magnetfeldrichtung erfolgte, wie im Kapitel Messtechniken schon genauer erklärt, über die Bestimmung der *Flux-Flow*-Spannung über den LCCO Film (Abbildung 11.10 rechts). Ein Vergleich zeigt klar, dass die Maxima und Minima genau bei den Winkeln zu finden sind, bei denen das Magnetfeld entweder senkrecht zur Filmebene oder innerhalb der Filmebene liegt.

ZBCP nach verschiedenen Einkühlvorgängen

Ein Effekt, der auch schon in [Wag08a] beobachtet werden konnte, ist die unterschiedliche Ausprägung des ZBCP nach verschiedenen Einkühlvorgängen. In [Wag08a] wurde allerdings nur auf die unterschiedliche ZBCP-Größe im Nullfeld aufgrund von möglichen AC Josephson-Resonanzen eingegangen. Dieser Effekt verschwindet im Gegensatz zu Abbildung 11.11 aber schon bei kleinen Magnetfeldern wieder. Grund für die auch bei

höheren Magnetfeldstärken noch vorhandenen Größenunterschiede des ZBCP sollte die unterschiedliche Flussverteilung sein, die sich bei Typ-2-Supraleitern bei jeder Abkühlung unter T_c bilden kann. Die lokalen Maxima bei $|U| = 9$ mV, sowie die Unterdrückung der Leitfähigkeit für $|U| \leq 9$ mV, sind Eigenschaften der Energielücke des gesamten LCCO-Films, durch den die Korngrenze verläuft. Sind ABS¹ Ursache eines ZBCP, so findet seine Entstehung in einem kleinen lokalen Bereich um die Korngrenze statt. Dort kann die Flussverteilung nach jedem Abkühlvorgang anders aussehen, während sie über den gesamten LCCO-Film verteilt im Mittel gleich bleibt. Dies sollte erklären, warum sich in Abbildung 11.11 die ZBCPs nach beiden Abkühlvorgängen stark unterscheiden, während alle anderen Eigenschaften, wie z.B. die Größe der lokalen Maxima bei $|U| = 9$ mV, gleich bleiben. Nach entsprechendem Einkühlvorgang mit kleinem ZBCP war es hier sogar möglich, durch ein in Richtung der Filmebene angelegtes Magnetfeld von 5 Tesla den ZBCP komplett zu unterdrücken. So kann auch die unterschiedliche ZBCP-Höhe in Abbildung 11.8 rechts verstanden werden. Die relative Entwicklung des ZBCP bei der Magnetfeld-Drehung sowie die Lage der Maxima und Minima blieben, unabhängig vom Einkühlvorgang, immer gleich.

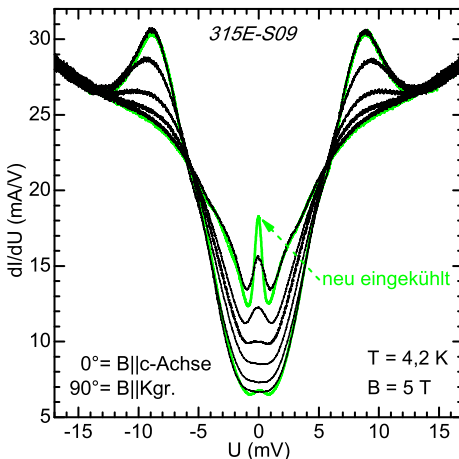


Abbildung 11.11: Stärkster Größenunterschied des ZBCP an 315E-S09 für verschiedene Einkühlvorgänge

¹Andreev bound states

Zusammenfassung c-Achsen-Drehungen und Schlussfolgerungen

Als Zusammenfassung der Magnetfelddrehungen von der c-Achsenrichtung in die Filmebene, kann man die Entwicklung der Leitfähigkeitskurven der LCCO-Tunnelkontakte auf zwei unterschiedliche Verhaltensweisen aufteilen. Eine Eigenschaft, die an allen gemessenen Kontakten, unabhängig von deren Abmessungen und Korngrenzwinkel, während einer Drehung in Richtung der Filmebene beobachtet werden konnte, war die Zunahme der lokalen Maxima bei $|U| = 9$ mV bei gleichzeitiger Abnahme der Leitfähigkeit für $|U| \leq 9$ mV. Es konnte über *Flux-Flow*-Messungen gezeigt werden, dass die entsprechenden Minima oder Maxima genau dann erreicht waren, wenn das Magnetfeld senkrecht oder waagrecht zur Filmebene ausgerichtet war. Da dieses Verhalten zudem unabhängig davon war, ob die Drehung parallel oder senkrecht zur Korngrenze durchgeführt wurde, kann man annehmen, dass es sich hierbei um eine intrinsische Eigenschaft des in a- und b-Achsenrichtung symmetrischen LCCO-Films handeln muss. Die gemessene Leitfähigkeit kann bei Tunnel-Transport-Messungen als Faltung der beiden Zustandsdichten links und rechts der Barriere interpretiert werden. Somit stellen die lokalen Maxima bei $|U| = 9$ mV die Kohärenzpeaks, und die Absenkung der Leitfähigkeit im Bereich $|U| \leq 9$ mV die Energielücke der Quasiteilchen-Zustandsdichte dar. Wird nun das Magnetfeld oder die Temperatur erhöht, so nimmt die Cooper-Paar-Dichte des Supraleiters ab. Infolge dessen nehmen auch diese beiden Merkmale der Zustandsdichte ab und verschwinden spätestens beim Erreichen von B_{c2} oder T_c vollständig. Warum eine Drehung des Magnetfeldes in Richtung der Filmebene ähnliche Auswirkungen auf die Zustandsdichte hat, wie eine Verringerung der Magnetfeldstärke, kann über die in Kupratsupraleitern unterschiedlichen kritischen Felder parallel und senkrecht zur Filmebene erklärt werden. Aufgrund der zweidimensionalen Supraleitung innerhalb der CuO_2 -Ebenen geht bei einem Feld senkrecht zur Filmebene mehr Kondensationsenergie verloren als bei einem parallel angelegten Feld. Infolge dessen ist das kritische Feld, bei dem die Supraleitung verschwindet, parallel zur Filmebene um einiges höher als senkrecht dazu. Bei dem ebenfalls in T' -Struktur aufgebauten elektrondotierten Supraleiter NCCO unterscheiden sich die beiden Felder für $T \rightarrow 0$ um etwa den Faktor 20 [Suz90]. Bei LCCO sollte sich dies ähnlich verhalten. Außerdem wird bei Dünnschichten diese Anisotropie der kritischen Felder sogar noch verstärkt. In Abbildung 11.12 ist ein Vergleich des bei einer Drehung auf die c-Achse projizier-

ten Magnetfeldes mit einem in c -Achsenrichtung variierten Magnetfeld dargestellt. Man erkennt im linken Schaubild, dass bei der Drehung für die Kohärenzpeaks und Energielücke fast nur die Anteile des Feldes in c -Achsenrichtung relevant sind. Da die Anisotropie der kritischen Felder endlich ist, bleibt ein kleiner Einfluss des in-plane-Magnetfeldes bestehen. Dies zeigt sich beim Größenvergleich des Kohärenzpeaks im Nullfeld, mit dem bei 0 Tesla in c -Achsenrichtung aber gleichzeitigem in-plane-Feld von 5 Tesla ermittelten Kohärenzpeak.

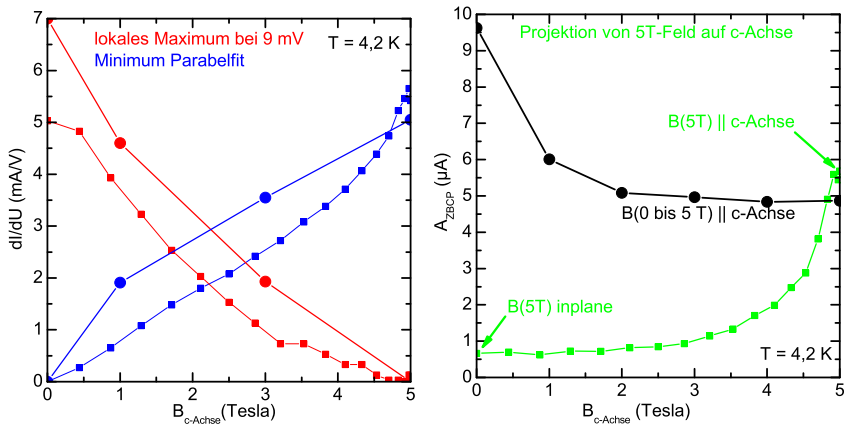


Abbildung 11.12: Vergleich der Variation der Magnetfeldstärke in c -Achsenrichtung von 0 bis 5 Tesla mit der auf die c -Achsenrichtung projizierten Magnetfeldstärke einer Drehung bei 5 T. *links:* Kohärenzpeaks bei 9 mV (rot) und Minima der Parabelfits bei 0 mV (blau). Die Drehungen sind jeweils durch die kleinen Quadrate dargestellt und auf ihren minimalen Wert skaliert. *rechts:* ZBCP-Fläche

Eine erste Vermutung wäre, dass sich der ZBCP gleich verhalten, und bei einer Magnetfelddrehung in Richtung der Filmebene ebenfalls wieder anwachsen sollte, so wie es in [Apr99] an YBCO/Pb Kontakten gezeigt wurde. Allerdings zeigte sich, wie schon in [Che05] angedeutet, das genau umgekehrte Verhalten (siehe rechtes Schaubild). Der ZBCP war am stärksten ausgeprägt bei einem Feld parallel zur c -Achse, und am schwächsten wenn das Feld innerhalb der Filmebene lag. Auch hier machte es keinen Unterschied ob parallel oder senkrecht zur Korngrenze gedreht wurde. Außerdem war die Größe des ZBCP empfindlich vom Einkühlvorgang abhängig. Dies könnte möglicherweise an einer unterschiedlichen Flussverteilung im lo-

kalen Bereich um die Korngrenze, wo die Bildung von ABS stattfindet, liegen. Eine wichtige Rolle für das ZBCP-Verhalten könnten auch die verschiedenen Formen der supraleitenden Abschirmströme sein, die sich bei einem Magnetfeld in-plane oder in *c*-Achsenrichtung bilden. Bei einem Magnetfeld in *c*-Achsenrichtung gehen Abrikosov-Vortizes pfannkuchenförmig durch die CuO_2 -Ebenen und die Abschirmströme fließen ebenfalls in diesen Ebenen. Ist LCCO so wie z.B. BSCCO über die isolierenden Schichten in *c*-Achsenrichtung Josephson-gekoppelt, so könnte das Feld in-plane in Form von Josephson-Vortizes zwischen den CuO_2 -Ebenen verlaufen. Die Abschirmströme würden dann als Josephson-Ströme fließen. Genauere Informationen über den möglichen Einfluss der LCCO-Minderheitsphasen und nadelförmigen Strukturen konnten bei den beiden *c*-Achsen-Drehungen, senkrecht oder parallel zur Korngrenze, nicht gewonnen werden. Dies wurde von den folgenden in-plane-Drehungen erhofft.

Zuletzt sollten noch zwei weitere Beobachtungen erwähnt werden. Bei den möglichen Winkeln des Magnetfelds senkrecht zur (103)-Minderheitsphase konnte ein leichtes Anwachsen der Kohärenzpeaks festgestellt werden (vgl. Abbildung 11.8). Außerdem konnte man, allerdings nur bei manchen Kontakten, für Magnetfelder parallel zur *c*-Achse, eine Einengung der Tunnelkennlinie im Bereich $|U| \leq 4$ mV feststellen (vgl. Abbildung 11.7). Hier stellt sich die Frage ob es sich um eine intrinsische LCCO-Eigenschaft, wie z.B. Anteile einer anderen Ordnungsparametersymmetrie, handeln könnte.

11.3 in-plane-Drehungen

Im zweiten Teil der Messungen wurde das Magnetfeld innerhalb der Filmebene gedreht (Abbildung 10.4 rechts). Dabei wurden 20 verschiedene Tunnelkontakte der vier Proben untersucht. Am intensivsten, wie schon bei den c-Achsen-Drehungen, 315E-S09. Aus den c-Achsen-Drehungen war bereits bekannt, dass ein in der Filmebene senkrecht zur Korngrenze liegendes Magnetfeld (Winkel 0°) dieselbe Leitfähigkeitskurve aufweist wie ein parallel zur Korngrenze liegendes (Winkel 90°). Das Hauptziel der in-plane-Drehungen des Magnetfelds war, den Einfluss der länglichen Strukturen nahe der Korngrenze (Abbildung 10.3) und der verschiedenen Phasen der T'-Struktur (Abbildung 10.2) auf die Tunneleigenschaften der Quasiteilchen zu untersuchen.

Kontakt 315E-S09

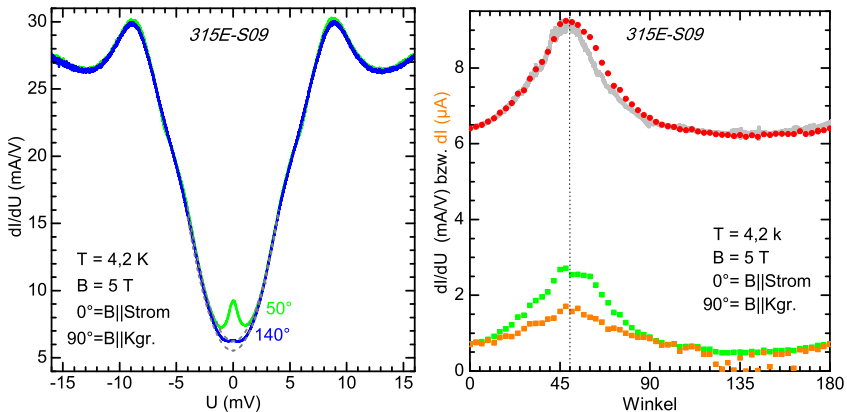


Abbildung 11.13: links: Leitfähigkeitskurven von 315E-S09 bei den Magnetfeldwinkeln 50° und 140° , rechts: Maximum ZBCP (graue Kennlinie und rote Punkte), L_{ZBCP} (grüne Quadrate), A_{ZBCP} (orange Quadrate)

Die Entwicklung des ZBCP bei Drehung des Magnetfeldes innerhalb der Filmebene an 315E-S09 (Abbildung 11.13) zeigte bei einem in-plane-Winkel von 50° (bzw. 230°) ein deutliches Maximum des ZBCP. Die Kohärenzpeaks bei $|U| = 9 \text{ mV}$ hingegen zeigten keine feststellbare Änderung, wobei dies

auch nicht erwartet wurde, da diese schon bei einem in-plane-Winkel von 0° fast gleich stark ausgeprägt waren wie im Nullfeld. Überraschenderweise zeigte sich nur ein einziges Maximum in dem Winkelbereich 0° - 180° . Wäre die Vergrößerung des ZBCP eine Eigenschaft der (001)-Hauptphase des gesamten LCCO-Films um die Korngrenze, so sollte allein aufgrund der Spiegelsymmetrie an der Korngrenze immer ein zweites, etwa gleich großes, Maximum bei einer 180° Drehung auftauchen. So könnte man sich vorstellen, dass bei einem 45° Winkel des Magnetfelds zur Korngrenze durch die ebenfalls in 45° Richtung verlaufenden Abschirmströme zusätzliche ABS gebildet werden, die dann den ZBCP erhöhen. Bei einer 360° in-plane-Drehung müssten dann allerdings vier etwa gleich große ZBCP Maxima auftreten was hier eindeutig nicht der Fall ist.

Eine weitere Vermutung wäre, dass eine einzelne oder wenige der entlang der a- oder b-Achsen ausgerichteten nadelförmigen Strukturen in der Nähe der Korngrenze die Ursache darstellt, durch die Bildung von zusätzlichen ABS. Diese Vermutung wird unterstützt durch die Tatsache, das 315E-S09 mit $2 \times 20 \mu\text{m}$ die kleinste Kontaktfläche besitzt und so der Einfluss einer einzelnen Struktur stärker ins Gewicht fallen würde. Allerdings sollte für die Bildung von ABS im optimalen Fall ein Winkel von 45° zwischen dem Maximum des d-Wellen-Paarpotentials des Supraleiters und der Oberflächennormalen der NS-Grenzschicht vorliegen [Kas96]. Da die Winkel der a- oder b-Achsenrichtung aber sowohl die Winkel des Maximums des Paarpotentials als auch die Winkel der Oberflächennormalen der nadelförmigen Strukturen sind, beträgt dieser Winkel gerade 0° . Daher sollten sich an den nadelförmigen Strukturen theoretisch keine ABS bilden können. Bestimmt man nach Abbildung 10.2 die Winkel, bei denen das Magnetfeld senkrecht zur CuO_2 -Ebene einer der in (110)-Richtung orientierten Minderheitsphase liegt, so erhält man die im folgenden als *(110)-Magnetfeldwinkel* bezeichneten Winkel 33° (123°) oder 57° (147°). Da im vorherigen Abschnitt bereits gezeigt wurde, dass bei einer Magnetfeldrichtung senkrecht zu den CuO_2 -Ebenen (c-Achsenrichtung) der ZBCP sein Maximum erreicht, könnte aufgrund der Orientierung der (110)-Minderheitsphase (siehe Abbildung 10.2) derselbe Effekt nur in abgeschwächter Form bei einer in-plane-Drehung beobachtet werden. Abhängig vom Einbau der Probe, könnte entweder bei 33° oder bei 57° das Magnetfeld senkrecht zur CuO_2 -Ebene einer (110)-Minderheitsphase liegen und so der ZBCP ein weiteres Maximum aufweisen.

In Abbildung 11.14 sind in-plane-Drehungen des Magnetfeldes für verschiedene Magnetfeldstärken oder verschiedene Temperaturen dargestellt. Man

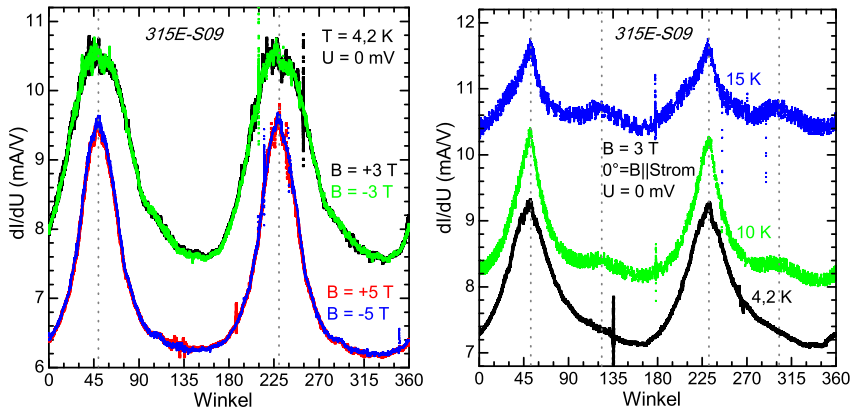


Abbildung 11.14: links: in-plane-Drehung an 315E-S09 bei verschiedenen Magnetfeldstärken, rechts: in-plane-Drehung an 315E-S09 bei verschiedenen Temperaturen

erkennt deutlich, dass die Lage der Maxima des ZBCP nicht von der Stärke des angelegten Feldes oder der Temperatur abhängt, sondern alleine von der Richtung des angelegten Magnetfeldes. Bei dem 5 Tesla starken Magnetfeld ist erwartungsgemäß das Maximum stärker ausgeprägt als beim Magnetfeld von 3 Tesla. Auch eine 180°-Drehung des Feldes zeigte keine Auswirkungen auf die Messergebnisse, die Lage der Maxima war konstant bei 50° (230°). Im rechten Schaubild erscheint ab 10 Kelvin bei den beiden Kennlinien ein weiteres Maximum des ZBCP bei etwa 123°. Es würde damit auch genau auf einem (110) -Magnetfeldwinkel, bei dem das Magnetfeld senkrecht zu den CuO_2 -Ebenen der (110) -Phasen gerichtet wäre, liegen.

Vergleich mit in-plane-Drehungen an anderen Kontakten

In Abbildung 11.15 links sind in-plane-Drehungen eines Magnetfelds von 3 Tesla an 313S-S05 dargestellt. Wie schon bei 315E-S09 in Abbildung 11.14 sind zwei Maxima des ZBCP zu erkennen. Die Kontaktbreite von 313S-S05 beträgt fast das 14-fache von 315E-S09. Auch hier bilden sich ein kleines Maximum bei dem (110) -Magnetfeldwinkel 33° und ein großes bei ca 135°. Die in-plane-Drehung an 313S-S05 wurde mit zwei unterschiedlichen Probenhaltern durchgeführt. Beides Mal liegen die Maxima bei demselben

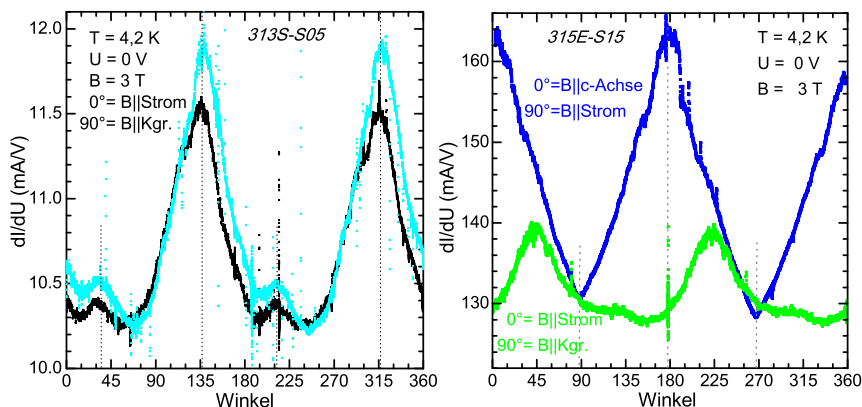


Abbildung 11.15: links: in-plane-Drehung an 313S-S05 mit zwei verschiedenen Probenhaltern, rechts: Vergleich der ZBCP-Größe bei einer in-plane-Drehung und einer c-Achsendrehung

Winkel. Einzig die mittlere Größe des ZBCP ist leicht unterschiedlich, was aber, wie schon bei den c-Achsen-Drehungen gezeigt wurde, an den verschiedenen Einkühlvorgängen liegen sollte.

Im rechten Schaubild ist der Vergleich einer in-plane-Drehung mit einer c-Achsen-Drehung an 315E-S15 dargestellt. Die Befürchtung, die bei der in-plane-Drehung erzeugten ZBCP-Maxima könnten von einer möglichen z-Komponente des Magnetfeldes aufgrund eines verkippten Probenhalters kommen, kann ausgeschlossen werden. Dazu wäre, wie man im Schaubild erkennen kann, eine Verkipfung von ca. 30° notwendig gewesen. Eine minimale Verkipfung des Probenhalters von maximal 2° konnte nicht ausgeschlossen werden. Die gute Reproduzierbarkeit der Kennlinien in Abbildung 11.15 links spricht allerdings klar gegen eine Verkipfung als Ursache der kleinen Maxima. Außerdem wurde im Kapitel für Messtechnik gezeigt, dass die zufällige Verkipfung nach jedem Einbau anders war.

In Abbildung 11.16 sind fünf ZBCP-Kurven aus drei verschiedenen Proben dargestellt, deren ZBCP-Maxima bei den in-plane-Drehungen groß genug waren, um problemlos reproduziert werden können. Bei in-plane-Drehungen von Kontakten mit sehr kleinem ZBCP war es schwer, den genauen Winkel der Maxima zu bestimmen und deshalb werden diese Messungen hier nicht aufgeführt. Die ZBCP-Kurven wurden zum besseren Überblick auf eine vergleichbare Höhe skaliert. Die wichtigste Erkenntnis,

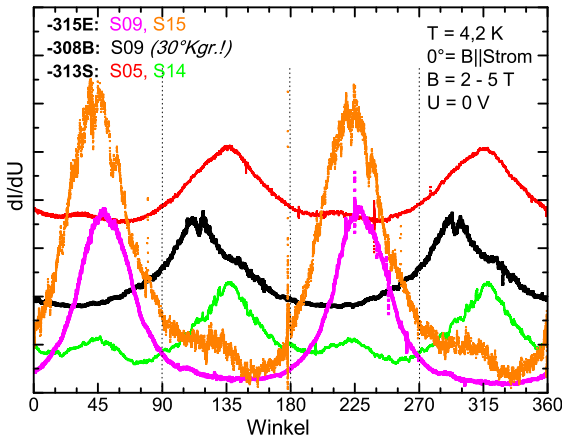


Abbildung 11.16:

Vergleich der in-plane-Drehungen des Magnetfeldes an fünf Kontakten aus drei verschiedenen Proben. Die gestrichelten Linien stellen die Magnetfeldwinkel parallel oder senkrecht zur Korngrenze dar.

die aus Abbildung 11.16 gewonnen werden kann ist, dass unterschiedliche Kontakte auf derselben Probe bei einer in-plane Drehung dieselben Eigenschaften zeigen. Eine Umkehrung der Magnetfeld- oder der Stromrichtung um 180° brachte keine Änderung (Abbildung 11.14 links). Bei Probe 313S liegen die großen Maxima von S05 und S14 bei 137° und die kleinen bei den Winkeln 35° und 45° . S09 und S15 von Probe 315E zeigen große Maxima bei den Winkeln 50° und 45° und kleine bei ca. 125° . Bei beiden Kontakten liegt die maximale Amplitude des ZBCP bei einer in-plane Drehung bei 25%-30% des Wertes der maximalen Amplitude des ZBCP bei einer c-Achsen-Drehung (siehe Abbildung 11.15 rechts). Da S15 eine fast 14 mal größere Kontaktbreite besitzt als S09, führt das zur Annahme, dass die Ursache in einer mikroskopisch über den gesamten LCCO-Film gleichverteilten Eigenschaft zu finden sein sollte. Diese Eigenschaft darf aber nicht symmetrisch zur Korngrenze sein, sonst müsste gerade bei den breiteren Kontakten ein ebenfalls symmetrisches Verhalten der ZBCP-Kurven in Bezug auf die Korngrenzrichtung bei 90° zu erkennen sein. Da die nadelförmigen Strukturen entlang der a- und b-Achse zumindest bei den breiteren Kontakten symmetrisch und gleichmäßig um die Korngrenze verteilt sind, sollten sie als Ursache nicht in Frage kommen. Unterstützt wird diese Annahme noch dadurch, dass die Richtung entlang der a- und b- Kristallachsen für die Bildung von ABS am ungünstigsten ist. Als mögliche Ursache bleibt so noch die beim LCCO-Filmwachstum neben der (001)-Hauptphase entstandene (110)-Phase der T' -Struktur. Die Lage

der CuO_2 -Ebenen dieser (110) Phase müsste dann bei jeder der Proben jeweils genau eine Vorzugsrichtung besitzen. Eine eindeutige Zuordnung der Winkel in Abbildung 11.16 zu den bereits aus Abbildung 10.2 bestimmten (110)-Magnetfeldwinkeln konnte nicht gemacht werden. Allerdings zeigte sich eine deutliche Tendenz hin zu diesen Winkeln.

Resonanzen bei 308B-S09

Mit einem Maximum des ZBCP beim in-plane-Winkel von 115° fällt die ZBCP-Kurve von 308B-S09 in Abbildung 11.16 im Vergleich zu den anderen aus der Reihe. Wegen der $15^\circ/15^\circ$ -Korngränze von Probe 308B wird zwar ein anderer Winkel erwartet, dieser sollte allerdings nur ca. 3° zu den anderen Proben mit einer $12^\circ/12^\circ$ -Korngränze verschoben sein. Die interessanteste Beobachtung an 308B-S09 ist eine kurze Absenkung der ZBCP-Höhe bei 115° im Maximum der ZBCP-Kurve.

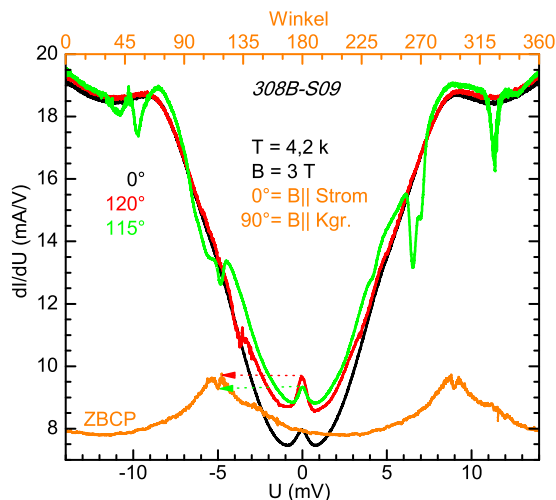


Abbildung 11.17:
in-plane-Drehung an
308B-S09 und resonanz-
artige Absenkungen der
Leitfähigkeit beim
in-plane-Winkel von
 115°

Eine genauere Analyse dieser Absenkung der ZBCP-Höhe ist in Abbildung 11.17 dargestellt. Dazu wurden Leitfähigkeitskurven von 308B-S09 bei drei verschiedenen konstanten in-plane-Winkeln aufgenommen. Die schwarze Kennlinie stellt die Leitfähigkeit für ein 3 Tesla starkes Magnetfeld parallel zur Stromrichtung dar. Bis zur kurzen Absenkung bei 115° verhielten sich die Leitfähigkeitskurven von 308B-S09 so, wie es aus den in-plane-Drehungen der anderen Proben bereits bekannt war. Die rote Kennlinie

bei 120° beinhaltet den größten ZBCP. Beim Winkel 115° , also im lokalen Minimum der ZBCP-Kurve, zeigten sich, neben einem im Vergleich zu 110° oder 120° verkleinertem ZBCP, Absenkungen der Leitfähigkeit bei bestimmten Spannungen. Anhand der grünen Kennlinie wird deutlich, dass es sich um resonanzähnliche Absenkungen der Leitfähigkeit handelt, die in Bezug auf die Spannung nicht symmetrisch sind. Die Stärke und genaue Lage der Resonanzen reagierte sehr empfindlich auf den in-plane-Winkel des Magnetfelds und war auf ein Intervall von 3° beschränkt.

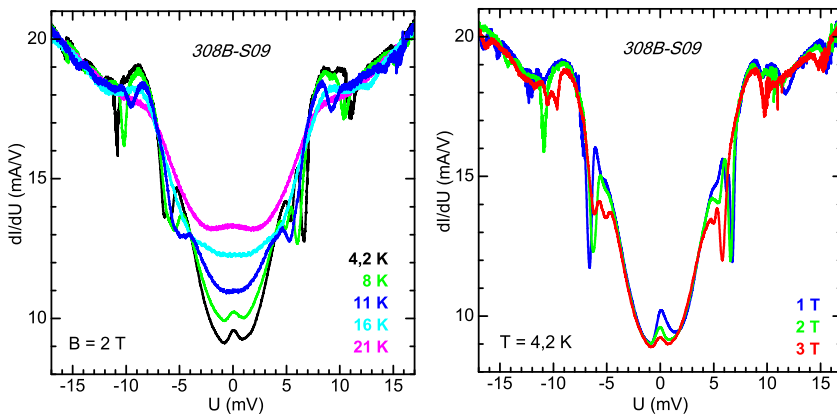


Abbildung 11.18: *links:* Verschiebung der Resonanzen an 308B-S09 bei Variation der Temperatur, *rechts:* Verschiebung der Resonanzen an 308B-S09 bei Variation der Magnetfeldstärke

Abbildung 11.18 stellt die Entwicklung der Resonanzen der Leitfähigkeitskurve bei 115° bei Variation der Temperatur oder der Magnetfeldstärke dar. Es ist deutlich zu sehen, dass sich die Resonanzen sowohl für eine Erhöhung der Temperatur, als auch für eine Erhöhung des Magnetfelds zu kleineren Spannungen, was ja gleichbedeutend mit kleineren Energien ist, verschieben. Man kann im linken Schaubild auch sehr gut die zunehmende Auffüllung der Zustände innerhalb der Energielücke durch thermische Anregungen der Quasiteilchen erkennen. Aufgrund der mit $2 \times 20 \mu\text{m}$ kleinen Kontaktbreite könnte man sich eine einzelne über die Korngrenze reichende längliche Struktur gut als Ursache der Resonanzen vorstellen. Interessanterweise ist Probe 308B jedoch die einzige Probe, bei der keine nadelförmigen Strukturen zu erkennen sind. Die kleinen rundlichen Cu_2O Ausscheidungen sind auf dieser Probe zwar auch vorhanden, doch sollten

auch sie nicht für die Resonanzen verantwortlich sein, da bei ihnen die Vorzugsrichtung fehlt. Schlussendlich wird auch hier die Annahme gestärkt, dass eine der neben der (001)-Hauptphase beim Filmwachstum entstandenen LCCO-Minderheitsphasen einen bemerkenswerten Einfluss auf die Tunnelleitfähigkeit der Kontakte ausübt.

Zusammenfassung in-plane-Drehungen

Zentrales Ergebnis der in-plane-Drehungen sind die im Bereich der Magnetfeldwinkel senkrecht zu den CuO_2 -Ebenen der (110)-Minderheitsphasen erscheinenden Maxima des ZBCP. Eine Verkipfung der Probe als Ursache konnte eindeutig ausgeschlossen werden. Man kann davon ausgehen, dass die Ursache dieser ZBCP-Maxima in der beim Filmwachstum entstandenen und über die jeweilige Probe gleichverteilten (110)-Minderheitsphase von LCCO zu finden ist. Dies wird dadurch unterstützt, dass die Lage der Maxima bei unterschiedlichen Kontakten, die aber auf derselben Probe strukturiert waren, immer gleich war. Man kann sich eine in-plane-Drehung für die Größe des ZBCP also vorstellen wie eine c -Achsen-Drehung, nur mit weniger Auswirkung für die ZBCP-Größe, da die (110)-Phase im LCCO-Film nicht so stark vertreten ist wie die (001)-Hauptphase. Einen deutlichen Hinweis für die Richtigkeit dieser Aussage findet man, wenn man die maximale ZBCP-Größe einer in-plane-Drehung auf die maximale ZBCP-Größe einer c -Achsen-Drehung skaliert und beide Drehungen vergleicht (siehe Abbildung 11.19 links). Die gute Übereinstimmung der Variation des ZBCP bei beiden Drehungen lässt den Schluss zu, dass es sich dabei um denselben Effekt handeln muss.

Im rechten Schaubild ist ein Vergleich der ZBCP-Größe bei Erhöhung der Magnetfeldstärke in verschiedene Richtungen dargestellt. Man erkennt, dass ein Magnetfeld in c -Achsenrichtung der (001)-Hauptphase (schwarze Kurve) den ZBCP deutlich schwächer unterdrückt als Felder senkrecht dazu. Genauso unterdrückt ein Feld in c -Achsenrichtung der (110)-Minderheitsphase (grüne Kurve) den ZBCP wesentlich schwächer als ein dazu verkipptes Feld (rote Kurve). Wie stark eine Phase des LCCO-Films zur Größe des ZBCP im Magnetfeld beiträgt, hängt, außer vom Volumenanteil, also hauptsächlich von der Richtung des Magnetfeldes in Bezug auf die c -Achsenrichtung der entsprechenden Phase ab. Bei der Bestimmung von B_{c2} in [Wag08a] wurde das Feld immer in c -Achsenrichtung der (001)-Hauptphase angelegt. In diesem Fall wurde die Größe des ZBCP also auch fast vollständig durch die (001)-Hauptphase verursacht und der Einfluss

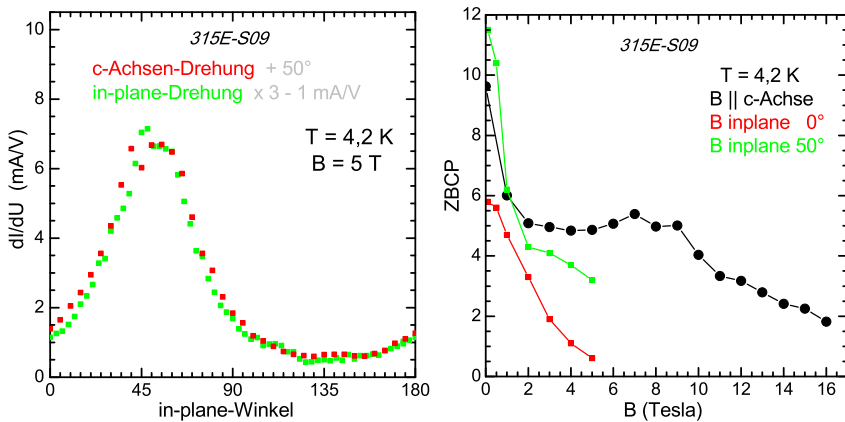


Abbildung 11.19: *links:* Vergleich der Entwicklung der ZBCP-Größe bei einer in-plane-Drehung und einer c-Achsen-Drehung an 315E-S09. Die ZBCP-Größe der in-plane Drehung wurde durch einen Faktor 3 an die, 50° nach rechts verschobene, c-Achsen-Drehung angepasst. *rechts:* Variation der ZBCP-Größe bei Magnetfelderhöhung in drei verschiedene Richtungen

der Minderheitsphasen kann vernachlässigt werden. Als Erkenntnis kann gewonnen werden, dass sich das Verschwinden des ZBCP nur dann als untere Grenze von B_{c2} interpretieren lässt, wenn das Magnetfeld, wie in [Wag08a], in c -Achsenrichtung der Hauptphase ausgerichtet ist. Für die Bestimmung des, als $B_{c2\parallel}$ bezeichneten, kritischen Feldes parallel zu den CuO_2 -Ebenen eignet sich diese Methode nicht.

Die Bedeutung der resonanzartigen Erscheinungen an Kontakt 308B-S09 konnte noch nicht geklärt werden. Interessanterweise ist Probe 308B die einzige Probe, auf der keine länglichen nadelförmigen Strukturen zu erkennen sind. Da die Cu_2O -Ausscheidungen keine Richtungsabhängigkeit aufweisen, bleiben auch hier letztendlich nur die LCCO-Minderheitsphasen als Ursache der Resonanz-Erscheinungen übrig.

Kapitel 12

Zusammenfassung Teil II

Die erste Motivation der Messungen an den LCCO-Korngrenzkontakten war, einen Einfluss der beim Filmwachstum entstandenen nadelförmigen Strukturen und Ausscheidungen, sowie der LCCO-Minderheitsphasen auf die ZBCP-Bildung möglichst auszuschließen. Dies konnte über die verschiedenen Magnetfelddrehungen erreicht werden. Des Weiteren konnten aber auch neue, teilweise unerwartete Erkenntnisse über das Verhalten des ZBCP und die Tunnel-Eigenschaften im Magnetfeld gewonnen werden. Als kompakte, überschaubare Zusammenfassung der Ergebnisse aus in-plane- und c -Achsen-Drehungen können folgende wichtigen Punkte festgehalten werden:

- Ein Indiz dafür, dass die nadelförmigen Strukturen oder Cu_2O -Ausscheidungen irgend einen Einfluss auf das Tunnelverhalten der LCCO-Korngrenzkontakte ausüben, konnte nicht gefunden werden.
- Die Richtung des Magnetfeldes zu den CuO_2 -Ebenen der LCCO-Korngrenzkontakte spielt für die Tunnelleitfähigkeit eine entscheidende Rolle.
- Die Entwicklung von Kohärenzpeaks und Energielücke bei einer Magnetfeld-Drehung kann über die Anisotropie von B_{c2} verstanden werden, die genaue Ursache für das entgegengesetzte Verhalten der ZBCP-Größe bleibt bisher noch unklar.
- Die Gültigkeit der B_{c2} -Bestimmung über das Verschwinden des ZBCP in [Wag08a] konnte bestätigt werden, jedoch eignet sich diese

Methode nur für Magnetfelder senkrecht zu den CuO_2 -Ebenen der (001)-Hauptphase, $B_{c2\parallel}$ kann damit nicht bestimmt werden.

Als noch offene Frage bleibt letztendlich, was die genaue Ursache der unerwarteten ZBCP-Entwicklung im Magnetfeld ist. Zur Beantwortung dieser Frage könnten, neben entsprechenden theoretischen Berechnungen und Simulationen, vor allem Vergleichsmessungen an Korngrenzkontakten anderer Kupratsupraleiter hilfreich sein. Anbieten würden sich hierfür zum Beispiel andere elektrondotierte Kupratsupraleiter wie NCCO oder PCCO, oder auch der vergleichbare lochdotierte Partner LSCO.

Kapitel 13

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurden verschiedene, aus Hochtemperatursupraleitern aufgebaute Tunnelkontakt-Systeme untersucht. Dabei konnten viele neue Erkenntnisse sowohl über den Herstellungsprozess als auch über die Eigenschaften der Materialien gewonnen werden.

Bei den planaren YBCO-LCMO-YBCO-Kontakten konnten durch verschiedene Charakterisierungsschritte die relevanten Prozessparameter der Herstellung aufgefunden gemacht, und die Vor- und Nachteile verschiedener Strukturen und Kontaktierungen aufgezeigt werden. Erwähnenswert sind hierbei die Einführung eines zusätzlichen in-situ Ätzschrittes und die Verwendung einer reinen Gold-Zuleitung zur oberen Elektrode. Bei den Messungen zeigte sich bei mehreren Proben ein Suprastrom über die bis zu 30 nm dicken LCMO-Barrieren. Über die Beobachtung der $I_c(H)$ -Kurven nach verschiedenen Abkühlvorgängen im Niederfeld, konnte der Einfluss der LCMO-Schicht auf die YBCO-Schichten sichtbar gemacht werden. Eine weitere interessante Eigenschaft zeigte sich bei Messungen in hohen Magnetfeldern. Die $I_c(H)$ -Kurven wiesen eine Oszillation mit einer Periode von ca. 3 T auf, die von einer kleineren Oszillation mit einer Periode von 3,3 mT überlagert war. Eine Erklärung dafür erfolgte über das Modell einer Suprastromverteilung über den rechteckförmigen Randbereich des Kontakts.

Bei den LCCO-Korngrenzkontakten wurde das Quasiteilchentunneln bei Variation der Magnetfeldorientierung untersucht. Das primäre Ziel, einen

Einfluss der nadelförmigen Strukturen oder Cu_2O -Ausscheidungen auf das Tunnelverhalten und die ZBCP-Größe auszuschließen, wurde erreicht. Dadurch konnte die Gültigkeit der in [Wag08a] eingeführten Methode zur B_{c2} -Bestimmung bestätigt werden. Zusätzlich konnten weitere, teilweise auch unerwartete Erkenntnisse über das Tunnelverhalten gewonnen werden. Als Wichtigste kann die starke Abhängigkeit der Tunneleigenschaften von der Richtung des Magnetfeldes in Bezug auf die CuO_2 -Ebenen angesehen werden. Eine Erklärung für das Verhalten der Energielücke und Kohärenzpeaks bei einer Magnetfeld-Drehung liefert die Anisotropie von B_{c2} . Die Ursache für das entgegengesetzte Verhalten der ZBCP-Größe bleibt bisher noch unklar.

Der wohl wichtigste nächste Schritt bei der Untersuchung der planaren Kontakte ist die Abbildung der Suprastromdichte durch die Barrierenfläche mittels TTREM oder TTLRM. Nur so kann eine zufriedenstellende Erklärung für das $I_c(H)$ -Verhalten in hohen Magnetfeldern durch eine genauere Simulation der Suprastrom-Verteilung erfolgen. Im Falle der LCCO-Korngrenzkontakte sind für die Zukunft in erster Linie entsprechende theoretische Berechnungen und Simulationen mit Hilfe der vorhandenen Messdaten notwendig, um so möglicherweise eine Erklärung für das ZBCP-Verhalten bei den Magnetfeld-Drehungen zu bekommen. Hierzu könnten auch weitere Vergleichsmessungen an Korngrenzkontakten anderer elektron- oder lochdotierter Kupratsupraleiter hilfreich sein.

Anhang A

Herstellungsparmeter der planaren Kontakte

Photolithographie

Der Photolithographie-Prozess wurde wie folgt durchgeführt:

- Reinigung der Probenoberfläche mit Aceton und Isopropanol (Ultraschallbad nur bei unstrukturierter Oberfläche).
- Belackung mit 5 Tropfen AR-P 3540 (Auftropfen während der Beschleunigungsphase der Lackschleuder, dann 40 Sek. bei 6000 rpm).
- Ausheizen des Lacks für 3 Minuten bei 95°C (*pre exposure bake*).
- Belichtung für 40 Sekunden im Mask Aligner mit entsprechender Maske (210W Hg-Dampflampe 254 nm, CP-mode, Hard Contact).
- Entwickeln für 30 Sekunden (AR 300-35 und entionisiertes Wasser im Verhältniss 1:2 gemischt). Stoppen in entionisiertem Wasser.
- Ausheizen des Lacks für 2 Minuten bei 95°C (*post exposure bake*).

Ionenstrahlätzen in der Ätzkammer

Um eine gute Kühlung zu gewährleisten, wurde die Probe mit Leitsilber auf einem Kupferblock befestigt (maximal bei 70°C). Nach Erreichen eines guten Hintergrund-Druckes von $5\text{-}10 \times 10^{-6}$ mbar, wurde durch einen Argon-Flow von ca. 2,23 sccm ein Prozess-Druck von 3×10^{-4} mbar eingestellt. Zusätzlich zur ständigen Wasserkühlung wurde die Probe über eine Shuttersteuerung etappenweise geätzt und gekühlt (5 Sekunden ätzen / 10 Sekunden kühlen).

Parameter Ionenquelle		Ätzraten	
Strahlstrom (I_{Beam})	20 mA	Gold	1,00 nm/s
Neutralisierungsstrom (I_{Neut})	25 mA	Niob	0,11 nm/s
Strahlspannung (U_{Beam})	400 V	YBCO	0,20 nm/s
Beschleunigungsspannung (U_{Ac})	300 V	LCMO	0,21 nm/s
Entladespannung (U_{Dis})	55 V	STO	< 0,1 nm/s

Tabelle A.1: Parameter der Ionenstrahlquelle und daraus resultierende Ätzraten in der Ätzkammer. Um die Werte von I_{Beam} und I_{Neut} beim Ätzen konstant zu halten, wurde der Strom durch das Kathoden- und Neutralisierfilament während des Prozesses ständig nachgeregelt.

SiO₂-Sputtern in der Ätzkammer

Vor Beginn des Sputterns musste unter den Kupferblock, auf dem die Probe mit Leitsilber befestigt war, noch eine zusätzliche Verlängerung von 5 cm aufgeschraubt werden um den passenden Abstand zum SiO₂-Target herzustellen.

Hintergrund-Druck	$5\text{-}10 \cdot 10^{-6}$ mbar
Sauerstoff-Flow	19,6 sccm
Argon-Flow	bis Druck $2,4 \cdot 10^{-2}$ mbar
Leistung RF-Magnetron	50 W
Frequenz RF-Magnetron	13,56 MHz
Sputterrate von SiO ₂	0,04 nm/s

Tabelle A.2: Sputterparameter von SiO₂ in der Ätzkammer.

Magnetronspütern in der UHV-Anlage

Das Magnetronspütern in der UHV-Anlage war sowohl nach Ablation der Trilage¹ als auch nach Anätzen der Gold-Schicht in situ möglich.

	Gold	Niob
Turbopumpe (Blende zu)	250 Hz	250 Hz
Argon-Flow	4 sccm	4 sccm
Argon-Druck (abs.)	$5,2 \cdot 10^{-3}$ mbar	$5,2 \cdot 10^{-3}$ mbar
Leistung Magnetron	50 W	300 W
Strom / Spannung	125 mA / 414 V	924 mA / 329 V
Abstand Probe-Magnetron	43 mm	-
Dauer Vorsputtern	2 min	2 min
Sputterrate	1,66 nm/s	1 nm/s

Tabelle A.3: Sputterparameter von Gold und Niob in der UHV-Anlage.

Ablation von YBCO und LCMO in der PLD-Anlage

Im Folgenden werden die bei allen PLD-Prozessen konstanten Parameter für die Ablation von YBCO und LCMO aufgeführt:

- Aufkleben des STO-Substrats mit Leitsilber (7 min bei 95°C)
- Hochheizen bis 750°C mit 25°C/min (bei 450°C 10 min stop zum Einlass von 40 oder 35 sccm O₂)
- Abstand zwischen Targets und Substrat lag bei 60-61 mm
- maximal 600 Laserpulse pro Targetstelle bei einer Frequenz von 2 Hz
- Tempern bei T = 550°C / O₂-Druck = 500 mbar / t = 60 min
- Bei den Proben YLY10 bis YLY17 wurde ein zusätzlicher Temper-schritt bei 450°C für 30 min eingeführt

¹in diesem Fall war zuerst noch das Einfädeln eines Kühldorns im Magazin der UHV-Anlage notwendig

	AL mJ	O ₂ sccm	HL Watt	T _{Abl.} °C	Sub. (010)	Y(005) FWHM	L(002) FWHM
YLY01	145	40	77	740-845	0°	0,25°	0,008°
YLY02	150	40	82	750-809	0°	0,12°	0,016°
YLY03	150	40	59	747-742	0°	0,11°	0,016°
YLY04	150	40	63	754-740	0°	0,15°	0,040°
YLY05	150	40	65	736-742	0°	0,13°	0,028°
YLY06	150	40	80	750-763	0,5°	>1,0°	x
YLY07	150	40	66	750-747	0,25°	0,29°	x
YLY08	150	40	62	750-740	0,75°	0,22°	0,054°
YLY09	148	40	65	750-748	0°	0,15°	0,020°
YLY10	150	35	64	750-750	0°	0,11°	0,037°
YLY11	150	35	62	750-746	0°	0,10°	0,010°
YLY12	144	35	66	750-750	0°	0,09°	0,010°
YLY13	150	35	75	735-800	0°	0,15°	0,014°
YLY14	148	35	60	750-736	0°	0,11°	0,008°
YLY15	150	35	66	750-743	0,2°	0,33°	0,011°
YLY16	150	35	60	758-736	0,2°	0,19°	0,013°
YLY17	150	35	60	750-736	0,2°	0,13°	0,007°
Las01	150	40	58	745-748	0,3°	x	0,019°
Las02	150	35	54	747-733	0°	x	0,014°
Yas01	150	40	57	750-741	1,2°	0,08°	x
Yas02	150	40	61	706-735	-	-	x
YLas01	150	35	57	750-748	0,3°	0,11°	0,020°
YLas02	150	35	56	750-751	0°	0,13°	0,020°

Tabelle A.4: Parameter des PLD-Prozesses und Halbwertsbreiten der ω -scans von YBCO und LCMO.

AL = Energie des Ablationslasers während der Ablation in mJ

O₂ = O₂-flow während der Ablation

HL = konstante Heizlaserleistung während der Ablation

T_{Abl.} = Temperatur am Anfang und am Ende der Ablation

Sub = (010)-off-Winkel des Substrats

Y(005) = Halbwertsbreite des YBCO-(005)- ω -scans

L(002) = Halbwertsbreite des LCMO-(002)- ω -scans

x = kein Peak im XRD-scan vorhanden

Gesamtüberblick der Herstellung

Der folgende Abschnitt gibt einen kurzen chronologischen Überblick über die Entwicklung der Herstellung der Proben und zeigt die beim Herstellungsprozess relevanten Parameter.

- YLY01 und YLY02: Schwierigkeit beim *lift off* der 40 nm dicken SiO₂-Schicht
→ nur noch 20 nm dicke SiO₂-Schicht, die einen problemlosen *lift off* ermöglichte und zur Isolierung ausreichte.
- YLY03 und YLY04: Schlechtes Haften des ESV-Goldes auf der oberen YBCO-Schicht, sowie des Niobs auf dem ESV-Gold.
→ nur noch Sputter-Gold verwendet, welches zwar nicht die Reinheit und exakte Dicke des ESV-Goldes besaß, aber aufgrund seiner höheren Energie besser haftete.
- YLY05: Sputter-Gold haftet zwar fest auf oberer YBCO-Schicht, Niob-Zuleitung hält allerdings auch nicht auf Sputter-Gold
→ dickere obere Sputter-Gold-Schicht, die vor dem Sputtern des Niobs kurz in situ angeätzt wird.
- YLY06 bis YLY09: Durch in situ Anätzen der Gold-Schicht keine Haftungsprobleme mehr, allerdings für Tunnelmessungen unzureichende Filmqualitäten (teilweise Niob oder YBCO nicht supraleitend)
- YLY10 und YLY11: Erste I(V)-Kennlinien mit Suprastrom durch LCMO, hoher Widerstand der oberen Niob-Zuleitung erweist sich als Problem bei der Auswertung der Messergebnisse
→ 100-200 nm dicke Gold-Zuleitung gesputtert, Niob hat nur noch die Funktion einer Ätzmaste
- YLY12 und YLY13: I(V)-Kennlinien mit Suprastrom durch LCMO
- YLY14 bis YLY16: Beginn der 4-Punkt-Messungen, I(V)-Kennlinien zeigen keinen Suprastrom, Untersuchung der genaueren Geometrie der Kontakte mit FIB², REM und AFM

²focused ion beam

Schichtaufbau und Lithographiemasken

	Y1	L	Y2	Au1/Pr.	SiO ₂	ÄT	Au2	Nb
YLY01	29	30	29	10 / ESV	40	-	-	100
YLY02	30	30	30	11 / ESV	40	-	-	100
YLY03	30	30	30	10 / ESV	20	-	-	100
YLY04	30	30	30	10 / ESV	20	-	-	200
YLY05	30	30	30	10 / Spu.	20	-	-	200
YLY06	30	30	30	10 / Spu.	-	-	-	-
YLY07	30	30	30	20 / Spu.	20	10	-	200
YLY08	30	20	30	20 / Spu.	20	10	-	200
YLY09	30	10	30	20 / Spu.	20	10	-	150
YLY10	50	10	30	20 / Spu.	20	10	-	150
YLY11	50	20	30	20 / Spu.	20	10	-	150
YLY12	50	20	30	20 / Spu.	20	10	200	25
YLY13	50	30	30	20 / Spu.	20	10	200	30
YLY14	50	30	30	20 / Spu.	20	10	200	25
YLY15	50	30	30	20 / Spu.	20	8	200	50
YLY16	30	30	30	20 / Spu.	20	10	180	40
YLY17	50	10	30	20 / Spu.	20	10	200	50
Las02	-	30	-	20 / Spu.	20	10	100	115
YLas02	30	30	-	20 / Spu.	20	10	100	100

Tabelle A.5: Schichtdicken der hergestellten Proben in nm.

Y1 = untere YBCO-Schicht

L = LCMO-Schicht

Y2 = obere YBCO-Schicht

Au1 = Dicke der in situ Gold-Schicht

Pr. = Prozess zur Herstellung des in situ Goldes

ÄT = Ätztiefe in Au1 Gold-Schicht

Au2 = Gold-Schicht zur Kontaktierung der oberen Elektrode

Nb = Niob-Schicht zur Kontaktierung oder als Ätzmaske

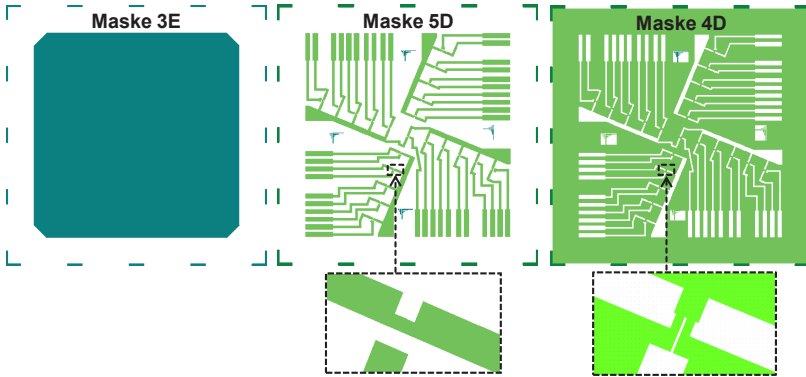


Abbildung A.1: Photolithographie-Masken auf *Pit II-2008-11-Blank-Turad-Werner-Back* zur Herstellung der 3-Punkt-Kontakte. *links:* Randentlackungsmaske 3E, *Mitte:* Maske für Zuleitungen 5D, *rechts:* Gold-Kontaktierungsmaske 4D

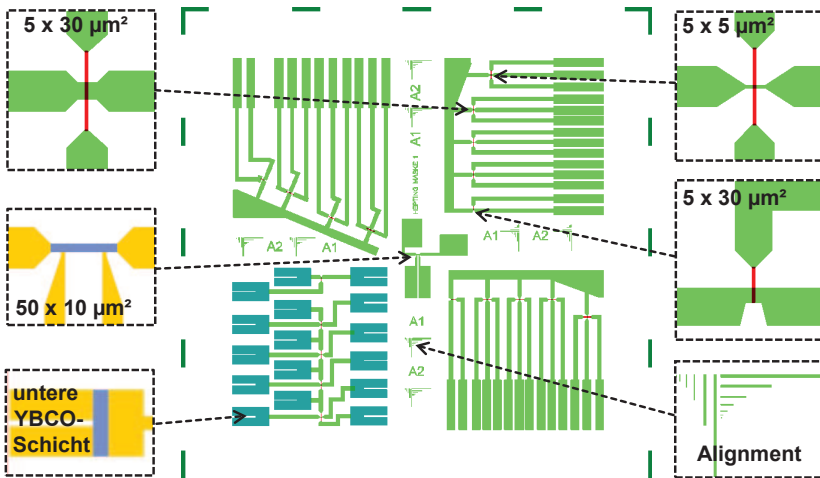


Abbildung A.2: 4-Punkt-Photolithographie-Maske: In jedem Viertel der Maske befindet sich ein $5 \times 30 \mu\text{m}^2$ 3-Punkt-Kontakt, zwei $5 \times 30 \mu\text{m}^2$ und ein bis zwei $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ 4-Punkt-Kontakte.

Anhang B

Abkürzungen

ABS	<i>Andreev bound state</i>
AFM	<i>atomic force microscopy</i>
BCS	Bardeen-Cooper-Schrieffer
BSCCO	$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$
BTK	Blonder-Tinkham-Klapwijk
CARE	<i>crossed Andreev-Reflection effect</i>
CMR	<i>colossal magneto resistance</i>
EDX	<i>energy dispersive X-ray</i>
ESV	Elektronenstrahlverdampfung
FFLO	P. Fulde, R. Ferrel, A. Larkin und Y. Ovchinnikov
FIB	<i>focused ion beam</i>
FWHM	<i>Full width at half maximum</i>
GL	Ginzburg-Landau
HTSL	Hochtemperatursupraleiter
LCC	<i>leadless chip carrier</i>
LCCO	$\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$
LCMO	$\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$
LRPE	<i>long-range proximity effect</i>
LSCO	$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$
MBE	Molekularstrahlepitaxie

NCCO	$\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$
NS-Kontakt	Normalleiter-Supraleiter-Kontakt
NTT	Nippon Telegraph and Telephone Corporation
PCCO	$\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$
PLD	<i>pulsed laser deposition</i>
RCSJ	<i>resistively and capacitively shunted junction</i>
REM	Raster-Elektronen-Mikroskop
RHEED	<i>reflection high-energy electron diffraction</i>
RMS	<i>root mean square</i>
SEM	<i>scanning electron microscopy</i>
SFS-Kontakt	Supraleiter-Ferromagnet-Supraleiter-Kontakt
SIS-Kontakt	Supraleiter-Isolator-Supraleiter-Kontakt
SNS-Kontakt	Supraleiter-Normalleiter-Supraleiter-Kontakt
SQUID	<i>superconducting quantum interference device</i>
STO	SrTiO_3
TTREM	Tief-Temperatur-Raster-Elektronen-Mikroskop
TTRLM	Tief-Temperatur-Raster-Laser-Mikroskop
UHV	Ultra-Hoch-Vakuum
XRD	<i>X-ray diffraction</i>
YBCO	$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$
YLY	YBCO-LCMO-YBCO Trilage
ZBCP	<i>zero bias conductance peak</i>

Literaturverzeichnis

- [Alf98] L. Alff, A. Beck, R. Gross, A. Marx, S. Kleefisch, T. Bauch, H. Sato and M. Naito. *Observation of bound surface states in grain-boundary junctions of high-temperature superconductors*. Phys. Rev. B **58**, 11 198 (1998).
- [Alf03] L. Alff, Y. Krockenberger, B. Welter, M. Schonecke, R. Gross, D. Manske and M. Naito. *A hidden pseudogap under the 'dome' of superconductivity in electron-doped high-temperature superconductors*. Nature **422**, 698 (2003).
- [Ali10] M. Alidoust and J. Linder. *Spin-triplet supercurrent through inhomogeneous ferromagnetic trilayers*. Phys. Rev. B **82**, 224 504 (2010).
- [And66] P. W. Anderson. *Localized Magnetic States and Fermi-Surface Anomalies in Tunneling*. Phys. Rev. Lett. **17**, 95 (1966).
- [And87] P. W. Anderson. *The Resonating Valence Bond State in La_2CuO_4 and Superconductivity*. Science **235**, 1196–1198 (1987).
- [Anw10] M. S. Anwar, F. Czeschka, M. Hesselberth, M. Porcu and J. Aarts. *Long-range supercurrents through half-metallic ferromagnetic CrO_2* . Phys. Rev. B **82**, 100 501 (2010).
- [App66] J. Appelbaum. *"s-d" Exchange Model of Zero-Bias Tunneling Anomalies*. Phys. Rev. Lett. **17**, 91 (1966).
- [Apr99] M. Aprili, E. Badica and L. Greene. *Doppler Shift of the Andreev Bound States at the YBCO Surface*. Phys. Rev. Lett. **83**, 4630 (1999).

- [Aro05] P. Aronov and G. Koren. *Signature of a crossed Andreev reflection effect (CARE) in the magnetic response of $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ junctions with the itinerant ferromagnet $SrRuO_3$* . Phys. Rev. B **72**, 184515 (2005).
- [Asu06] I. Asulin, O. Yuli, G. Koren and O. Millo. *Evidence for crossed Andreev reflections in bilayers of $(100)YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ and the itinerant ferromagnet $SrRuO_3$* . Phys. Rev. B **74**, 092501 (2006).
- [Aub92] H. Aubin, L. Greene, S. Jian and D. Hinks. *Andreev Bound States at the Onset of Phase Coherence in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$* . Phys. Rev. Lett. **89**, 17001 (1992).
- [Bac07] C. Back. *UHV-Cluster-Anlage zur Herstellung von Dünnschichtstrukturen und Transport- und Rauscheigenschaften von $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Korn Grenzen-SQUIDs*. Dissertation, Universität Tübingen (2007).
- [Bar57] J. Bardeen, L. N. Cooper and J. R. Schrieffer. *Theory of Superconductivity*. Phys. Rev. **108**, 1175 (1957).
- [Bed86] J. G. Bednorz and K. A. Müller. *Possible High T_c Superconductivity in the Ba-La-Cu-O System*. Z. Phys. B **64**, 189 (1986).
- [Ber05] F. S. Bergeret, A. F. Volkov and K. B. Efetov. *Odd triplet superconductivity and related phenomena in superconductor-ferromagnet structures*. Rev. Mod. Phys. **77**, 1321–1373 (2005).
- [Bis02] A. Biswas, P. Fournier, M. M. Qazilbash, V. N. Smolyaninova, H. Balci and R. L. Greene. *Evidence of a d- to s-Wave Pairing Symmetry Transition in the Electron-Doped Cuprate Superconductor $Pr_{2-x}Ce_xCuO_4$* . Phys. Rev. B **88**, 207004 (2002).
- [Bla94] G. Blatter, M. Feigelman, V. Geshkenbein and A. Larkin. *Vortices in high-temperature superconductors*. Rev. Mod. Phys. **66**, 1125 (1994).
- [Buc04] W. Buckel and R. Kleiner. *Supraleitung*. Wiley, 6. Auflage (2004).

- [Bul77] L. N. Bulaevskii, V. V. Kuzii and A. A. Sobyenin. *Superconducting systems with weak coupling to the current in the ground state*. JETP Lett. **25**, 290 (1977).
- [Buz82] A. I. Buzdin, L. N. Bulaevskii and S. V. Panyukov. *Critical-current oscillations as a function of the exchange field and thickness of the ferromagnetic metal (F) in an S-F-S Josephson junction*. JETP Lett. **35**, 178 (1982).
- [Che05] B. Chesca, M. Seifried, T. Dahm, N. Schopohl, D. Koelle, R. Kleiner and A. Tsukada. *Observation of Andreev bound states in bicrystal grain-boundary Josephson junctions of the electron-doped superconductor $La_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$* . Phys. Rev. B **71**, 1045041 (2005).
- [Cla04] J. Clarke and A. I. Braginski. *The SQUID Handbook*, Band 1. Wiley, 1. Auflage (2004).
- [Coe99] J. M. D. Coey, M. Viret and S. Molnar. *Mixed-valence manganites*. Advances in Physics **48**, 167 (1999).
- [Cov97] M. Covington, E. Aprili, M. Paraoanu, L. Greene, F. Xu, J. Zhu and C. Mirkin. *Observation of Surface-Induced Broken Time-Reversal Symmetry in $YBa_2Cu_3O_7$ Tunnel Junctions*. Phys. Rev. Lett. **79**, 277 (1997).
- [Cuc96] A. Cucolo, R. Di Leo, A. Nigro, P. Romano and F. Bobba. *Linear normal conductance in copper oxide tunnel junctions*. Phys. Rev. B **54**, 9686 (1996).
- [Dag00] Y. Dagan, A. Kohen, G. Deutscher and A. Revcolevschi. *Absence of Andreev reflections and Andreev bound states above the critical temperature*. Phys. Rev. B **61**, 7012 (2000).
- [dG66] P. de Gennes, A. Gupta and G. Koren. *Superconductivity of metals and alloys* **161**, 415 (1966).
- [Esc08] M. Eschrig and T. Löfwander. *Triplet supercurrents in clean and disordered half-metallic ferromagnets*. Nature **4**, 138 (2008).
- [Esc11] M. Eschrig. *Spin-polarized supercurrents for spintronics*. Phys. Tod. **9**, 43 (2011).

- [Fog97] M. Fogelström, D. Rainer and J. A. Sauls. *Tunneling into Current-Carrying Surface States of High- T_c Superconductors*. Phys. Rev. Lett. **79**, 281 (1997).
- [Ful64] P. Fulde and R. A. Ferrell. *Superconductivity in a strong spin-exchange field*. Phys. Rev. **135**, A550–A563 (1964).
- [Gia61] I. Giaever and K. Megerle. *Study of Superconductors by Electron Tunneling*. Physical Review **122**, 1101 (1961).
- [Gin50] V. Ginzburg and L. Landau. *Concerning the Theory of Superconductivity*. Zh. Eksp. teor. Fiz. **20**, 1044 (1950).
- [Gra97] M. Grajcar, A. Plecenik, P. Seidel, V. Vojtanik and K. Barholz. *Asymmetry and quasilinear background of differential conductance characteristics of high- T_c -superconductor/metal tunnel junctions*. Phys. Rev. B **55**, 11 738 (1997).
- [Gro10] R. Gross and A. Marx. *Applied Superconductivity: Josephson Effect and Superconducting Electronics* (2010).
- [Hep12] M. Hepting. *Planare YBCO-LCMO-YBCO Kontakte*. Diplomarbeit, Universität Tübingen (2012).
- [Hol92] B. Holzapfel, B. Schultz, L. Roas, P. Bauer and G. Saemann-Ischenko. *Off-axis laser deposition of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ thin films*. Appl. Phys. Lett. **61**, 3178 (1992).
- [Hou07] M. Houzet and A. Buzdin. *Long range triplet Josephson effect through a ferromagnetic trilayer*. Phys. Rev. B **76**, 060 504 (2007).
- [Hu94] C. Hu. *Midgap Surface States as a novel Signature for $d_{x^2-y^2}$ -Wave Superconductivity*. Phys. Rev. Lett **72**, 1526 (1994).
- [Ich00] N. Ichikawa, S. Uchida, J. M. Tranquada, T. Niemöller, P. M. Gehring, S.-H. Lee and J. R. Schneider. *Local Magnetic Order vs Superconductivity in a Layered Cuprate*. Phys. Rev. Lett. **85**, 1738–1741 (2000).
- [Igu00] I. Iguchi, W. Wang, M. Yamazaki, Y. Tanaka and S. Kashiwaya. *Angle-resolved Andreev bound states in anisotropic d -wave high- T_c $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ superconductors*. Phys. Rev. B **62**, 6131 (2000).

- [Ish98] T. Ishida, K. Okuda, A. Rykov, T. Chasse, R. Kleiner and D. Koelle. *In-plane anisotropy of vortex-lattice melting in large $YBa_2Cu_3O_7$ single crystals*. Phys. Rev. B **58**, 5222–5225 (1998).
- [Jon50] G. Jonker and J. H. Van Santen. *Electrical conductivity of ferromagnetic compounds of manganese with perovskite structure*. Physica **16**, 599–600 (1950).
- [Jor90] J. D. Jorgensen, B. W. Veal, A. P. Paulikas, L. J. Nowicki, G. W. Grabtree, H. Claus and W. K. Kwok. *Structural properties of oxygen-deficient $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$* . Phys. Rev. B **41**, 1863 (1990).
- [Jos62] B. C. Josephson. *Possible Effects In Superconductive Tunneling*. Phys. Lett. **1**, 251 (1962).
- [Kal11] Y. Kalchheim, T. Kirzhner, G. Koren and O. Millo. *Long-range proximity effect in $La_{2/3}Ca_{1/3}MnO_3/(100)YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ferromagnet/superconductor bilayers: Evidence for induced triplet superconductivity in the ferromagnet*. Phys. Rev. B **76**, 064510 (2011).
- [Kan07] H. Kang, P. Dai, B. Campbell, P. Chupas, S. Rosenkranz, P. Lee, Q. Huang, S. Li, S. Komiyama and J. Ando. *Microscopic annealing process and its impact on superconductivity in T' -structure electron-doped copper oxides*. Nature Materials **6**, 224 (2007).
- [Kas96] S. Kashiwaya, Y. Tanaka, M. Koyanagi and K. Takashima. *Theory for tunneling spectroscopy of anisotropic superconductors*. Phys. Rev. B **53**, 2667 (1996).
- [Kas00] S. Kashiwaya and Y. Tanaka. *Tunneling effects on surface bound states in unconventional superconductors*. Rep. Prog. Phys. **63**, 1641 (2000).
- [Kei06] R. Keizer, S. Goennenwein, T. Klapwijk, G. Miao, G. Xiao and A. Gupta. *A spin triplet supercurrent through the half-metallic ferromagnet CrO_2* . Nature **439**, 825–827 (2006).
- [Kha09] T. Khaire, W. Pratt and N. Birge. *Critical current behavior in Josephson junctions with the weak ferromagnet $PdNi$* . Phys. Rev. B **79**, 094523 (2009).

- [Köl03] D. Kölle. *Experimentalphysik V - Festkörperphysik*. Manuskript zur Vorlesung (**2003**).
- [Kle00] S. Kleefisch. *Symmetrie des Ordnungsparameters in loch- und elektronendotierten Hochtemperatur-Supraleitern*. Dissertation, Universität Köln (**2000**).
- [Kle01a] S. Kleefisch, B. Welter, A. Marx, L. Alff, R. Gross and M. Naito. *Possible pseudogap behavior of electron-doped high-temperature superconductors*. Phys. Rev. B **63**, 100 507(R)1 (**2001**).
- [Kle01b] J. Klein. *Epitaktische Heterostrukturen aus dotierten Mangantenen*. Dissertation, Universität Köln (**2001**).
- [Kon02] T. Kontos, M. Aprili, J. Lesueur, F. Genêt, B. Stephanidis and R. Boursier. *Josephson Junction through a Thin Ferromagnetic Layer: Negative Coupling*. Phys. Rev. Lett. **89**, 137 007 (**2002**).
- [Lar64] A. I. Larkin and Y. N. Ovchinnikov. *Inhomogeneous state of superconductors*. Zh. Eksp. Teor. Fiz. **47**, 1136–1146 (**1964**).
- [Lec03] V. Leca. *Heteroepitaxial growth of copper oxide superconductors by pulsed laser deposition*. Dissertation, University of Twente (**2003**).
- [Lee06a] J. Lee, K. Fujita, K. McElroy, J. Slezak, M. Wang and Y. Aiura. *Interplay of electron-lattice interactions and superconductivity in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$* . Nature **442**, 546 (**2006**).
- [Lee06b] N. Lee, C. Chen, G. Hammerl, J. Mannhardt, A. Schmehl, C. Schneider, R. Schulz, S. Tajima, K. Yoshida, D. Garrigus and M. Strasik. *Evidence of Doping-Dependent Pairing Symmetrie in Cuprate Superconductors*. Nature **442**, 546 (**2006**).
- [Lee06c] P. Lee, N. Nagaosa and X.-G. Wen. *Doping a Mott insulator: Physics of high-temperature superconductivity*. Rev.Mod.Phys. **78**, 17 (**2006**).
- [Löf01] T. Löfwander, V. S. Shumeiko and G. Wendin. *Andreev bound states in high- T_c superconducting junctions*. Supercond. Sci. Technol. **14**, 53 (**2001**).

- [Möb99] M. Möbke, R. Kleiner and P. Müller. *Tunneling between Pb and c-axis oriented Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ single crystals*. Physica C. **250**, 317 (1999).
- [Man11] A. Mann. *High-temperature superconductivity at 25: Still in suspense*. Nature **475**, 280–282 (2011).
- [Mar05] Martienssen and Warlimont. *Condensed Matter and Materials Data*. Springer, 1. Auflage (2005).
- [McC68] D. E. McCumber. *Effect of ac impedance of dc voltage-current characteristics of Josephson junctions*. J. Appl. Phys. **39**, 3113 (1968).
- [McC89] R. McConnell and S. Wolf. *Science and Technology of Thin Film Superconductors*. Springer New York, 1lc Auflage (1989).
- [Mil98] A. J. Millis. *Lattice effects in magnetoresistive manganese perovskites*. Nature **392**, 147–150 (1998).
- [Mon91] P. Monthoux, A. Balatsky and D. Pines. *Toward a theory of high-temperature superconductivity in the antiferromagnetically correlated cuprate oxides*. Phys. Rev. Lett **67**, 3448 (1991).
- [Moo02] H. A. Mook, P. Dai and F. Dogan. *Charge and Spin Structure in YBa₂Cu₃O_{6.35}*. Phys. Rev. Lett. **88**, 097004 (2002).
- [Nac04] T. Nachtrab. *c-Achsen-Transporteigenschaften des intrinsischen Supraleiter-Ferromagnet-Hybrids RuSr₂GdCu₂O₈*. Dissertation, Universität Tübingen (2004).
- [Nai95] M. Naito and H. Sato. *Stoichiometry control of atomic beam fluxes by precipitated impurity phase detection in growth of (Pr, Ce)₂CuO₄ and (La, Sr)₂CuO₄ films*. Appl.Phys.Lett **67**, 2557 (1995).
- [NB10] P. Nowik-Boltyk. *Magnetische Tunnelkontakte aus Manganat Heterostrukturen*. Diplomarbeit, Eberhard-Karls-Universität Tübingen (2010).
- [Nor05] M. R. Norman, D. Pines and C. Kallin. *The pseudogap: friend or foe of high T_c?* Advances in Physics **54**, 715 (2005).

- [Obo06] V. A. Oboznov, V. V. Bolginov, A. Feofanov, V. V. Ryazanov and A. I. Buzdin. *Thickness Dependence of the Josephson Ground States of Superconductor-Ferromagnet-Superconductor Junctions*. Phys. Rev. Lett. **96**, 19 (2006).
- [Par98] J. H. Park, E. Vescovo, H. J. Kim, C. Kwon, R. Ramesh and T. Venkatesan. *Direct evidence for half-metallic ferromagnet*. Nature Lett. **392**, 794 (1998).
- [Peñ04] V. Peña, Z. Sefrioui, D. Arias, C. Leon and J. Santamaria. *Coupling of superconductors through a half-metallic ferromagnet: Evidence for a long-range proximity effect*. Phys. Rev. B **69**, 224502 (2004).
- [Pis05] S. Piskunov, E. Kotomin and E. Heifets. *The electronic and atomic structure of SrTiO₃, BaTiO₃, and PbTiO₃(001) surfaces: Ab initio DFT/HF hybrid calculations*. Microel. Engin. **81**, 472–477 (2005).
- [Qui98] M. Quijada, J. Černe, J. R. Simpson, H. D. Drew, K. H. Ahn, A. J. Millis, R. Shreekala, R. Ramesh, M. Rajeswari and T. Venkatesan. *Optical conductivity of manganites: Crossover from Jahn-Teller small polaron to coherent transport in the ferromagnetic state*. Phys. Rev. B **58**, 16093–16102 (1998).
- [Rah10] M. Rahlenbeck, M. Wagenknecht, A. Tsukada, D. Koelle, R. Kleiner, B. Keimer and C. Ulrich. *Raman light scattering study and microstructural analysis of epitaxial films of the electron-doped superconductor La_{2-x}Ce_xCuO₄*. Eur. Phys. J. B **75**, 461 (2010).
- [Rya01] V. V. Ryazanov, V. A. Oboznov, A. Y. Rusanov, A. V. Veretennikov, A. A. Golubov and J. Aarts. *Coupling of two superconductors through a ferromagnet: Evidence for a π junction*. Phys. Rev. Lett. **86**, 2427 (2001).
- [Sca95] D. J. Scalapino. *The Case for d_{x²-y²} Pairing in the Cuprate Superconductors*. Phys. Rep. **250**, 329 (1995).
- [Sch95] P. Schiffer, A. P. Ramirez, W. Bao and S. W. Cheong. *Low Temperature Magnetoresistance and the Magnetic Phase diagram of La_{1-x}Ca_xMnO₃*. Phys. Rev. Lett. **75**, 3336 (1995).

- [Sef03] Z. Sefrioui, D. Arias, V. Pena, J. E. Villegas, M. Varela, P. Prieto, C. Leon, J. L. Martinez and J. Santamaría. *Ferromagnetic/superconducting proximity effect in $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3/YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ superlattices*. Phys. Rev. B **67**, 214511 (2003).
- [Sol07] S. Soltan, J. Albrecht and H. U. Habermeier. *Transport properties of LCMO/YBCO hybrid structures*. Materials Science and Engineering B **144**, 15–18 (2007).
- [Ste68] W. C. Stewart. *Current-Voltage Characteristics Of Josephson Junctions*. Appl. Phys. Lett. **12**, 277 (1968).
- [Suz90] M. Suzuki and M. Hikita. *Anisotropic and thermally activated resistive behavior in $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-\delta}$* . Phys. Rev. B **41**, 9566 (1990).
- [Tho11] J. Thomaschko, C. Raisch, V. Leca, S. Tajima and I. Teresaki. *Supplementary information for: Surface study of $Sr_{1-x}La_xCuO_2$ thin films: electric transport across planar tunnel junctions and X-ray photo-/Auger-electron spectroscopy*. Phys. Rev. B **84**, 064 521 (2011).
- [Tin04] M. Tinkham. *Introduction to Superconductivity*. Dover, 2. Auflage (2004).
- [Tok89] Y. Tokura, H. Takagi and S. Uchida. *A superconducting copper oxide compound with electrons as the charge carriers*. Nature **337**, 345 (1989).
- [Tom12] J. Tomaschko. *Order Parameter Symmetry of the Electron-Doped Infinite-Layer Cuprate Superconductor $Sr_{1-x}La_xCuO_2$* . Dissertation, Universität Tübingen (2012).
- [Tri10] L. Trifunovic and Z. Radović. *Long-range spin-triplet proximity effect in Josephson junctions with multilayered ferromagnets*. Phys. Rev. B **82**, 020 505 (2010).
- [Tsu89] C. Tsuei, A. Gupta and G. Koren. *Quadratic temperature dependence of the in-plane resistivity in superconducting $Nd_{1.85}CuO_4$ Evidence for Fermi-liquid normal state*. Physika C **161**, 415 (1989).

- [Tsu00] C. C. Tsuei and J. R. Kirtley. *Pairing symmetry in cuprate superconductors*. Rev. Mod. Phys. **72**, 969 (2000).
- [Tur07] M. Turad. *Herstellung von Josephson-Rampenkontakten aus dem Hochtemperatursupraleiter $YBa_2Cu_3O_7$* . Diplomarbeit, Universität Tübingen (2007).
- [Wag08a] M. Wagenknecht. *Korngrenzen-Tunnelspektroskopie am elektronendotierten Kupratsupraleiter $La_{2-x}Ce_xCuO_4$* . Dissertation, Universität Tübingen (2008).
- [Wag08b] M. Wagenknecht, D. Koelle, R. Kleiner, S. Graser, N. Schopohl, B. Chesca, A. Tsukada, S. Goennenwein and R. Gross. *Phase Diagram of the Electron-Doped $La_{2-x}Ce_xCuO_4$ Cuprate Superconductor from Andreev Bound States at Grain Boundary Junctions*. PRL **100**, 227001 (2008).
- [Wer69] N. R. Werthamer. *The Ginzburg-Landau equations and their extensions*. Kapitel 6 (1969).
- [Wer08] R. Werner. *Herstellung und Charakterisierung von $La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$* . Diplomarbeit, Universität Tübingen (2008).
- [Wer10] R. Werner, C. Raisch, A. Ruosi, B. A. Davidson, P. Nagel, M. Merz, S. Schuppler, M. Glaser, J. Fujii, T. Chasse, R. Kleiner and D. Koelle. *$YBa_2Cu_3O_7/La_{0.7}Ca_{0.3}MnO_3$ bilayers: Interface coupling and electric transport properties*. Phys. Rev. B. **82**, 224509 (2010).
- [Wer11] R. Werner. *Magnetic Tunnel Junctions and Superconductor/Ferromagnet Hybrids Investigated by Low-Temperature Scanning Laser Microscopy*. Dissertation, Universität Tübingen (2011).
- [Wil97] M. L. Wilson, J. M. Byers, P. C. Dorsey, D. B. Horwitz, J. S. Chrisey and M. S. Osofsky. *Effects of defects on magnetoresistivity in $La_{0.7}Sr_{0.3}MnO_3$* . J. Appl. Phys. **81**, 4971 (1997).
- [Win08] A. Winkler. *Elektron-dotierte Kuprate und Rhenate*. Dissertation, Universität Darmstadt (2008).

- [Wu87] M. K. Wu, J. R. Ashburn, C. J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang and C. W. Chu. *Superconductivity at 93 K in a New Mixed-Phase Yb-Ba-Cu-O Compound System at Ambient Pressure*. Phys. Rev. Lett. **58**, 908 (1987).
- [Yam67] T. Yamashita and Y. Onodera. *Magnetic Field Dependence of Josephson Current Influenced by Self-Field*. J. Appl. Phys. **38**, 3523 (1967).
- [Yul07] O. Yuli, I. Asulin and O. Millo. *Scanning tunneling spectroscopy characterization of the pseudogap and the $x = 1/8$ anomaly in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ thin films*. Physical Review B **75**, 184521 (2007).
- [Zen51] C. Zener. *Interaction between the d-Shells in the Transition Metals. II. Ferromagnetic Compounds of Manganese with Perovskit Structure*. Phys. Rev. Lett. **82**, 403 (1951).
- [Zie01] M. Ziese, S. Sena and H. Blythe. *Magnetoresistance and magnetic viscosity of $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ films*. J. Magn. Magn. Mater **202**, 292 (2001).

Danksagung

Zuletzt möchte ich noch all denen danken, die mich während der letzten Jahre unterstützt haben und ohne deren Mitwirken diese Arbeit nicht hätte verwirklicht werden können.

An erster Stelle möchte ich mich bei Prof. Dr. Reinhold Kleiner und Prof. Dr. Dieter Kölle bedanken, die mir die Promotion am PIT2 ermöglichten. Sowohl bei physikalischen als auch bei experimentellen Fragen standen sie mir stets mit ihrer Erfahrung und ihrem Wissen zur Seite und gaben mir oft entscheidende Tipps zur erfolgreichen Durchführung der unterschiedlichen Projekte.

Ein großer Dank gilt Markus Turad für die ausführliche und detaillierte Einweisung in die verschiedenen Prozesse der UHV-Anlage und seine Hilfe bei Problemen an der Anlage und den darauf folgenden Reparaturen.

Meinem Diplomanden Matthias Hepting danke ich für die sehr gute Zusammenarbeit bei der Herstellung und Vermessung der planaren Kontakte und wünsche ihm viel Erfolg bei seiner Promotion.

Für die Charakterisierung der LCCO-Proben mittels XRD und SEM danke ich Dr. Martin Rahlenbeck vom MPI-Stuttgart.

Dr. Matthias Kemmler danke ich für REM- und FIB-Untersuchungen an den planaren Kontakten, die zur Interpretation der Messergebnisse entscheidend beigetragen haben. Genauso geht mein Dank an Dr. Robert Werner für die Weitergabe seiner umfangreichen Erfahrung in der Herstellung von LCMO-Dünnschichten. Dr. Christoph Back danke ich für seine Hilfe bei verschiedenen technischen Problemen an der UHV-Anlage.

Meinen Bürokollegen Sebastian Scharinger und Matthias Bailer danke ich für die angenehme Arbeitsatmosphäre, die gegenseitige Unterstützung auch in unterschiedlichen Arbeitsbereichen unserer Promotionen und die vielen gemeinsamen Unternehmungen und Aktivitäten außerhalb der Universität, die ich immer sehr geschätzt habe.

Unserer Sekretärin Marie-Luise Fenske gilt mein Dank für ihre Hilfe bei verschiedenen bürokratischen und organisatorischen Fragen. Für das zuverlässige Bereitstellen der für die Versuche notwendigen Helium-Kannen danke ich Elmar Baur und Manuel Brandt. Karl Heinz Freudenmann und Manfred Kleinmann und den Mitarbeitern der feinmechanischen Werkstatt danke ich für ihre Unterstützung bei der Herstellung des Niederfeld-Adiabaten sowie verschiedener Probenhalter. Ebenso gilt mein Dank Herrn Schreyer von der Elektronik-Werkstatt für das zur Verfügung stellen verschiedener für die Versuche notwendiger elektronischer Bauteile.

Allen weiteren an dieser Stelle nicht namentlich erwähnten Mitarbeitern der PIT2-Arbeitsgruppe danke ich für die angenehme Arbeitsatmosphäre während der letzten Jahre.

Zuletzt geht noch ein besonderer Dank an meine Eltern. Ihre Unterstützung während der gesamten Zeit des Studiums haben mir vieles erleichtert. Meiner Mutter danke ich für das gewissenhafte Korrekturlesen der Arbeit.