

Lehrstuhl E23 für Technische Physik  
Walther-Meißner-Institut für Tieftemperaturforschung  
der Bayerischen Akademie der Wissenschaften

# **Tunnelspektroskopie an Korngrenzenkontakten aus elektronendotierten Hochtemperatur-Supraleitern**

Bettina Welter

Vollständiger Abdruck der von der Fakultät für Physik der Technischen Universität München zur Erlangung des akademischen Grades eines

Doktors der Naturwissenschaften  
genehmigten Dissertation.

Vorsitzender .....

Prüfer der Dissertation

1. Univ.-Prof. Dr. R. Gross

2. ....

Die Dissertation wurde am ..... bei der Technischen Universität München eingereicht und durch die Fakultät für Physik am ..... angenommen.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Theorie und Phänomene der Supraleitung</b>	<b>6</b>
2.1	BCS-Theorie . . . . .	6
2.2	Ordnungsparameter . . . . .	9
2.2.1	Zustandsdichte . . . . .	14
2.3	Pseudolücke . . . . .	15
<b>3</b>	<b>Theorie der Tunnelspektroskopie</b>	<b>18</b>
3.1	Semi-Phänomenologisches Modell . . . . .	18
3.2	WKB-Näherung . . . . .	20
3.3	Modelle des Tunnelns . . . . .	21
3.3.1	Zeitunabhängiger Ansatz . . . . .	22
3.3.2	Zeitabhängiger Ansatz . . . . .	24
3.4	Beschreibung einfacher Tunnelkontakte . . . . .	27
3.5	Jenseits des Halbleiter-Modells . . . . .	31
3.5.1	Bogoliubov-de-Gennes Gleichungen . . . . .	31
3.5.2	Andreev-Reflexion . . . . .	33
3.5.3	BTK-Theorie . . . . .	38
3.5.4	Andreev-gebundene Zustände . . . . .	42
3.5.5	ABS an Oberflächen von $d$ -Wellen Supraleitern . . . . .	44
3.5.6	Die Rolle von ABS für Tunnelspektren . . . . .	46
<b>4</b>	<b>Analyse von Tunnelspektren</b>	<b>48</b>
4.1	Bestimmung der Zustandsdichte . . . . .	49
4.1.1	Numerischer Ansatz . . . . .	51
4.1.2	Fehlerbetrachtung . . . . .	54
4.2	Hintergrundleitfähigkeit . . . . .	58
4.2.1	Normierung durch Division . . . . .	59

4.2.2	Effekte in den Elektroden . . . . .	62
4.2.3	Effekte in der Barriere . . . . .	63
	Einfluss der Tunnelwahrscheinlichkeit für einen NIN-Kontakt . . . . .	63
	Modell der Trapezbarriere . . . . .	64
	Parallele Transportkanäle . . . . .	72
	Inelastisches Tunneln . . . . .	72
	Tunneln über Zwischenzustände . . . . .	74
	Resonantes Tunneln . . . . .	75
	Tunneln über mehrere Zwischenzustände . . . . .	76
4.3	Zustandserhaltung . . . . .	77
<b>5</b>	<b>Proben</b>	<b>82</b>
5.1	Kristallstruktur und Eigenschaften . . . . .	82
5.2	Filmherstellung und vermessene Proben . . . . .	85
5.3	Korngrenzenkontakte . . . . .	86
<b>6</b>	<b>Experimentelle Techniken</b>	<b>88</b>
6.1	Strukturierung der Proben . . . . .	88
6.2	Lock-In Technik . . . . .	94
6.2.1	Funktionsweise eines Lock-In-Verstärkers . . . . .	94
6.2.2	Messung differenzieller Größen in Lock-In-Technik . . . . .	97
6.2.3	Messaufbau zur Aufnahme von Tunnelspektren . . . . .	98
	Erzeugung der Wechselspannung . . . . .	99
	Amplitude des Wechselstromsignals . . . . .	99
	Parasitäre Kapazitäten . . . . .	102
	Integrationszeit . . . . .	102
<b>7</b>	<b>Transportmessungen an Filmbrücken</b>	<b>104</b>
7.1	$R(T)$ -Messungen im Nullfeld . . . . .	104
7.2	$R(T)$ -Messungen im Normalzustand . . . . .	111
7.3	$R(T, H)$ -Messungen . . . . .	117
7.3.1	Der normalleitende Bereich: Magnetwiderstand . . . . .	117
7.3.2	Der Übergangsbereich: $H_{c2}(T)$ . . . . .	122
	Charakteristische Felder . . . . .	122
	Vortizes . . . . .	131
	Fluktuationen . . . . .	137
<b>8</b>	<b>Tunnelspektroskopie-Messungen an Korngrenzenkontakten</b>	<b>143</b>

8.1	Tunnelspektroskopie an supraleitenden Kontakten . . . . .	143
8.1.1	Charakterisierung der Kontakte bei tiefen Temperaturen im Nullfeld . . . . .	144
	Nullspannungsanomalie und Hintergrund . . . . .	146
	Kenngrößen . . . . .	150
	Entfaltung . . . . .	156
	Vergleich mit dem Trapezbarrieren-Modell . . . . .	162
8.1.2	Einfluss eines äußeren Magnetfelds . . . . .	165
8.1.3	Einfluss der Temperatur . . . . .	171
8.2	Tunnelspektroskopie an normalleitenden Kontakten . . . . .	179
8.2.1	Ansätze zur Beschreibung der Pseudolücke . . . . .	180
8.2.2	Zuleitungswiderstände . . . . .	181
8.2.3	Einfluss von Magnetfeldern jenseits des kritischen Feldes . . .	183
8.2.4	Einfluss der Temperatur . . . . .	186
	Problematik der Zuleitungswiderstände bei Temperatur-Serien	187
	Thermische Verrundungen . . . . .	190
8.2.5	Spektren bei tiefen Temperaturen und $\mu_0 H = 15$ T . . . . .	192
8.2.6	Charakterisierung der Pseudolücke nach dem multikausalen Ansatz . . . . .	194
	Kenngrößen bei tiefen Temperaturen . . . . .	194
	Entfaltung . . . . .	199
	Hängt $T^*$ vom Magnetfeld ab? . . . . .	201
	Bestimmung von $T^*$ . . . . .	203
8.2.7	Flächenerhaltung . . . . .	208
8.2.8	Charakterisierung der Pseudolücke nach dem monokausalen Ansatz . . . . .	213
	Korrelationsmodell . . . . .	213
8.3	Verhalten der überdotierten LCCO-Probe im Magnetfeld . . . . .	221
<b>9</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>227</b>
<b>A</b>	<b>Ergänzende Erläuterungen</b>	<b>232</b>
A.1	Literatur über ABS an Grenzflächen von Hochtemperatur-Supraleitern . . . . .	232
A.2	Die Proben der NCCO-Serie . . . . .	234
A.3	Berechnungen zum Tunnelstrom für ein trapezförmiges Barrierenpo- tential . . . . .	236
A.3.1	Berechnung der Tunnelwahrscheinlichkeit . . . . .	237

A.3.2	Tunnelleitfähigkeit für einen planaren Kontakt . . . . .	238
A.3.3	Tunnelleitfähigkeit für einen Punktkontakt . . . . .	241
A.3.4	Bemerkungen zur Implementierung . . . . .	241
A.3.5	Bestimmung der Barrierenparameter . . . . .	242
A.4	Ergänzende Abbildungen . . . . .	245
	<b>Danksagung</b>	<b>257</b>
	<b>Teilpublikationen</b>	<b>259</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Auch wenn gut zwanzig Jahre nach der Entdeckung der Hochtemperatursupraleiter [Bednorz86] die ersten Anwendungen dieser Materialklasse auf so unterschiedlichen Gebieten wie der Energietechnik, dem Mobilfunk oder der Messtechnik Einzug gehalten haben, besteht bis heute keine Einigkeit über den Mechanismus, welcher der Supraleitung in diesen Materialien zugrundeliegt [Malozemoff06, Cho06].

Unter dem Begriff **Hochtemperatursupraleiter** wird eine Vielzahl oxidischer Verbindungen unterschiedlicher chemischer Zusammensetzungen und Kristallstrukturen zusammengefasst, deren strukturelle Gemeinsamkeit ein geschichteter Aufbau aus  $\text{CuO}_2$ -Ebenen und Zwischenschichten ist. Durch Variation der atomaren Zusammensetzung in den Zwischenschichten lassen sich Ladungsträger in die  $\text{CuO}_2$ -Ebenen dotieren, wobei die Eigenschaften der verschiedenartigen daraus resultierenden Verbindungen wesentlich von dieser Dotierung  $x$  abhängen. Daher ist die Untersuchung des Phasendiagramms grundlegend für das Verständnis der Hochtemperatur-Supraleiter. Die dotierten Lanthanoidenkuprate eignen sich in besonderer Weise als Modellsystem für eine solche Untersuchung, da sie zum einen eine relativ einfache Kristallstruktur aufweisen, zum anderen die Möglichkeit bieten, die Kupfer-Sauerstoff-Ebenen sowohl mit Löchern als auch mit Elektronen zu dotieren. Ein Vergleich der loch- und elektronendotierten Seite des Phasendiagramms kann Hinweise darauf liefern, welche Faktoren ausschlaggebend für die Entstehung der Supraleitung in den Kupratverbindungen sind.

Ein stark vereinfachtes und auf einige wesentliche Elemente reduziertes Phasendiagramm ist in Abbildung 1.1 dargestellt. Das undotierte Ausgangsmaterial ist ein antiferromagnetischer Mott-Isolator, wobei durch eine Dotierung mit Ladungsträgern die Néel-Temperatur  $T_N$ , die antiferromagnetische und paramagnetische Phase trennt, mit zunehmender Dotierung abnimmt. Bei höheren Dotierungen entsteht für tiefe Temperaturen eine supraleitende Phase, deren kritische Temperatur  $T_c$  zunächst anwächst und nach Erreichen eines Maximums bei der sogenannten optimalen Dotierung wieder abnimmt, wodurch eine kuppelförmige  $T_c(x)$ -Kurve entsteht. Der Bereich oberhalb der supraleitenden Phase lässt sich wiederum zumindest in

zwei Teilgebiete einteilen. Unterhalb einer dotierungsabhängigen charakteristischen Temperatur  $T^*$  öffnet sich in einigen Bereichen der Fermi-Fläche eine Lücke im Anregungsspektrum, die zu ungewöhnlichen elektrischen und thermischen Eigenschaften führt und als Pseudolücke (PL) bezeichnet wird.

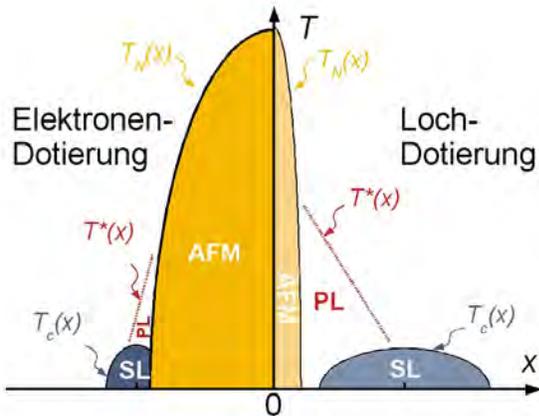


Abbildung 1.1: Vereinfachte schematische Darstellung des Phasendiagramms der Hochtemperatur-Supraleiter

Die loch- und die elektronendotierte Seite des Phasendiagramms erscheinen zunächst sehr ähnlich, es lassen sich jedoch auch einige Unterschiede erkennen. So erstreckt sich die antiferromagnetische Phase auf der elektronendotierten Seite auf einen deutlich größeren Dotierungsbereich, so dass supraleitende und antiferromagnetische Phase direkt aneinander angrenzen. Dies wird in der Literatur im Rahmen eines sehr einfachen Bildes häufig auf die unterschiedlichen Plätze zurückgeführt, die dotierte Elektronen und Löcher in den  $\text{CuO}_2$ -Ebenen besetzen. Dotierte Löcher besitzen vorwiegend den Charakter von Sauerstoff  $2p$  Fehlstellen, befinden sich also primär auf Plätzen zwischen benachbarten  $\text{Cu}^{2+}$ -Ionen, so dass der Spin des

Lochs die antiferromagnetische Kopplung zwischen den Kupferspins stört. Dahingegen besetzen dotierte Elektronen vorwiegend Kupfer  $3d$ -Plätze, wodurch  $\text{Cu}^+$  Ionen ohne magnetisches Moment entstehen, was die antiferromagnetische Ordnung der  $\text{CuO}_2$ -Ebene lediglich abschwächt. Im ersten Fall spricht man von Frustration, im zweiten Fall von Verdünnung der antiferromagnetischen Ordnung [Matsuda92].

Für die elektronendotierte Seite des Phasendiagramms gibt es deutlich weniger experimentelle Untersuchungen, als für die lochdotierte Seite, wovon die folgende kurze Datenbank-Recherche einen ersten Eindruck vermittelt: Die englischsprachige elektronische Datenbank über Veröffentlichungen zum Thema Supraleitung, die vom National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST) in Japan herausgegeben wird, enthält unter der Kategorie Hochtemperatur-Supraleiter (*High  $T_c$* ) für den Zeitraum von Januar 2002 bis Ende Mai 2007 etwa 9000 Einträge. Wird die Suche zusätzlich durch den Suchbegriff *electron doped* (also elektronen-dotiert) eingegrenzt, ergeben sich nur noch etwa 350 übereinstimmende Einträge [AIST07].

Neben den kleineren kritischen Temperaturen und insbesondere den deutlich kleineren kritischen Stromdichten, die die elektronendotierten Verbindungen im Vergleich zu den lochdotierten Materialien zunächst weniger attraktiv für mögliche Anwendungen erscheinen lassen, liegt sicherlich ein Hauptgrund für dieses Ungleichgewicht in den experimentellen Schwierigkeiten bei der Herstellung dieser Materialien. Ins-

---

besondere spielt die Kontrolle des Sauerstoff-Gehalts eine wesentliche Rolle. Elektronendotierte Lanthanoidenkuprate neigen aufgrund ihrer Kristallstruktur zum Einbau überschüssigen Sauerstoffs an speziellen interstitiellen Plätzen, die hauptsächlich als starke Streuzentren wirken und die Supraleitung unterdrücken.

Die Verwendung dünner Filme aus elektronendotierten Hochtemperatur-Supraleitern bietet den Vorteil, dass sich der interstitielle Sauerstoff leichter entfernen lässt, als bei einkristallinen Proben. Darüberhinaus lässt sich an dünnen Filmen auch das dotierungsabhängige Verhalten der verhältnismäßig neuen Verbindung  $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  untersuchen, die von allen elektronendotierten Lanthanoidenkupraten die höchste kritische Temperatur aufweist und bisher nur unter großen Schwierigkeiten als Einkristall hergestellt werden kann [Yamada94, Oka03].

Die wichtige Rolle, welche die **Tunnelspektroskopie** bei der experimentellen Untersuchung klassischer Supraleiter gespielt hat, beruht vor allem darauf, dass Tunnelspektren an SIN-Kontakten bei tiefen Temperaturen direkt die Zustandsdichte der supraleitenden Elektrode abbilden und somit Informationen über die Form der Energielücke und ihre Abhängigkeit von äußeren Bedingungen wie Temperatur oder Magnetfeld liefern. So gelang eine der ersten experimentellen Bestätigungen der Vorhersagen der BCS-Theorie zur Existenz und Temperaturabhängigkeit der Energielücke durch Tunnelspektroskopie-Messungen [Giaever61].

Auf dem Gebiet der Hochtemperatur-Supraleiter ergeben sich jedoch einige Schwierigkeiten bei der Interpretation entsprechender Messkurven. So zeigen Tunnelspektren an Hochtemperatur-Supraleitern ungewöhnlich hohe Leitwerte im Bereich der Energielücke, weiterhin eine Hintergrundleitfähigkeit, deren Herkunft nicht eindeutig geklärt ist und schließlich häufig sogenannte Nullspannungsanomalien. Bei den letztgenannten Strukturen besteht inzwischen Einigkeit darüber, dass es sich um den Effekt Andreev-gebundener Zustände handelt, die auf die  $d$ -Wellen Symmetrie des Ordnungsparameters der untersuchten Supraleiter zurückzuführen sind.

Ziel dieser Arbeit ist die systematische Untersuchung der Dotierungsabhängigkeit von Tunnelspektren an Kontakten aus unterschiedlichen elektronendotierten Kupratverbindungen. Dabei wurden Korngrenzenkontakte untersucht, die den Vorteil bieten, Tunnelspektren in einem weiten Temperatur- und Magnetfeldbereich zu ermöglichen, ohne dass sich die Barrierenparameter ändern.

Im Mittelpunkt des Interesses stehen dabei zwei Phänomene, durch die sich Tunnelspektren an elektronendotierten Hochtemperatur-Supraleitern von Spektren an entsprechenden lochdotierten Materialien unterscheiden.

Zum einen werden für lochdotierte Systeme nahezu immer die oben angesprochenen Nullspannungsanomalien beobachtet, die als Effekt Andreev-gebundener Zustände in  $d$ -Wellen Supraleitern interpretiert werden, während entsprechende Effekte in Tunnelspektren an elektronendotierten Systemen nahezu nie auftreten. Es stellt sich nun die Frage, ob dieser Unterschied auf einen dotierungsabhängigen Übergang zwischen Grundzuständen verschiedener Symmetrie zurückzuführen ist.

Zum anderen tritt für lochdotierte Supraleiter im Nullfeld für Temperaturen ober-

halb der kritischen Temperatur eine Unterdrückung des Leitwertes auf der Skala der supraleitenden Energielücke auf, die als Pseudolücke bezeichnet wird. Für elektronendotierte Materialien wird ein entsprechender Effekt bei Spektren im Nullfeld nicht beobachtet, Tunnelspektren bei tiefen Temperaturen, bei denen die Supraleitung durch ein hinreichend großes Feld unterdrückt wird, weisen jedoch eine auffallend ähnliche Struktur auf, so dass zu klären bleibt, ob es sich bei beiden Effekten um das gleiche Phänomen handelt, und wie diese Pseudolücke in elektronendotierten Systemen näher charakterisiert werden kann.<sup>1</sup>

Im Hinblick auf die Auswertungsmethode stellt sich die Frage, wie die Hintergrundleitfähigkeit der Spektren theoretisch zu behandeln ist. Dabei wird versucht, Alternativen zu der in der Praxis verbreiteten Methode vorzustellen, die gemessenen Spektren durch eine weitgehend willkürliche Hintergrundfunktion zu dividieren.

Besonderer Wert wird auf eine vergleichende Charakterisierung verschiedener Kontakte einer Probe gelegt, um probenspezifische Effekte von solchen zu trennen, die durch lokale Eigenschaften wie Defekte oder Verunreinigungen verursacht werden.

Die Tunnelspektroskopie-Messungen werden durch eine ausgedehnte Reihe von Widerstandsmessungen an Filmbrücken der untersuchten Proben ergänzt, welche die supraleitenden Filme charakterisieren und insbesondere Informationen über das kritische Feld der Materialien als Funktion der Probertemperatur liefern sollen.

Die Arbeit gliedert sich wie folgt: Zunächst werden in **Kapitel 2** einige wichtige Begriffe zu Theorie und Phänomenen der Supraleitung vorgestellt, die grundlegend für das Verständnis der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente sind.

**Kapitel 3** enthält eine Einführung in die Theorie der Tunnelspektroskopie. Es beginnt mit einem sehr einfachen semi-phänomenologischen Modell und schließt mit Erläuterungen zu Andreev-gebundenen Zuständen und ihrer Bedeutung für Tunnelspektren.

Anschließend werden in **Kapitel 4** einige Methoden entwickelt und vorgestellt, mittels denen aus experimentellen Tunnelspektren, insbesondere an symmetrischen SIS-Kontakten, Informationen über die Eigenschaften von Elektroden und Tunnelbarriere gewonnen werden können. Insbesondere wird ein Verfahren zur numerischen Entfaltung symmetrischer SIS-Spektren vorgeschlagen, welches meiner Kenntnis nach in der Literatur in dieser Form nicht zu finden ist. Weiterhin werden eine Reihe von Modellen zusammengestellt, welche die in vielen Spektren an Hochtemperatur-Supraleitern beobachtete lineare Hintergrundleitfähigkeit erklären können.

In den **Kapiteln 5 und 6** wird ein Überblick über die untersuchten Proben und die verwendeten experimentellen Techniken gegeben.

**Kapitel 7** stellt die Resultate der Widerstandsmessungen an Filmbrücken vor. Ins-

---

<sup>1</sup>Die auf der elektronendotierten Seite des Phasendiagramms mit  $T^*(x)$  bezeichnete Linie bezieht sich auf die Resultate optischer Spektroskopie, die allerdings einen Effekt auf einer Energieskala nachweisen, die deutlich oberhalb der Skala der supraleitenden Energielücke liegt (vgl. Kapitel 2.3)

besondere werden verschiedene Methoden zur Bestimmung von  $H_{c2}(T)$  bzw.  $H_{c2}(0)$  vorgestellt, auf die experimentellen Daten angewendet und die damit erzielten Ergebnisse werden verglichen.

**Kapitel 8** enthält schließlich die Ergebnisse der Tunnelspektroskopie-Messungen. Schwerpunkte liegen auf der Darstellung und Interpretation der Spektren bei tiefen Temperaturen, zum einen im Nullfeld und zum anderen in einem hinreichend großen Magnetfeld, das die Supraleitung unterdrückt.

In **Kapitel 9** werden die wesentlichen Ergebnisse dieser Arbeit zusammengefasst und kurz im Hinblick auf mögliche weiterführende Experimente diskutiert.

Im **Anhang** werden einige komplexere Herleitungen von in dieser Arbeit verwendeter Formeln sowie einige zusätzliche Abbildungen und Erläuterungen zusammengestellt, auf die in den vorhergehenden Abschnitten Bezug genommen wurde, die aber aus Platzgründen nicht in den Haupttext integriert wurden.

# Kapitel 2

## Theorie und Phänomene der Supraleitung

### 2.1 BCS-Theorie

In diesem Abschnitt sollen kurz einige Konzepte der BCS-Theorie vorgestellt werden, die grundlegend für das Verständnis der im Rahmen dieser Arbeit behandelten Tunnelspektren sind. Dabei handelt es sich im wesentlichen um die Eigenschaften der Anregungen über dem supraleitenden Grundzustand sowie eng damit verknüpft um Herkunft und Eigenschaften der Energielücke. Die Darstellung lehnt sich an die Erläuterungen zur BCS-Theorie in [Rickayzen69] und [Tinkham96] an.

Grundlegend war der 1956 von L. N. Cooper erbrachte Nachweis, dass in Gegenwart eines Fermi-Sees unabhängiger Teilchen eine attraktive Wechselwirkung zwischen zwei Elektronen unabhängig von ihrer Größe zur Ausbildung eines gebundenen Paarzustandes führt [Cooper56]. Darauf aufbauend formulierten Bardeen, Cooper und Schrieffer 1957 die erste mikroskopische Theorie der Supraleitung [Bardeen57a] [Bardeen57b]. Sie modellierten dabei die attraktive Wechselwirkung durch eine Konstante  $-V$  für Elektronen innerhalb einer Energie  $\hbar\omega$  entfernt vom Fermi-Niveau. Für alle anderen Elektronen verschwindet die Wechselwirkung in diesem Modell. Die Wellenfunktionen werden dabei aus Elektronen-Paaren der Form  $(\mathbf{k}\sigma, -\mathbf{k}-\sigma)$  aufgebaut, wobei  $\mathbf{k}$  den Impuls und  $\sigma$  den Spin eines Elektrons angibt. In der Darstellung der 2. Quantisierung ist der BCS-Grundzustand gegeben durch:

$$|\psi_G\rangle = \prod_{\mathbf{k}=\mathbf{k}_1, \dots, \mathbf{k}_M} (v_{\mathbf{k}} + \nu_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger c_{-\mathbf{k}\downarrow}^\dagger) |\phi_0\rangle \quad (2.1)$$

mit

$$|v_{\mathbf{k}}|^2 + |\nu_{\mathbf{k}}|^2 = 1. \quad (2.2)$$

Dabei ist  $|\phi_0\rangle$  der Vakuumzustand,  $c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger$  erzeugt ein Elektron mit Impuls  $\mathbf{k}$  und Spin  $\sigma$ ,  $c_{\mathbf{k}\sigma}$  ist der entsprechende Vernichtungsoperator.  $\nu_{\mathbf{k}}$  und  $v_{\mathbf{k}}$  sind die sogenannten

Kohärenzfaktoren, wobei  $|\nu_{\mathbf{k}}|^2$  die Wahrscheinlichkeit angibt, mit der der Paarzustand  $(\mathbf{k}\sigma, -\mathbf{k}-\sigma)$ , besetzt ist.  $|\nu_{\mathbf{k}}|^2$  ist entsprechend die Wahrscheinlichkeit, dass der Paarzustand  $(\mathbf{k}\sigma, -\mathbf{k}-\sigma)$  unbesetzt ist. Der Paar-Hamilton-Operator ist gegeben durch:

$$H = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \xi_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}\sigma} + \sum_{\mathbf{k}\mathbf{l}} V_{\mathbf{k}\mathbf{l}} c_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger c_{-\mathbf{k}\downarrow}^\dagger c_{-\mathbf{l}\downarrow} c_{\mathbf{l}\uparrow} \quad (2.3)$$

$\xi_{\mathbf{k}}$  ist die Energie eines einzelnen Teilchens relativ zur Fermienergie, der Wechselwirkungsterm  $V_{\mathbf{k}\mathbf{l}}$  mischt Paarzustände  $(\mathbf{k}\uparrow, -\mathbf{k}\downarrow)$  und  $(\mathbf{l}\uparrow, -\mathbf{l}\downarrow)$ . Um die Kohärenzfaktoren  $\nu_{\mathbf{k}}$  und  $\nu_{\mathbf{k}}$  zu bestimmen drückt man das Produkt  $c_{-\mathbf{k}\downarrow} c_{\mathbf{k}\uparrow}$  durch seinen Erwartungswert  $b_{\mathbf{k}} \equiv \langle c_{-\mathbf{k}\downarrow} c_{\mathbf{k}\uparrow} \rangle$  und Fluktuationen um diesen Erwartungswert aus, also

$$c_{-\mathbf{k}\downarrow} c_{\mathbf{k}\uparrow} = b_{\mathbf{k}} + (c_{-\mathbf{k}\downarrow} c_{\mathbf{k}\uparrow} - b_{\mathbf{k}}). \quad (2.4)$$

Der in der Klammer stehende Fluktuationsterm ist aufgrund der großen Anzahl der beteiligten Teilchen klein, so dass beim Einsetzen von Gleichung (2.4) in den Ausdruck (2.3) alle Terme vernachlässigt werden können, die bilinear in diesem Fluktuationsterm sind. Damit ergibt sich für den sogenannten Modell-Hamilton-Operator:

$$H_M = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \xi_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}\sigma} + \sum_{\mathbf{k}\mathbf{l}} V_{\mathbf{k}\mathbf{l}} (b_{\mathbf{k}}^* c_{-\mathbf{l}\downarrow} c_{\mathbf{l}\uparrow} + b_{\mathbf{l}} c_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger c_{-\mathbf{k}\downarrow}^\dagger - b_{\mathbf{k}}^* b_{\mathbf{l}}). \quad (2.5)$$

Dabei sind die Koeffizienten  $b_{\mathbf{k}}$  selbstkonsistent so zu bestimmen, dass

$$b_{\mathbf{k}} = \langle c_{-\mathbf{k}\downarrow} c_{\mathbf{k}\uparrow} \rangle \quad (2.6)$$

gilt. Mit der Definition

$$\Delta_{\mathbf{k}} \equiv - \sum_{\mathbf{l}} V_{\mathbf{k}\mathbf{l}} b_{\mathbf{l}} \quad (2.7)$$

lässt sich der Modell-Hamilton-Operator vereinfachen zu

$$H_M = \sum_{\mathbf{k}\sigma} \xi_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}\sigma} - \sum_{\mathbf{k}} (\Delta_{\mathbf{k}}^* c_{-\mathbf{k}\downarrow} c_{\mathbf{k}\uparrow} + \Delta_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger c_{-\mathbf{k}\downarrow}^\dagger - \Delta_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}}^*). \quad (2.8)$$

Bogoliubov und Valatin konnten zeigen, dass sich dieser Hamilton-Operator durch die im folgenden dargestellten linearen Transformationen diagonalisieren lässt [Bogoliubov58] [Valatin58].

$$c_{\mathbf{k}\uparrow} = \nu_{\mathbf{k}}^* \gamma_{\mathbf{k}0} + \nu_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}1}^\dagger \quad (2.9)$$

$$c_{-\mathbf{k}\downarrow}^\dagger = -\nu_{\mathbf{k}}^* \gamma_{\mathbf{k}0} + \nu_{\mathbf{k}} \gamma_{\mathbf{k}1}^\dagger \quad (2.10)$$

Dazu werden die Gleichungen (2.9) und (2.10) in Gleichung (2.8) eingesetzt wobei die Koeffizienten  $\nu_{\mathbf{k}}$  und  $\nu_{\mathbf{k}}$  so zu wählen sind, dass der resultierende Hamilton-Operator

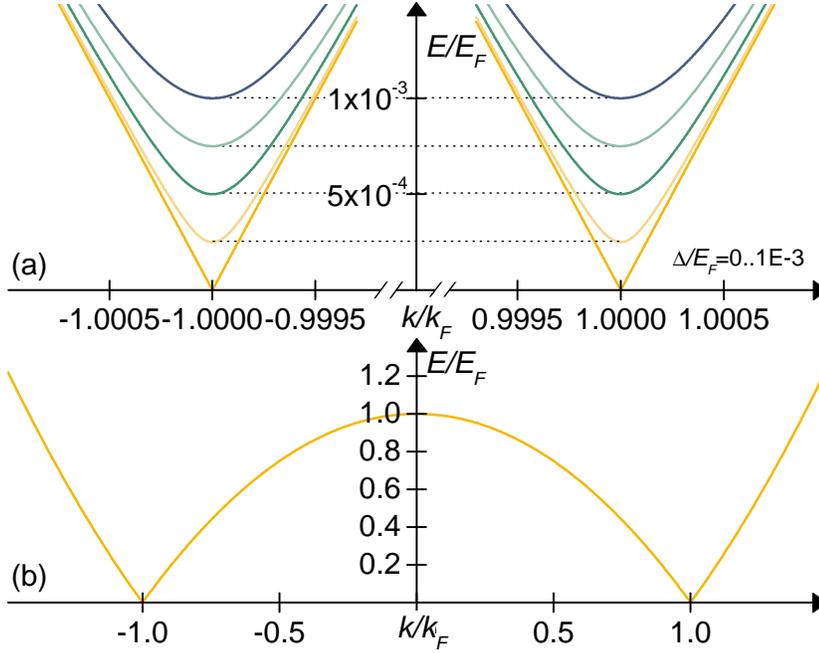


Abbildung 2.1: Energie der Anregungen als Funktion des Impulses relativ zum Fermi-Impuls gemäß Gleichung(2.12). Teilabbildung (a) zeigt Ausschnittvergrößerungen von Teilabbildung (b) um  $k = \pm k_F$

nur noch Konstanten und Terme enthält, die proportional zu den Besetzungszahloperatoren  $\gamma_{\mathbf{k}}^* \gamma_{\mathbf{k}}$  sind. Zusammen mit der Normierungsbedingung (2.2) ergibt sich aus dieser Forderung folgende Beziehung

$$|v_{\mathbf{k}}|^2 = 1 - |v_{\mathbf{k}}|^2 = \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{\xi_{\mathbf{k}}}{E_{\mathbf{k}}} \right) \quad (2.11)$$

mit der Definition

$$E_{\mathbf{k}} \equiv \sqrt{\xi_{\mathbf{k}}^2 + \Delta_{\mathbf{k}}^2}. \quad (2.12)$$

Mit dieser Wahl für die Kohärenzfaktoren vereinfacht sich der Modell-Hamilton-Operator zu

$$H_M = \sum_{\mathbf{k}} (\xi_{\mathbf{k}} - E_{\mathbf{k}} + \Delta_{\mathbf{k}} b_{\mathbf{k}}^*) + \sum_{\mathbf{k}} E_{\mathbf{k}} (\gamma_{\mathbf{k}0}^\dagger \gamma_{\mathbf{k}0} + \gamma_{\mathbf{k}1}^\dagger \gamma_{\mathbf{k}1}). \quad (2.13)$$

Der erste Summand ist eine Konstante und stellt die Energie des Grundzustandes dar. Wie man leicht zeigen kann, erfüllen die Operatoren  $\gamma_{\mathbf{k}}$  die Fermi-Dirac Kommutator-Relationen. Also beschreibt der zweite Summand unabhängige Fermionen mit

Anregungsenergie  $E_{\mathbf{k}}$ . Die Quasiteilchen, die von  $\gamma_{\mathbf{k}}^\dagger$  erzeugt werden, werden auch als Bogoliubonen bezeichnet. Ihre Dispersionsrelation ist durch Gleichung (2.12) gegeben und in Abbildung (2.1) für verschiedene Werte des Quotienten  $\Delta/E_F$  illustriert, wobei Teilabbildung (b) die Dispersionsrelation im Bereich von Wellenzahlen mit  $|k| \leq 1.5k_F$  zeigt, während Teilabbildung (a) eine über 10000fache Ausschnittsvergrößerung der Bereiche um  $k = \pm k_F$  von Teilabbildung (b) darstellt. Die Kurven für verschiedene Werte des Quotienten  $\Delta/E_F$  lassen sich auf der Skala von Teilabbildung (b) nicht unterscheiden. Zwei wesentliche Beobachtungen sind festzuhalten. Zum einen ist die minimale Anregungsenergie gegeben durch  $|\Delta|$ , d.h.  $|\Delta|$  ist eine Energielücke für die Anregungen. Zum anderen ist jeder Energiewert zwischen 0 und der Fermi-Energie vierfach entartet.

Wie die Auflösung der Gleichungen (2.9) und (2.10) nach  $\gamma_{\mathbf{k}0}^\dagger$  und  $\gamma_{\mathbf{k}1}^\dagger$  zeigt, handelt es sich bei den Bogoliubonen um eine Linearkombination aus elektronen- und lochartigen Anregungen

$$\gamma_{\mathbf{k}0}^\dagger = v_{\mathbf{k}}^* c_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger - \nu_{\mathbf{k}}^* c_{-\mathbf{k}\downarrow}, \quad (2.14)$$

$$\gamma_{\mathbf{k}1}^\dagger = v_{\mathbf{k}}^* c_{-\mathbf{k}\downarrow}^\dagger + \nu_{\mathbf{k}}^* c_{\mathbf{k}\uparrow}. \quad (2.15)$$

Die Anregung  $\gamma_{\mathbf{k}0}^\dagger$  ändert die Ladung des Supraleiters um  $q_k = (|\nu_{\mathbf{k}}|^2 - |v_{\mathbf{k}}|^2)e$ , also um einen Bruchteil der Elementarladung. Um Anregungen zu beschreiben, die die Gesamtladung um eine ganze Elementarladung erhöhen oder vermindern, ist es zweckmäßig, folgende Operatoren zu betrachten

$$\gamma_{e\mathbf{k}0}^\dagger = v_{\mathbf{k}}^* c_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger - \nu_{\mathbf{k}}^* S^\dagger c_{-\mathbf{k}\downarrow}, \quad (2.16)$$

$$\gamma_{h\mathbf{k}0}^\dagger = v_{\mathbf{k}}^* S c_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger - \nu_{\mathbf{k}}^* c_{-\mathbf{k}\downarrow}, \quad (2.17)$$

$$\gamma_{e\mathbf{k}1}^\dagger = v_{\mathbf{k}}^* c_{-\mathbf{k}\downarrow}^\dagger + \nu_{\mathbf{k}}^* S^\dagger c_{\mathbf{k}\uparrow}, \quad (2.18)$$

$$\gamma_{h\mathbf{k}1}^\dagger = v_{\mathbf{k}}^* S c_{-\mathbf{k}\downarrow}^\dagger + \nu_{\mathbf{k}}^* c_{\mathbf{k}\uparrow}. \quad (2.19)$$

Dabei sind  $S$  und  $S^\dagger$  Vernichtungs- bzw. Erzeugungsoperatoren für ein Cooper-Paar.

## 2.2 Ordnungsparameter

Das Konzept eines Ordnungsparameters wird in der Physik auf ganz unterschiedlichen Gebieten benutzt, um Phasenübergänge zu beschreiben. Geht ein System in einen Zustand höherer Ordnung über, so ist mit dieser Ordnung das Auftreten einer neuen Größe verbunden, die als Ordnungsparameter bezeichnet wird [White79]. Ein Beispiel ist die spontane Magnetisierung beim Übergang von der paramagnetischen in die ferromagnetische Phase eines Ferromagneten. Auf dem Gebiet der Supraleitung wurde der Begriff des Ordnungsparameters im Rahmen der Ginzburg-Landau-Theorie als makroskopische, komplexwertige Pseudo-Wellenfunktion  $\psi(\mathbf{r}) =$

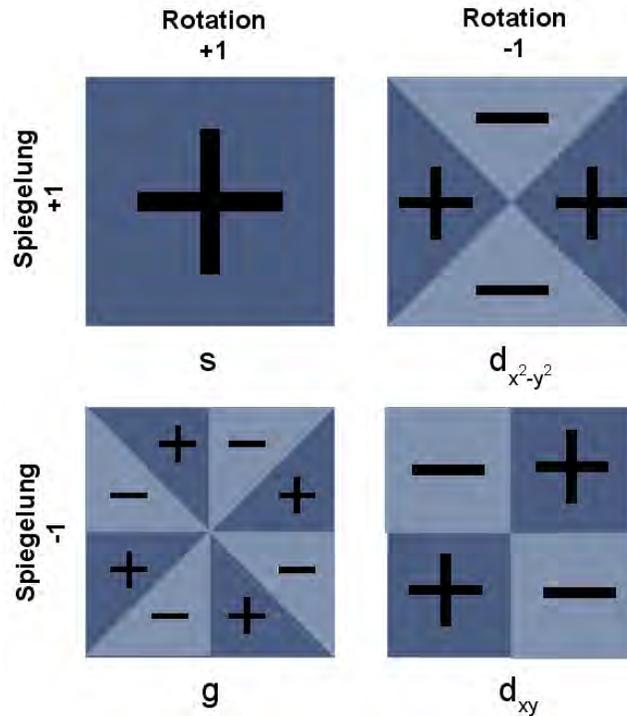


Abbildung 2.2: Die vier Singlett-Paarzustände für eine  $\text{CuO}_2$ -Ebene

$|\psi(\mathbf{r})|e^{i\phi(\mathbf{r})}$  eingeführt. Dabei liefert der Betrag  $|\psi(r)|$  die lokale supraleitende Dichte, die Phase des Ordnungsparameters spielt zum Beispiel eine entscheidende Rolle bei der Erklärung des Josephson-Effektes.

In der Ginzburg-Landau-Theorie wurde der Ordnungsparameter zunächst rein phänomenologisch eingeführt um die makroskopischen Eigenschaften supraleitender Materialien zu erklären. Seine physikalische Bedeutung auf mikroskopischer Ebene ergibt sich dadurch, dass die Ginzburg-Landau-Theorie als Spezialfall aus der BCS-Theorie abgeleitet werden kann [Gorkov59]. Insbesondere konnte gezeigt werden, dass die Energielückenfunktion  $\Delta(\mathbf{k})$  und der Ginzburg-Landau Ordnungsparameter die gleiche Symmetrie im reziproken Raum aufweisen.

Allgemein lässt sich der Zustand eines Systems durch die Gruppe der Symmetrietransformationen charakterisieren, welche den Hamiltonoperator des Systems invariant lassen. Beim Übergang in einen Zustand höherer Ordnung, also geringerer Symmetrie, wird dieser Zustand durch eine Untergruppe der ursprünglichen Gruppe charakterisiert.

Für einen Normalleiter ist die Symmetriegruppe im allgemeinsten Fall gegeben durch das direkte Produkt aus der Symmetriegruppe des Kristallgitters  $G_{\text{Kristall}}$ , der Gruppe der Spin-Rotationen  $S$  der Gruppe der globalen Eichtransformationen  $U(1)$

und der Gruppe der Zeitumkehrtransformationen  $T$ :

$$G_{nl} = G_{Kristall} \times S \times U(1) \times T \quad (2.20)$$

Für konventionelle Supraleiter wird beim Übergang in die supraleitende Phase nur die globale Eichsymmetrie gebrochen, da die Phase des supraleitenden Ordnungsparameters  $\psi(\mathbf{r}) = |\psi(\mathbf{r})|e^{i\phi(\mathbf{r})}$  eine physikalische Bedeutung hat und daher eine Multiplikation mit einem globalen Phasenfaktor  $e^{i\phi_0}$  das System verändert. Materialien, bei denen zusätzlich zur Eichsymmetrie weitere Symmetrien gebrochen sind, werden als unkonventionelle Supraleiter bezeichnet, insbesondere wenn im supraleitenden Zustand nicht die volle Symmetrie des Kristallgitters erhalten bleibt.

In vielen Fällen reicht es aus, bei der Beschreibung der Supraleitung von einer einzelnen  $\text{CuO}_2$ -Ebene auszugehen, deren Symmetriegruppe im einfachsten Fall (ohne Berücksichtigung orthorhombischer Verzerrungen) der Symmetriegruppe des Quadrates  $C_{4v}$  entspricht. Gruppentheoretische Betrachtungen zeigen, dass sich die möglichen Symmetrien für einen Singlett-Supraleiter in diesem Fall durch die Eigenwerte der Spiegelung an der  $[100]$ -Achse und der Drehung um  $\pi/2$  um die  $[001]$ -Achse charakterisieren lassen [Annett95], die jeweils die Werte  $-1$  und  $+1$  annehmen können. Die vier resultierenden Kandidaten für die Symmetrie des Ordnungsparameters im supraleitenden Zustand sind in Abbildung 2.2 illustriert. Dabei repräsentiert jede der vier Teilabbildungen Untergruppe derjenigen Transformationen aus der Symmetriegruppe des Quadrates, die das jeweils dargestellte Quadrat in sich selbst überführen. Die Bezeichnungen lehnen sich an die Nomenklatur für Atomorbitale entsprechender Symmetrie an.

Eine vollständige Auflistung der möglichen Ordnungsparameter für die bei den Kuprat-Supraleitern auftretenden Kristallstrukturen findet sich in [Annett96]. Einige dieser Symmetrien des Ordnungsparameters bzw. der Energielücke werden in Abbildung 2.3 illustriert, wobei sich die Darstellung an die Behandlung in [Harlingen95] und [Tsuei00a] anlehnt. Außerdem werden die funktionalen Zusammenhänge  $\Delta(k)$  für die einzelnen Symmetrien in Abbildung 2.3 zusammengefasst. Dabei sind  $k_x$  und  $k_y$  die Komponenten des Wellenvektors in der Brioullin-Zone,  $a$  ist die Gitterkonstante der  $ab$ -Ebene.

Während klassische Supraleiter sich durch eine Energielücke mit isotroper  $s$ -Wellen-Symmetrie charakterisieren lassen, werden für Hochtemperatursupraleiter im Wesentlichen eine  **$d$ -Wellen Symmetrie**, eine **anisotrope  $s$ -Wellen Symmetrie** oder eine reelle bzw. komplexe Mischung der verschiedenen Symmetrien diskutiert. Hauptkennzeichen der  $d$ -Wellen-Symmetrie ist ein Vorzeichenwechsel bei einer Rotation um  $\pi/2$  im reziproken Raum, was einem Phasenunterschied von  $\pi$  entspricht. Längs der  $[110]$ -Richtung verschwindet die Energielücke. Eine vollständige bzw. partielle Unterdrückung des Leitwertes längs dieser Richtung tritt jedoch auch bei anisotroper  $s$ -Wellen-Symmetrie auf, wobei das Ausmaß der Unterdrückung durch den Parameter  $\gamma$  in der entsprechenden Formel auf Abbildung 2.3 bestimmt wird. Der Nachweis von Nullstellen in der Energielücke längs bestimmter Richtungen reicht

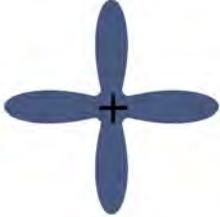
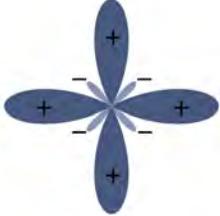
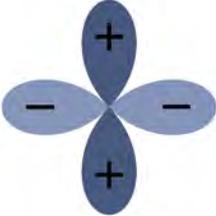
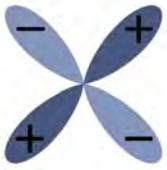
Name	schematische Darstellung von $\Delta(\mathbf{k})$ in der 1. BZ	$\Delta(\mathbf{k})$
s-Welle		$\Delta_0$
anisotrope s-Welle		$\Delta_0 [(\cos k_x a - \cos k_y a)^4 + \gamma]$
erweiterte s-Welle		$\Delta_0 [(1 + \gamma)^2 (\cos k_x a - \cos k_y a)^2 - \gamma^2]$
g-Welle		$\Delta_0 [\sin 2k_x a \sin 2k_y a - \sin 2k_y a \sin 2k_x a]$
$d_{x^2-y^2}$ -Welle		$\Delta_0 [\cos k_x a - \cos k_y a]$
$d_{xy}$ -Welle		$\Delta_0 \sin k_x a \sin k_y a$

Abbildung 2.3: Energielücke als Funktion des Wellenvektors für verschiedene Symmetrien des Ordnungsparameters nach [Harlingen95] und [Tsuei00a]

also nicht als Unterscheidungskriterium zwischen  $d$ - und anisotroper  $s$ -Wellen Symmetrie.

Experimente zur Bestimmung der Symmetrie des Ordnungsparameters lassen sich einteilen in amplituden- und phasensensitive Experimente. Einige der amplitudensensitiven Experimente wie die Untersuchung der Temperaturabhängigkeit der Eindringtiefe oder der spezifischen Wärme können die Existenz von Anregungen sehr nahe an  $E = 0$  und damit indirekt Nullstellen in der Energielücke nachweisen während andere Techniken wie die winkelaufgelöste Photoemissions-Spektroskopie (ARPES)<sup>1</sup> die direkte Bestimmung der Abhängigkeit der Amplitude von  $\Delta$  von der Richtung im reziproken Raum erlauben. Wie oben erläutert ist es zur eindeutigen Unterscheidung zwischen  $d$ - und anisotroper  $s$ -Wellen Symmetrie jedoch notwendig, Informationen über das Vorzeichen und somit über die Phase des Ordnungsparameters bzw. der Energielücke zu erhalten. Die meisten phasensensitiven Experimente beruhen auf dem Josephson-Effekt, wobei eine Struktur aus Josephson-Kontakten in geeigneter geometrischer Anordnung untersucht wird, um den Unterschied in der Phase des Ordnungsparameters längs bestimmter Richtungen im  $k$ -Raum zu identifizieren. Eine Übersicht über die verschiedenen experimentellen Techniken und ihre Ergebnisse für die Kuprat-Supraleiter wird zum Beispiel in [Tsuei00a] gegeben. In den Abschnitten 3.5.5 und 3.5.6 wird genauer erläutert, warum die Tunnelspektroskopie, die zunächst als rein amplitudensensitive Methode verstanden wurde, Informationen über Vorzeichenwechsel im Ordnungsparameter liefern kann.

Während für lochdotierte Hochtemperatur-Supraleiter sowohl aufgrund von amplituden- als auch von phasensensitiven Experimenten weitgehend Einigkeit über die  $d$ -Wellen-artigen Symmetrie des Ordnungsparameters besteht, ist die Situation bei elektronendotierten Kupraten etwas weniger eindeutig [Tsuei00a, und Referenzen darin]. Zahlreiche amplitudensensitive Experimente lassen auf eine Anisotropie der Energielücke bzw. des Ordnungsparameters schließen, einige phasensensitive Experimente wie SQUID-Messungen [Chesca03] oder das berühmte Trikristall-Experiment [Tsuei00b] deuten auf eine  $d$ -Wellen-artige Symmetrie hin. In Leitwertsspektren an Kontakten aus elektronendotierten Kupraten niedriger Transparenz werden jedoch mit wenigen Ausnahmen nie die Nullspannungsanomalien beobachtet, die in nahezu allen Kontakten aus lochdotierten Materialien auftreten und als Anzeichen für einen Vorzeichenwechsel des Ordnungsparameters gewertet werden.

In einigen Eigenschaften elektronendotierter Hochtemperatur-Supraleiter werden qualitative Unterschiede zwischen dem Verhalten unter- und überdotierter Proben beobachtet, die als Anzeichen für einen Übergang zwischen supraleitenden Zuständen mit verschiedenen Symmetrien des Ordnungsparameters bei optimaler Dotierung interpretiert werden, so in der Form von Leitwertsspektren an Punktkontakten hoher Transparenz (jedoch nicht bei Kontakten im Tunnel-Limit!)[Biswas02, Qazilbash03] sowie in der Temperatur-Abhängigkeit der Eindringtiefe[Skinta02]. Dabei wird ein Übergang zwischen  $d$ -Wellen Symmetrie bei kleinen Dotierungen und  $s$ -Wellen-

---

<sup>1</sup>angle resolved photoemission spectroscopy

Symmetrie bzw. einer Misch-Symmetrie der Form  $d + is$  bei großen Dotierungen vorgeschlagen.

### 2.2.1 Zustandsdichte

Bei den meisten amplitudensensitiven Experimenten wird direkt oder indirekt die Form der Zustandsdichte  $N(E)$  insbesondere nahe  $E = 0$  untersucht. Allgemein ist der Zusammenhang zwischen der Energielückenfunktion  $\Delta(\mathbf{k})$  und der reduzierten Zustandsdichte  $n(E) = N_{sl}(E)/N_{nl}$  eines Supraleiters durch

$$n(E) = \left\langle \Re \left( \frac{E}{\sqrt{E^2 - \Delta^2(\mathbf{k})}} \right) \right\rangle \quad (2.21)$$

gegeben, wobei die Klammern  $\langle \rangle$  für eine Mittelung über die Fermifläche stehen. Alle Energien werden relativ zur Fermienergie gemessen. Weiterhin wird von einer konstanten Zustandsdichte  $N_{nl}(E) = N_{nl}$  im normalleitenden Zustand ausgegangen. Für einen  $s$ -Wellen Supraleiter ergibt sich so für die reduzierte Zustandsdichte

$$n_s(E) = \Re \left( \frac{E}{\sqrt{E^2 - \Delta^2}} \right) = \begin{cases} 0 & \text{für } x \leq 1 \\ \frac{x}{\sqrt{x^2 - 1}} & \text{für } x > 1 \end{cases} \quad (2.22)$$

mit  $x = E/\Delta$ . Die reduzierte Zustandsdichte eines  $d$ -Wellen-Supraleiters mit zylindrischer Fermifläche ist durch

$$\begin{aligned} n_d(E) &= \frac{2}{\pi} \int_0^{\pi/2} d\theta \Re \left( \frac{E}{\sqrt{E^2 - \Delta^2 \cos^2(2\theta)}} \right) \\ &= \begin{cases} \frac{2}{\pi} x K(x) & \text{für } x \leq 1 \\ \frac{2}{\pi} K(x^{-1}) & \text{für } x > 1 \end{cases} \end{aligned} \quad (2.23)$$

gegeben. Dabei ist  $K(x)$  das vollständige elliptische Integral erster Art [Won94]. Wie im folgenden Kapitel gezeigt wird, führen die Singularitäten bei den Zustandsdichten (2.21) und (2.21) für  $|E| = \Delta$  auch bei den Leitwertkurven für Tunnelkontakte bei solchen Supraleitern zu Singularitäten. In Experimenten werden jedoch anstelle dieser Singularitäten endliche Extrema beobachtet. R. C. Dynes, V. Narayanamurti und J. P. Garno schlagen vor, diese Verrundungen durch eine endliche Lebensdauer  $\tau$  der Quasiteilchen zu erklären und diese Effekte zu berücksichtigen, indem die Energie  $E$  um einen imaginären Anteil  $i\Gamma$  ergänzt wird, der mit der Lebensdauer  $\tau$  über die Unschärferelation zusammenhängt, also

$$E \rightarrow E + i\Gamma = E + i\hbar/\tau \quad (2.24)$$

[Dynes78]. Der Parameter  $\Gamma$  wird im folgenden kurz als Dynes-Parameter bezeichnet. In den Teilabbildungen 2.4(a) und (b) werden die Zustandsdichten eines  $s$ -

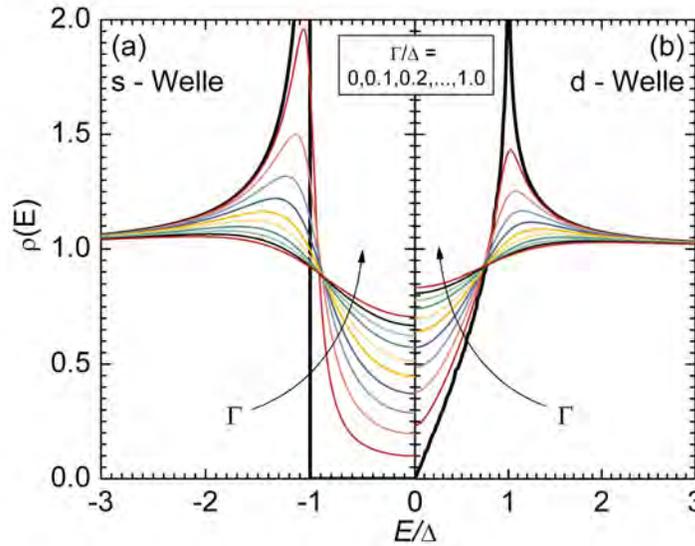


Abbildung 2.4: Reduzierte Zustandsdichten eines  $s$ - (a) bzw.  $d$ -Wellen Supraleiters (b) mit Dynes-Verschmierung nach (2.21)-(2.24) für unterschiedliche Parameter  $\Gamma$ .

bzw.  $d$ -Wellen-Supraleiters für verschiedene Werte des Dynes-Parameters einander gegenübergestellt. Die Skalierung der vertikalen Achsen ist für beide Teilabbildungen identisch. Die Kurven ohne Dynes-Verschmierung ( $\Gamma = 0$ ) sind in Abbildung 2.4 als dickere Linien dargestellt. Wie diese Kurven zeigen, entsteht für  $s$ -Wellen-Supraleiter eine verbotene Zone der Breite  $2\Delta$  symmetrisch um die Fermi-Energie, während für  $d$ -Wellen-Supraleiter Anregungen beliebig kleiner Energie möglich sind. Für kleine Energien ( $|E/\Delta| \ll 1$ ) verläuft die Zustandsdichte annähernd linear. Die Pfeile in Abbildung 2.4 deuten die Entwicklung der Kurven mit zunehmendem Wert für  $\Gamma$  an. Dabei ist festzuhalten, dass bei einem  $d$ -Wellen-Supraleiter der gleiche Dynes-Parameter eine deutlich größere Verrundung in der Zustandsdichte erzeugt, als bei einem  $s$ -Wellen-Supraleiter, was auf die endliche Zustandsdichte für  $d$ -Wellen-Supraleiter im Bereich der Energielücke zurückzuführen ist.

## 2.3 Pseudolücke

Unter der Bezeichnung *Pseudolücke* (pseudogap) versteht man eine Reduktion der Zustandsdichte in einem Energiebereich  $\Delta^*$  um die Fermienergie, die unterhalb einer charakteristischen Temperatur  $T^*$  im Normalzustand von Hochtemperatursupraleitern im Dotierungsbereich etwa bis zur optimalen Dotierung beobachtet wird. Die

Vorsilbe („Pseudo“) ist dabei darauf zurückzuführen, dass die Energielücke nur in bestimmten Regionen der Fermifläche auftritt. Mit zunehmender Dotierung werden diese Regionen kleiner, wodurch der Charakter des Materials metallischer wird [Timusk99].

Die Reduktion der Zustandsdichte kann durch eine Vielzahl spektroskopischer Techniken untersucht werden, so etwa Tunnelspektroskopie, ARPES, optische Spektroskopie, Raman-Streuung, NMR oder magnetische Neutronen-Streuung, außerdem lassen sich durch Messungen des elektrischen Widerstands oder der spezifischen Wärme Informationen über Eigenschaften der Pseudolücke gewinnen. Eine Übersicht über die verschiedenen Techniken und die damit erzielten Ergebnisse wird zum Beispiel in [Timusk99, Norman05] gegeben. Aktuelle Resultate der Tunnelspektroskopie, insbesondere Resultate von STM-Messungen werden in [Fischer07] zusammengefasst.

Genau genommen werden unter dem Begriff Pseudolücke Effekte im Normalzustand der Hochtemperatursupraleiter diskutiert, die auf verschiedenen Energieskalen auftreten, zum einen auf der Skala der supraleitenden Energielücke von wenigen meV, zum anderen bei Energien von einigen hundert meV, also auf der Skala der antiferromagnetischen Austauschwechselwirkung [Takahashi01]. Im Folgenden werden die Bezeichnungen kleine und große Pseudolücke für diese beiden Effekte verwendet. Die große Pseudolücke wird zum Beispiel in Messungen der optischen Leitfähigkeit nachgewiesen, sowohl in loch- als auch in elektronendotierten Systemen, allerdings in verschiedenen Regionen der Fermi-Fläche [Onose04]. Die kleine Pseudolücke wird vor allem in Tunnelspektren beobachtet. Für lochdotierte Materialien wie  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  entwickelt sich die Pseudolücke ohne erkennbaren Übergang mit steigender Temperatur aus der supraleitenden Energielücke, die unterhalb der kritischen Temperatur beobachtet wird [Renner98a]. Eine Besonderheit dieser Pseudolücke in Tunnelspektren besteht darin, dass sie auch für leicht überdotierte Proben auftritt. STM<sup>2</sup>-Messungen an  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  bei tiefen Temperaturen und endlichen Magnetfeldern zeigen darüberhinaus auch Anzeichen dieser Pseudolücke in Vortex-Kernen [Renner98b]. Bei elektronendotierten Materialien lässt sich in Tunnelspektren oberhalb der kritischen Temperatur kein Anzeichen einer entsprechenden kleinen Energielücke erkennen. Im Normalzustand bei kleinen Temperaturen, der für diese Materialklasse durch Anlegen eines Magnetfeldes in der Größenordnung von 10 T erreicht werden kann, wird jedoch eine Unterdrückung des Leitwerts auf der Skala der supraleitenden Energielücke beobachtet, die der in den lochdotierten Materialien für  $T > T_c$  auftretenden Struktur sehr ähnelt [Kleefisch01]. Das Verhalten dieser Struktur steht im Mittelpunkt der in Abschnitt 8.2 vorgestellten Untersuchungen.

Bezüglich der Ursache der Pseudolücken und ihres Zusammenhangs mit der Supraleitung existieren im Wesentlichen zwei Szenarien. Zum einen könnte die Pseudolücke Kennzeichen eines Zustandes sein, in dem die Ladungsträger bereits in Form

<sup>2</sup>scanning tunneling microscope - Rastertunnelmikroskop

von Paaren vorliegen, die dann bei Erreichen der kritischen Temperatur  $T_c$  Phasenkohärenz erlangen und so das supraleitende Kondensat bilden.  $\Delta^*$  ist in diesem Fall die Bindungsenergie der Ladungsträger-Paare. In diesem Sinn ist der Zustand des Materials zwischen der kritischen Temperatur  $T_c$  und der Pseudolücken-Temperatur  $T^*$  ein Vorläufer (precursor) der supraleitenden Phase. Die Entwicklung der Pseudolücke aus der supraleitenden Energielücke mit steigender Temperatur und die gleiche Symmetrie der beiden Lücken im reziproken Raum (für lochdotierte Systeme) werden in der Literatur als Hinweise auf dieses Erklärungsmodell gewertet.

Andererseits wird die Physik der Hochtemperatursupraleiter auch häufig im Rahmen eines Modells verschiedener konkurrierender Grundzustände bei tiefen Temperaturen diskutiert [Sachdev00]. So gibt es einige experimentelle Hinweise auf einen quantenkritischen Punkt knapp oberhalb der optimalen Dotierung, also einen Phasenübergang bei  $T = 0$ , sowohl für loch- [Tallon99, Uchida03] als auch für elektronendotierte Systeme [Qazilbash03, Zimmers05]. In diesem Zusammenhang könnte die Pseudolücke als Eigenschaft einer mit der Supraleitung konkurrierenden Phase interpretiert werden. Da bei elektronendotierten Materialien die antiferromagnetischen Korrelationen durch die Dotierung viel weniger stark unterdrückt werden, als bei den lochdotierten Verbindungen, bietet sich zum Beispiel die antiferromagnetische Phase an. Derzeit wird eine mögliche Koexistenz von Supraleitung und Antiferromagnetismus kontrovers diskutiert [Motoyama07, Matsuda92].

Eine der wichtigsten charakteristischen Größen bei der Untersuchung der Pseudolücke in Hochtemperatur-Supraleitern ist die Temperatur  $T^*$ , oberhalb der diese Struktur verschwindet. Insbesondere ist es interessant, die Dotierungsabhängigkeit  $T^*(x)$  zu klären und auf diese Weise das Phasendiagramm der untersuchten Materialien um die entsprechende  $T^*(x)$ -Kurve zu ergänzen. Der Vergleich von Position und Verlauf der  $T^*(x)$ -Kurve und der  $T_c(x)$ -Kurve im Phasendiagramm ermöglicht wichtige Schlussfolgerungen bezüglich der Natur der Pseudolücke. Verläuft die  $T^*(x)$ -Kurve beispielsweise unterhalb der  $T_c(x)$ -Kurve, so kann der Zustand, in dem die Pseudolücke auftritt, kein Vorläufer der supraleitenden Phase sein.

# Kapitel 3

## Theorie der Tunnelspektroskopie

In den folgenden Abschnitten werden einige grundlegende Modelle für den Stromtransport über eine Potentialbarriere beschrieben. Bestehen, wie bei den hier untersuchten Korngrenzenkontakten, beide Elektroden des betrachteten Kontaktes aus supraleitenden Materialien, so setzt sich der Tunnelstrom prinzipiell additiv aus dem Beitrag der Quasiteilchen  $I_{qt}(V)$  und dem Beitrag der Cooper-Paare  $I_{cp}(V)$  zusammen, wobei das Tunneln von Cooper-Paaren durch die Josephson-Gleichungen

$$I_{cp}(V) = I_c \sin \phi \quad (3.1)$$

$$\partial_t \phi = 2e/\hbar V \quad (3.2)$$

beschrieben wird.  $\phi$  ist die Phasendifferenz der Ordnungsparameter für die beiden Elektroden,  $I_c$  der kritische Strom des untersuchten Kontaktes. Das Symbol  $\partial_t$  bezeichnet die partielle Ableitung nach der Zeit  $t$ . Aufgrund der niedrigen kritischen Stromdichten und des verwendeten Messaufbaus, spielen Josephson-Effekte für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Kontakte jedoch praktisch keine Rolle (vgl Abschnitt 8.1), so dass der Beitrag der Cooper-Paare zum Tunnelstrom vernachlässigt werden kann. Daher beschränken sich die folgenden Erläuterungen auf das Tunneln von Quasiteilchen.

### 3.1 Semi-Phänomenologisches Modell

Gegeben seien zwei Tunnelelektroden, die über eine dünne isolierende Barriere voneinander getrennt sind, wie in Abbildung 3.1 schematisch dargestellt ist. Die Barriere wird durch ein Barrierenpotential  $\phi(V, x)$  beschrieben, wobei  $V$  die zwischen den beiden Tunnelelektroden anliegende Spannung ist. Im thermischen Gleichgewicht wird die Besetzung der Zustände in Elektrode  $i$  ( $i = 1, 2$ ) bei der Temperatur  $T$  durch die Fermi-Funktion  $f_T(E_i, \mu_i) = [\exp((E_i - \mu_i)/k_B T) + 1]^{-1}$  beschrieben. Dabei ist  $\mu_i$  die Fermi-Energie der jeweiligen Elektrode und  $k_B$  die Boltzmann-Konstante. Im folgenden treffen wir die Konvention, dass das Anlegen einer positiven Spannung  $V$

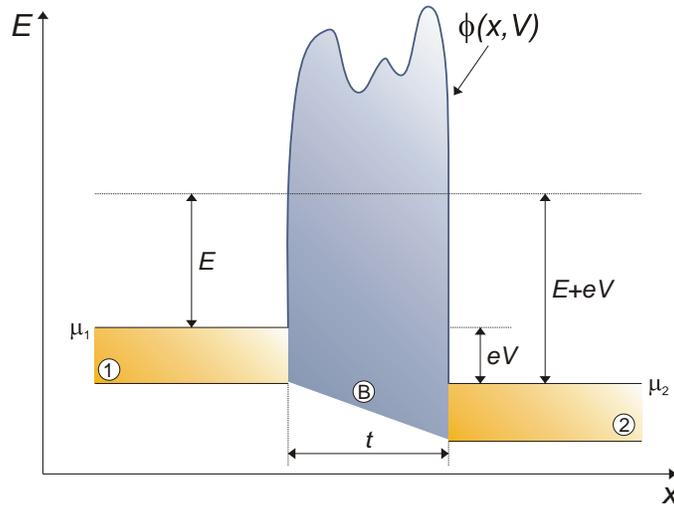


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung eines Tunnelkontaktes bei einer zwischen den Elektroden anliegenden Spannung  $V$

die rechte Elektrode energetisch um  $eV$  absenkt, so dass  $\mu_1 - \mu_2 = eV$ . Weiterhin werden alle Energien relativ zur Fermi-Energie von Elektrode 1 gemessen. Damit gilt

$$f_T(E_1, \mu_1) = [\exp(E/k_B T) + 1]^{(-1)} \equiv f(E), \quad (3.3)$$

$$f_T(E_2, \mu_2) = [\exp(E + eV/k_B T) + 1]^{(-1)} \equiv f(E + eV). \quad (3.4)$$

Der Beitrag von Ladungsträgern der Energie  $E$  zum Strom von Elektrode 1 zur Elektrode 2 ist proportional zur Anzahl der besetzten Zustände in Elektrode 1, also  $N_1(E)f(E)$ , sowie zur Anzahl der unbesetzten Zustände in Elektrode 2, also  $N_2(E + eV)(1 - f(E + eV))$ . Weiterhin muss dieser Beitrag zum Tunnelstrom noch mit einer Tunnelwahrscheinlichkeit  $P(E, V)$  gewichtet werden, die im wesentlichen durch die Eigenschaften der Barriere bestimmt wird. Der Gesamt-Tunnelstrom ergibt sich somit durch Integration über alle Energien und Subtraktion des entgegengesetzt gerichteten Tunnelstromes zu

$$I(V) = A \cdot \int_{-\infty}^{\infty} dE P(E, V) N_1(E) N_2(E + eV) [f(E) - f(E + eV)]. \quad (3.5)$$

Dabei gehen in den konstanten Vorfaktor  $A$  außer Naturkonstanten nur die Abmessungen des Tunnelkontaktes ein. In der Literatur wird (3.5) auch häufig in der Form

$$I(V) = A \cdot \int_{-\infty}^{\infty} d\tilde{E} \tilde{P}(\tilde{E}, V) N_1(\tilde{E} - eV) N_2(\tilde{E}) [f(\tilde{E} - eV) - f(\tilde{E})]. \quad (3.6)$$

dargestellt, die aus (3.5) durch die Substitution  $E \rightarrow \tilde{E} = E + eV$  mit  $P(E, V) = P(\tilde{E} - eV, V) = \tilde{P}(\tilde{E}, V)$  hervorgeht.

## 3.2 WKB-Näherung

Die tunnelnden Elektronen werden durch Wellenfunktionen  $\psi = \psi(\mathbf{r}, t)$  beschrieben, die sich als Lösungen der Schrödinger-Gleichung

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi = -\frac{\hbar}{2m} \nabla^2 \psi + V(\mathbf{r})\psi \quad (3.7)$$

ergeben. Im folgenden beschränkt sich die Darstellung auf ein eindimensionales Problem. Ist in diesem Fall das Potential  $V(x)$  abschnittsweise konstant ( $\phi(x) = \phi^{(j)}$  für  $x_j < x < x_{j+1}$ ,  $j = 1..n$ ), so lassen sich die Wellenfunktionen in den einzelnen Gebieten durch ebene Wellen oder Exponentialfunktionen beschreiben, je nachdem ob die Energie größer oder kleiner ist, als das Potential im betrachteten Gebiet, also durch Funktionen der Form

$$\psi^{(j)} = A^{(j)} e^{ikx} + B^{(j)} e^{-ikx} \text{ mit } k = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (E - \phi^{(j)})} \text{ für } E > \phi^{(j)}, \quad (3.8)$$

beziehungsweise

$$\psi^{(j)} = A^{(j)} e^{\kappa x} + B^{(j)} e^{-\kappa x} \text{ mit } \kappa = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (\phi^{(j)} - E)} \text{ für } E < \phi^{(j)}. \quad (3.9)$$

Dabei werden die Koeffizienten  $A^{(j)}, B^{(j)}$  durch die Randbedingungen bestimmt, denen zufolge sowohl die Wellenfunktion, als auch deren Ableitung an endlichen Potentialsprüngen stetig verlaufen. Ist der Verlauf des Barrierenpotentials nicht abschnittsweise konstant, wie zum Beispiel in Abbildung 3.1 dargestellt, so können verschiedene Näherungsverfahren zur Bestimmung der Wellenfunktionen angewendet werden. Eines der wichtigsten dieser Verfahren, ist die nach Wentzel, Kramer und Brioullin benannte WKB-Näherung [Schiff68]. Dabei wird folgender Ansatz für die Wellenfunktion gewählt

$$\psi(x, t) = A e^{\frac{i}{\hbar} W(x, t)}. \quad (3.10)$$

Durch Einsetzen in die Schrödinger-Gleichung (3.7) ergibt sich folgende Differentialgleichung für  $W(x, t)$ .

$$\frac{\partial}{\partial t} W + \frac{1}{2m} (\nabla W)^2 - \frac{i\hbar}{2m} \nabla^2 W + \phi(x) = 0. \quad (3.11)$$

Im klassischen Grenzfall ( $\hbar \rightarrow 0$ ) ist dies genau die Hamilton-Jacobi Gleichung. Für ein konservatives System lassen sich der ort- und der zeitabhängige Teil der Wellenfunktion separieren

$$\psi(x, t) = u(x) \cdot e^{-\frac{i}{\hbar} Et} \quad (3.12)$$

Für den Ansatz (3.10) ergibt sich somit

$$W(x, t) = S(x) - Et. \quad (3.13)$$

Die Funktion  $S(x)$  muss demnach der Differentialgleichung

$$i\hbar S'' - S'^2 + 2m[E - \phi(x)] = 0 \quad (3.14)$$

genügen.<sup>1</sup> Die Idee der WKB-Näherung ist nun, die Funktion  $S$  bis zur ersten Ordnung in Potenzen von  $\hbar$  zu entwickeln ( $S = S_0 + \hbar S_1 + \dots$ ), diese Entwicklung in Gleichung (3.14) einzusetzen und jeweils die Koeffizienten von gleichen Potenzen von  $\hbar$  gleichzusetzen. Damit ergeben sich die Differentialgleichungen

$$S_0'^2 - 2m(E - \phi) = 0, \quad (3.15)$$

$$iS_0'' - 2S_0'S_1' = 0, \quad (3.16)$$

$$iS_1'' - S_1'^2 = 0. \quad (3.17)$$

$$(3.18)$$

$S_0$  und  $S_1$  lassen sich durch elementare Integration bestimmen. Setzt man

$$2m(E - \phi(x)) = \begin{cases} \hbar^2 k^2(x) & \text{falls } E > \phi(x) \\ -\hbar^2 \kappa^2(x) & \text{falls } E < \phi(x) \end{cases}, \quad (3.19)$$

so ergibt sich für den ortsabhängigen Teil der Wellenfunktion

$$u(x) = \begin{cases} \frac{A}{\sqrt{k}} e^{i \int_{x_0}^x k(\tilde{x}) d\tilde{x}} & \text{falls } E > \phi(x) \\ \frac{A}{\sqrt{\kappa}} e^{\int_{x_0}^x \kappa(\tilde{x}) d\tilde{x}} & \text{falls } E < \phi(x). \end{cases} \quad (3.20)$$

Die auf diese Weise konstruierten Wellenfunktionen sind also Näherungslösungen der Schrödinger-Gleichung, wobei diese Näherungen gut sind, solange das Potential so langsam variiert, dass der Impuls des Teilchens über einige die Broglie-Wellenlängen praktisch konstant ist. An den klassischen Wendepunkten ( $E = \phi(x)$ ) bricht die Näherung zusammen.

### 3.3 Modelle des Tunnelns

Abbildung (3.2) stellt schematisch die beiden Vorstellungen über die Wellenfunktionen einander gegenüber, die den beiden wesentlichen Methoden zur genaueren Beschreibung des Tunnelstromes zugrunde liegen. Die linke Seite von Abbildung 3.2 zeigt den Typ von Wellenfunktion, die im Rahmen des *zeitunabhängigen* Ansatzes verwendet wird, um den Tunnelprozess zu beschreiben. Dabei ergibt sich

<sup>1</sup>Für Funktionen einer Variable bezeichnet das Symbol ' die Ableitung nach dieser Variable.

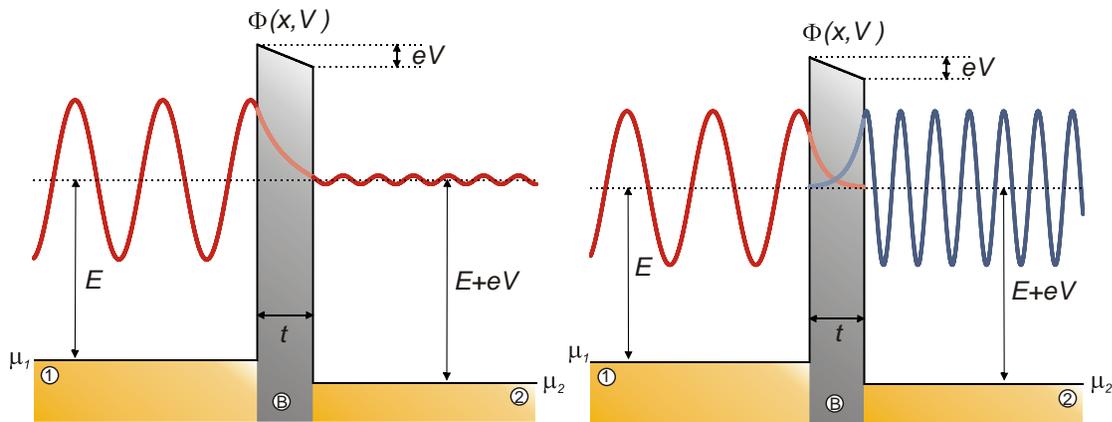


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung von Tunnelkontakten mit Wellenfunktionen, wie sie der zeitunabhängigen (links) und zeitabhängigen (rechts) Methode zugrunde liegen.

die Wellenfunktion als Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung für die gesamte Tunnelstruktur unter Beachtung der Randbedingungen. Wie weiter oben erläutert, hat diese Wellenfunktion in Elektrode 1 die Form einer Überlagerung von einer hin- und zurücklaufenden ebenen Welle mit Wellenvektor  $k$ , in der Barriere zerfällt sie exponentiell mit einer charakteristischen Länge  $1/\kappa$  und jenseits der Barriere hat sie wieder die Form einer ebenen Welle mit Wellenvektor  $q$ . Die Transmissionswahrscheinlichkeit ist in diesem Bild gegeben durch das Quadrat des Amplitudenverhältnisses der Wellenfunktionen vor und hinter der Barriere. Die rechte Seite von Abbildung 3.2 zeigt die Wellenfunktionen, die dem *zeitabhängigen* Ansatz zur Beschreibung des Tunnelstromes zugrunde liegen. Hierbei wird die Schrödingergleichung für die rechte und die linke Seite des Tunnelkontaktes separat gelöst, so dass die beiden dargestellten Wellenfunktionen erhalten werden, die nur im Bereich der Barriere überlappen. In diesem Bild wird die Transmissionswahrscheinlichkeit zwischen den durch die Wellenfunktionen repräsentierten Zustände durch diesen Überlapp gegeben.

### 3.3.1 Zeitunabhängiger Ansatz

Hier wird die Situation durch einen stationären Zustand beschrieben, mit dem über den Stromdichteoperator ein Teilchen- und damit ein Ladungsstrom verbunden ist. Wie zu Beginn von Abschnitt (3.2) erläutert, lässt sich für ein stufenförmiges Barrierenpotential eine exakte Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung aus Funktionen der Form (3.8) und (3.9) unter Beachtung der jeweiligen Randbedingungen konstruieren. Für ein beliebig geformtes Barrierenpotential  $\phi(x, V)$  ergeben sich asymptotische Lösungen der Form (3.20), die an den klassischen Wendepunk-

ten in geeigneter Weise fortgesetzt und verbunden werden müssen [Schiff68]. Gilt  $\phi(x) \gg E$  innerhalb der Barriere, so ist das Verhältnis der Amplituden vor und hinter der Tunnelbarriere im Wesentlichen gegeben durch das Verhältnis der Exponentialterme in Gleichung (3.20) für  $E > \phi(x)$  an den klassischen Wendepunkten der Bewegung. Damit ergibt sich für die Transmissionswahrscheinlichkeit als Quadrat des Amplitudenverhältnisses

$$P(E, V) = \left( \frac{e^{\int_{x_0}^{x_1} \kappa(x) dx}}{e^{\int_{x_0}^{x_2} \kappa(x) dx}} \right)^2 = e^{-2 \int_{x_1}^{x_2} \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (\phi(x, V) - E)} dx}. \quad (3.21)$$

Im folgenden soll ein Ausdruck für den Tunnelstrom durch einen dreidimensionalen Tunnelkontakt hergeleitet werden, dessen Barriere parallel zur  $yz$ -Ebene verläuft, wobei das Barrierenpotential nur längs der  $x$ -Richtung variiert. In diesem Fall lässt sich die Wellenfunktion zu

$$\psi_{3d}(x, y, z) = e^{i(k_y y + k_z z)} \cdot \psi(x) \quad (3.22)$$

ansetzen, wobei die Komponente des Wellenvektors parallel zur Grenzfläche, also  $k_{\parallel} = k_y \cdot \hat{\mathbf{y}} + k_z \cdot \hat{\mathbf{z}}$  wegen der Symmetrie des Problems beim Tunneln erhalten bleibt.  $\psi(x)$  lässt sich wiederum wie im eindimensionalen Fall bestimmen. Insbesondere hängt die Transmissionswahrscheinlichkeit in diesem Fall nur von dem Teil der kinetischen Energie ab, der mit der Impulskomponente senkrecht zur Tunnelbarriere verknüpft ist, also  $P(E, V) = P(E_x, V)$  mit  $E_x = \frac{\hbar^2}{2m} k_x^2$ .

Der Beitrag von Elektronen mit Impuls  $\mathbf{k} = k_x \hat{\mathbf{x}} + k_y \hat{\mathbf{y}} + k_z \hat{\mathbf{z}}$  und Energie  $E = \frac{\hbar^2}{2m} \mathbf{k}^2$  zum Tunnelstrom ist proportional zur Geschwindigkeitskomponente in  $x$ -Richtung  $v_x = \frac{1}{\hbar} \frac{dE_x}{dk_x}$ , zur Ladung  $e$  sowie zur Anzahl der verfügbaren Zustände pro Einheitsvolumen, die gegeben ist durch  $2 \cdot \frac{1}{(2\pi)^3} \cdot f_T(E, E_F) \cdot dk_x dk_y dk_z$ . Dabei resultiert der Vorfaktor 2 aus der Spinartung, der Faktor  $\frac{1}{(2\pi)^3}$  gibt die Zustandsdichte im  $k$ -Raum an. Darüberhinaus muss dieser Beitrag noch mit der Tunnelwahrscheinlichkeit  $P(E_x, V)$  nach (3.21) gewichtet werden. Insgesamt ergibt sich somit für den Gesamt-Tunnelstrom durch Integration über alle möglichen Impulszustände und Subtraktion des entgegengesetzt gerichteten Tunnelstromes :

$$I(V) = \frac{2e}{(2\pi)^3 \hbar} \int \int \int dk_x dk_y dk_z P(E_x, V) \frac{dE_x}{dk_x} (f_T(E, E_F) - f_T(E + eV, E_F)). \quad (3.23)$$

Dabei ist  $E_F$  die Fermienergie der linken Elektrode. Zur Integration über die  $k_y$ - $k_z$ -Ebene geht man über zu ebenen Polarkoordinaten

$$dk_y dk_z = k_{\parallel} dk_{\parallel} dk_{\phi}. \quad (3.24)$$

Da der Integrand in (3.23) nicht von  $k_{\phi}$  abhängt, liefert die Integration über  $k_{\phi}$  lediglich einen Faktor  $2\pi$  und nach Übergang zu einer neuen Integrationsvariable

$$E_{\parallel} = \frac{\hbar^2}{2m} (k_y^2 + k_z^2) = \frac{\hbar^2}{2m} k_{\parallel}^2 \quad (3.25)$$

vereinfacht sich der Ausdruck für den Tunnelstrom als Funktion der anliegenden Spannung zu

$$I(V) = \frac{2e}{(2\pi)^2} \frac{m}{\hbar^3} \int dE_x P(E_x, V) \int dE_{\parallel} (f_T(E, E_F) - f_T(E + eV, E_F)) \quad . \quad (3.26)$$

### 3.3.2 Zeitabhängiger Ansatz

Der zeitabhängige Ansatz zur Beschreibung von Tunnelprozessen nutzt aus, dass die isolierende Barriere eines Tunnelkontaktes die Subsysteme der beiden Tunnel Elektroden fast völlig entkoppelt. In diesem Fall lassen sich die beiden Elektroden durch getrennte Hamilton-Operatoren  $H_1$  und  $H_2$  beschreiben, so dass der Gesamt-Hamilton-Operator des Systems in 3 Summanden zerfällt gemäß

$$H = H_1 + H_2 + H_T \quad (3.27)$$

Dabei beschreibt der sogenannte Transfer-Hamilton-Operator  $H_T$  die Kopplung der beiden Subsysteme, in unserem Fall also das Tunneln von einer in die andere Elektrode. Dieser Ansatz des Transfer-Hamilton-Operators wurde bereits 1928 von J. R. Oppenheimer eingeführt, um die Ionisationsrate von Wasserstoff-Atomen in einem äußeren elektrischen Feld zu beschreiben [Oppenheimer28]. 1961 wurde dieser Ansatz von J. Bardeen im Zusammenhang mit den ersten Messungen von Giaever an supraleitenden Tunnelkontakten [Giaever60] wieder aufgegriffen [Bardeen61].

Dabei lässt sich die Tunnelrate mit Hilfe von Methoden der zeitabhängigen Störungstheorie erster Ordnung bestimmen. Die Goldene Regel von Fermi liefert so für die Übergangsrate zwischen einem Anfangszustand  $|\psi_i\rangle$  und einem Endzustand  $|\psi_f\rangle$  unter dem Einfluss einer kleinen Störung  $H_T$

$$\Gamma_{|\psi_i\rangle \rightarrow |\psi_f\rangle} = \frac{2\pi}{\hbar} \cdot |\langle \psi_f | H_T | \psi_i \rangle|^2 \cdot \delta(\varepsilon_i - \varepsilon_f). \quad (3.28)$$

Besonders einfach ist die Darstellung des Transfer-Hamiltonians in der Formulierung der zweiten Quantisierung [Cohen62]

$$H_T = \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{q}, \sigma} T_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma} c_{\mathbf{q}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{k}\sigma} + T_{\mathbf{k}\mathbf{q}\sigma}^* c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger c_{\mathbf{q}\sigma} \quad . \quad (3.29)$$

Dabei sind  $c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger$  und  $c_{\mathbf{k}\sigma}$  die üblichen Erzeugungs- bzw. Vernichtungs-Operatoren für Fermionen mit Impuls  $k$  und Spin  $\sigma$ . Der Index  $\mathbf{k}$  beziehe sich im Folgenden stets auf Zustände in Elektrode 1, der Index  $\mathbf{q}$  auf Zustände in Elektrode 2. Der erste Summand in (3.29) beschreibt demzufolge den Transfer eines Quasiteilchens von Elektrode 1 nach Elektrode 2, wobei der Impuls von  $\mathbf{k}$  nach  $\mathbf{q}$  gestreut wird; der zweite Summand beschreibt den umgekehrten Prozess. Da nur spinerhaltende Prozesse betrachtet werden sollen, kann der Index  $\sigma$  im Folgenden weggelassen werden.

$|\mathbf{k} = 1\rangle \otimes |\mathbf{q} = 0\rangle$  bezeichne den Zustand, in dem der Zustand  $\mathbf{k}$  in Elektrode 1 besetzt, der Zustand  $\mathbf{q}$  in Elektrode 2 unbesetzt ist. Dann gilt

$$(\langle \mathbf{q} = 1 | \otimes \langle \mathbf{k} = 0 |) |H_T| (|\mathbf{k} = 1\rangle \otimes |\mathbf{q} = 0\rangle) = T_{kq}. \quad (3.30)$$

In dieser Darstellung lautet Fermis Goldene Regel

$$\Gamma_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{q}} = \frac{2\pi}{\hbar} \cdot |T_{\mathbf{k}\mathbf{q}}|^2 \cdot \delta(\varepsilon_{\mathbf{k}} - \varepsilon_{\mathbf{q}}). \quad (3.31)$$

Der Tunnelstrom von Elektrode 1 nach Elektrode 2 ergibt sich durch Multiplikation mit der Ladung und Integration über alle möglichen Ausgangs- und Endzustände.

$$I_{1 \rightarrow 2} = e \cdot \sum_{\mathbf{k}, \mathbf{q}} \Gamma_{\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{q}}. \quad (3.32)$$

Liegt zwischen den Elektroden eine Spannung  $V$  an, so lässt sich der Tunnelstrom mit den in Abschnitt 3.1 erläuterten Konventionen durch das Integral

$$I(V)_{1 \rightarrow 2} = \frac{4\pi e}{\hbar} \int \int d\varepsilon_k d\varepsilon_q N_1(\varepsilon_k) N_2(\varepsilon_q + eV) f(\varepsilon_k) [1 - f(\varepsilon_q + eV)] \cdot |T_{\mathbf{k}\mathbf{q}}|^2 \delta(\varepsilon_k - \varepsilon_q) \quad (3.33)$$

ausdrücken. Beim Übergang von der Summen- zur Integraldarstellung müssen dabei wieder die jeweiligen Zustandsdichten und Verteilungsfunktionen berücksichtigt werden. Weiterhin geht an dieser Stelle die Näherung ein, dass das Betragsquadrat des Tunnel-Matrixelementes  $|T_{\mathbf{k}\mathbf{q}}|^2$  nur von den Energien  $\varepsilon_{\mathbf{k}}, \varepsilon_{\mathbf{q}}$  der betreffenden Zustände abhängt. Integration über  $\varepsilon_q$  und Subtraktion des entgegengesetzt gerichteten Stromes liefert schließlich

$$I(V) = \frac{4\pi e}{\hbar} \int d\varepsilon |T|^2 N_1(\varepsilon) N_2(\varepsilon + eV) [f(\varepsilon) - f(\varepsilon + eV)]. \quad (3.34)$$

In Abschnitt 2.1 wurde gezeigt, dass es sich bei den Anregungen eines Supraleiters um Bogoliubonen, also um spezielle Linearkombinationen aus elektronen- und lochartigen Zuständen handelt. Prinzipiell sind also für supraleitende Elektroden die Operatoren  $c_{\mathbf{k}\sigma}$  und  $c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger$  durch die Erzeugungs- und Vernichtungsoperatoren für Bogoliubonen gemäß (2.9) und (2.10) auszudrücken. Damit gehen zunächst die Kohärenzfaktoren  $\nu_{\mathbf{k}}$  und  $\nu_{\mathbf{k}}$  in den Ausdruck für den Transfer-Hamiltonian ein. Am Beispiel eines Supraleiter-Normalleiter-Kontaktes lässt sich jedoch zeigen, dass die Kohärenzfaktoren letztendlich aus der Formel zur Berechnung des Tunnelstromes herausfallen. Dazu betrachtet man den Beitrag, den die Injektion eines Elektrons mit Energie  $E$ , Impuls  $\mathbf{k}$  und Spin  $\uparrow$  aus einer normalleitenden Elektrode in einen Zustand gleicher Energie und Spinrichtung mit Impuls  $\mathbf{q}$  in die supraleitende Elektrode im Grundzustand leistet, wobei für die Energielücke des Supraleiters  $\Delta < E$  gelten

soll. Der diesen Übergang beschreibende Teil des Transfer-Hamilton-Operators ist gegeben durch

$$T_{\mathbf{k}\mathbf{q}\uparrow}v_{\mathbf{q}}\gamma_{\mathbf{q}0}^{\dagger}c_{\mathbf{k}\uparrow} + T_{\mathbf{k}\mathbf{q}\uparrow}v_{\mathbf{q}}^*\gamma_{\mathbf{q}1}c_{\mathbf{k}\uparrow}. \quad (3.35)$$

Der Vernichtungsoperator  $\gamma_{\mathbf{q}1}$ , angewendet auf den supraleitenden Grundzustand, liefert einen Beitrag von Null, so dass nur der erste Summand betrachtet werden muss. Gemäß Fermis Goldener Regel liefert dieser erste Summand einen Beitrag von

$$|T_{\mathbf{k}\mathbf{q}\uparrow}|^2 \cdot |v_{\mathbf{q}}|^2 \quad (3.36)$$

zum Tunnelstrom. Jeder Energiewert ist nach Gleichung (2.12) vierfach entartet. Insbesondere existiert eine Wellenzahl  $\tilde{\mathbf{q}}$  mit  $E_{\tilde{\mathbf{q}}} = E_{\mathbf{q}}$  und  $\xi_{\tilde{\mathbf{q}}} = -\xi_{\mathbf{q}}$ . Wie Gleichung (2.11) zeigt, gilt in diesem Fall  $v_{\tilde{\mathbf{q}}} = v_{\mathbf{q}}$ . Unter der Annahme, dass das Tunnel-Matrixelement nur von der Energie der beteiligten Zustände abhängt, liefern die Übergänge  $\mathbf{k} \rightarrow \mathbf{q}$  und  $\mathbf{k} \rightarrow \tilde{\mathbf{q}}$  zusammen einen Beitrag von

$$|T_{\mathbf{k}\mathbf{q}\uparrow}|^2|v_{\mathbf{q}}|^2 + |T_{\mathbf{k}\tilde{\mathbf{q}}\uparrow}|^2|v_{\tilde{\mathbf{q}}}|^2 = |T(E)|^2 (|v_{\mathbf{q}}|^2 + |v_{\tilde{\mathbf{q}}}|^2) = |T(E)|^2 \quad (3.37)$$

zum Tunnelstrom. Auf diese Weise hängt der Tunnelstrom schließlich doch nicht von den Kohärenzfaktoren ab. Beim Übergang von der Summendarstellung (3.32) zur Integraldarstellung (3.33) dürfen daher auch für supraleitende Elektroden die Zustandsdichten elektronen- und lochartiger Anregungen gleicher Energie zusammengefasst werden, so dass auch in diesem Fall der Tunnelstrom durch Gleichung (3.34) beschrieben wird. Normal- und Supraleiter unterscheiden sich in diesem Bild nur durch ihre Zustandsdichten, weswegen es auch als *Halbleiter-Modell* bezeichnet wird.

Die Form der resultierenden Strom-Spannungs-Kennlinie hängt natürlich empfindlich von den Eigenschaften des Matrix-Elementes ab. Für Tunnelkontakte mit wenigstens einer supraleitenden Elektrode konnte Bardeen begründen, dass das Matrix-Element als Konstante betrachtet werden darf [Bardeen61]. Damit hängt die Strom-Spannungs-Kennlinie wesentlich von der Zustandsdichte der Anregungen im Supraleiter ab. Auf der anderen Seite konnte Harrison für das Tunneln zwischen zwei Systemen unabhängiger Teilchen zeigen, dass das Matrixelement invers proportional zu den jeweiligen Zustandsdichten ist, so dass in diesem Fall der Tunnelstrom nicht mehr von den Zustandsdichten der Tunnelelektroden beeinflusst wird [Harrison61]. Abgesehen von diesen Extremfällen der alleinigen Abhängigkeit der Strom-Spannungs-Kennlinie von den Zustandsdichten der Tunnelelektroden auf der einen und der völligen Unabhängigkeit von den Zustandsdichten auf der anderen Seite gibt es je nach betrachtetem System verschiedene komplexere Zusammenhänge zwischen Kennlinie und Zustandsdichte, so dass im Allgemeinen der Zusammenhang zwischen Zustandsdichte und Strom-Spannungs-Kennlinie kritisch diskutiert werden muss.

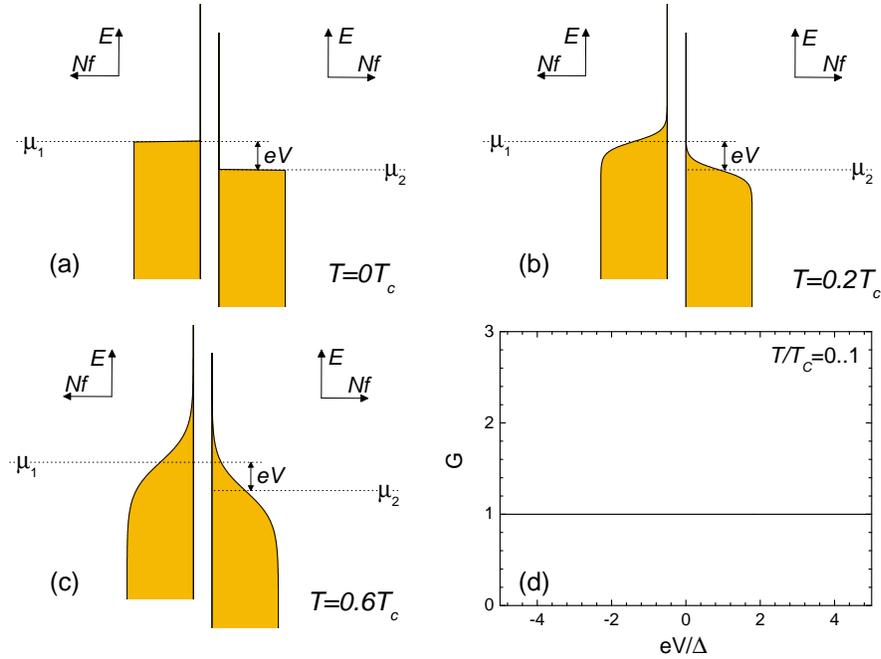


Abbildung 3.3: Energie-Besetzungszahl-Diagramme für einen NIN-Kontakt bei  $T = 0$  (a),  $T = 0.2T_c$  (b) und  $T = 0.6T_c$  (c) sowie gemäß (3.39) berechnete Leitwertsspektren für verschiedene Temperaturen (d)

### 3.4 Beschreibung einfacher Tunnelkontakte

Im folgenden soll gezeigt werden, wie grundlegende Charakteristika von an sehr einfachen, planaren Tunnelstrukturen aufgenommenen Leitwertsspektren schon mit Hilfe des in Abschnitt 3.1 beschriebenen, semi-phänomenologischen Modells verstanden werden können.

Bestehen beide Tunnel-Elektroden aus Normalleitern, so spricht man von einem NIN-Kontakt. Hier können die Zustandsdichten der Elektroden für Energien nahe der Fermi-Energie als Konstanten  $N_1, N_2$  angenommen werden. Lässt sich ferner die Tunnelwahrscheinlichkeit  $P(E, V)$  ebenfalls als Konstante betrachten, so reduziert sich Gleichung (3.5) auf

$$I(V) = A \cdot P \cdot N_1 \cdot N_2 \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} dE (f(E) - f(E + eV)). \quad (3.38)$$

Demzufolge ergibt sich für den Leitwert

$$G(V) = -e \cdot A \cdot P \cdot N_1 \cdot N_2 \cdot \int_{-\infty}^{+\infty} dE \partial_W f(W)|_{W=E+eV} = eAPN_1N_2. \quad (3.39)$$

Somit ergibt sich eine Ohmsche Strom-Spannungs-Kennlinie. Insbesondere hängt der Leitwert nicht von der Temperatur ab. In den Teilabbildungen (3.3a) bis (3.3c) sind jeweils das Produkt aus Zustandsdichte und Fermifunktion gegen die Energie der beiden Tunnelelektroden eines NIN-Kontaktes für  $T = 0$ ,  $T = 0.2T_c$  und  $T = 0.6T_c$  aufgetragen. Der zur jeweils zweiten Tunnelelektrode gehörende Graph ist gegenüber dem Graphen der ersten Tunnelelektrode so längs der  $E$ -Richtung verschoben, dass die Fermi-Niveaus einen Abstand von  $\mu_1 - \mu_2 = eV$  aufweisen. Da  $N(E) \cdot f(E)$  ein Maß für die Anzahl der besetzten Zustände darstellt, lässt sich der in den Teilabbildungen (3.3a) bis (3.3c) farbig hinterlegte Bereich als von Elektronen besetzt interpretieren. Wie in Abschnitt 3.1 ist ein Tunneln von Elektrode 1 in Elektrode 2 nur möglich, wenn der Ausgangszustand besetzt, der Endzustand frei ist. Insofern lassen sich Graphen der Art von Abbildung (3.3) gut zur Veranschaulichung des qualitativen Verlaufs von Tunnelspektren verwenden.

Ist eine der beiden Tunnel-Elektroden supraleitend, muss natürlich die Zustandsdichte der Anregungen des Supraleiters berücksichtigt werden. Für einen BCS-Supraleiter ohne Dynes-Verrundung ist diese Zustandsdichte durch Gleichung (2.22) gegeben. Abbildung (3.4) zeigt analog zu Abbildung (3.3) die Energie-Besetzung-Schemata eines SIN-Kontaktes bei  $T = 0$  (a),  $T = 0.2T_c$  (b) und  $T = 0.6T_c$  (c) sowie in Teilabbildung (3.4d) die daraus resultierenden  $G(V)$ -Spektren für Temperaturen von  $T = 0$  bis  $T = T_c$  in Schritten von  $T = 0.1T_c$ . Beim Übergang in die supraleitende Phase bildet sich eine Energielücke der Breite  $2\Delta$  um die Fermi-Energie aus, in der keine Anregungen möglich sind. Daher ist insbesondere ein Tunneln von Quasiteilchen aus und in diesen Energiebereich nicht möglich, was die Form der Tunnelspektren maßgeblich beeinflusst.

Unter den zuvor begründeten Annahmen über die Zustandsdichte der normalleitenden Elektrode und die Tunnelwahrscheinlichkeit ist der Tunnelstrom durch einen SIN-Kontakt gegeben durch

$$I_{SIN}(V) = APN_1 \int_{-\infty}^{+\infty} dE N_2(E) (f(E) - f(E + eV)). \quad (3.40)$$

Entsprechend gilt für den Leitwert

$$G_{SIN}(V) = -eAPN_1 \int_{-\infty}^{+\infty} dE N_2(E) \partial_W f(W)|_{W=E+eV}. \quad (3.41)$$

Mathematisch handelt es sich bei dem Integral in (3.41) um die Faltung der Zustandsdichte mit der Ableitung der Fermifunktion

$$G_{SIN}(V) = -eAPN_1 \cdot (N_2 \star f')(-eV). \quad (3.42)$$

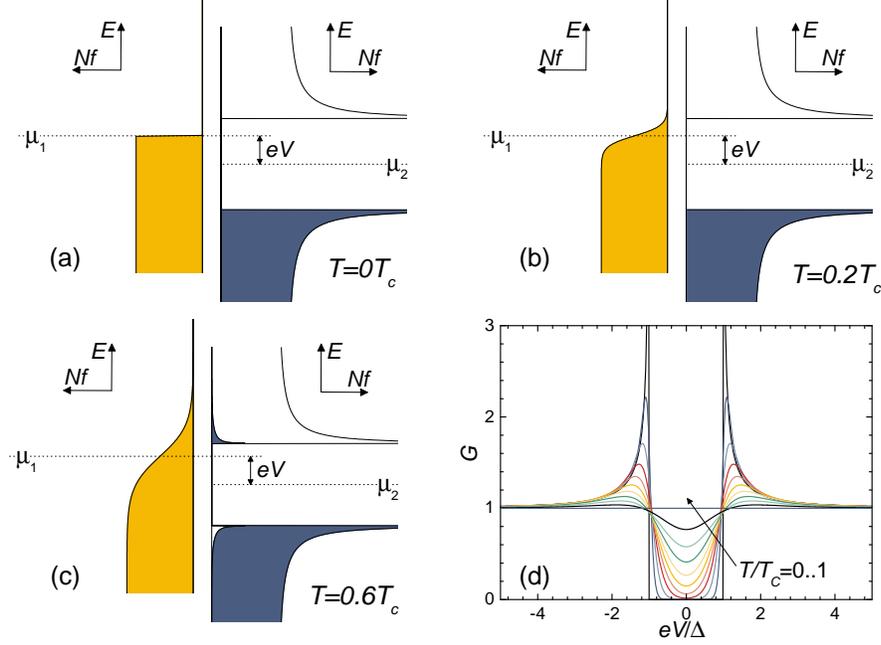


Abbildung 3.4: Energie-Besetzungszahl-Diagramme für einen SIN-Kontakt bei  $T = 0$  (a),  $T = 0.2T_c$  (b) und  $T = 0.6T_c$  (c) sowie gemäß (3.41) berechnete Leitwertsspektren für verschiedene Temperaturen (d)

Die Ableitung der Fermifunktion an der Stelle  $W = E + eV$  ist ein um  $E = -eV$  zentrierter Peak, dessen Breite durch  $k_B T$  bestimmt ist. Für  $T \rightarrow 0$  geht diese Funktion in die  $\delta$ -Funktion über, so dass

$$G_{SIN}^{T=0}(V) = -eAPN_1N_2(-eV). \quad (3.43)$$

Der Verlauf der  $G(V)$ -Kurve eines SIN-Kontaktes bei  $T = 0$  spiegelt also genau den Verlauf der Zustandsdichte des Supraleiters wieder. Abbildung (3.4d) zeigt  $G(V)$ -Kurven, die durch numerische Berechnung des Integral-Ausdrucks für  $I(V)$  nach (3.40) und anschließende numerische Ableitung bestimmt wurden. Dabei wurde die supraleitende Zustandsdichte gemäß Formel (2.22) sowie eine Näherungsformel für die BCS-Temperatur-Abhängigkeit der Energielücke nach [Einzel03] verwendet. Für  $T = 0$  führt die Divergenz der Zustandsdichte für  $|E| = \Delta$  zu Singularitäten in der  $G(V)$ -Kurve bei  $|V| = \Delta/e$  während der Leitwert für  $|V| < \Delta/e$  verschwindet. Bei endlichen Temperaturen entwickeln sich diese Singularitäten zu schmalen Maxima, deren Höhe mit zunehmender Temperatur abnimmt, gleichzeitig wächst der Leitwert im Bereich der Energielücke.

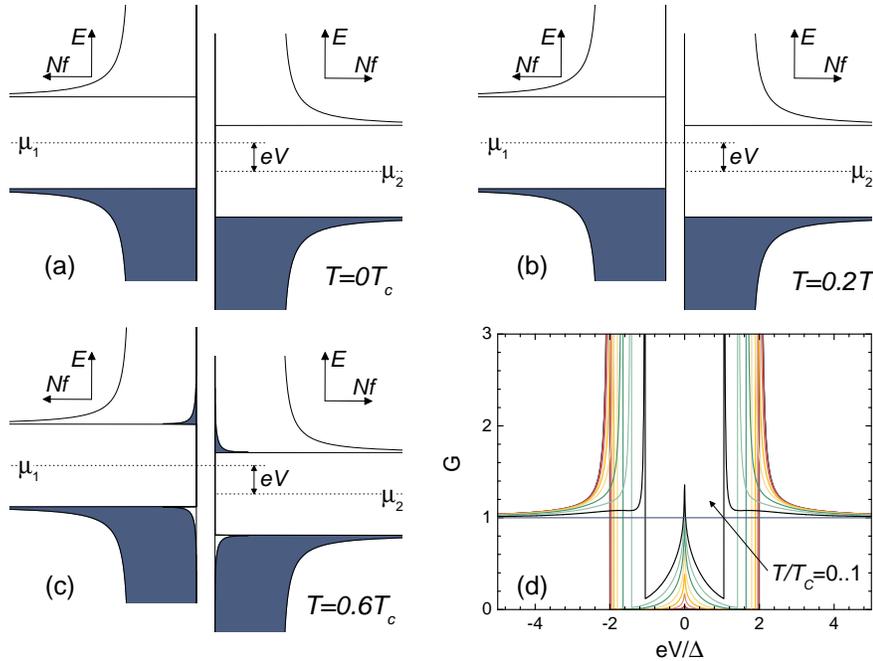


Abbildung 3.5: Energie-Besetzungszahl-Diagramme für einen SIS-Kontakt bei  $T = 0$  (a),  $T = 0.2T_c$  (b) und  $T = 0.6T_c$  (c) sowie gemäß (3.45) berechnete Leitwertsspektren für verschiedene Temperaturen (d)

Abbildung (3.5) schließlich zeigt die entsprechenden Energie-Besetzungs-Schemata und die Leitwertsspektren im Temperaturbereich zwischen  $T = 0$  und  $T = T_c$  für einen SIS-Kontakt. In Bezug auf die in Teilabbildung (3.5d) dargestellten Leitwertsspektren sind drei wesentliche Beobachtungen festzuhalten.

- Bei  $T = 0$  befinden sich die Singularitäten im Gegensatz zu dem SIN-Spektrum bei gleicher Temperatur bei  $|V| = 2\Delta$ , was sich durch Betrachten von Teilabbildung 3.5(a) leicht erklären lässt: bei einem Kontakt mit zwei supraleitenden Elektroden kann erst dann ein Strom fließen, wenn die angelegte Spannung der Summe der beiden Energielücken entspricht.
- Die Strukturen der Leitwertsspektren eines SIS-Kontaktes sind deutlich schärfer ausgeprägt als die Strukturen eines vergleichbaren SIN-Kontaktes.
- Für hohe Temperaturen bildet sich ein Maximum bei  $V = 0$ , heraus, dessen Höhe mit wachsender Temperatur zunimmt. Dieses Leitwertmaximum kommt zustande durch das Tunneln von thermisch angeregten Ladungsträgern mit

$E > \Delta$  und das Tunneln in dadurch für  $E < -\Delta$  frei gewordene Zustände, wie in Abbildung (3.5c) zu erkennen ist.

Der Tunnelstrom ist gegeben durch

$$I(V)_{SIS} = AP \int_{-\infty}^{+\infty} dE N_1(E) N_2(E + eV) (f(E) - f(E + eV)). \quad (3.44)$$

Demnach gilt für den Leitwert

$$\begin{aligned} G_{SIS}(V) &= APe \int_{-\infty}^{+\infty} dE N_1(E) \partial_W N_2(W)|_{W=E+eV} (f(E) - f(E + eV)) \\ &\quad - APe \int_{-\infty}^{+\infty} dE N_1(E) N_2(E + eV) \partial_W f(W)|_{W=E+eV}. \end{aligned} \quad (3.45)$$

## 3.5 Jenseits des Halbleiter-Modells

In Abschnitt (3.3.2) wurde gezeigt, dass bei der Behandlung des Tunnelstromes im Rahmen des Transfer-Hamilton-Operator Ansatzes die Kohärenzfaktoren  $\nu_{\mathbf{k}}$  und  $\nu_{\mathbf{k}}$  aus der Berechnung herausfallen. Dies ermöglicht es, loch- und elektronenartige Anregungen der gleichen Energie zusammenzufassen. Normal- und Supraleiter unterscheiden sich in diesem Bild nur durch ihre Zustandsdichten, weswegen es auch als Halbleiter-Modell bezeichnet wird. Tatsächlich sind die Eigenzustände im Supraleiter stets Linearkombinationen von elektronen- und lochartigen Anregungen. Sie ergeben sich als Lösungen der *Bogoliubov-de-Gennes-Gleichungen*, die im folgenden Teilabschnitt vorgestellt werden. Effekte, die auf dieser speziellen Natur der Quasiteilchen beruhen, lassen sich innerhalb des Halbleiter-Modells natürlich nicht erklären. Der wichtigste solcher Effekte ist die *Andreev-Reflexion*, die im nächsten Teilabschnitt erläutert wird. Aufgrund dieses Effektes sind Leitwertsspektren speziell an Supraleiter-Normalleiter-Kontakten mittlerer bis hoher Transparenz im Rahmen der bisher vorgestellten Modelle nicht zufriedenstellend zu beschreiben. Dies gelang zum ersten Mal durch die *BTK-Theorie*, die im Anschluss vorgestellt wird. Dabei werden Transmissions- und Reflexionsprozesse an der Grenzfläche zwischen Normal- und Supraleiter mit Hilfe der Bogoliubov-de-Gennes-Gleichungen behandelt. Der letzte Teil dieses Abschnitts geht schließlich genauer auf die Bildung *Andreev-gebundener Zustände* an Grenzflächen von unkonventionellen Supraleitern und ihre Auswirkungen auf Tunnelspektren ein.

### 3.5.1 Bogoliubov-de-Gennes Gleichungen

Ein räumlich variierendes Paarpotential, wie es zum Beispiel an Grenzflächen zwischen Supra- und Normalleitern vorliegt oder in der Shubnikov-Phase durch Vortices verursacht wird, führt dazu, dass die Eigenfunktionen des Hamilton-Operators von

der Position  $\mathbf{r}$  abhängen. Dabei ergeben sich die Eigenzustände als Lösungen der Bogoliubov-de-Gennes-Gleichungen [deGennes63]

$$\begin{pmatrix} H_0 & \Delta(\mathbf{r}) \\ \Delta^*(\mathbf{r}) & -H_0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} v_n(\mathbf{r}) \\ \nu_n(\mathbf{r}) \end{pmatrix} = E_n \begin{pmatrix} v_n(\mathbf{r}) \\ \nu_n(\mathbf{r}) \end{pmatrix} \quad (3.46)$$

mit

$$H_0 = -\frac{1}{2m} \left( \frac{\hbar}{i} \nabla - \frac{e\mathbf{A}}{c} \right)^2 + V(\mathbf{r}) - E_F. \quad (3.47)$$

Die Funktionen  $v_n(\mathbf{r})$  und  $\nu_n(\mathbf{r})$  reduzieren sich für ein konstantes Paarpotential  $\Delta(\mathbf{r}) \equiv \Delta$  auf die Kohärenzfaktoren der BCS-Theorie. Wie Gleichung (3.46) zeigt, handelt es sich bei den Bogoliubov-de-Gennes-Gleichungen um ein System gekoppelter Differentialgleichungen für  $v_n(x)$  und  $\nu_n(x)$ , wobei die Stärke dieser Kopplung durch das Paarpotential  $\Delta(\mathbf{r})$  bestimmt ist. Im Normalleiter verschwindet das Paarpotential. Demzufolge entkoppeln die Differentialgleichungen in (3.46) und die Eigenzustände des Systems sind reine Elektronen- oder Lochzustände. Im Supraleiter dagegen liegt immer eine Linearkombination von elektronen- und lochartigen Anregungen vor.

Die Herleitung der Bogoliubov-de-Gennes-Gleichungen verläuft im Wesentlichen analog zur Ableitung der Beziehung (2.11) in Abschnitt 2.1 [deGennes66]. Aufgrund der Ortsabhängigkeit des Paarpotentials geht man dabei von den üblichen Erzeugungs- bzw. Vernichtungsoperatoren  $c_{\mathbf{k}\sigma}$  und  $c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger$  zu Feldoperatoren in der Ortsdarstellung über, also zu

$$\Psi(\mathbf{r}\sigma) = \sum_{\mathbf{k}} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} c_{\mathbf{k}\sigma} \quad \text{und} \quad \Psi^\dagger(\mathbf{r}\sigma) = \sum_{\mathbf{k}} e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}} c_{\mathbf{k}\sigma}^\dagger \quad (3.48)$$

Der effektive Hamilton-Operator ist in dieser Darstellung bis auf konstante Terme gegeben durch

$$H_e = \int d\mathbf{r} \left( \sum_{\sigma} \Psi^\dagger(\mathbf{r}\sigma) H_0 \Psi(\mathbf{r}\sigma) + \Delta(\mathbf{r}) \Psi^\dagger(\mathbf{r} \uparrow) \Psi^\dagger(\mathbf{r} \downarrow) + \Delta^*(\mathbf{r}) \Psi(\mathbf{r} \uparrow) \Psi(\mathbf{r} \downarrow) \right). \quad (3.49)$$

Die Bogoliubov-Transformationen lassen sich in dieser Darstellung als

$$\Psi(\mathbf{r} \uparrow) = \sum_n \gamma_{n1} v_n(\mathbf{r}) - \gamma_{n0}^\dagger \nu_n^*(\mathbf{r}), \quad (3.50)$$

$$\Psi(\mathbf{r} \downarrow) = \sum_n \gamma_{n0} v_n(\mathbf{r}) + \gamma_{n1}^\dagger \nu_n^*(\mathbf{r}) \quad (3.51)$$

schreiben. Dabei sollen die Operatoren  $\gamma_{n\sigma}$  den effektiven Hamilton-Operator diagonalisieren, das heißt es soll gelten

$$H_e = E_g + \sum_{n\sigma} E_n \gamma_{n\sigma}^\dagger \gamma_{n\sigma}. \quad (3.52)$$

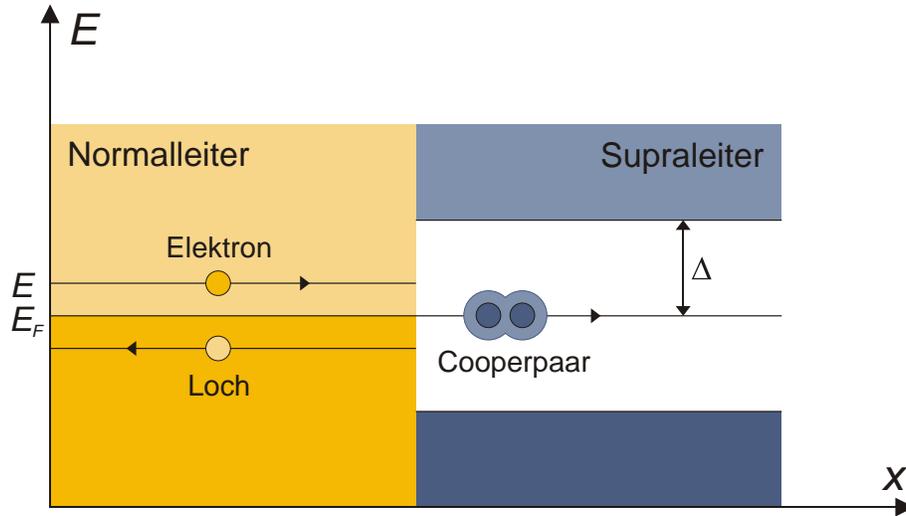


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der Andreev-Reflexion an der Grenzfläche zwischen einem Normalleiter und einem Supraleiter

Unter Beachtung der Antikommutator-Relationen für die Fermi-Operatoren  $\Psi, \gamma$  und  $c$  ergibt sich, dass (3.52) nur erfüllt ist, wenn  $v_n(\mathbf{r})$  und  $\nu_n(\mathbf{r})$  den Bogoliubov-de Gennes Gleichungen (3.46) genügen.

### 3.5.2 Andreev-Reflexion

Bei der Andreev-Reflexion handelt es sich um einen speziellen Streuprozess an einem räumlich variierenden Paarpotential, insbesondere auch an der Grenzfläche zwischen einem Normal- und einem Supraleiter. Kennzeichnendes Merkmal der Andreev-Reflexion ist, dass bei der Reflexion die Umwandlung eines elektronen- in ein locharziges Quasiteilchen erfolgt, wobei das Andreev-reflektierte Loch die Trajektorie des einfallenden Elektrons zurückverfolgt.<sup>2</sup> Dies wird als Retro-Reflexion bezeichnet. Abbildung 3.6 zeigt schematisch die Andreev-Reflexion an der Grenzfläche zwischen einem Normalleiter und einem Supraleiter. Ein Elektron mit  $E < \Delta$  kann nicht in den Supraleiter eindringen; es wird an der Grenzfläche als Loch retro-reflektiert, wobei aus Gründen der Ladungserhaltung im Supraleiter ein Cooper-Paar kondensiert.

<sup>2</sup>Natürlich ist auch der umgekehrte Prozess, also die Umwandlung einer loch- in eine elektronenartige Anregung, möglich. Um eine kompakte Darstellung zu ermöglichen, beschränkt sich die folgende Diskussion jedoch auf den ersten Fall.

$$\begin{aligned}
\xi(x) &= \frac{\hbar^2}{2m} (k(x)^2 - k_F^2) = \pm^{(*)} \sqrt{E_0^2 - \Delta(x)^2} \\
k(x) &= \pm \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}} \sqrt{E_F \pm^{(*)} \sqrt{E_0^2 - \Delta(x)^2}} \\
|v(x)|^2 &= \frac{1}{2} \left( 1 + \frac{\xi(x)}{E_0} \right) = \frac{1}{2} \left( 1 \pm^{(*)} \frac{\sqrt{E_0^2 - \Delta(x)^2}}{E_0} \right) \\
|\nu(x)|^2 &= \frac{1}{2} \left( 1 - \frac{\xi(x)}{E_0} \right) = \frac{1}{2} \left( 1 \mp^{(*)} \frac{\sqrt{E_0^2 - \Delta(x)^2}}{E_0} \right) \\
v_G(x) &= \frac{\partial E_0}{\partial k(x)} = \frac{2\xi(x)}{E_0} \frac{\hbar^2}{2m} k(x) = \frac{2}{E_0} \left( \frac{\hbar^2}{2m} \right)^2 k(x) (k^2(x) - k_F^2)^2
\end{aligned}$$

Tabelle 3.1: Zusammenfassung wichtiger ortsabhängiger Größen im Zusammenhang mit der Andreev-Reflexion. Dabei ist an den mit einem (\*) versehenen Stellen das jeweils obere Vorzeichen zu wählen, wenn  $|k| > k_F$ , das untere, wenn  $|k| < k_F$ .

Mathematisch ergibt sich die Andreev-Reflexion aus den Lösungen der Bogoliubov-de-Gennes-Gleichungen für ein räumlich variierendes Paarpotential. Zum ersten Mal wurde diese Rechnung 1963 von de Gennes und Saint-James durchgeführt, die das Anregungsspektrum einer dünnen normalleitenden Schicht auf einem supraleitenden Substrat untersuchten [deGennes63]. Andreev stellte jedoch ein Jahr später zum ersten Mal die physikalische Bedeutung dieses Prozesses als Retro-Reflexion einer elektronen- in eine lochartige Anregung heraus [Andreev64]. Er erklärte mit diesem nach ihm benannten Effekt die ungewöhnlich niedrige thermische Leitfähigkeit in der Shubnikov-Phase von Supraleitern.

Bevor die Lösung der Bogoliubov-de Gennes Gleichungen für einen Normalleiter-Supraleiter-Kontakt näher diskutiert wird, soll in einem ersten Schritt versucht werden, ein etwas anschaulicheres Bild der Andreev-Reflexion zu vermitteln [Welter00]. Dazu ist zunächst in Betracht zu ziehen, dass sich das Paarpotential an der Grenzfläche zwischen Normal- und Supraleiter nicht wirklich sprunghaft ändert, sondern aufgrund des Proximity-Effektes [deGennes66] auf der Längenskala der BCS-Kohärenzlänge von 0 auf den Endwert  $\Delta$  im Supraleiter ansteigt, wie Teilabbildung 3.7a schematisch für einen eindimensionalen NS-Kontakt zeigt. Während der Andreev-Reflexion bleibt der Betrag der Energie  $E_0$  des einfallenden Quasiteilchens konstant. Nach Gleichung (2.12) wird daher mit einem räumlich veränderlichen Paarpotential  $\Delta(x)$  auch die kinetische Energie relativ zum Fermiviveau  $\xi(x)$  ortsabhängig. Dies wiederum führt zu einer Ortsabhängigkeit des Impulses  $k(x)$ , der Kohärenzfaktoren  $v(x)$ ,  $\nu(x)$  und der Gruppengeschwindigkeit  $v_G(x)$ . Die funktionalen Zusammenhänge zwischen den einzelnen Größen werden in Tabelle 3.5.2 zusammengefasst

Im folgenden soll anhand der fünf in Abbildung 3.7 gekennzeichneten Stationen die Veränderung der in Tabelle 3.5.2 aufgelisteten Größen diskutiert und die Andreev-

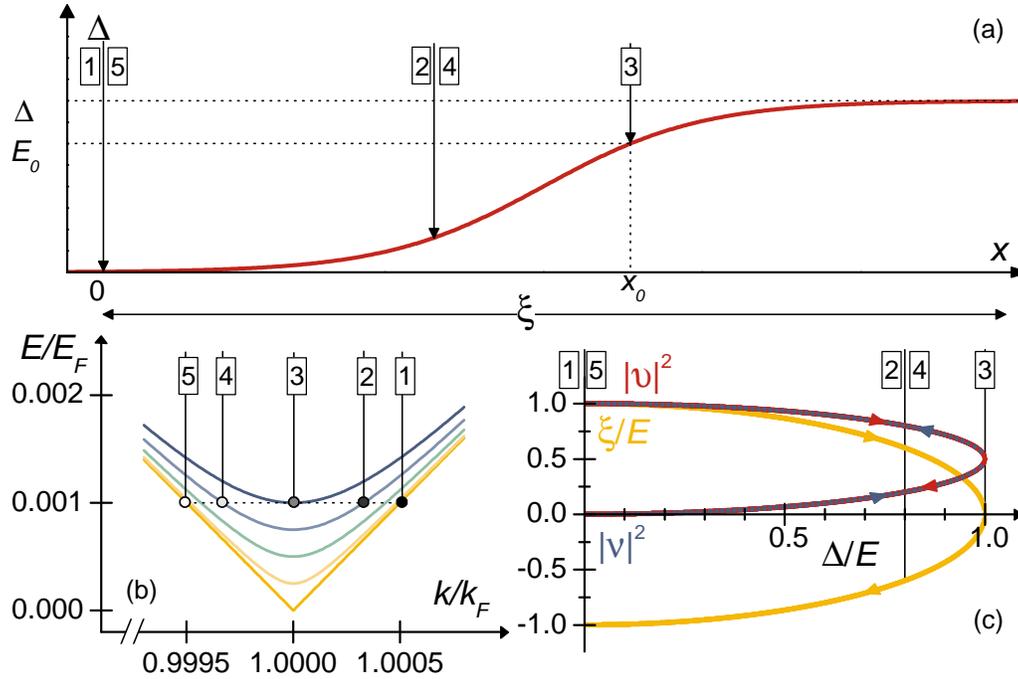


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung der Andreev-Reflexion an der Grenzfläche zwischen einem Normalleiter und einem Supraleiter

Reflexion damit näher beleuchtet werden. Dazu sind in Teilabbildung 3.7 (b) die jeweilig gültigen Dispersionsrelationen für die Positionen 1-5 dargestellt, während Abbildung 3.7 (c) das Betragsquadrat der Kohärenzfaktoren sowie das Verhältnis der kinetischen Energie zur Gesamtenergie als Funktion des auf die Gesamtenergie normierten Paarpotentials zeigt.

1. Weit im Normalleiter verschwindet das Paarpotential. Für die Kohärenzfaktoren einer Anregung mit  $E_0 < \Delta$  und Anfangsimpuls  $k(0) = k_0$  ergibt sich

$$|\nu(0)|^2 = 1 - |\nu(0)|^2 = \frac{1}{2} \left( 1 + \frac{\xi_k}{|\xi_k|} \right) = \begin{cases} 1 & \text{falls } \xi > 0 \Leftrightarrow |k| > k_F \\ 0 & \text{falls } \xi < 0 \Leftrightarrow |k| < k_F \end{cases} \quad (3.53)$$

Das bedeutet, im Normalleiter existieren elektronenartige Anregungen nur ausserhalb, lochartige Anregungen nur innerhalb der Fermikugel, wie anschaulich auch klar ist. Im folgenden sei  $|k_0| > k_F$ , die Anregung zunächst also rein elektronenartig.

	$k$	$ v ^2$	$ \nu ^2$	$\xi$	$v_G$
1	$\sqrt{2m/\hbar^2}\sqrt{E_F + E_0}$	1	0	$E_0$	$2\sqrt{\hbar^2/2m}\sqrt{E_F + E_0}$
2	$k_F < k < k_1$	$1/2 <  v ^2 < 1$	$0 <  \nu ^2 < 1$	$0 < \xi < E_0$	$0 < v_G < v_{G1}$
3	$k_F$	1/2	1/2	0	0
4	$0 < k < k_F$	$0 <  v ^2 < 1/2$	$1/2 <  \nu ^2 < 1$	$-E_0 < \xi < 0$	$v_{G5} < v_G < 0$
5	$\sqrt{2m/\hbar^2}\sqrt{E_F - E_0}$	0	1	$-E_0$	$-2\sqrt{\hbar^2/2m}\sqrt{E_F - E_0}$

Tabelle 3.2: Werte der in 3.5.2 aufgelisteten Größen an den in Abbildung 3.7 eingezeichneten Positionen 1-5

- Wie Tabelle 3.5.2 zeigt, nimmt  $|v(x)|^2$  mit zunehmendem Paarpotential ab, während  $|\nu(x)|^2$  um den gleichen Betrag zunimmt. Das bedeutet, dass der elektronenartige Charakter ab- der lochartige Charakter der Anregung bei Annäherung an den Supraleiter zunimmt. Gleichzeitig nehmen der Impuls, die kinetische Energie und die Gruppengeschwindigkeit ab.
- Ist schließlich der Punkt  $x_0$  erreicht, an dem das Paarpotential  $\Delta(x_0)$  der Energie  $E_0$  entspricht, so gilt  $|v(x_0)|^2 = |\nu(x_0)|^2 = 1/2$ . An diesem Punkt ist  $k(x_0) = k_F$ , die kinetische Energie und die Gruppengeschwindigkeit verschwinden. Weiter kann die Anregung nicht in den Supraleiter eindringen.  $\xi$  und  $v_G$  wechseln das Vorzeichen, die Anregung bewegt sich also wieder vom Supraleiter weg.
- In diesem Bereich gilt  $|k(x)| < k_F$ . Demnach nimmt gemäß Tabelle 3.5.2 mit zunehmender Entfernung von der Grenzfläche der elektronenartige Charakter der Anregung weiter ab, der lochartige Charakter nimmt weiter zu. Währenddessen nimmt  $k$  weiter ab, während die Beträge der kinetischen Energie und der Gruppengeschwindigkeit anwachsen.
- Ist die Anregung schließlich zum Ausgangspunkt zurückgekehrt, so ist  $|\nu(0)|^2 = 1$ , die Anregung also rein lochartig.

Tabellarisch werden die Werte der in 3.5.2 aufgelisteten Größen an den Positionen 1-5 nocheinmal in Tabelle 3.2 zusammengefasst.

Nun soll die Andreev-Reflexion an einem stufenförmigen Paarpotential in einer Dimension ohne externe Felder für  $E < \Delta$  skizziert werden. Die Bogoliubov-de-Gennes Gleichungen reduzieren sich in diesem Fall auf

$$\begin{pmatrix} T & \Delta(x) \\ \Delta^*(x) & -T \end{pmatrix} \begin{pmatrix} v(x) \\ \nu(x) \end{pmatrix} = E \begin{pmatrix} v(x) \\ \nu(x) \end{pmatrix} \quad (3.54)$$

mit

$$T = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2}{dx^2} - E_F \quad (3.55)$$

und

$$\Delta(x) = \begin{cases} 0 & \text{falls } x < 0 \\ \Delta_0 & \text{falls } x > 0. \end{cases} \quad (3.56)$$

Im normalleitenden Gebiet ( $x < 0$ ) entkoppeln die Differentialgleichungen, so dass man folgenden Ansatz wählen kann

$$\psi_{nl}(x) = \psi_0(x) + \psi_a(x) + \psi_b(x) = e^{ik+x} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} + ae^{ik-x} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} + be^{-ik+x} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.57)$$

Dabei entspricht der erste Summand  $\psi_0(x)$  einem einfallenden Elektron, der zweite Summand  $\psi_a(x)$  einem Andreev-reflektierten Loch und der dritte Summand  $\psi_b(x)$  einem normal reflektierten Elektron. Im supraleitenden Gebiet ( $x > 0$ ) hat sich folgender Ansatz als sinnvoll herausgestellt [Kulik70]:

$$\psi_{sl}(x) = \psi_c(x) + \psi_d(x) = ce^{i\kappa+x} \begin{pmatrix} 1 \\ \gamma \end{pmatrix} + de^{-i\kappa-x} \begin{pmatrix} 1 \\ \gamma^* \end{pmatrix}. \quad (3.58)$$

Dabei ist zu beachten, dass aufgrund des endlichen Paarpotentials beide Komponenten  $v(x)$  und  $\nu(x)$  für beide Beiträge endlich sind.

Einsetzen dieses Ansatzes in die Bogoliubov-de-Gennes-Gleichungen (3.54) liefert

$$\frac{\hbar^2}{2m} k_{\pm}^2 = E_F \pm E \quad (3.59)$$

und

$$\frac{\hbar^2}{2m} \kappa_{\pm}^2 = E_F \pm i\sqrt{\Delta_0^2 - E^2}, \quad (3.60)$$

sowie

$$\gamma = \frac{1}{\Delta_0} \left( E - i\sqrt{\Delta_0^2 - E^2} \right) = e^{-i\phi} \quad (3.61)$$

mit

$$\phi = \arccos(E/\Delta_0). \quad (3.62)$$

Da  $E < \Delta_0$  ist der Imaginärteil von  $\kappa_{\pm}$  endlich. Eine Taylor-Entwicklung von  $\kappa_{\pm}$  bis zur ersten Ordnung in  $\Delta_0/E_F$  liefert für den Imaginärteil

$$\Im(\kappa_{\pm}) \approx \frac{\Delta_0}{\hbar v_F} = \frac{1}{\pi \xi_0} \quad (3.63)$$

Dabei ist  $v_F$  die Fermi-Geschwindigkeit,  $\xi_0$  die BCS-Kohärenzlänge. In der supraleitenden Elektrode zerfallen also die Anregungen auf der Längenskala der Kohärenzlänge.

Die Koeffizienten  $a, b, c$  und  $d$  lassen sich nun durch Berücksichtigung der Randbedingungen  $\psi_{nl}(x=0) = \psi_{sl}(x=0)$  und  $\psi'_{nl}(x=0) = \psi'_{sl}(x=0)$  bestimmen. Eine längere Rechnung zeigt, dass die Koeffizienten  $b$  und  $d$  bis auf Terme der Ordnung  $(\Delta_0/E_F)^2$  vernachlässigt werden können. Damit reduzieren sich die Randbedingungen auf

$$c = 1 \text{ und } a = \gamma c = \gamma. \quad (3.64)$$

Das bedeutet, dass keine normale Reflexion stattfindet; alle einfallenden Elektronen werden Andreev-reflektiert, wobei die Wellenfunktion des Andreev-reflektierten Loches gegenüber der Wellenfunktion des einfallenden Elektrons eine Phasenverschiebung von  $-\varphi = -\arccos(E/\Delta_0)$  aufweist. Insbesondere konvergiert diese Phasenverschiebung für  $E \rightarrow 0$  gegen  $-\pi/2$ , was im Rahmen der Diskussion Andreev-gebundener Zustände wichtig werden wird.

### 3.5.3 BTK-Theorie

Die erste Theorie, die die Auswirkungen der Andreev-Reflexion und verwandter Prozesse auf die Leitwertsspektren in Normalleiter-Supraleiter-Kontakten systematisch untersucht, wurde 1982 von Blonder, Tinkham und Klapwijk vorgestellt [Klapwijk82, Blonder82]. Mit Hilfe dieses, im folgenden kurz als BTK-Theorie bezeichneten Ansatzes gelang zum ersten Mal eine einheitliche Beschreibung der Strom-Spannungskennlinien sowohl von Tunnelkontakten, als auch von Kontakten mittlerer bis hoher Transparenz. Dabei wird der Strom über einen NS-Kontakt als Funktion der Wahrscheinlichkeiten dargestellt, die sich für die schon im vorigen Abschnitt aufgeführten und in Abbildung 3.8 schematisch dargestellten Prozesse ergeben, also für Andreev-Reflexion (a), normale Reflexion (b), Transmission als vorwiegend elektronenartiges (c) und Transmission als vorwiegend lochartiges (d) Quasiteilchen. Die Barriere zwischen den beiden Elektroden wird hierbei durch

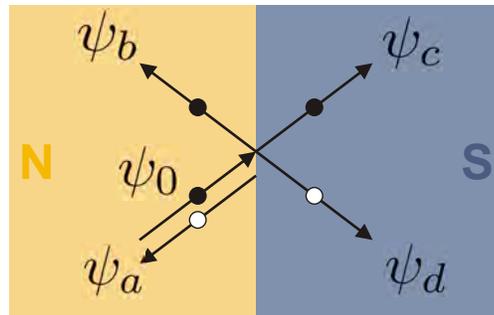


Abbildung 3.8: Mögliche Prozesse an der Grenzfläche zwischen einem Normal- und einem Supraleiter

ein Potential der Form

$$\Phi(x) = H \cdot \delta(x) = Z\hbar v_F \delta(x) \quad (3.65)$$

modelliert, also durch ein  $\delta$ -Potential, dessen Stärke durch den dimensionslosen Parameter  $Z$  gegeben ist. Auf diese Weise lassen sich Kontakte beliebiger Transparenz beschreiben, von einem rein metallischen Kontakt ( $Z = 0$ ), wie im vorhergehenden Abschnitt beschrieben, bis zu einem Tunnelkontakt ( $Z \gg 1$ ). Die Bogoliubov-de-Gennes-Gleichungen (3.54) müssen dabei noch durch Addition des Barrierenpotentials  $\Phi(x)$  gemäß Gleichung (3.65) zu den Diagonalelementen  $T$  modifiziert werden. Der Ansatz für die Wellenfunktionen in der normalleitenden und supraleitenden Elektrode ergibt sich wiederum zu (3.57) und (3.58). Nur die Randbedingungen verändern sich aufgrund des  $\delta$ -Potentials zu

$$\psi_{nl}|_{x=0} = \psi_{sl}|_{x=0} \quad (3.66)$$

und

$$\psi'_{sl}|_{x=0+} - \psi'_{nl}|_{x=0-} = \frac{2m}{\hbar} H \psi_{sl}|_{x=0}. \quad (3.67)$$

Durch Berücksichtigung dieser Randbedingungen lassen sich die Koeffizienten  $a$ - $d$  und damit die Wellenfunktionen  $\psi_a$ - $\psi_d$  berechnen. Die Wahrscheinlichkeit, eine Anregung elektronen- oder lochartiger Natur am Ort  $x$  und zur Zeit  $t$  zu finden, ist gegeben durch

$$P(x, t) = |v(x, t)|^2 + |\nu(x, t)|^2. \quad (3.68)$$

Aus den Bogoliubov-de-Gennes Gleichungen (3.54) folgt eine Kontinuitätsgleichung der Form

$$\partial_t P + \vec{\nabla} \mathbf{J}_P = 0 \quad (3.69)$$

mit

$$\mathbf{J}_P = \frac{\hbar}{m} \left( \Im(v^* \vec{\nabla} v) - \Im(\nu^* \vec{\nabla} \nu) \right) . \quad (3.70)$$

Damit lässt sich  $\mathbf{J}_P$  als Wahrscheinlichkeitsstromdichte für Anregungen interpretieren. Daraus wiederum ergeben sich die Wahrscheinlichkeiten für die einzelnen Prozesse zu

$$A = J_P^a / v_F \quad (3.71)$$

mit

$$\mathbf{J}_P^a = \frac{\hbar}{m} \left( \Im(v_a^* \vec{\nabla} v_a) - \Im(\nu_a^* \vec{\nabla} \nu_a) \right) \quad (3.72)$$

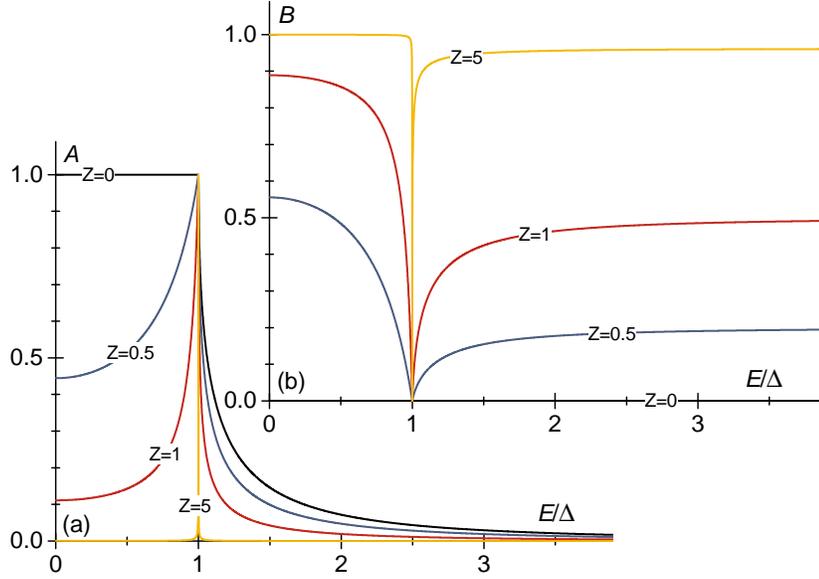


Abbildung 3.9: Wahrscheinlichkeit für Andreev-Reflexion (a) und normale Reflexion (b) an einem NS-Kontakt für verschiedene Barrierenparameter  $Z$ . Der funktionale Zusammenhang  $A = A(E/\Delta, Z)$ ,  $B = B(E/\Delta, Z)$  wurde dabei [Blonder82] entnommen.

für die Andreev-Reflexion und entsprechenden Gleichungen für die Prozesse b-d. Die auf diese Weise bestimmten Wahrscheinlichkeiten  $A$ - $D$  lassen sich als Funktionen von  $E/\Delta$  und  $Z$  darstellen, wobei der genaue funktionale Zusammenhang in [Blonder82] tabellarisch zusammengefasst ist. Abbildung 3.9 zeigt die nach diesen Formeln berechneten Wahrscheinlichkeiten für Andreev-Reflexion und normale Reflexion als Funktion der Energie für verschiedene Barrierenparameter zwischen 0 und 5. Wie schon im vorigen Abschnitt gezeigt, findet bei einem rein metallischen Kontakt ( $Z = 0$ ) keine normale Reflexion statt, für Energien unterhalb der Energielücke werden alle einfallenden Elektronen Andreev-reflektiert. Mit zunehmender Barrierenhöhe steigt die Wahrscheinlichkeit für normale Reflexion, während die Andreev-Reflexion nur in einen schmaler werdenden Bereich um  $E = \Delta$  herum von Bedeutung ist. Schließlich lässt sich der Strom über den Kontakt als Funktion der zuvor ermittelten Wahrscheinlichkeiten gemäß

$$I(V) = 2N_0 e v_F \mathcal{A} \int_{-\infty}^{+\infty} [f_T(E - eV) - f_T(E)] [1 + A(E) - B(E)] \quad (3.73)$$

berechnen. Dabei ist  $N_0$  die Zustandsdichte im normalleitenden Zustand an der Fermikante,  $v_F$  die Fermi-Geschwindigkeit und  $\mathcal{A}$  der Querschnitt des Tunnelkontaktes.

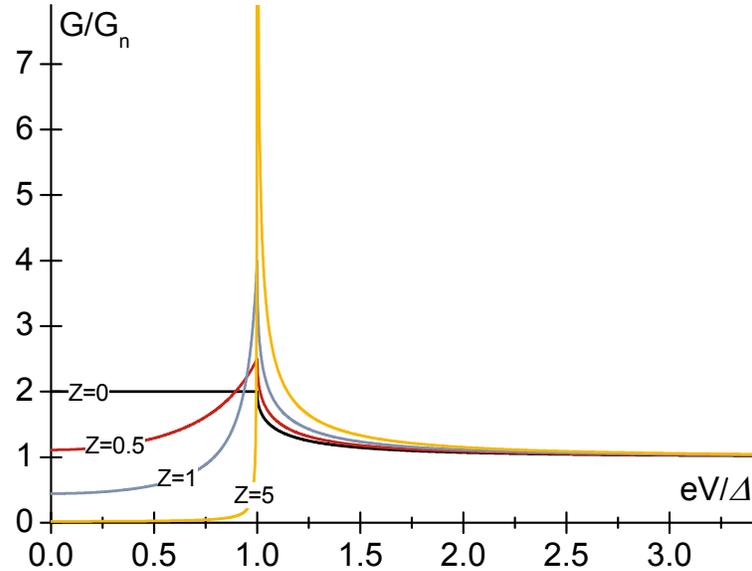


Abbildung 3.10: Leitwert eines NS-Kontaktes, berechnet nach Gleichung (3.73).

In Gleichung (3.73) geht die Näherung ein, dass sich alle auf die Tunnelbarriere auftreffenden Elektronen im thermischen Gleichgewicht befinden, ihre Verteilung also durch die Fermi-Funktion  $f_T(E)$  gegeben ist. Weiterhin wurde berücksichtigt, dass sich alle Wahrscheinlichkeiten zu Eins summieren, dass also gilt

$$A(E) + B(E) + C(E) + D(E) = 1 \quad (3.74)$$

Für  $T = 0$  ergibt sich somit der differentielle Leitwert eines NS-Kontaktes zu

$$G(V) = 2N_0 e v_F \mathcal{A} [1 + A(eV) - B(eV)]. \quad (3.75)$$

Abbildung 3.10 zeigt die nach (3.75) berechnete differentielle Leitfähigkeit als Funktion der am Kontakt anliegenden Spannung für Barrierenparameter von  $Z = 0$  bis  $Z = 5$ . Dabei ergeben sich qualitativ sehr unterschiedliche Spektren. Während für hochtransparente Kontakte ( $Z = 0$ ) der Leitwert im Bereich  $E < \Delta$  aufgrund der Andreev-Reflexion doppelt so groß ist wie im Grenzfall hoher Spannungen, ergibt sich für große Barrierenparameter ein typisches Tunnelspektrum mit ausgeprägter Energielücke und Kohärenzpeaks bei  $|E| = \Delta$ , das die Zustandsdichte der supraleitenden Elektrode widerspiegelt. Für  $Z \rightarrow \infty$  liefert die BTK-Theorie also das gleiche Resultat wie der in Abschnitt 3.3.2 vorgestellte Transfer-Hamilton-Operator Ansatz.

Für Kontakte mit zwei supraleitenden Elektroden ist die Anwendung der BTK-Theorie mathematisch bedeutend aufwändiger, da hier —zumindest bei Kontakten

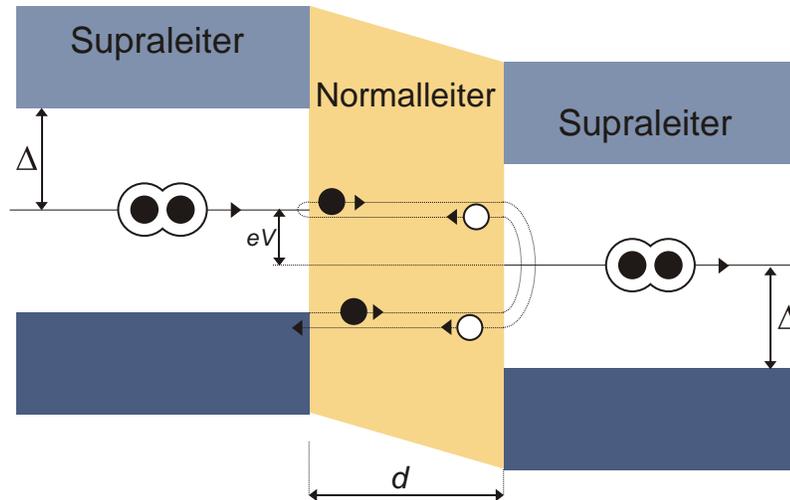


Abbildung 3.11: Schematische Darstellung zur multiplen Andreev-Reflexion für  $n = 4$ .

mittlerer bis hoher Transparenz— auch Prozesse höherer Ordnung berücksichtigt werden müssen. SNS-Kontakte hoher Transparenz weisen so Strukturen im Leitwert bei Spannungen  $V = 2\Delta/n$  mit  $n \in \mathbb{N}$  auf, die auch als Subgap-Strukturen bezeichnet werden. Diese Strukturen lassen sich auf multiple Andreev-Reflexionen an den beiden SN-Grenzflächen des SNS-Kontaktes zurückführen. Für  $2\Delta/n < eV < 2\Delta/(n-1)$  ist ein Transport von Quasiteilchen über  $(n-1)$ -fache Andreev-Reflexion möglich, wie in Abbildung 3.11 für  $n = 4$  beispielhaft dargestellt ist.

Interferenz von mehrfach Andreev-reflektierten Quasiteilchen kann zur Ausbildung gebundener Zustände führen. Diese sogenannten Andreev-gebundenen Zustände (ABS<sup>3</sup>) spielen eine große Rolle, insbesondere an Ober- und Grenzflächen von Hochtemperatur-Supraleitern, deren Ordnungsparameter Vorzeichenwechsel für verschiedene Richtungen im  $k$ -Raum aufweisen. Mit der Entstehung Andreev-gebundener Zustände und ihren Auswirkungen auf die Tunnelspektren beschäftigt sich der folgende Abschnitt.

### 3.5.4 Andreev-gebundene Zustände

Um die Entstehung Andreev-gebundener Zustände zu erklären, ist es zweckmäßig, zunächst einen Kontakt ohne anliegende Spannung zu betrachten, in dem zwei supraleitende Elektroden über eine normalleitende Schicht der Dicke  $d$  aneinander

<sup>3</sup>Andreev Bound States

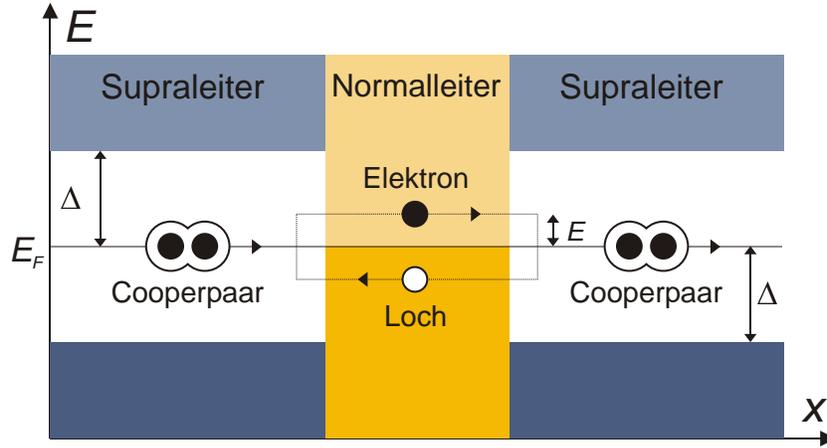


Abbildung 3.12: Schematische Darstellung zur Bildung Andreev-gebundener Zustände an einem SNS-Kontakt

gekoppelt sind. Zwischen den Ordnungsparametern der beiden Supraleiter liege ein Phasenunterschied  $\Delta\theta = \theta_1 - \theta_2$  vor. Wie Abbildung 3.12 zeigt, entsteht für ein Elektron, das sich im normalleitenden Bereich mit einer Energie  $E < \Delta$  auf eine Grenzfläche zum Supraleiter zu bewegt, durch Andreev-Reflexionen an den beiden NS-Grenzflächen eine geschlossene Trajektorie. Ist der Phasenunterschied  $\Delta\varphi_G$ , den ein solches Quasiteilchen bei einem vollständigen Umlauf erfährt, ein ganzzahliges Vielfaches von  $2\pi$ , gilt also

$$\Delta\varphi_G = 2\pi n \text{ mit } n \in \mathbb{N}, \quad (3.76)$$

so überlagern sich die Wellenfunktionen des einlaufenden und des Andreev-reflektierten Quasiteilchens zu einer stehenden Welle: es entsteht ein gebundener Zustand bei der Energie  $E$ . Der Phasenunterschied setzt sich zusammen aus der Phasendifferenz  $\Delta\theta$  der beiden Supraleiter, dem Phasenunterschied, der beim Durchlauf der normalleitenden Schicht erzeugt wird und der Phasenverschiebung, die das Quasiteilchen gemäß den Überlegungen auf Seite 38 bei den beiden Andreev-Reflexionen erfährt, also

$$\Delta\varphi_G = \Delta\theta + 2\theta_d + \varphi_{AR1} + \varphi_{AR2} \quad (3.77)$$

mit

$$\theta_d = \frac{Ed}{\hbar v_F} \quad (3.78)$$

und

$$\varphi_{ARi} = -\arccos(E/\Delta_i), \quad i = 1, 2. \quad (3.79)$$

Die folgende Diskussion beschränkt sich auf Zustände an der Fermikante, also für  $E = 0$ . In diesem wichtigen Sonderfall verschwindet der zweite Summand in Gleichung (3.77). Daher ist hier die Erfüllung der Bedingung (3.76) für gebundenen Zustände insbesondere unabhängig von der Dicke der normalleitenden Schicht. Wie am Schluss von Abschnitt 3.5.2 gezeigt wurde, konvergiert für  $E \rightarrow 0$  die bei der Andreev-Reflexion erfahrene Phasenverschiebung unabhängig von der Amplitude des Ordnungsparameters gegen  $-\pi/2$ , so dass sich die Bedingung (3.76) auf

$$\Delta\varphi_G = \Delta\theta - \pi = 2\pi n \Leftrightarrow \Delta\theta = (2n + 1)\pi \text{ mit } n \in \mathbb{N} \quad (3.80)$$

reduziert. Es kommt also für einen SNS-Kontakt genau dann zur Ausbildung Andreev-gebundener Zustände an der Fermikante, wenn die Phasendifferenz  $\Delta\theta$  der beiden supraleitenden Elektroden ein ungeradzahliges Vielfaches von  $\pi$  beträgt.

### 3.5.5 ABS an Oberflächen von $d$ -Wellen Supraleitern

Im letzten Abschnitt wurde gezeigt, dass die Bildung gebundener Zustände an der Fermikante für SNS-Kontakte unabhängig von der Dicke der normalleitenden Schicht ist. Daher lassen sich die Überlegungen des letzten Abschnitts auf Oberflächen von Supraleitern mit anisotropem Ordnungsparameter übertragen, indem zwischen Supraleiter und Vakuum eine (virtuelle) normalleitende Schicht der Dicke  $d_N$  eingeführt und anschließend der Grenzfall  $d_N \rightarrow 0$  betrachtet wird.

Die Abbildungen 3.13 und 3.14 illustrieren die Situation für eine  $[100]$  und eine  $[110]$ -Oberfläche eines  $d$ -Wellen Supraleiter, also einem Winkel  $\alpha$  von  $0^\circ$  bzw.

$45^\circ$  zwischen der  $a$ -Achse und dem Lot auf die Grenzfläche. Für ein unter dem Winkel  $\beta$  auf die Grenzfläche zwischen Normalleiter und Vakuum einfallendes Elektron entsteht durch normale Reflexion an der Grenzfläche zum Vakuum, Andreev-Reflexion an der Grenzfläche zwischen Normal- und Supraleiter sowie erneuter normaler Reflexion des Andreev-reflektierten Lochs und anschließender erneuter Andreev-Reflexion wieder eine geschlossene Trajektorie. Durch die zweifache normale Reflexion entsteht eine zusätzliche Phasendifferenz von  $2\pi$ , so dass gemäß (3.76) die Bedingung (3.80)

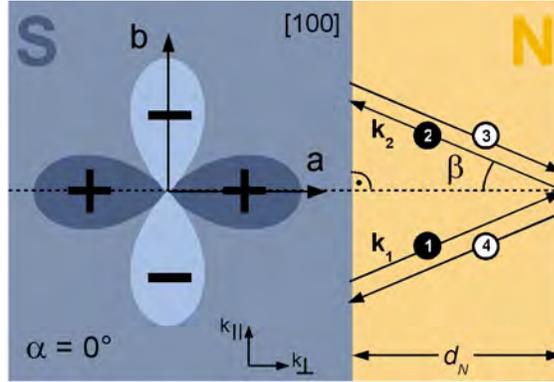


Abbildung 3.13: (keine) ABS an  $[110]$ -Oberfläche von  $d$ -Wellen Supraleitern

für die Bildung Andreev-gebundener Zustände an der Fermikante unverändert bleibt. Die Phasendifferenz  $\Delta\theta$  der beiden Supraleiter im SNS-Kontakt aus Abbildung 3.12 wird in diesem Fall ersetzt durch die Phasendifferenz des Ordnungsparameters für die verschiedenen Wellenvektoren, die das Elektron in den Positionen besitzt, die in den Abbildungen 3.13 und 3.14 mit den Ziffern 1 und 2 gekennzeichnet sind. Die Wellenvektoren werden entsprechend als  $\mathbf{k}_1$  bzw.  $\mathbf{k}_2$  bezeichnet. Es bleibt also zu untersuchen, wie die Phasendifferenz

$$\Delta\theta = \arg(\Delta(\mathbf{k}_1)) - \arg(\Delta(\mathbf{k}_2)) \quad (3.81)$$

von der Orientierung der Grenzfläche abhängt.

Der Wellenvektor wiederum wird bei der normalen Reflexion an der Grenze zum Vakuum verändert, wobei die Komponente parallel zur Grenzfläche erhalten bleibt, während die Komponente senkrecht zur Grenzfläche lediglich das Vorzeichen wechselt. Bei der Wahl eines entsprechenden Koordinatensystems gilt also  $\mathbf{k}_1 = (k_{1\perp}, k_{1\parallel})$  und  $\mathbf{k}_2 = (-k_{1\perp}, k_{1\parallel})$ .

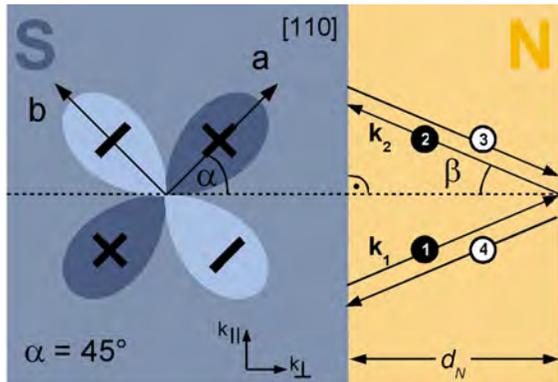


Abbildung 3.14: ABS an [110]-Oberfläche von  $d$ -Wellen Supraleitern

In der Darstellung der Abbildungen 3.13 und 3.14 lässt sich der Ordnungsparameter  $\Delta(\mathbf{k})$  bestimmen, indem der Vektor  $\mathbf{k}$  an den Ursprung des Koordinatensystems aufgetragen wird, welches zur Darstellung des Ordnungsparameters gehört (also an den Kreuzungspunkt der beiden hantelförmigen Kurven).  $\Delta(\mathbf{k})$  ergibt sich dann aus dem Punkt, in dem der Vektor  $\mathbf{k}$  oder dessen Verlängerung eine der Kurven kreuzt.

Die Abbildungen 3.13 und 3.14 illustrieren jeweils die Extremfälle im Hinblick auf die Bildung Andreev-gebundener Zustände. Während im Fall einer [100]-Oberfläche für alle Einfallswinkel  $\beta$  der Ordnungsparameter für die Wellenvektoren

bei aufeinanderfolgenden Andreev-Reflexionen unverändert bleibt, also  $\Delta(\mathbf{k}_1) = \Delta(\mathbf{k}_2)$ , ergibt sich im Fall einer [110]-Grenzfläche für alle Einfallswinkel  $\Delta(\mathbf{k}_1) = -\Delta(\mathbf{k}_2)$ . Ein solcher Vorzeichenwechsel entspricht aber genau einer Rotation in der komplexen Ebene um einen Winkel  $\pi$ . Für [110]-Oberflächen von  $d$ -Wellen Supraleitern treten also für alle Einfallswinkel Andreev-gebundene Zustände auf, für [100]-Oberflächen ist die Bedingung für die Bildung dieser Zustände nie erfüllt. Für alle anderen Oberflächen hängt die Bildung Andreev-gebundener Zustände vom Einfallswinkel  $\beta$  des betrachteten Elektrons ab.

Auf jeden Fall ist festzuhalten, dass die Bedingung  $\Delta\theta = \pi$  sich prinzipiell nur für Ordnungsparameter erfüllen lässt, die einen Vorzeichenwechsel für verschiede-

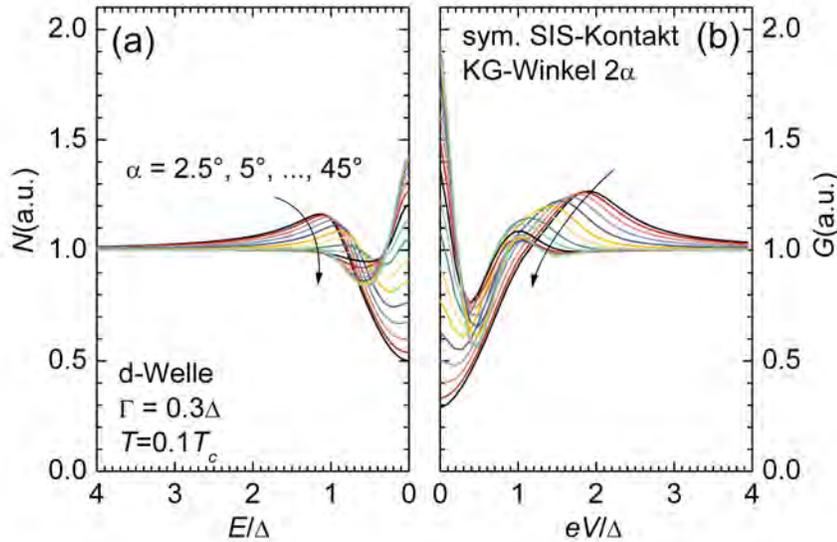


Abbildung 3.15: Zustandsdichten für verschiedene Grenzflächen eines  $d$ -Wellen-Supraleiters, bzw. daraus durch Faltung berechnete Leitwertsspektren für einen symmetrischen SIS-Kontakt.

ne Richtungen im reziproken Raum aufweisen. In dieser Hinsicht ist die Existenz Andreev-gebundener Zustände ein Unterscheidungskriterium zwischen  $d$ - und anisotroper  $s$ -Welle.

### 3.5.6 Die Rolle von ABS für Tunnelspektren

Wie in den ersten Abschnitten dieses Kapitels ausgeführt wurde, ist eine wesentliche Messgröße bei Tunnelspektren an Supraleitern die Zustandsdichte, genauer die lokale Zustandsdichte der Supraleiter an der Grenzfläche zur Tunnelbarriere. Daher spielen Andreev-gebundene Zustände eine große Rolle bei der Tunnelspektroskopie von Supraleitern, deren Ordnungsparameter einen Vorzeichenwechsel aufweisen, also insbesondere für  $d$ -Wellen Supraleiter.

Die lokale Zustandsdichte unter Berücksichtigung Andreev-gebundener Zustände lässt sich zum Beispiel mit den Methoden der quasiklassischen Theorie berechnen [Burkhardt97]. Für SIS-Kontakte geringer Transparenz, also im Tunnel-Limit, wie sie im Rahmen dieser Arbeit untersucht werden, reicht es aus, die lokalen Zustandsdichten für die beiden Grenzflächen links und rechts der Tunnelbarriere getrennt zu betrachten und daraus per Faltung die Tunnelleitfähigkeit zu berechnen, wie es in den ersten Abschnitten dieses Kapitels dargestellt wurde. Zur Veranschaulichung

zeigt Abbildung 3.15 Zustandsdichten und daraus für einen symmetrischen SIS-Kontakt berechnete Leitwertsspektren für verschiedene Winkel  $\alpha$ . Dabei wurden die Zustandsdichten mit einem Programm berechnet, das auf den in [Burkhardt97] dargestellten Methoden der quasiklassischen Theorie beruht und uns vor einiger Zeit freundlicherweise von H. Burkhardt und D. Rainer zur Verfügung gestellt wurde. Wie Abbildung 3.15 zeigt, entsteht für  $\alpha > 10^\circ$  ein deutlich erkennbares Maximum in der Zustandsdichte bzw. in den Tunnelspektren bei  $E = 0$  bzw.  $V = 0$ , dessen Höhe zunimmt, wenn sich die Orientierung der Grenzfläche der [110]-Richtung ( $\alpha = 45^\circ$ ) annähert. Ein solches Maximum wird in Tunnelspektren an lochdotierten Hochtemperatur-Supraleitern sehr häufig beobachtet und als Nullspannungsanomalie bzw. in der englischsprachigen Literatur als ZBA<sup>4</sup> bezeichnet. Eine solche Nullspannungsanomalie lässt sich also als Resultat Andreev-gebundener Zustände und damit als Hinweis auf einen Vorzeichenwechsel des Ordnungsparameters für unterschiedliche Richtungen im reziproken Raum interpretieren [Hu94]. In dieser Hinsicht ist die Tunnelspektroskopie also auch eine phasensensitive Messmethode.

Die im Rahmen dieser Arbeit aufgezeichneten Tunnelspektren an Korngrenzenkontakten aus elektronen-dotierten Kuprat-Verbindungen im supraleitenden Zustand weisen in keinem einzigen Fall ein Maximum bei  $V = 0$  auf. Daher wird auf eine ausführlichere Behandlung der Auswirkungen endlicher Temperaturen und Magnetfelder auf Andreev-gebundene Zustände und die daraus resultierenden Strukturen in Tunnelspektren an  $d$ -Wellen Supraleitern verzichtet. Nähere Informationen zu diesen Themen sowie zur Rolle Andreev-gebundener Zustände für Leitwertsspektren unterschiedlicher Transparenz finden sich beispielsweise in [Kashiwaya00, und Referenzen darin]. Ein kurzer Literaturüberblick über einige Experimente zu Andreev-gebundenen Zuständen insbesondere für Kontakte aus  $d$ -Wellen Supraleitern wird in A.1 gegeben.

---

<sup>4</sup>zero bias anomaly

# Kapitel 4

## Analyse von Tunnelspektren

Nachdem im letzten Kapitel einige grundlegende Modelle zur Beschreibung von Tunnelspektren vorgestellt worden sind, beschäftigt sich das folgende Kapitel mit der Frage, auf welche Weise umgekehrt aus experimentellen Spektren Informationen über Eigenschaften von Elektroden und Barriere der untersuchten Tunnelkontakte gewonnen werden können.

Nach einigen einleitenden Bemerkungen zur Nomenklatur bei der Beschreibung von Tunnelspektren werden drei thematische Schwerpunkte behandelt.

Zunächst wird erläutert, inwieweit aus SIS-Spektren Rückschlüsse auf die Zustandsdichte der Elektroden gezogen werden können. Dabei wird insbesondere ein Verfahren zur numerischen Entfaltung entwickelt und diskutiert, welches meiner Kenntnis nach in der Literatur in dieser Form bisher nicht zu finden ist.

Der nächste Abschnitt beschäftigt sich mit verschiedenen Erklärungsansätzen für die Hintergrundleitfähigkeit, die in vielen Leitwertsspektren insbesondere an den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Kontakten, beobachtet wird.

Schließlich wird im dritten Abschnitt die Frage behandelt, inwieweit die Erhaltung der Gesamtzahl von Anregungszuständen die Verteilung des spektralen Gewichtes unter den Tunnelspektren beeinflusst.

Um die Ausdrucksweise in den folgenden Kapiteln zu erleichtern, sollen jedoch zunächst einige Bezeichnungen für Strukturen und Spannungs-Bereiche in den Tunnelspektren festgelegt werden. Zur Illustration ist in Abbildung 4.1 ein typisches Leitwertsspektrum abgebildet, wie es an den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Kontakten im supraleitenden Zustand aufgezeichnet wurde. Dabei lassen sich im wesentlichen drei Strukturen unterscheiden, und anhand dieser Strukturen drei Spannungsbereiche, die in Abbildung 4.1 durch Pfeile gekennzeichnet sind. In der Mitte des Spektrums nahe  $V = 0$  befindet sich ein ausgeprägtes Minimum, das Kennzeichen der Energielücke der supraleitenden Elektroden. An die Lücke schließen sich zwei Maxima an, die mehr oder weniger ausgeprägt sein können. In der Literatur hat sich für diese Strukturen der Begriff der Kohärenzmaxima oder Kohärenzspitzen (coherence peaks) durchgesetzt. Der Bereich deutlich jenseits der Kohärenzmaxima

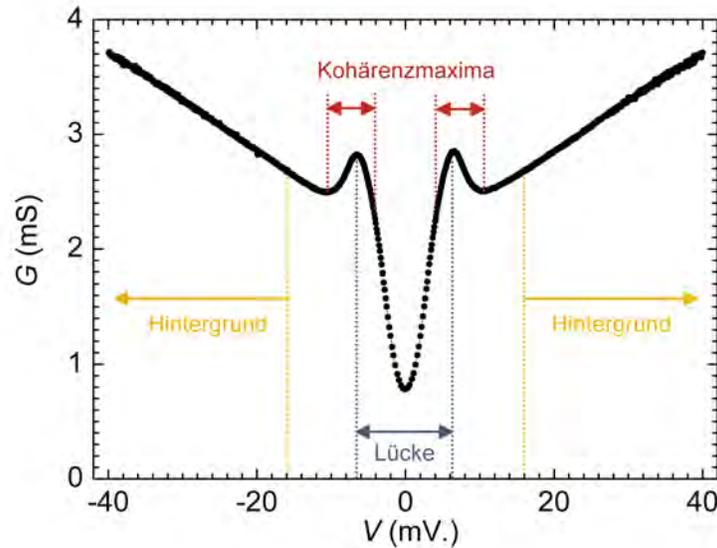


Abbildung 4.1: Illustration zur Nomenklatur bei der Beschreibung der Tunnelspektren

wird als Hintergrund bezeichnet. Der Verlauf der Leitwertsspektren im Hintergrundbereich wird ausführlich in Kapitel 4.2 behandelt.

## 4.1 Bestimmung der Zustandsdichte

Tunnelspektren an Kontakten, bei denen eine Elektrode aus einem Normalleiter mit konstanter Zustandsdichte, die andere Elektrode aus einem Supraleiter besteht, spiegeln gemäß Gleichung (3.43) im allgemeinsten Fall die Tunnel-Zustandsdichte (TDOS)<sup>1</sup> der supraleitenden Elektrode: für klassische BCS-Supraleiter wie Aluminium die BCS-Zustandsdichte, für Supraleiter mit starker Kopplung wie Quecksilber noch zusätzliche Phononenstrukturen und für viele Hochtemperatur-Supraleiter die lokale Zustandsdichte an der Oberfläche des Supraleiters (LDOS)<sup>2</sup>, in die gebundene Oberflächenzustände aufgrund der Symmetrie des Ordnungsparameters eingehen.

Im Falle der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten symmetrischen Korngrenzenkontakte handelt es sich jedoch natürlich stets um SIS-Kontakte, so dass der Zusammenhang zwischen Zustandsdichte und Leitwertsspektrum nicht mehr durch eine einfache Proportionalität gegeben ist. Da beide Elektroden in einem Arbeitsschritt durch Aufwachsen eines supraleitenden Filmes auf ein Bikristallsubstrat

<sup>1</sup>tunneling density of states

<sup>2</sup>local density of states

hergestellt werden, und für einen symmetrischen Korngrenzenkontakt, wie in Abschnitt 5.3 erläutert, auch die beiden Oberflächen der supraleitenden Elektroden äquivalent sind, kann in guter Näherung davon ausgegangen werden, dass die Tunnel-Zustandsdichten zu beiden Seiten der isolierenden Barriere identisch sind, dass also gilt  $N_1(E) = N_2(E) = N(E)$ . Das in Abschnitt 3.1 beschriebene, semi-phänomenologische Modell oder auch der Transfer-Hamilton-Operator Ansatz liefern unter der Annahme eines konstanten Tunnel-Matrix-Elementes und unter Vernachlässigung aller Vorfaktoren<sup>3</sup>

$$\begin{aligned} I(V) &= \int_{-\infty}^{+\infty} dE N(E)N(E + eV)[f_T(E) - f_T(E + eV)] \\ &= \int_{-\infty}^{+\infty} dE N(E - eV)N(EV)[f_T(E - V) - f_T(E)], \end{aligned} \quad (4.1)$$

Im Grenzfall  $T \rightarrow 0$  ist der Tunnelstrom also durch

$$I(V, T = 0) = \int_0^{eV} dE N(E)N(E - eV) \quad (4.2)$$

gegeben. Mathematisch handelt es sich bei den Integraltermen in (4.1) und (4.2) für gerade Zustandsdichten  $N(E) = N(-E)$  um Faltungen der Zustandsdichte mit sich selbst und der Fermifunktion, also

$$I(V) = (N \star N)(eV) - 2(N \star (N f_T))(eV) \quad (4.3)$$

und

$$I(V, T = 0) = (N \star N)(eV), \quad (4.4)$$

wobei sich das Faltungsintegral in (4.3) über die gesamte reelle Achse, in (4.4) nur über das Intervall  $(0, eV)$  erstreckt. Durch Ableitung ergibt sich für den Leitwert in dieser Notation

$$G(V) = (N' \star N)(eV) - 2(N' \star N f_T)(eV) \quad (4.5)$$

und

$$G(V, T = 0) = (N' \star N)(eV) \quad (4.6)$$

Nun stellt sich die Frage, ob oder unter welchen einschränkenden Voraussetzungen es möglich ist, diese Faltungen zu invertieren. Eine solche Methode würde es ermöglichen, aus experimentellen Leitwertsspektren direkt die Tunnel-Zustandsdichte zu berechnen. Häufig wird die Zustandsdichte stattdessen zum Beispiel mit Methoden der quasiklassischen Theorie berechnet, daraus durch die entsprechende Faltung

<sup>3</sup>Da bei einer Entfaltung meist nur das qualitative Verhalten von  $N(E)$  von Interesse ist, kann ein Vorfaktor gegebenenfalls mit in die Größe  $N$  einbezogen werden.

das Leitwertsspektrum ermittelt und das Ergebnis schließlich mit den experimentellen Daten verglichen. Da in diese indirekte Methode natürlich wesentliche Annahmen über die Natur der Tunnel-Zustandsdichte eingehen, wäre eine Möglichkeit, die Daten direkt zu entfalten, sehr wünschenswert. Leider liegt nur relativ wenig Literatur zu diesem Thema vor, wahrscheinlich weil es durch Herstellung eines Kontaktes mit normalleitender Gegenelektrode verhältnismäßig leicht möglich ist, die Zustandsdichte direkt zu messen. Weiterhin gehen alle mir bekannten Veröffentlichungen zu diesem Thema davon aus, dass die Zustandsdichte einer Elektrode bekannt ist, um daraus die Zustandsdichte der zweiten Elektrode zu berechnen.

Prinzipiell sind zwei methodisch unterschiedliche Ansätze möglich. Der Ansatz, den ich im folgenden als *Transformationsansatz* bezeichnen möchte, nutzt charakteristische Eigenschaften der Fourier- oder Laplace-Transformation bezüglich der Faltung und der Ableitung von Funktionen aus. Grundlegend ist dabei die Regel, dass das Produkt der Fouriertransformierten zweier Funktionen der Fouriertransformierten der Faltung dieser beiden Funktionen entspricht [Rade97]. F. E. Vopat hat diesen Ansatz genutzt, um die Zustandsdichte einer Elektrode eines SIS-Kontaktes im Grenzfall kleiner Temperaturen zu berechnen, bei dem die Gegenelektrode aus einem Supraleiter besteht, dessen Zustandsdichte bekannt und durch die BCS-Formel (2.22) gegeben ist [Vopat76]. Hilfreich dabei ist, dass die Laplace-Transformierte dieser BCS-Zustandsdichte sich in geschlossener Form durch Bessel- und Exponentialfunktionen ausdrücken lässt. Ein analoger Ansatz zur Entfaltung von Gleichung (4.5) mit Hilfe von Fourier-Transformationen hat sich als problematisch herausgestellt, was vor allem auf die Form der Zustandsdichte und daraus resultierende Singularitäten in der Fourier-Transformierten zurückzuführen ist. Generell sind die Berechnungen im Rahmen eines Transformationsansatzes relativ aufwändig, so dass im weiteren Verlauf dieser Arbeit ein *numerischer Ansatz* verwendet wurde, der die rekursive Berechnung der Zustandsdichte aus den Leitwertsspektren erlaubt und im folgenden erläutert werden soll. Ein ähnlicher Ansatz wurde von Mark Blamire verwendet, um die Zustandsdichte einer Elektrode zu berechnen, wobei allerdings auch in diesem Fall von einer Gegenelektrode aus einem Supraleiter bekannter Zustandsdichte ausgegangen wurde [Blamire93].

### 4.1.1 Numerischer Ansatz

Ist  $N(E)$ , wie oben angenommen, eine symmetrische Funktion von  $E$ , so ist leicht zu zeigen, dass  $I(V)$  eine ungerade Funktion von  $V$  sein muss. Daher reicht es, die folgende Diskussion auf positive Spannungen  $V \geq 0$  zu beschränken. Gegeben sei der Strom an  $n + 1$  äquidistanten Spannungswerten mit Abstand  $\delta V$ , beginnend bei  $V = 0$ , also

$$I_j = I(V_j) \text{ mit } j = 0 \dots n \text{ und } V_j = j \cdot \delta V \quad \forall_{j=0}^n \quad . \quad (4.7)$$

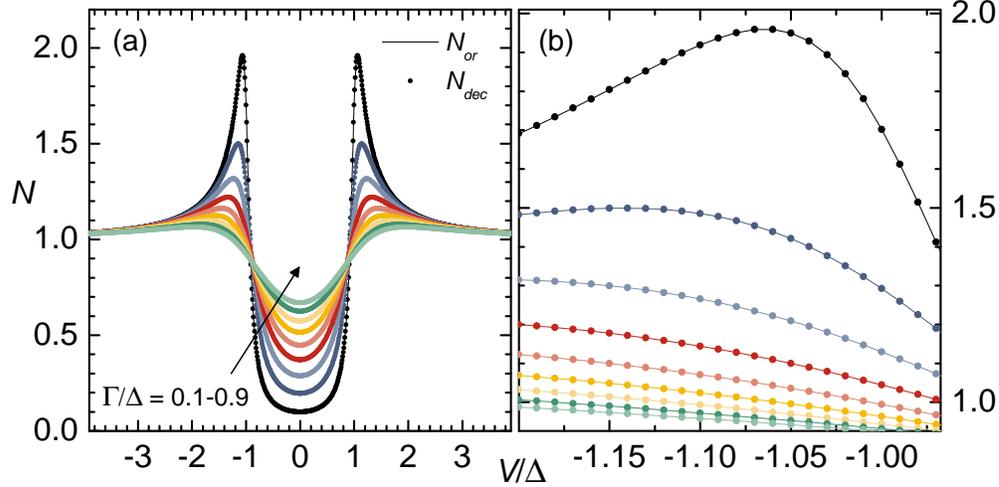


Abbildung 4.2: Gemäß (2.22) und (2.24) berechnete BCS-Zustandsdichten (Linien) zusammen mit aus diesen Originaldaten per Faltung und Entfaltung zurückberechnete Daten (Punkte)

In dieser Diskretisierung ergibt sich für die Strom-Spannungs-Kennlinie gemäß Gleichung (4.2)

$$I_j = e \delta V \cdot \sum_{k=1}^j N_k N_{j-k} \text{ mit } N_j = N(eV_j) = N(j \cdot e \cdot \delta V) \quad . \quad (4.8)$$

Einfache Umformungen ergeben

$$N_j = \frac{1}{N_0} \left( \frac{I_j}{e \delta V} - \sum_{k=1}^{j-1} N_k N_{j-k} \right). \quad (4.9)$$

In der rechten Seite von Gleichung (4.9) treten nur Werte der Zustandsdichte auf, deren Index kleiner als  $j$  ist. Ist also  $N_0$ , d.h. der Wert der Zustandsdichte bei  $V = 0$ , bekannt und zudem ungleich Null, so lassen sich alle weiteren Werte der Zustandsdichte rekursiv gemäß Gleichung (4.9) bestimmen. Totale Differentiation von Gleichung (4.2) nach  $V$  liefert

$$\frac{dI}{dV}(V) = eN(eV)N(0) - e \int_0^{eV} N(E) \partial_W N(W) |_{W=E-eV} dE \quad (4.10)$$

Insbesondere ergibt sich für  $V = 0$

$$\frac{dI}{dV}(0) = eN(0)^2. \quad (4.11)$$

$N_0$  lässt sich also direkt dem Leitwertsspektrum an der Stelle  $V = 0$  entnehmen. Um dieses Verfahren zu testen, wurden Zustandsdichten für BCS-Supraleiter mit Dynes-Parametern zwischen  $\Gamma/\Delta = 0.1$  und  $0.9$  nach Formel (2.21) mit (2.24) berechnet und in Abbildung 4.2 als Linien dargestellt. Dabei ist die Zustandsdichte an der Stelle  $V = 0$  durch

$$N(0) = \Re \left( \frac{i\Gamma}{\sqrt{(i\Gamma)^2 - \Delta^2}} \right) = \frac{1}{\sqrt{1 + (\Delta/\Gamma)^2}} \quad (4.12)$$

bestimmt. Anschließend wurden aus diesen Zustandsdichten die Strom-Spannungskennlinien nach Gleichung (4.8) berechnet und numerisch differenziert. Diese  $IV$ -Kennlinien und die aus den Ableitungen bei  $V = 0$  erhaltenen Wert für  $N(0)$  dienten wieder als Ausgangsdaten für die rekursive Berechnung der Zustandsdichten gemäß (4.9). Diese berechneten Zustandsdichten wurden ebenfalls in Abbildung 4.2 als Punkte eingetragen. Teilabbildung 4.2b zeigt eine Ausschnittvergrößerung von Teilabbildung 4.2a. Hier ist besonders deutlich zu erkennen, dass auf der dargestellten Skala kein Unterschied zwischen den Originaldaten ( $N_{or}$ ) und den entfalteten Daten ( $N_{dec}$ <sup>4</sup>) zu erkennen ist.

Schließlich lässt sich das gerade beschriebene Verfahren zur Entfaltung auch auf den Fall erweitern, dass die Tunnelwahrscheinlichkeit  $P(E, V)$  nicht konstant, aber bekannt ist. Der Tunnelstrom im Grenzfall  $T \rightarrow 0$  ist dabei durch

$$I(V, T = 0) = \int_0^{eV} dE P(E, V) N(E) N(E - eV) \quad (4.13)$$

gegeben. Die Zustandsdichte bei  $E = 0$  ergibt sich aus der Tunnelleitfähigkeit bei  $V = 0$  gemäß

$$\frac{dI}{dV}(0) = eP(E = 0, V = 0)N(0)^2 \quad (4.14)$$

Gilt weiterhin  $P(E, V) = P(-E, -V)$ , so ist  $I(V)$  wieder eine ungerade Funktion, und es reicht, sich auf den Fall  $V > 0$  zu beschränken. Mit (4.7) und

$$P_{kj} = P(E_k = ke \delta V, V_j = j \delta V) \quad (4.15)$$

lässt sich (4.13) in diskreter Form als

$$I_j = e \delta V \sum_{k=1}^j P_{kj} N_k N_{j-k} \quad (4.16)$$

ausdrücken. Aus (4.16) und (4.14) kann nun wiederum die Zustandsdichte in rekursiver Weise berechnet werden.

$$N_j = \frac{1}{N_0 P_{jj}} \left( \frac{I_j}{e \delta V} - \sum_{k=1}^{j-1} P_{kj} N_k N_{j-k} \right) \quad (4.17)$$

<sup>4</sup>Der Index leitet sich von der englischen Bezeichnung deconvolution für die Entfaltung ab.

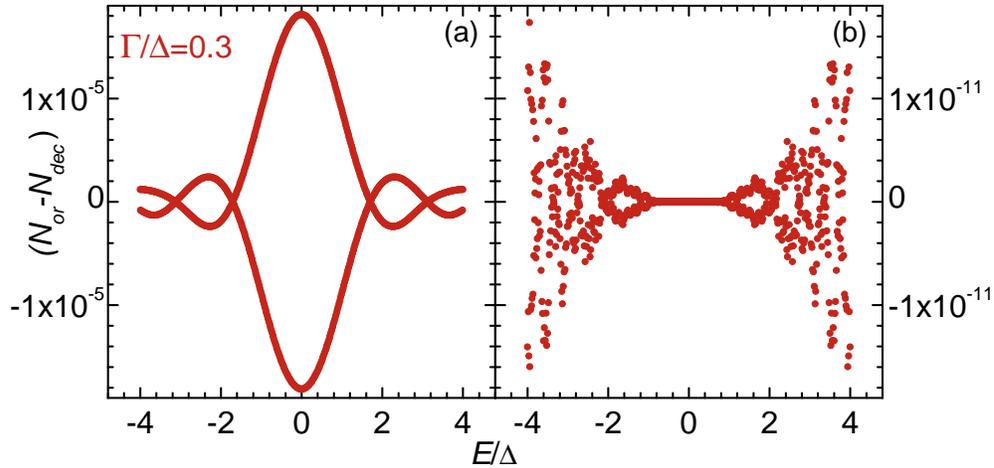


Abbildung 4.3: Differenz zwischen Original- und entfaltetem Daten für eine BCS-Zustandsdichte, wobei der Wert für  $N(0)$  der Ableitung der berechneten  $IV$ -Kurve (a) bzw. den Original-Zustandsdichte-Daten entnommen wurde.

### 4.1.2 Fehlerbetrachtung

Weisen die zur Entfaltung verwendeten Daten, wie im vorliegenden Beispiel, kein Rauschen auf, so entsteht der größte Fehler, der in die Berechnung eingeht, bei der Bestimmung von  $N(0)$  durch numerische Differenzierung der  $IV$ -Kennlinie. So zeigt Abbildung 4.3 die Differenz zwischen entfaltetem Daten und Originaldaten für  $\Gamma/\Delta = 0.3$  als Funktion der Energie, wobei zur Berechnung der in Teilabbildung a dargestellten Daten wie zuvor beschrieben  $N(0)$  anhand der numerisch differenzierten  $GV$ -Kennlinie ermittelt wurde, während in die Berechnung von den in Teilabbildung b gezeigten Daten der  $N(0)$ -Wert der Originaldaten eingegangen ist. Dabei sind drei wichtige Beobachtungen festzuhalten. Zum einen wechselt zwischen benachbarten Punkten fast immer das Vorzeichen der Abweichung zwischen Original- und entfaltetem Daten. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wurde deswegen darauf verzichtet, benachbarte Punkte mit Linien zu verbinden. Auf diese Weise ergeben sich scheinbar zwei Kurven, die eine nahezu perfekte Symmetrie bezüglich der  $E$ -Achse aufweisen. Zum anderen zeigt Teilabbildung a ein Muster, das eine große Ähnlichkeit mit Interferenzmustern aufweist. Durch Verwendung des Original-Wertes für  $N(0)$  schließlich sinkt die Abweichung zwischen Original- und entfaltetem Daten um 5 Größenordnungen, wie Teilabbildung b zeigt. Auch hier zeigt sich ein, allerdings undeutlicheres, Muster in der Abweichung, wobei der Betrag der Abweichung hier mit der Entfernung von  $E = 0$  zunimmt. Es ist anzunehmen, dass die in Teilabbildung

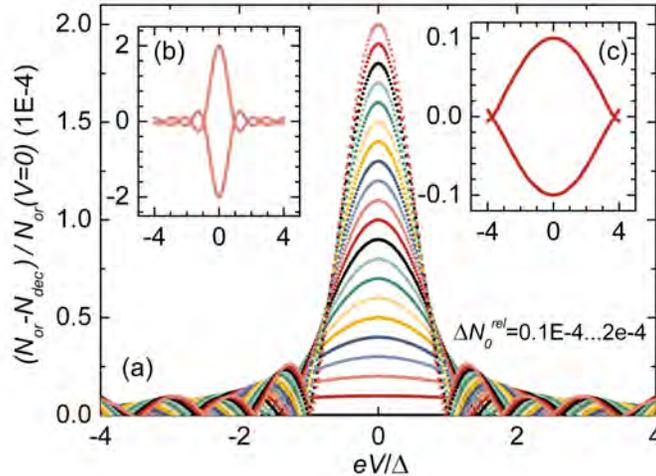


Abbildung 4.4: Differenz zwischen Original- und entfaltetem Zustandsdichten für verschiedene positive Abweichungen  $\Delta N_0^{rel}$  gemäß (4.18) als Funktion der Energie(a), sowie die Kurven aus Teilabbildung (a) für den jeweils kleinsten (b) und größten (c) Wert von  $\Delta N_0^{rel}$ .

b dargestellte Abweichung nur noch von Rundungsfehlern bei der numerischen Berechnung verursacht wird. Um den Einfluss eines Fehlers in der Bestimmung von  $N(0)$  auf die entfaltetten Daten genauer zu untersuchen, wurde bei den Abbildungen 4.4 und 4.5 zugrunde liegenden Daten der Wert von  $N(0)$  gezielt gemäß

$$N(0) = (1 + \Delta N_0^{rel})N_{or}(0) \text{ mit } \Delta N_0^{rel} = \pm 1 \cdot 10^{-5}, \dots, \pm 20 \cdot 10^{-5} \quad (4.18)$$

variiert. Die Abbildungen 4.4 und 4.5 zeigen wiederum die Differenz zwischen den auf diese Weise entfaltetten Daten und den Originaldaten, wobei Abbildung 4.4 sich auf positive Abweichungen  $\Delta N_0^{rel}$  vom Originalwert bezieht, Abbildung 4.5 auf negative. Es zeigt sich, dass das Vorzeichen dieser Abweichung das Verhalten der entfaltetten Daten qualitativ ganz unterschiedlich beeinflusst. Ist der für  $N(0)$  gewählte Wert zu groß, so entsteht ein schon in Abbildung 4.3 dargestelltes Interferenzmuster, dessen Zentral-Maximum mit zunehmender Abweichung ebenfalls wächst, während die Periodenlänge des Musters abnimmt. Zur Verdeutlichung sind in den Teilabbildungen 4.4 b und c die sich für  $N_0^{rel} = +1 \cdot 10^{-5}$  bzw. für  $N_0^{rel} = +20 \cdot 10^{-5}$  ergebenden Kurven noch einmal ganz dargestellt. Ist der für  $N(0)$  gewählte Wert dagegen zu klein, so nimmt der Betrag der Differenz zwischen Original- und entfaltetten Daten mit zunehmender Distanz zu  $E = 0$  exponentiell zu, und zwar umso schneller, je weiter der für  $N(0)$  gewählte Wert vom Originalwert abweicht. Um dies zu verdeutlichen, wurde in Teilabbildung reffig:analyse:deconv:fehlerminus (a) im Gegensatz zu den anderen Teilabbildungen eine logarithmische Skalierung der Ordinatenach-

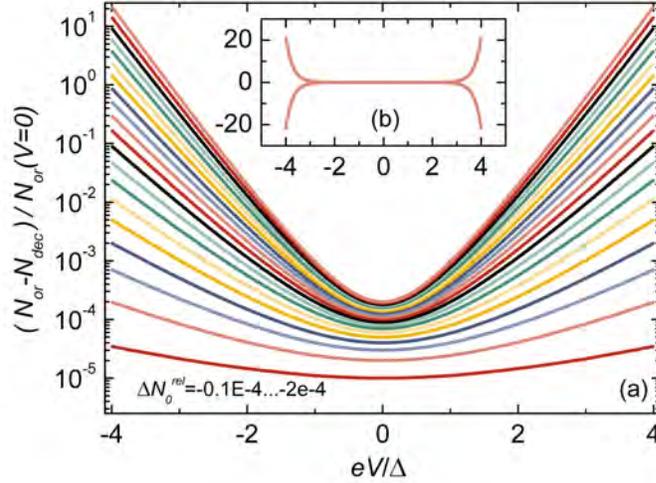


Abbildung 4.5: Differenz zwischen Original- und entfalteten Zustandsdichten für verschiedene negative Abweichungen  $\Delta N_0^{rel}$  gemäß (4.18) als Funktion der Energie(a), sowie die Kurve aus Teilabbildung (a) für den größten Wert von  $\Delta N_0^{rel}$  (b).

se gewählt. Teilabbildung 4.5 (b) schließlich zeigt die sich für  $N_0^{rel} = -20 \cdot 10^{-5}$  ergebende Kurve ganz.

Um die Möglichkeiten und Grenzen der hier vorgestellten Entfaltungsmethode bei der Anwendung auf experimentelle Leitwertsspektren abzuschätzen, muss schließlich noch der Einfluss von Rauschen in den Originaldaten diskutiert werden. Tatsächlich zeigt sich hier eines der größten Probleme dieser rekursiven Methode. Gemäß Gleichung (4.9) gehen in die Berechnung eines  $N_j$ -Wertes alle zuvor berechneten Werte, in den Fehler also auch alle Fehler der zuvor berechneten Werte ein. Dies kann zu einem mit zunehmendem  $j$  stark anwachsenden Fehler führen. Um die Entfaltung von experimentellen, verrauschten Daten zu simulieren, wurden, ausgehend von den schon bisher verwendeten Zustandsdichte-Daten,  $IV$ -Kurven berechnet und numerisch differenziert. Für jeden Spannungswert wurde eine Zufallszahl  $R(V)$  zwischen -1 und 1 generiert, mit einer Rauschamplitude von 0.01 multipliziert und zu dem entsprechenden Leitwert addiert. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.6a dargestellt. Obwohl die gewählte Rauschamplitude relativ klein ist und sich das Rauschen auf der in Abbildung 4.6 gewählten Größenskala kaum erkennen lässt, ist der Effekt auf die auf Basis dieser  $GV$ -Kurven berechneten Zustandsdichten dramatisch. So steigt der berechnete Wert für die Zustandsdichte für die größten dargestellten Spannungswerte auf  $\pm 10^n$  mit  $n$  im zweistelligen Bereich an. Wiederum wechselt zwischen benachbarten Spannungswerten fast immer das Vorzeichen. Dies lässt sich nutzen, indem mehrmals hintereinander über jeweils zwei benachbarte Punkte ge-

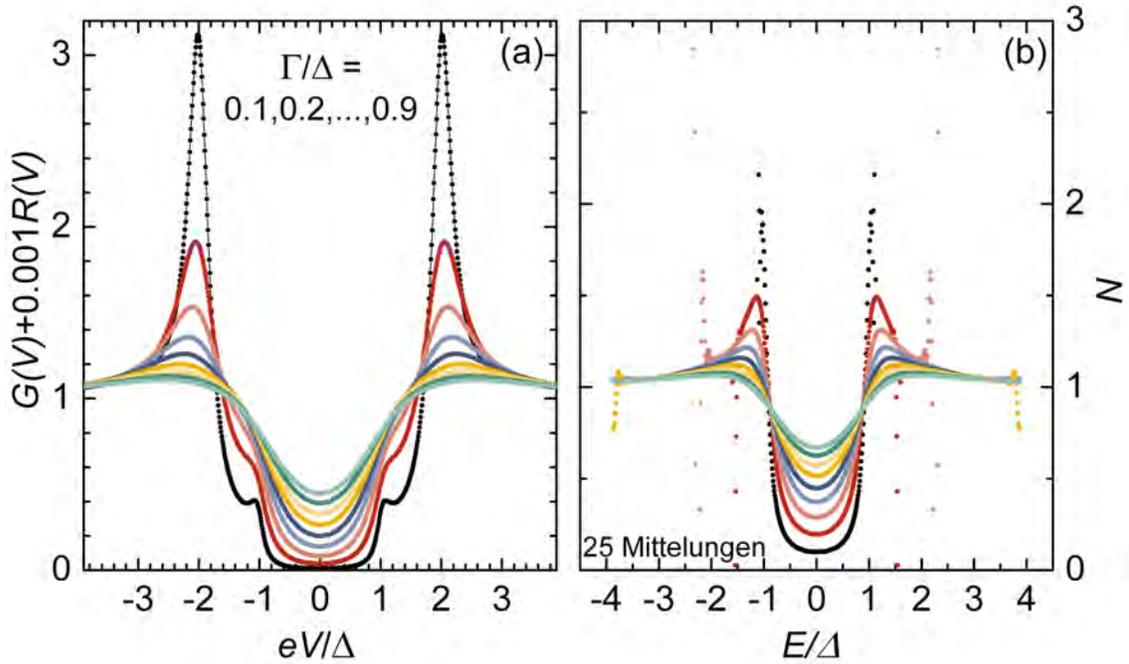


Abbildung 4.6: mit Rauschen versehene  $GV$ -Kurven (a) und daraus berechnete Zustandsdichten nach 25 Mittelungen (b)

mittelt wird, wobei die Ergebnisse einer Mittelung als Ausgangsdaten für die nächste Mittelung dienen. Das Ergebnis von 25 nacheinander ausgeführten Mittelungen ist in Abbildung 4.6b dargestellt. Wie man sieht, ist das Resultat unterschiedlich gut; bei einigen Kurven weicht allerdings auch nach 25 Mittelungen die Zustandsdichte für größere Spannungen noch dramatisch vom erwarteten Verlauf ab. Aufgrund des häufigen Vorzeichenwechsels wurden die einzelnen Punkte auch hier nicht durch Linien verbunden, um so die Übersichtlichkeit zu erhöhen. Insgesamt ist zu sagen, dass die Mittelung umso bessere Werte erzielt, je größer der Dynes-Faktor ist. Dabei ist bisher noch nicht klar, ob das eine Auswirkung des höheren Leitwerts im Lückenbereich, der kleineren Kohärenzmaxima oder einer Kombination dieser Effekte ist. Abbildung 4.7a schließlich zeigt die ursprüngliche, berechnete BCS-Zustandsdichte  $N_{or}(E)$  für  $\Gamma/\Delta = 0.4$  zusammen mit der aus der entsprechenden, künstlich mit Rauschen versehenen  $GV$ -Kurve berechneten Zustandsdichte  $N_{dec}(E)$  nach 25 Mittelungen. Im Bereich der Energielücke stimmen beide Kurven sehr gut überein, im Außenbereich sind allerdings leichte Abweichungen zu erkennen. Dennoch stimmen die beiden aus diesen Kurven berechneten  $G(V)$ -Kurven über den gesamten Spannungsbereich sehr gut überein, wie Abbildung 4.7b belegt. Insofern ist bei der In-

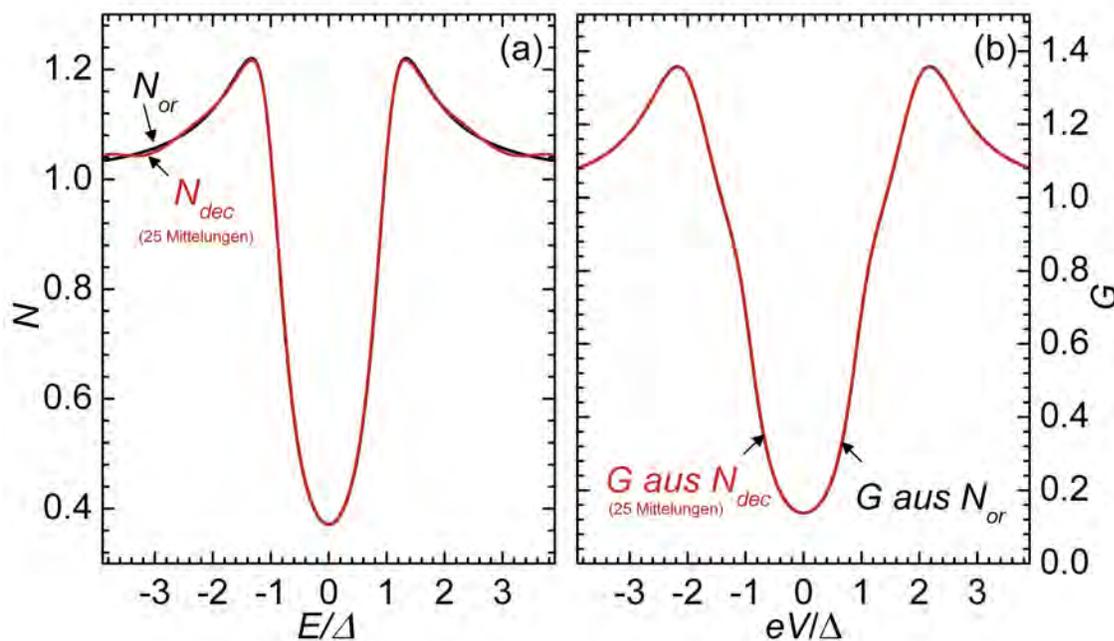


Abbildung 4.7: Original-Zustandsdichte und aus zugehörigen  $G(V)$ -Kurve mit Rauschen berechnete Zustandsdichte nach 25 Mittelungen (a) sowie aus diesen beiden Zustandsdichten berechnete  $GV$ -Kurven

terpretation durch Entfaltung aus experimentellen Leitwertsspektren gewonnener Zustandsdichten stets Vorsicht geboten, insbesondere, was periodische Strukturen im Außenbereich betrifft.

## 4.2 Hintergrundleitfähigkeit

Gemäß der bisher in Kapitel 3 vorgestellten Theorien sollte sich der Leitwert eines SIN- oder SIS-Kontaktes für große Spannungsbeträge einem konstanten Wert annähern, auf den sich das gesamte Spektrum normieren lässt, so dass sich Spektren wie in den Abbildungen 3.3-3.5 ergeben.

Viele Tunnelkontakte auf Basis von Hochtemperatur-Supraleitern, aber auch einige Kontakten aus klassischen Tieftemperatur-Supraleitern zeigen dagegen im Bereich jenseits der Energielücke eine lineare bis parabolische Abhängigkeit des Leitwertes vom Betrag der Spannung. Insbesondere werden lineare Hintergrundleitfähigkeiten für Kontakte auf Basis von  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  [Gurvitch89, Valles91, Cucolo92, Grajcar97],

$\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  [Pan87, Kirtley87, Grajcar97],  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  [Cucolo94, Grajcar95], perovskitischer Bismuth- und Blei-Oxide [Sharifi91] aber auch auf Basis klassischer Supraleiter wie Aluminium oder Chrom [Kirtley90b, Kirtley92] beobachtet. Informationen, die aus solchen Spektren über die Zustandsdichten der supraleitenden Elektroden gewonnen werden, hängen natürlich grundlegend von der Interpretation und resultierend daraus von der theoretischen Behandlung der Hintergrundleitfähigkeit ab. Dabei lassen sich prinzipiell zwei Gruppen von Erklärungsansätzen unterscheiden, nach denen die Hintergrundleitfähigkeit auf Effekte in den *Elektroden* oder in der *Barriere* zurückgeführt wird. Bevor diese Ansätze näher diskutiert werden, wird im folgenden Abschnitt jedoch zunächst eine traditionelle Methode vorgestellt, mit der die Hintergrundleitfähigkeit bei Tunnelspektren eliminiert wird,

### 4.2.1 Normierung durch Division

In der Literatur wird häufig anstelle des direkt gemessenen Tunnelspektrums  $G_{sl}(V)$  eines SIS- oder SIN-Kontaktes im supraleitenden Zustand der Quotient aus dieser Kurve und der entsprechenden Kurve  $G_{nl}(V)$  bei normalleitenden Elektroden betrachtet. Man spricht in diesem Zusammenhang von einer Normierung der  $G_{sl}(V)$ -Kurve durch die  $G_{nl}(V)$ -Kurve. Diese Methode wurde bereits 1964 von S. Bermon und D. M. Ginsberg vorgeschlagen, um Tunnelspektren an Al- $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Hg-Kontakten zu erklären. Sie zeigen, dass die differentielle Leitfähigkeit als Funktion der anliegenden Spannung im Gegensatz zu theoretischen Vorstellungen keine Konstante ist. Die Tatsache, dass das Verhältnis  $G_{sl}(V)/G_{nl}(V)$  im Gegensatz zu den einzelnen Leitwertkurven symmetrisch bezüglich  $V = 0$  ist und sich für hohe Spannungen dem Wert 1 nähert, werten sie jedoch als Hinweis darauf, dass eben jenes Verhältnis  $G_{sl}(V)/G_{nl}(V)$  Informationen über die reduzierte Zustandsdichte  $N_{sl}(E)/N_{nl}(E)$  des untersuchten Supraleiters liefert [Bermon64]. 1969 beruft sich J. M. Rowell auf die Ergebnisse von Bermon und Ginsberg und zeigt seinerseits Tunneldaten an Al – I – Sn-Kontakten, die sowohl im supraleitenden als auch im normalleitenden Zustand eine ausgeprägte Asymmetrie aufweisen, welche im Quotienten  $(dI/dV)_{sl}/(dI/dV)_{nl}$  verschwindet [Rowell69].

Bisher ist also das Hauptargument für die vorgestellte Normierungsmethode, dass dadurch sowohl die Hintergrundleitfähigkeit als auch Asymmetrien in den experimentellen Kurven beseitigt und normierte Kurven erzeugt werden können, die sich im Rahmen der einfachen Modelle beschreiben lassen, die in Abschnitt 3.4 vorgestellt werden. Inwiefern aber lässt sich diese Methode theoretisch rechtfertigen?

Nach dem einfachen eindimensionalen Modell aus Abschnitt 3.1 ergibt sich der Tunnelstrom im Grenzfall  $T \rightarrow 0$  gemäß (3.5) zu

$$I(V) = \alpha \int_{-eV}^0 P(E, V) N_1(E) N_2(E + eV) \quad (4.19)$$

Die Ableitung nach  $V$  liefert für einen NIN-Kontakt ( $N_1(E) = N_1$ ,  $N_2(E) = N_2$ )

$$G_{NIN}(V) = \alpha e P(E = -eV, V) N_2 N_1 + \alpha N_2 N_1 \int_{-eV}^0 \partial_V P(E, V) dE \quad (4.20)$$

bzw. für einen SIN-Kontakt ( $N_2(E) = N_2 = \text{const.}$ )

$$G_{SIN}(V) = \alpha e P(E = -eV, V) N_2 N_1(eV) + \alpha N_2 \int_{-eV}^0 \partial_V P(E, V) N_1(E) dE \quad (4.21)$$

und für einen SIS-Kontakt

$$G_{SIS}(V) = \alpha e P(E = -eV, V) N_2(0) N_1(eV) + \alpha \int_{-eV}^0 \partial_V P(E, V) N_1(E) N_2(E + eV) dE + \alpha e \int_{-eV}^0 P(E, V) N_1(E) \partial_W N_2(W)_{W=E+eV} dE \quad (4.22)$$

Nach diesen Überlegungen spiegeln die Quotienten  $G_{SIS}/G_{NIN}$  bzw.  $G_{SIN}/G_{NIN}$  nur dann das Verhältnis der Zustandsdichte von Elektrode 1 im supraleitenden Zustand und der entsprechenden Zustandsdichte im normalleitenden Zustand, wenn der erste Summand auf der jeweils rechten Seite von (4.20), (4.21) und (4.22) die Summe so dominiert, dass die übrigen Summanden vernachlässigt werden können. Ob dies möglich ist, hängt wiederum von der Tunnelwahrscheinlichkeit  $P(E, V)$  und für SIS-Kontakte von der Form der Zustandsdichte der zweiten Elektrode ab.

Abgesehen von diesem grundlegenden Problem tritt bei Hochtemperatur-Supraleitern eine weitere Schwierigkeit auf. Während bei klassischen Supraleitern bei  $T = T_c$  Gleichung (4.20) eine gute Näherung für die Tunnelleitfähigkeit darstellt, führen die hohen kritischen Temperaturen der Kuprate dazu, dass in Tunnelspektren bei  $T_c$  schon deutliche Effekte durch thermische Verrundung sichtbar werden.  $G(V, T = T_c)$  lässt sich daher nicht zur Normierung der Spektren verwenden. Gibt es ein Modell zur Beschreibung der NIN-Spektren, so kann die entsprechende Funktion an den Außenbereich der Spektren mit supraleitenden Elektroden angepasst werden. Bei einer trapezförmigen Tunnelbarriere ergibt sich unter bestimmten Voraussetzungen zum Beispiel eine quadratische  $G(V)$ -Kurve für einen NIN-Kontakt, wie in Abschnitt 4.2.3 näher ausgeführt wird. Tunnelspektren an Hochtemperatursupraleitern zeigen jedoch häufig über große Spannungsbereiche eine lineare Hintergrundleitfähigkeit. Abbildung 4.8 illustriert dies am Beispiel eines bei 5 K und 0 T aufgenommenen Spektrums der Probe L194 und einer für  $|V| \geq 25$  mV angepassten Funktion der Form

$$f_{lin}(V, C, m) = C + m \cdot |V| \quad . \quad (4.23)$$

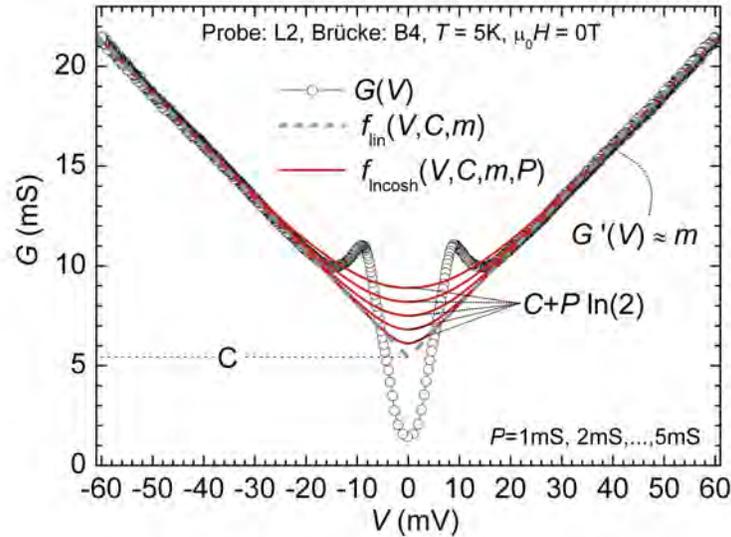


Abbildung 4.8: Beispiel eines Tunnelspektrums mit einer an den Bereich  $|V| \geq 25$  mV angepassten linearen Funktion  $f_{lin}(V, C, m)$  der Form (4.23) sowie Funktionen  $f_{incosh}(V, C, m, P)$  der Form (4.24) für verschiedene Werte des Parameters  $P$  und den Parametern  $C$  und  $m$  aus der Anpassung von  $f_{lin}(V, C, m)$ .

Ohne ein geeignetes physikalisches Modell, das diese Hintergrundleitfähigkeit auf Eigenschaften von Elektroden oder Barriere zurückführt, bleibt für die Normierung nur die Möglichkeit, eine möglichst einfache Hintergrundfunktion zu wählen und deren Parameter an die experimentelle Kurve im Bereich hoher Spannungen anzupassen. Die Wahl dieser Funktion unterliegt natürlich einer gewissen Willkür. Deshalb ist es wichtig festzuhalten, welchen Anforderungen die Hintergrundfunktion genügen muss.

- Die Funktion sollte für große Spannungen linear verlaufen. Dabei sei die Steigung im Außenbereich durch  $m$ , der zu  $V = 0$  extrapolierte Wert der entsprechenden Geraden durch  $C$  gegeben.
- Sie sollte (für symmetrische Spektren) achsensymmetrisch zur  $G$ -Achse verlaufen.
- Die Funktion sollte überall stetig differenzierbar sein.
- Außer einem Minimum bei  $V = 0$  sollte die Funktion keine weiteren Extrema oder Wendepunkte aufweisen, d.h. insbesondere sollte über dem ganzen Definitionsbereich  $f''(V) \geq 0$  gelten.

Eine der einfachsten Funktionen, die alle diese Anforderungen erfüllt, ist durch

$$\begin{aligned} f_{\text{Incosh}}(V, C, m, P) &= C + P \cdot \ln \left( \exp \left( \frac{m}{P} V \right) + \exp \left( -\frac{m}{P} V \right) \right) \\ &= C + P \cdot \ln \left( 2 \cosh \left( \frac{m}{P} V \right) \right) \end{aligned} \quad (4.24)$$

gegeben<sup>5</sup>. Dabei werden die Parameter  $C$  und  $m$  durch eine Geradenanpassung an den Außenbereich des Spektrums bestimmt und fest vorgegeben, so dass nur noch ein variabler Parameter übrigbleibt. Dieser Parameter  $P$  beeinflusst dabei sowohl den Spannungsbereich, in dem  $f_{\text{Incosh}}(V)$  den linearen Bereich verlässt, als auch den Wert  $f_{\text{Incosh}}(V = 0) = C + P \cdot \ln 2$ . Abbildung 4.8 zeigt  $f_{\text{Incosh}}(V)$  für verschiedene Werte von  $P$ . Dabei wird ein grundlegendes Problem deutlich. In dem Datenbereich, in dem die Hintergrundfunktion besonders stark von  $P$  abhängt, stehen die wenigsten Datenpunkte aus dem experimentellen Tunnelspektrum zur Verfügung, da diese gerade im Bereich um  $V \approx 0$  von der Hintergrundleitfähigkeit abweicht. Darüberhinaus wird das Ergebnis einer Anpassung von  $f_{\text{Incosh}}(V)$  an ein Tunnelspektrum wesentlich vom Spannungsbereich abhängen, der dem Fit zugrunde gelegt wird.

## 4.2.2 Effekte in den Elektroden

Die Häufigkeit und Reproduzierbarkeit des Auftretens linearer bis parabolischer Hintergrundleitfähigkeiten bei Tunnelkontakten aus Hochtemperatur-Supraleitern und der Erfolg der Tunnelspektroskopie bei der Bestimmung der Zustandsdichte klassischer Supraleiter legen nahe, die Hintergrundleitfähigkeit auf die Zustandsdichte der Hochtemperatur-Supraleiter zurückzuführen.

So postuliert die RVB-Theorie<sup>6</sup>, dass die starken Korrelationen zwischen den Elektronen zu einer Trennung der Freiheitsgrade von Ladung und Spin führen. Die Anregungen eines solchen Materials bestehen aus Bosonen mit Ladung  $+e$  und Spin 0 einerseits und Fermionen mit Ladung 0 und Spin 1/2 andererseits, die als Holonen und Spinonen bezeichnet werden [Anderson88]. Beim Tunneln von einem Normalleiter konstanter Zustandsdichte in ein Material, das durch die RVB-Theorie beschrieben wird, muss das tunnelnde Elektron in ein Holon und ein Spinon zerfallen, so dass bei  $T = 0$  K der Tunnelstrom durch

$$I(V) \sim \int_0^{eV} N_H(E) dE \cdot \int_0^{eV} N_S(E) dE \quad (4.25)$$

gegeben ist. Sind die Zustandsdichten der Holonen ( $N_H(E)$ ) und der Spinonen ( $N_S(E)$ ) konstant, so ergibt sich ein parabolischer Zusammenhang zwischen Strom und Spannung und somit eine lineare  $GV$ -Kurve.

<sup>5</sup>Diese Funktion wurde zum Beispiel in [Schonecke04] und [Krockenberger02] zur Normierung von Tunneldaten verwendet

<sup>6</sup>Resonating Valence Bond

In der von J. C. Phillips vorgestellten Erklärung der Hintergrundleitfähigkeit spielen lokalisierte Zustände eine zentrale Rolle [Phillips90]. Danach setzt sich die Zustandsdichte der Kuprate in der normalleitenden Phase additiv zusammen aus der Dichte  $N_{loc}(E)$  lokalisierter Zustände in den einzelnen  $\text{CuO}_2$ -Ebenen und der Dichte delocalisierter Zustände  $N_{deloc}(E)$ , die durch Kopplung zwischen den  $\text{CuO}_2$ -Ebenen über Defektzustände entstehen. Beim Unterschreiten der kritischen Temperatur gehen nur die delokalisierten Elektronen in die supraleitende Phase über, so dass die lokalisierten Zustände sowohl zu der beobachteten Hintergrundleitfähigkeit als auch zu einer endlichen Leitfähigkeit im Bereich der Energielücke führen.

In der Theorie der marginalen Fermiflüssigkeiten (MFL<sup>7</sup>) schließlich werden die ungewöhnlichen Eigenschaften der normalleitenden Phase in Hochtemperatur-Supraleitern, zu denen auch die lineare Hintergrundleitfähigkeit von Tunnelspektren gehört, auf eine Selbstenergie der Quasiteilchen zurückgeführt, die durch

$$\Sigma(\mathbf{k}, \omega) = \lambda \left( \omega \ln \frac{x}{\omega_0} + i\pi x \right) \quad (4.26)$$

gegeben ist. Dabei ist  $x = \max(T, \omega)$ ,  $\omega_0$  eine Abschneidefrequenz und  $\lambda$  die Kopplungskonstante.

### 4.2.3 Effekte in der Barriere

Zum einen kann eine spannungs- und energieabhängige Tunnelwahrscheinlichkeit zu einer Hintergrundleitfähigkeit führen, die sich auch für große Spannungen  $V$  nicht einem konstanten Wert annähert. Dabei wird die Tunnelwahrscheinlichkeit  $P(E, V)$  maßgeblich von der Form des Barrierenpotentials  $\phi(\mathbf{r}, V)$  beeinflusst.

Zum anderen können Eigenschaften der Barriere dazu führen, dass parallel zum direkten elastischen Tunneln andere Transportmechanismen auftreten, welche die Hintergrundleitfähigkeit verursachen.

Die einzelnen Effekte und ihr Einfluss auf die Hintergrundleitfähigkeit werden in den folgenden Abschnitten vorgestellt

#### **Einfluss der Tunnelwahrscheinlichkeit für einen NIN-Kontakt**

Bevor der Zusammenhang zwischen dem Barrierenpotential und der Tunnelwahrscheinlichkeit näher erläutert und die Auswirkungen eines sehr einfachen trapezförmigen Barrierenpotentials ausführlich diskutiert werden, soll zunächst kurz der Einfluss der Tunnelwahrscheinlichkeit für einen NIN-Kontakt behandelt werden. Nach dem sehr einfachen eindimensionalen Modell, das in Abschnitt 3.1 vorgestellt wurde, ergibt sich die Tunnelleitfähigkeit im Grenzfall  $T \rightarrow 0$  für konstante Zustandsdichten zu

$$G(V) \propto eP(E = eV, V) + \int_0^{eV} dE \frac{\partial}{\partial V} P(E, V). \quad (4.27)$$

<sup>7</sup>Marginal Fermi Liquids

Hängt die Tunnelwahrscheinlichkeit darüberhinaus nicht von der Spannung ab, lässt sich die Energieabhängigkeit  $P(E)$  direkt dem Leitwertsspektrum  $G(V)$  entnehmen. Insbesondere lässt sich ein NIN-Spektrum der Form

$$G(V) = G_0 + m|V| \quad (4.28)$$

durch eine Tunnelwahrscheinlichkeit sowohl der Form

$$P(E, V) = P(E) = a + b|E| \quad (4.29)$$

als auch der Form

$$P(E, V) = P(V) = a + b|V| \quad (4.30)$$

erzeugen. Dabei handelt es sich natürlich um ein rein phänomenologisches Modell, das keine Erklärung für die vorgeschlagene Form der Tunnelwahrscheinlichkeit liefert.

### Modell der Trapezbarriere

John G. Simmons [Simmons63b, Simmons63a] und darauf aufbauend W. F. Brinkman, R. C. Dynes and J. M. Rowell [Brinkman70] konnten mit einem sehr einfachen Barrierenpotential eine parabolische Hintergrundleitfähigkeit erklären, die häufig in Tunnelkontakten aus normalleitenden Metallen beobachtet wird.

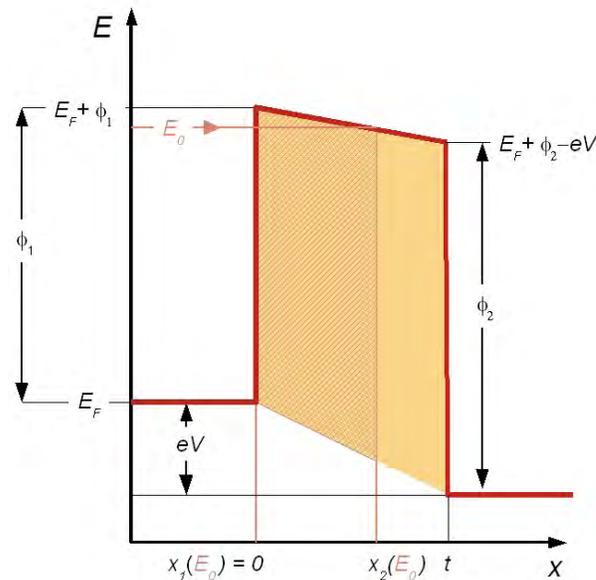


Abbildung 4.9: Schematische Darstellung einer trapezförmigen Tunnelbarriere für  $V > 0$ .

Wie in Abschnitt 3.3.1 beschrieben wurde, ist die Tunnelwahrscheinlichkeit eines Kontaktes im eindimensionalen Fall in der WKB-Näherung durch

$$P(E, V) = \exp\left(-A \int_{x_1}^{x_2} dx \sqrt{\phi(x, V) - E}\right) \quad (4.31)$$

gegeben.  $x_1$  und  $x_2$  sind die Wendepunkte der Bewegung im klassischen Sinn, also die Punkte  $x_i$  mit  $\phi(x = x_i, V) = E_x$ . Der Potentialverlauf  $\phi(x, V)$  einer sehr einfachen, trapezförmigen Tunnelbarriere, wie sie den Berechnungen in [Brinkman70] zugrunde liegt, ist in Abbildung 4.9 schematisch dargestellt. Dabei wird die Barriere durch ihre Dicke  $t$  und die Höhen  $\phi_1, \phi_2$  zu beiden Seiten der Barriere relativ zu den jeweiligen Fermi-Niveaus charakterisiert. Das Anlegen einer positiven Spannung  $V$  erniedrigt die Lage des Fermi-Niveaus der rechten Elektrode um  $eV$ , wodurch das Barrierenpotential verkippt wird. Damit ergibt sich das Barrierenpotential insgesamt zu

$$\phi(x, V) = \begin{cases} E_F & \text{für } x < 0 \\ E_F + \phi_1 + \frac{\phi_2 - eV - \phi_1}{t} \cdot x & \text{für } 0 < x < t \\ E_F - eV & \text{für } x > t, \end{cases} \quad (4.32)$$

wobei  $E_F$  die Fermienergie der linken Elektrode ist. Der Bereich zwischen  $x_1$  und  $x_2$ , über den bei der Berechnung von  $P(E, V)$  integriert wird, hängt dabei für eine feste Spannung  $V$  von der Energie  $E$  ab und ist in Abbildung 4.9 für eine dort beispielhaft eingezeichnete Energie  $E_0$  schraffiert dargestellt. Eine ausführliche Betrachtung findet sich im Anhang A.3.1.

Für Tunnelkontakte mit sehr kleiner Querschnittsfläche reicht unter Umständen ein *eindimensionales Modell* aus, um den Tunnelstrom zu beschreiben. Insbesondere gilt dies im ballistischen Limit, also wenn die Abmessungen des Tunnelkontaktes die elastische mittlere freie Weglänge  $\ell$  deutlich unterschreiten. Hier ergibt sich der Tunnelstrom zu

$$I(V) = \gamma \int_{-\infty}^{+\infty} dE P(E, V) N_1(E) N_2(E + eV) (f_T(E, E_F) - f_T(E + eV, E_F)) \quad (4.33)$$

. Für einen einzelnen Transportkanal gilt für den Vorfaktor  $\gamma = \frac{2e}{h}$ , so dass der Leitwert bei  $V = 0$  durch

$$G(V = 0) = \frac{2e^2}{h} \exp(-At\sqrt{\phi}) \quad (4.34)$$

mit  $A = \sqrt{\frac{8m}{\hbar^2}} \approx 1.025 \frac{1}{A\sqrt{eV}}$  gegeben ist. Der Widerstand des Kontaktes ohne Barriere ( $\phi = t = 0$ ) entspricht damit dem Widerstandsquantum  $h/(2e^2) \approx 12.9 \text{ k}\Omega$ . Für eine Parallelschaltung mehrerer (gleichwertiger) Kanäle lässt sich (4.33) erweitern,

indem der Vorfaktor  $\gamma = G_0/e$  gewählt wird. Dabei ist  $G_0$  wiederum der Leitwert des Kontaktes ohne Tunnelbarriere, für einen idealen ballistischen Kontakt also der Kehrwert des sogenannten Sharvin-Widerstandes, der sich aus dem spezifischen Widerstand  $\rho$ , der mittleren freien Weglänge  $\ell$  und der Fläche  $A$  des Kontaktes zu

$$G_0^{-1} = R_{SH} = \frac{4}{3}\rho\ell/A \quad (4.35)$$

ergibt [Jansen80].

Für Kontakte mit Querschnittsflächen deutlich jenseits des ballistischen Limits wird in der Literatur häufig das Modell eines *planaren Tunnelkontaktes* verwendet, bei dem das Barrierenpotential  $\phi(\mathbf{r}, V) = \phi(x, V)$  nur in der Richtung senkrecht zur Ebene der Barriere variiert. Wie in Abschnitt 3.3.1 erläutert, hängt die Tunnelwahrscheinlichkeit eines solchen Kontaktes nur von dem Teil  $E_x$  der kinetischen Energie ab, der mit der Impulskomponente senkrecht zur Ebene der Tunnelbarriere verknüpft ist. Damit ist der Tunnelstrom pro Flächeneinheit in einer Verallgemeinerung von Formel (3.26) durch

$$j(V) = \frac{4\pi me}{h^3} \int_0^{E_m} dE_x \{P(E_x, V) \int_0^\infty dE_{\parallel} N_1(E)N_2(E + eV) [f_T(E, E_F) - f_T(E + eV, E_F)]\} \quad (4.36)$$

gegeben.

Der Ansatz von J. Simmons besteht darin, das Integral in der Formel (4.31) für die Tunnelwahrscheinlichkeit gemäß

$$\int_{x_1}^{x_2} dx \sqrt{\phi(x, V) - E_x} \approx (x_2 - x_1) * \sqrt{\langle \phi(x, V) \rangle_x - E_x} \quad (4.37)$$

zu nähern, wobei  $\langle \phi(x, V) \rangle_x$  der mittlere Wert des Potentials im Intervall  $(x_1, x_2)$  ist [Simmons63b, Simmons63a].

Für einen NIN-Kontakt mit einem trapezförmigen, symmetrischen Barrierenpotential und konstanten Zustandsdichten lassen sich die Integrale in (4.33) bzw. (4.36) elementar berechnen, also geschlossene Ausdrücke für die Stromdichte (4.36) in einem planaren Kontakt bzw. den Tunnelstrom (4.33) in einem eindimensionalen Kontakt finden. Für den planaren Tunnelkontakt lässt sich der resultierende Ausdruck unter den Annahmen

$$E_F \gg \phi \text{ und } At\sqrt{\phi} \gg 1 \quad (4.38)$$

noch weiter vereinfachen werden. Eine Entwicklung in Potenzen von  $V$  und anschließende Differenzierung liefert jeweils einen Ausdruck der Form

$$\frac{G(V)}{G_0} \approx 1 + G_1V + G_2V^2 \quad (4.39)$$

für den Leitwert. Dabei ist für beide Modelle  $G_1 = 0$ , es ergibt sich also jeweils eine um  $V = 0$  zentrierte Parabel. Die Koeffizienten  $G_0$  und  $G_2$  hängen neben Naturkonstanten ausschließlich von  $\phi$  und  $t$  ab; die entsprechenden Bestimmungsgleichungen  $G_0 = G_0(t, \phi)$  und  $G_2 = G_2(t, \phi)$  lassen sich durch einfache algebraische Umformungen nach  $t$  und  $\phi$  auflösen. Die genauen Formeln werden im Anhang A.3.5 hergeleitet.

Durch Anpassen einer quadratischen Funktion an ein NIN-Spektrum lassen sich im Rahmen dieser Modelle also Informationen über Höhe und Dicke der Tunnelbarriere gewinnen, sofern die in die Näherungen eingegangenen Annahmen zutreffen. Kann man weiter davon ausgehen, dass die Spektren für normal- und supraleitende Elektroden im Bereich großer Spannungen ( $|V| \gg \Delta$ ) annähernd übereinstimmen, so lässt sich diese Auswertungsmethode auch auf SIS-Spektren anwenden, indem eine quadratische Funktion an den Außenbereich der Spektren angepasst wird.

Brinkman, Dynes und Rowell erweiterten diesen Ansatz, indem sie anstelle der Näherung (4.37) die Tunnelwahrscheinlichkeit gemäß (4.31) für ein Barrierenpotential der Form (4.32) sowie den daraus resultierenden Tunnelstrom für einen planaren Kontakt durch numerische Integration bestimmten und anschließend in Potenzen von  $V$  entwickelten [Brinkman70]. Dieser Ansatz liefert einen endlichen linearen Beitrag zur Leitfähigkeit mit  $G_1 \propto \phi_1 - \phi_2$ . Demnach entsteht eine Verschiebung der  $GV$ -Parabel durch eine Asymmetrie ( $\phi_1 \neq \phi_2$ ) der Tunnelbarriere.

J. P. Kirtley konnte schließlich auch experimentelle Spektren an SIN-Kontakten aus Hochtemperatur-Supraleitern im Rahmen der hier zusammengefassten Ansätze für einen planaren Kontakt erklären, wobei er den eher linearen Zusammenhang zwischen Spannung und Leitwert für hohe Spannungen auf relativ niedrige Barrierenhöhen von einigen meV zurückführt [Kirtley90a].

Um zu untersuchen, ob diese Erklärung auch für die linearen Hintergrundleitfähigkeiten in Frage kommt, die an den Spektren der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten SIS-Kontakte beobachtet werden, wurden die Ausdrücke für den Tunnelstrom aus (4.33) bzw. (4.36) differenziert und die resultierende Tunnelleitfähigkeit in C++ implementiert. Nähere Erläuterungen zur Berechnung der Tunnelleitfähigkeiten für ein trapezförmiges Barrierenpotential und zur Implementierung finden sich im Anhang A.3.2 -A.3.4.

Die folgende Behandlung beschränkt sich auf den Fall, dass  $\phi_1 = \phi_2 = \phi$ . Weiterhin wird bei SIS-Kontakten davon ausgegangen, dass die Zustandsdichten beider Elektroden ebenfalls identisch sind  $N_1(E) = N_2(E)$ . Abbildung 4.10 zeigt beispielhaft für zwei Parametersätze Tunnelkurven, die auf diese Weise jeweils für einen NIN und einen SIS-Kontakt berechnet wurden, in den Teilabbildungen (a1, a2) für einen planaren, in den Teilabbildungen (b1, b2) für einen eindimensionalen Kontakt. Dabei wurden für die Teilabbildung (a1,b1) die in [Kirtley90a] verwendeten Barrierenparameter  $t = 21 \text{ \AA}$  und  $\phi = 23 \text{ meV}$  und die Parameter  $\Delta = 7 \text{ meV}$  und  $\Gamma = 2 \text{ meV}$  für die Zustandsdichte eines s-Wellen-Supraleiters nach (2.24) und (2.22) benutzt. Für die Berechnungen zu den Teilabbildung (a2,b2) wurden die Barrieren-

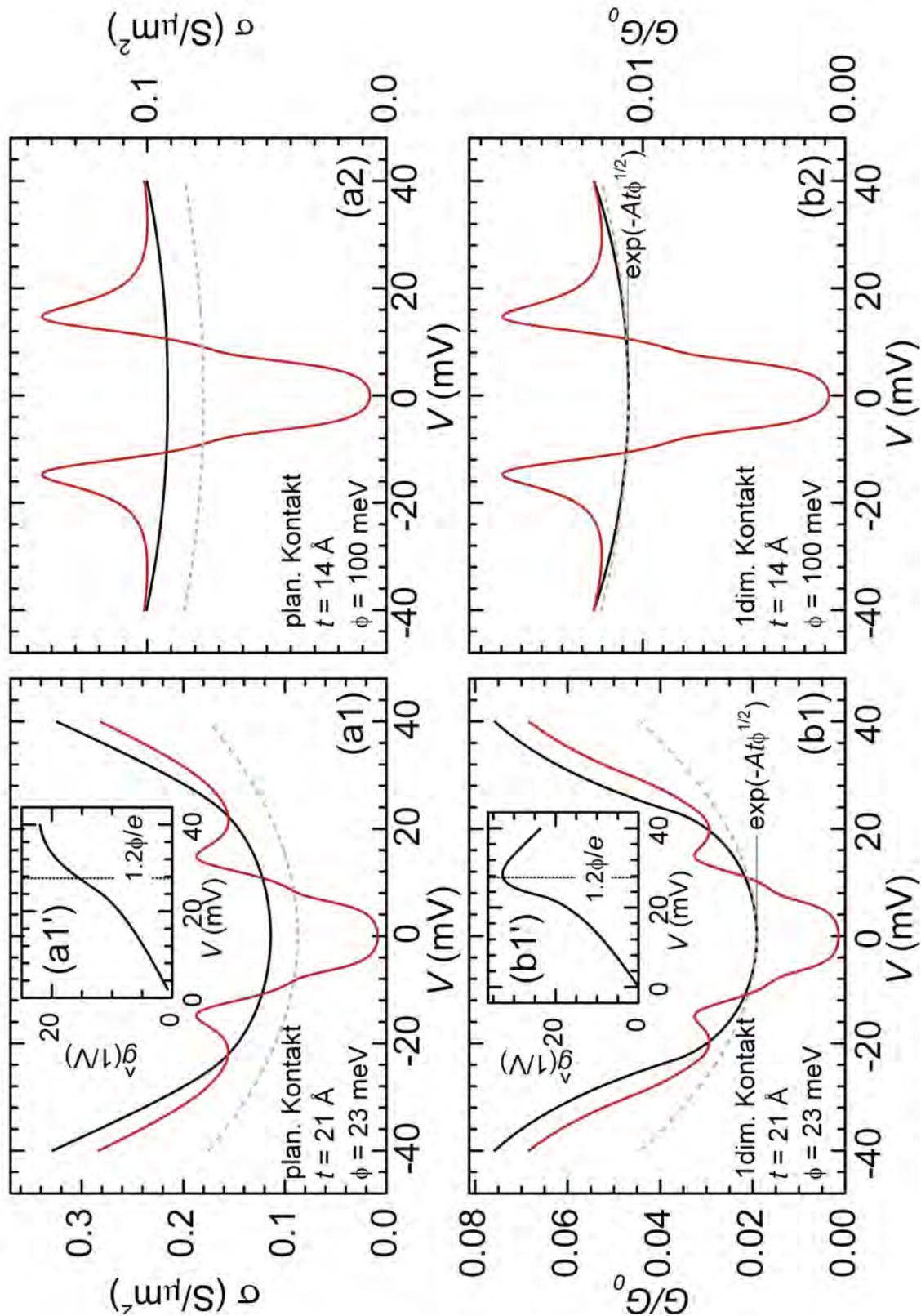


Abbildung 4.10: Nach dem Modell einer trapezförmigen Tunnelbarriere berechnete Leitwerte für einen planaren (a) bzw. eindimensionalen (b) Kontakt mit den Parametern aus [Kirtley90a] (a1,b1) und [Fröhlich96](a2,b2)

parameter verwendet, die in [Fröhlich96] für BSCCO-Korngrenzenkontakte ermittelt worden sind ( $t = 14 \text{ \AA}$ ,  $\phi = 100 \text{ meV}$ ) während die übrigen Parameter mit denen aus Teilabbildung (a) übereinstimmen. Erwartungsgemäß zeigt sich, dass die Hintergrundleitfähigkeit stark von den Barrierenparametern beeinflusst wird. Die Spektren in Teilabbildung (a1) weisen für  $|V| \gtrsim 30 \text{ mV}$  tatsächlich einen annähernd linearen Zusammenhang zwischen Leitwert und Spannung auf.

Weiterhin sind in Abbildung 4.10 als hellgraue, gestrichelte Kurven die Parabeln nach Gleichung (4.39) eingetragen, die sich gemäß (A.37) und (A.39) bzw. (A.43) und (A.45) aus den Barrierenparametern ergeben. Es ist eindeutig zu erkennen, dass für die gegebenen Parametersätze diese Parabeln keine gute Näherung für die Leitwert-Kurven der NIN-Kontakte bzw. die Hintergrundleitfähigkeiten der SIS-Kontakte darstellen. Besonders auffällig sind die Abweichungen bei den für planare Tunnelkontakte berechneten Parabeln, was wohl auf die zusätzlichen Näherungen zurückzuführen ist. So liegt der Wert für  $At\sqrt{\phi}$  für die angegebenen Parameter zwischen 3 und 5.

Umgekehrt kann aus dieser Abweichung geschlossen werden, dass bei der Bestimmung von Barrierenparametern aus der Hintergrundleitfähigkeit mittels Anpassung einer Parabel Vorsicht geboten ist, insbesondere, wenn sich niedrige Barrierenhöhen ergeben.

Ein Vergleich der Teilabbildungen (a1) und (b1) bzw. (a2) und (b2) zeigt, dass sich die Formen der Spektren nach dem Modell des eindimensionalen und des planaren Kontaktes für  $|eV| < \Delta$  qualitativ sehr ähneln, für die Barrierenparameter nach Fröhlich sogar im gesamten dargestellten Spannungsbereich. Bei den Barrierenparametern nach Kirtley, also  $\phi = 23 \text{ meV}$   $t = 21 \text{ \AA}$  tritt jedoch für Spannungen  $eV \gtrsim \phi$  ein deutlicher Unterschied auf. Im eindimensionalen Modell nimmt die Steigung der  $G(V)$ -Kurven etwa bei  $eV = \phi$  deutlich zu, danach wieder etwas ab, während bei der entsprechenden  $G(V)$ -Kurve für einen planaren Kontakt auf der dargestellten Skala keine Veränderung zu bemerken ist. Noch deutlicher ist die Struktur bei  $eV = \phi$  zu erkennen, wenn statt der direkten Ableitung die logarithmische Ableitung der Strom-spannungs-Kennlinie

$$\hat{g} = \frac{d}{dV} \left( \ln \left( \frac{I}{V} \right) \right) = \frac{G}{I} - \frac{1}{V} \quad (4.40)$$

betrachtet wird. Diese Größe, die in den Abbildungen (a1') und (b1') für die jeweiligen NIN-Kurven noch einmal gegen die Spannung aufgetragen ist, zeigt für den eindimensionalen Kontakt ein ausgeprägtes Maximum in der Nähe von  $eV = \phi$  und auch für den planaren Kontakt ist in diesem Bereich eine weniger stark ausgeprägte Struktur zu erkennen. Die Herkunft dieser Struktur lässt sich anhand von Abbildung 4.9 verdeutlichen: Für eine symmetrische Barriere ( $\phi = \phi_1 = \phi_2$ ) ist für alle einfallenden Elektronen mit  $E > E_F$  die effektive Barrierenlänge (also der Bereich zwischen  $x_1$  und  $x_2$ ) kleiner als  $t$ , wenn  $eV \geq \phi$ . In [Halbritter85] wird gezeigt, dass das Maximum von  $\hat{g}$  bei etwa  $1.2\phi$  liegt, wobei die Höhe von  $t$  abhängt. Für

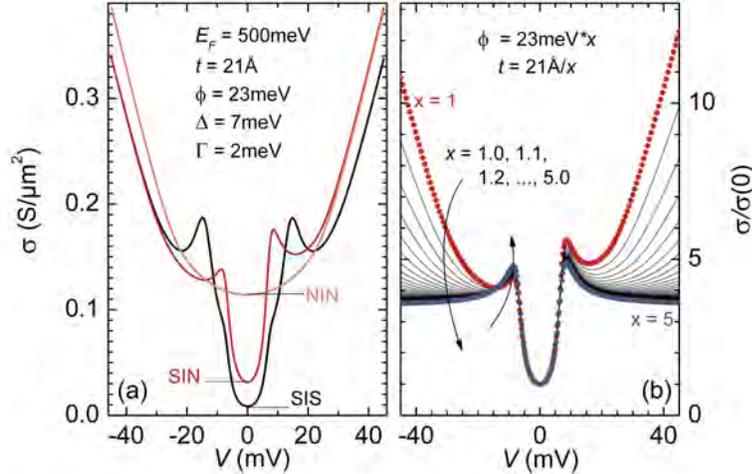


Abbildung 4.11: SIS-, SIN- und NIN-Spektren für einen planaren Kontakt mit trapezförmiger Tunnelbarriere für die Parameter aus Abbildung 4.10 (a1) (a), sowie für verschiedene Barrierenparameter berechnete SIN-Spektren, wobei das Produkt aus Barrierenhöhe  $\phi$  und Barrierendicke  $t$  konstant gehalten wird. (b)

einen planaren Tunnelkontakt hängt die Tunnelwahrscheinlichkeit nur von  $E_x$  ab, die Besetzungswahrscheinlichkeit eines Zustandes aber von  $E = E_x + E_{\parallel}$ . Daher ist dieser Effekt für einen planaren Kontakt schwächer ausgeprägt, die entsprechende Struktur in der  $G(V)$ -Kurve praktisch nicht mehr zu erkennen.

Unerwartet ist zunächst, dass die in Abbildung 4.10 (a1) und (b1) dargestellten Spektren des SIS- und des NIN-Kontaktes auch für hohe Spannungen nicht übereinanderliegen. In Abbildung 4.11 (a) wird zusätzlich zu den SIS- und NIN-Spektren aus Abbildung 4.10 (a1) das entsprechende SIN-Spektrum dargestellt. Wie die Abbildung 4.11 (a) zeigt, stimmt die Hintergrundleitfähigkeit des SIN-Kontaktes für  $V < 0$  mit der Hintergrundleitfähigkeit des SIS-Kontaktes, für  $V > 0$  mit der Hintergrundleitfähigkeit des NIN-Kontaktes überein. Insgesamt ist das SIN-Spektrum zudem deutlich asymmetrisch, was zunächst verwundert, da die verwendeten Zustandsdichten sowohl des Normal- als auch des Supraleiters symmetrisch bezüglich der Fermienergie sind. Um dies näher zu untersuchen, wurden, ausgehend von den Parametern in Abbildung 4.11 (a), weitere SIN-Spektren berechnet, wobei die Barrierenhöhe gemäß

$$\phi_{\alpha} = \phi_0 * \alpha \text{ mit } \alpha = 1.0, 1.1, 1.2, \dots, 5.0 \quad (4.41)$$

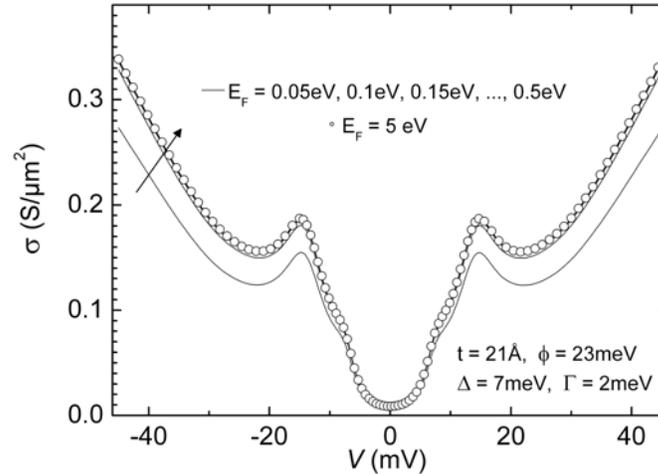


Abbildung 4.12: Für eine trapezförmige Tunnelbarriere berechnete SIS-Spektren mit verschiedenen Fermi-Energien. Die Spektren für  $0.15 \text{ eV} \leq E_F \leq 5 \text{ eV}$  lassen sich auf der dargestellten Skala praktisch nicht unterscheiden.

systematisch erhöht, die Dicke der Barriere entsprechend

$$t_\alpha = t_0/\alpha \text{ mit } \alpha = 1.0, 1.1, 1.2, \dots, 5.0 \quad (4.42)$$

verkleinert wurde, so dass das Produkt aus Barrierenhöhe  $\phi_\alpha$  und -dicke  $t_\alpha$  konstant bleibt. Im Grenzfall  $\phi \rightarrow \infty$  wird so aus einer trapezförmigen eine strukturlose Barriere, die einer  $\delta$ -Funktion ähnelt. Die auf diese Weise berechneten Spektren, normiert auf ihren Wert bei  $V = 0$ , sind in Abbildung 4.11 (b) dargestellt. Die Pfeile deuten die Entwicklung der Spektren mit zunehmendem Parameter  $\alpha$  an. Es zeigt sich, dass die Hintergrundleitfähigkeit mit zunehmender Höhe und entsprechend abnehmender Dicke der Barriere immer flacher verläuft, wobei gleichzeitig die Asymmetrie der Spektren abnimmt, bis das für  $\alpha = 5$  berechnete Spektrum symmetrisch zu  $V = 0$  ist und eine konstante Hintergrundleitfähigkeit aufweist. Dies spricht dafür, dass sowohl die Asymmetrie des SIN-Spektrums in Abbildung 4.11(a) als auch die Tatsache, dass SIS und NIN-Kurve auch für hohe Spannungen nicht übereinanderliegen, auf die Form des Barrierenpotentials zurückzuführen ist. In allen bisherigen Rechnungen wurde eine Fermi-Energie von 500 meV angenommen. Im Gegensatz zu klassischen Supraleitern liegt die Fermi-Energie der supraleitenden Kuprat-Verbindungen nur bei wenigen hundert meV [Kresin90, Halbritter93]. Solange die Fermi-Energie jedoch hinreichend groß ist, ist der genaue Betrag der Fermi-Energie für den Verlauf der Tunnelspektren jedoch nicht von Bedeutung, wie im Anhang A.3.2 anhand der dort hergeleiteten Gleichungen näher erläutert wird

(vgl. S. 238). Um dies näher zu untersuchen wurden SIS-Spektren für Fermi-Energien zwischen 0.05 eV und 0.5 eV sowie für 5 eV berechnet, wobei alle anderen Parameter mit dem Abbildung 4.11(a) zugrundeliegenden Parametersatz übereinstimmen. Die Spektren sind in Abbildung 4.12 dargestellt. Es zeigt sich, dass die Spektren für  $E_F \geq 0.1$  eV nur sehr schwach von der Fermi-Energie abhängen. Für  $E_F \geq 0.15$  eV sind die Spektren mit bloßem Augen nicht mehr von dem für 5 eV berechneten Spektrum zu unterscheiden, das in Abbildung 4.12 durch Kreise gekennzeichnet ist.

### Parallele Transportkanäle

Eine weitere Gruppe von Erklärungsansätzen führt die Hintergrundleitfähigkeit auf alternative Transportmechanismen zurück. Bisher wurde nur das direkte, elastische Tunneln über eine ideale Barriere betrachtet. Der Begriff ideale Barriere bedeutet in diesem Zusammenhang, dass sich die Barriere ausschließlich über ihre Breite und Höhe charakterisieren lässt. Realistischere Modelle berücksichtigen auch den Einfluss von inneren Freiheitsgraden der Barriere wie Kurzschlüssen, Anregungen oder lokalisierten Zuständen auf den Transport. Unabhängig vom speziellen Transportmechanismus bedeutet die Parallelschaltung der Tunnelkanäle, dass sich die experimentell beobachteten Leitwertkurven additiv aus den Leitwertkurven für die einzelnen Transportkanäle zusammensetzen.

Die einfachste Möglichkeit ist der Transport über einen Ohmschen Widerstand parallel zum Tunnelkontakt. Dies führt zu einer vertikalen Verschiebung der  $G(V)$ -Kurve. Der endliche Leitwert von Tunnelspektren bei  $V = 0$  wird häufig auf einen solchen Effekt zurückgeführt. Natürlich ist mit Hilfe eines parallelen Ohmschen Widerstandes nur eine konstante Hintergrundleitfähigkeit zu erklären.

### Inelastisches Tunneln

In einer Reihe von Veröffentlichungen wird der häufig an Tunnelkontakten aus Hochtemperatur-Supraleitern beobachtete lineare Verlauf der Hintergrundleitfähigkeit auf inelastisches Tunneln zurückgeführt [Kirtley90b, Kirtley92, Grajcar95, Seidel97, Plecenik98].

Beim inelastischen Tunneln ändert sich die Energie des tunnelnden Elektrons durch Wechselwirkungen mit der Barriere. Die folgende Behandlung beschränkt sich auf den Fall eines Streuprozesses in der Barriere. Dabei wird eine Anregung emittiert oder absorbiert, die der Energiedifferenz vor und nach dem Tunnelprozess entspricht. Bei den Anregungen kann es sich z.B. um Phononen oder Spinfluktuationen handeln. Der inelastische Beitrag zum Tunnelstrom kann prinzipiell analog zum Vorgehen beim elastischen Beitrag aus Abschnitt 3.1 abgeleitet werden, wobei hier jedoch zusätzlich der Energieverlust beim Tunneln, die spektrale Verteilung  $F(\omega)$  der Anregungsmoden in der Barriere und die Besetzungswahrscheinlichkeit  $n(\omega)$  der einzelnen Anregungen berücksichtigt werden müssen. Da es sich bei Anregungen wie

Phononen oder Magnonen um Bosonen handelt, ist die Verteilung  $n(\omega)$  im thermischen Gleichgewicht durch die Bose-Funktion gegeben. Der inelastische Tunnelstrom ergibt sich in einer Verallgemeinerung von Formel (1) aus [Kirtley90b] zu

$$I_{in}(V) \sim \int_0^\infty d(\hbar\omega) F(\omega) [n(\omega) + 1] J^{em}(V, \hbar\omega) + \int_0^\infty d(\hbar\omega) F(\omega) n(\omega) J^{abs}(V, \hbar\omega) \quad (4.43)$$

mit

$$J^{em}(V, \hbar\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \{ N_1(E) N_2(E + eV - \hbar\omega) f(E) [1 - f(E + eV - \hbar\omega)] - N_1(E) N_2(E + eV + \hbar\omega) f(E + eV + \hbar\omega) [1 - f(E)] \} \quad (4.44)$$

und

$$J^{abs}(V, \hbar\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} \{ N_1(E) N_2(E + eV + \hbar\omega) f(E) [1 - f(E + eV + \hbar\omega)] - N_1(E) N_2(E + eV - \hbar\omega) f(E + eV - \hbar\omega) [1 - f(E)] \}. \quad (4.45)$$

Dabei beschreibt der erste Summand in (4.43) Tunnelprozesse, bei denen eine Anregung emittiert wird, der zweite Summand beschreibt das Tunneln unter Absorption einer Anregung. Im Grenzfall  $T \rightarrow 0$  sind die Verteilungsfunktionen reine Stufenfunktionen und der Ausdruck für den Tunnelstrom reduziert sich auf

$$I_{in}(V) \sim \pm \int_0^{eV} d(\hbar\omega) F(\omega) \int_0^{eV - \hbar\omega} N_1(E) N_2(E - eV + \hbar\omega) dE \quad \text{für } V \gtrless 0. \quad (4.46)$$

Ein Vergleich mit Gleichung (4.2) zeigt, dass das innere Integral in (4.46) proportional zum elastischen Tunnelstrom bei der Spannung  $V - \hbar\omega/e$  ist. Sind die Zustandsdichten der Elektroden im normalleitenden Zustand konstant, so ergibt sich der gesamte Tunnelstrom bei  $T = 0$  zu

$$\begin{aligned} I^{nl}(V) &= I_{el}^{nl}(V) + I_{in}^{nl}(V) \\ &= N_1 N_2 \int_0^{eV} dE + N_1 N_2 \int_0^{eV} d(\hbar\omega) F(\omega) \int_0^{eV - \hbar\omega} dE. \end{aligned} \quad (4.47)$$

Entsprechend gilt für die Tunnelleitfähigkeit

$$\begin{aligned} G^{nl}(V) &= e N_1 N_2 \left( 1 + \int_0^{eV} F(\omega) d(\hbar\omega) \right) \\ &= G^{nl}(0) \left( 1 + \int_0^{eV} F(\omega) d(\hbar\omega) \right). \end{aligned} \quad (4.48)$$

Für eine flache, breitbandige Verteilung ergibt sich somit eine lineare Hintergrundleitfähigkeit [Kirtley90b]. Umgekehrt lässt sich die spektrale Verteilung der Anregungen durch Differenzieren des im normalleitenden Zustand aufgezeichneten Tunnelspektrums gewinnen, sofern die Zustandsdichten im normalleitenden Zustand tatsächlich konstant sind.

$$F(\omega) = \left( \frac{d}{dV} G^{ml}(V) / eG^{ml}(0) \right)_{V=\hbar\omega/e} \quad (4.49)$$

### Tunneln über Zwischenzustände

Schließlich wird noch eine weitere Gruppe von Transportmechanismen parallel zum direkten elastischen Tunneln als Erklärung für die Hintergrundleitfähigkeit in Tunnelspektren an Hochtemperatursupraleitern vorgeschlagen, die sich unter dem Begriff Tunneln über Zwischenzustände zusammenfassen lassen. Dabei ist noch zwischen resonantem Tunneln über einen Zwischenzustand und dem Tunneln über eine Vielzahl von Zwischenzuständen zu unterscheiden. Bevor jedoch diese Prozesse und ihre Auswirkungen auf den Tunnelstrom näher beschrieben werden, ist zunächst die Frage zu klären, warum lokalisierte Zustände insbesondere für den Transport über Korngrenzen bei Hochtemperatur-Supraleitern eine deutlich größere Rolle spielen, als zum Beispiel bei klassischen Supraleitern.

Bei Hochtemperatur-Supraleitern handelt es sich um quasi zweidimensionale Systeme mit kleiner Ladungsträgerdichte, die sich nah am Metall-Isolator Übergang befinden. Insbesondere ist die *pd*-Hybridisierung wichtig für die Leitfähigkeit in den CuO<sub>2</sub>-Ebenen. Die starke Störung von Ordnung und Stöchiometrie an Oberflächen bzw. Korngrenzen führt zu einer Schwächung dieser Hybridisierung und damit zur Ausbildung eines isolierenden Bereiches an der Korngrenze, der eine große Anzahl ( $\approx 10^{21}/\text{cm}^3$ ) lokalisierter Zustände enthält [Halbritter03, und Referenzen darin]. Ausgehend von dieser Vorstellung der Korngrenze wurde das sogenannte ISJ-Modell zur Erklärung des Transports in Josephson-Kontakten vorgeschlagen [Gross91]. Danach ergeben sich für Quasiteilchen und Cooper-Paare unterschiedliche Transportmechanismen. Während resonantes Tunneln über Zwischenzustände der dominierende Transportmechanismus für Quasiteilchen ist, wird dieser Prozess für Cooper-Paare aufgrund der Coulomb-Abstoßung stark unterdrückt, so dass die Cooper-Paare direkt über die Korngrenze tunneln. Im Rahmen dieses ISJ-Modells lassen sich zum Beispiel die Beziehung zwischen kritischem Strom und Normalwiderstand sowie das Rauschverhalten der Josephson-Kontakte verstehen [Marx96].

Da es sich bei den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Kontakten jedoch nicht um Josephson-Kontakte handelt, in dem Sinn dass bei keiner Brücke im Rahmen der Messauflösung ein Josephson-Strom gemessen wird (vgl. Abschnitt 8.1.1), konzentriert sich die folgende Behandlung auf das Tunneln von Quasiteilchen über Zwischenzustände.

### Resonantes Tunneln

Eines der einfachsten Modellsysteme für einen gebundenen Zustand ist ein Teilchen in einer eindimensionalen rechteckigen Potentialmulde, wie es in Abbildung 4.13(a) skizziert ist. In der Potentialmulde bilden sich für diskrete Energieniveaus gebundene Zustände aus. Beispielhaft ist ein solches Energieniveau  $E_0$  in Abb. 4.13 eingetragen. Ist die Dicke der Wände, die die Potentialmulde begrenzen, jedoch endlich, wie in Teilabbildung (b) angedeutet, so besitzen die gebundenen Zustände eine endliche Lebensdauer. Ist diese Lebensdauer hinreichend gering, so werden die lokalisierten Zustände experimentell nicht beobachtet. Für Elektronen, die auf eine solche Barriere mit einer Energie  $E_0$  treffen, welche der Energie eines gebundenen Zustandes für eine unendlich ausgedehnte Barriere entspricht, ist die Transmissionswahrscheinlichkeit jedoch resonanzartig überhöht. Allgemein lässt sich die Transmissionswahrscheinlichkeit für einen lokalisierten Zustand bei der Energie  $E_0$  durch eine Funktion der Form

$$P(E) = \frac{\Gamma_1 \Gamma_2}{(E - E_0)^2 + (\Gamma_1/2 + \Gamma_2/2)^2} \quad (4.50)$$

nähern [Naito87, Wolf85]. Dabei sind die Energien

$$\Gamma_1 \sim \exp(-A\sqrt{\phi}x) \text{ und } \Gamma_2 \sim \exp(-A\sqrt{\phi}(t-x)) \quad (4.51)$$

proportional zu den Raten, mit denen Elektronen aus dem lokalisierten Zustand in die linke bzw. rechte Elektrode tunneln. Die Funktion (4.50) weist ein Maximum bei  $E = E_0$  auf, das am ausgeprägtesten ist, wenn  $\Gamma_1 = \Gamma_2$ . Das bedeutet, dass lokalisierte Zustände in der Mitte der Barriere ( $x = t/2$ ) den größten Beitrag zum resonanten Tunneln leisten. In diesem Fall reduziert sich (4.50) auf eine Lorentzverteilung mit Halbwertsbreite  $\Gamma \sim \exp(-A\sqrt{\phi}t/2)$ . Für  $T \rightarrow 0$  tragen nur Elektronen im Energiebereich  $0 \leq E \leq eV$  zum Tunnelstrom bei. Erreicht die an den Kontakt angelegte Spannung einen Wert, der der Energie eines lokalisierten Zustands entspricht, so wird resonantes Tunneln über diesen Zustand möglich. Daher führt resonantes Tunneln über einzelne lokalisierte Zustände  $E_j$  zu deutlichen Strukturen in den Tunnelstrom- bzw. Leitwertkurven bei den Spannungen  $V_j = E_j/e$ .

Da die Korngrenzen von Hochtemperatursupraleitern eine besonders hohe Anzahl lokalisierter Zustände aufweisen, wird vorgeschlagen, dass der Transport von Quasiteilchen über solche Korngrenzen durch resonantes Tunneln über eine homogene

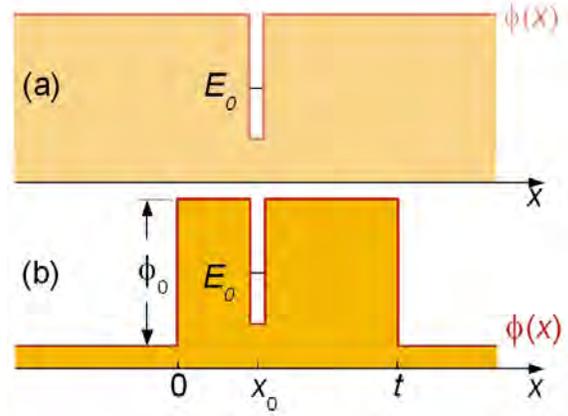


Abbildung 4.13: Illustration zum resonanten Tunneln

Verteilung von lokalisierten Zuständen dominiert wird und dass dieser Prozess auch für die lineare Hintergrundleitfähigkeit verantwortlich ist, die an vielen Spektren an solchen Korngrenzenkontakten beobachtet wird [Halbritter92]. Wie gerade erläutert, beeinflusst das resonante Tunneln über Zwischenzustände primär die Tunnelwahrscheinlichkeit  $P(E, V)$ . Es gibt jedoch meiner Kenntnis nach in der Literatur kein ausgearbeitetes Modell, welches eine konkrete Form für die Tunnelwahrscheinlichkeit  $P(E, V)$  und den Tunnelstrom für diesen Fall von resonantem Tunneln über eine Verteilung von lokalisierten Zuständen vorschlägt und auf Eigenschaften der Barriere zurückführt.

In Abschnitt 4.2.3 wurden zwei einfache Formen für eine phänomenologische Tunnelwahrscheinlichkeit vorgeschlagen, die im Rahmen eines eindimensionalen Modells für den Tunnelkontakt einen linearen Verlauf des Tunnelleitwerts für NIN-Kontakte ( $N = 1$ ) erzeugen. Dabei ist die Tunnelwahrscheinlichkeit entweder ausschließlich eine Funktion von  $E$  oder von  $V$  und hängt linear vom Betrag der jeweiligen Größe ab ((4.29),(4.30)). Für eine homogene Verteilung der lokalisierten Zustände über alle Energien  $E$  sollte die Tunnelwahrscheinlichkeit allerdings nicht von der Energie abhängen. Insofern bleibt das Modell

$$P(E, V) = P(V) = a + b|V| \quad (4.52)$$

übrig. Allerdings ist zu beachten, dass die Temperaturabhängigkeit des Tunnelstrom, der sich nach diesem einfachen phänomenologischen Modell für Punktkontakte ergibt, ausschließlich durch die Form und gegebenenfalls die Temperaturabhängigkeit der Zustandsdichtefunktion  $N(E)$  bestimmt ist. Insbesondere verändern sich NIN-Spektren für  $N(E) = \text{const.}$  nach diesem Modell nicht mit der Temperatur, denn da die Tunnelwahrscheinlichkeit gemäß (4.52) nicht von der Energie abhängt, kann sie bei der Berechnung des Tunnelstromes vor das Integral über  $E$  gezogen werden. Der Tunnelstrom berechnet sich also als Produkt aus  $P(V)$  und dem Ausdruck für den Tunnelstrom, der sich mit  $P = 1$  ergibt. Für diesen Fall wurde jedoch bereits in Abschnitt 3.4 gezeigt, dass bei NIN-Kontakten der Tunnelstrom nicht von der Temperatur abhängt (vgl. Abbildung 3.5(d)).

### Tunneln über mehrere Zwischenzustände

Defekte in der Barriere erlauben neben dem direkten Tunneln auch das Tunneln über einen oder mehrere Zwischenzustände. Diese Prozesse werden schematisch in Abbildung 4.14 für bis zu  $j = 3$  Zwischenzustände illustriert. Dabei ist das direkte Tunneln und das Tunneln über einen Zwischenzustand elastisch, für mehr als 2 Zwischenzustände muss die Energiedifferenz zwischen den einzelnen lokalisierten Zuständen der thermischen Energie oder der Energie des elektrischen Feldes entnommen werden. Daher werden erst mit zunehmender Spannung oder Temperatur Prozesse mit einer größeren Anzahl  $j$  lokalisierter Zustände relevant. Die Spannungs- und Temperaturabhängigkeit der einzelnen Transportkanäle lässt sich in einem Modell zusammenfassen, dass von L. I. Glazman und K. A. Matveev entwickelt wurde

[Glazman88]. Dominiert entweder die thermische Energie oder die Energie des elektrischen Feldes in der Barriere in eindeutiger Weise, so lässt sich die Leitfähigkeit für den Transport über  $j \geq 1$  Zwischenzustände nach diesem Modell durch

$$G_j = G_j(V, T) \approx \begin{cases} v_j \exp\left(\frac{-At\sqrt{\phi}}{j+1}\right) V^{j-2/(j+1)} & \text{für } eV \gg k_B T \\ t_j \exp\left(\frac{-At\sqrt{\phi}}{j+1}\right) T^{j-2/(j+1)} & \text{für } k_B T \gg eV \end{cases} \quad (4.53)$$

nähern. Die gesamte Leitfähigkeit ergibt sich zu

$$G(T, V) = \sum_{j=0}^{\infty} G_j(T, V) \quad . \quad (4.54)$$

Dabei hängen die Koeffizienten  $v_j$  und  $t_j$  wiederum von der Kontaktfläche, der Dichte  $n_{loc}$  der lokalisierten Zustände, Höhe  $\phi$  und Dicke  $t$  der Barriere sowie der Kopplung zwischen Elektronen und Phononen ab. Der mehrfach in (4.53) auftretende Faktor  $(j+1)$  ist darauf zurückzuführen, dass der Widerstand beim Tunneln über  $j$  Zwischenzustände als Serienschaltung aus  $(j+1)$  Widerständen aufgefasst werden kann. Für jeden Transportkanal folgt der entsprechende Leitwert also einem charakteristischen Potenzgesetz. Welcher Beitrag den gesamten Leitwert dominiert, hängt gemäß (4.53) entscheidend von der Dicke der Barriere und vom Spannungsbereich ab. So werden für große Barriendicken aufgrund des Exponentialterms in (4.53) Beiträge mit höherem  $j$  relevant. Nahe  $V = 0$  und für kleinere Barriendicken reicht es unter Umständen aus, nur das Tunneln über zwei Zwischenzustände zu berücksichtigen, für das sich eine Spannungsabhängigkeit

$$G_2(V) \sim V^{4/3} \quad (4.55)$$

ergibt.

### 4.3 Zustandserhaltung

Eine bei vielen Spektroskopie-Techniken verbreitete Analyse-Methode ist die Untersuchung sogenannter Summenregeln (sum rules)[Carbotte06]. Ganz allgemein wird

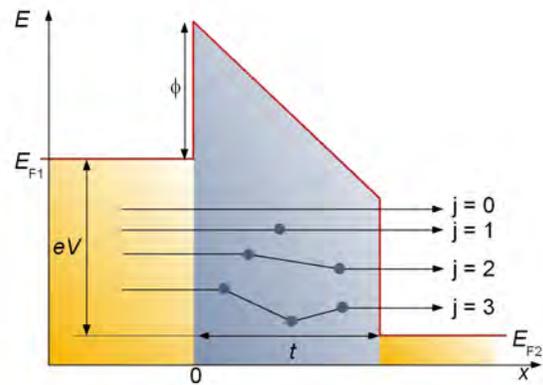


Abbildung 4.14: Illustration zum Tunneln über Zwischenzustände nach [Xu90]

dabei untersucht, wie sich das spektrale Gewicht in dem beobachteten Energie-Intervall verteilt und wie sich diese Verteilung unter Variation der äußeren Bedingungen verändert. Dabei ist das spektrale Gewicht die Fläche, die von dem aufgezzeichneten Spektrum und einem geeigneten Hintergrund eingeschlossen wird. Bei der Tunnelspektroskopie ist die Zustandsdichte  $N(E)$  der Elektroden eine wesentliche Messgröße. Die Gesamtzahl  $\bar{N}$  der Quasiteilchenzustände ergibt sich aus der Zustandsdichte durch Integration über die Energie.<sup>8</sup> Ist die Gesamtzahl dieser Zustände eine Erhaltungsgröße, so gilt insbesondere

$$\bar{N} = \int_0^\infty N_{sl}(E)dE = \int_0^\infty N_{nl}(E)dE \quad . \quad (4.56)$$

Ist die Zustandsdichte im normalleitenden Zustand konstant, so lässt sich (4.56) für die reduzierte Zustandsdichte  $n(E)$  in der Form

$$\int_0^\infty (n(E) - 1) dE = 0 \quad (4.57)$$

darstellen. Abbildung 4.15 zeigt die reduzierte Zustandsdichte für einen d-Wellen Supraleiter gemäß (2.23). Da die  $n_{sl}(E)$ -Kurve und  $n_{nl}(E) = 1$  für  $E > 0$  genau einen Schnittpunkt aufweisen, schließen die beiden Kurven zwei Teilflächen ein, die in Abbildung 4.15 schraffiert dargestellt und mit  $A1$  bzw.  $A2$  bezeichnet werden. Gleichung (4.57) bedeutet, dass die Teilflächen sich gegenseitig genau kompensieren, also  $A2 = -A1$ .

Für  $s$ - und  $d$ -Wellen-Supraleiter ohne Dynes-Verrundungen, also reduzierte Zustandsdichten der Form (2.22) und (2.23), lässt sich die Gültigkeit von (4.57) auch mathematisch einfach zeigen, für  $s$ -Wellen-Symmetrie durch elementare Integration, für  $d$ -Wellen Symmetrie unter Zuhilfenahme der Regel von L'Hopital und tabellierter Werte für elliptische Integrale [Byrd71].

Für endliche Werte des Dynes-Parameters  $\Gamma$  ist die Auswertung des Integrals auf der linken Seite von (4.57) jedoch deutlich schwieriger.

Außerdem bleibt zu klären, inwieweit die Regel (4.57), die sich für SIN-Kontakte geometrisch als Verschwinden der eingeschlossenen Fläche zwischen den im normal- und im supraleitenden Zustand aufgenommenen Tunnelkurven interpretieren lässt, auf Tunnelspektren an SIS-Kontakten übertragen werden kann. Die eingeschlossene Fläche ist in diesem Fall durch

$$\begin{aligned} A &= \int_0^\infty (G_{sl}^{SIS}(V) - G_{nl}^{SIS}(V)) dV \\ &= \lim_{V \rightarrow \infty} (I_{sl}^{SIS}(V) - I_{nl}^{SIS}(V)) \\ &= \lim_{V \rightarrow \infty} \int_0^{eV} (N_{sl}(E)N_{sl}(E - eV) - N_{nl}(E)N_{nl}(E - eV)) dE \end{aligned} \quad (4.58)$$

<sup>8</sup>In der Literatur wird diese Größe oft auch als IDOS, also integrierte Zustandsdichte (integrated density of states) bezeichnet.

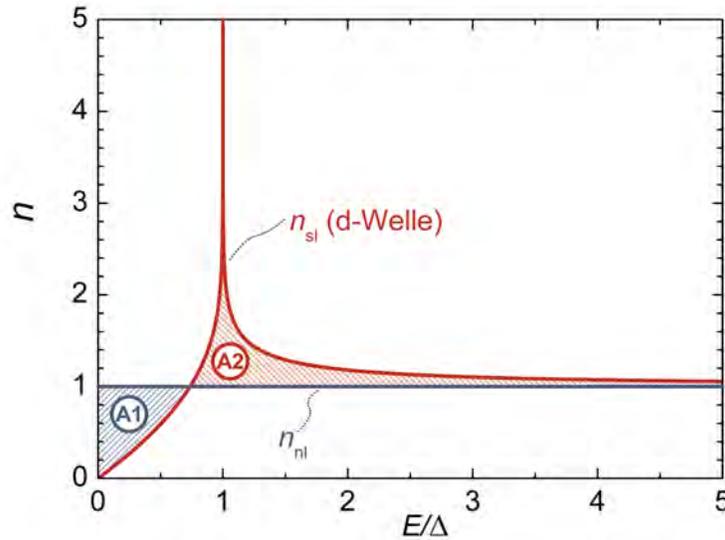


Abbildung 4.15: Illustration zur Zustandserhaltung: reduzierte Zustandsdichte für einen  $s$ -Wellen-Supraleiter gemäß (2.22) sowie für einen Normalleiter ( $n_{nl} = 1$ ).

gegeben. Ob oder unter welchen zusätzlichen Anforderungen an die Funktionen  $N_{sl}(E)$  und  $N_{nl}(E)$  aus der Gültigkeit von Gleichung (4.56) folgt, dass auch der Ausdruck (4.58) verschwindet, ist im Allgemeinen mathematisch ebenfalls schwierig zu zeigen.

Um trotz dieser Schwierigkeiten einen ersten Eindruck davon zu erhalten, inwieweit die Fläche unter den Tunnelkurven im normalleitenden und supraleitenden Zustand für SIS-Kontakte aus  $s$ - und  $d$ -Wellen Supraleitern mit endlicher Dynes-Verrundung erhalten bleibt, bietet es sich an, eine geeignete Kennzahl zu definieren und diese Kennzahlen für einige berechnete Leitwertsspektren mit verschiedenen Symmetrien und Dynes-Parametern zu vergleichen. Hier wird die Differenz  $D$  zwischen der Fläche unter der Kurve im supraleitenden  $f_{sl}(x)$  und im normalleitenden Zustand  $f_{nl}(x)$ , bezogen auf die Fläche unter der Kurve im normalleitenden Zustand als Kenngröße vorgeschlagen. Dabei kann es sich bei der Kurve sowohl um eine Zustandsdichte als auch um ein Leitwertsspektrum handeln. Da bei experimentellen Kurven natürlich immer nur über einen endlichen Spannungsbereich integriert werden kann, hängt  $D$  also auch von der oberen Integrationsgrenze  $x_m$  ab. Insgesamt ergibt sich damit die Kenngröße  $D$  zu

$$D\{f_{sl}(x), f_{nl}(x), x_m\} \equiv \left( \int_0^{x_m} (f_{sl}(x) - f_{nl}(x)) dx \right) / \left( \int_0^{x_m} f_{nl}(x) dx \right).$$

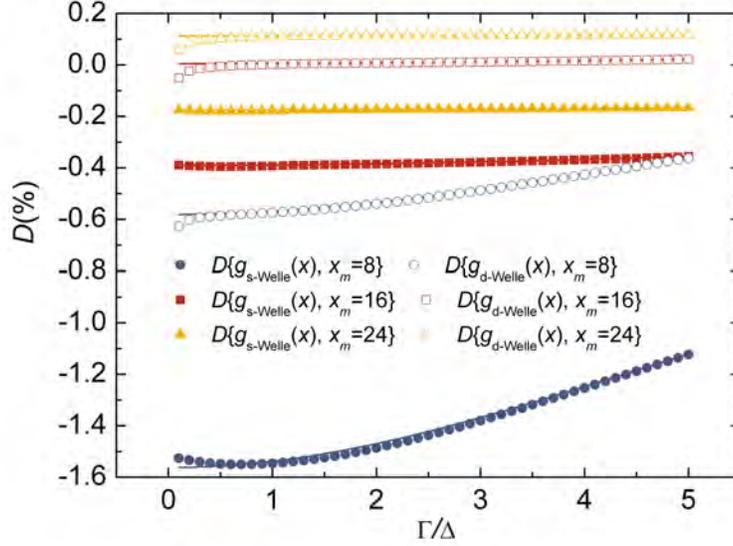


Abbildung 4.16: Kenngrößen  $D$  der Flächenerhaltung nach (4.59) für Leitwertsspektren von SIS-Kontakten aus  $s$ - und  $d$ -Wellen Supraleitern als Funktion des Dynes-Parameters. Weiterhin wurden die Kenngrößen  $D$  auch direkt anhand der jeweiligen Zustandsdichten berechnet, die Ergebnisse mit 2 multipliziert und als Linien in die Abbildung eingetragen. Aus Platzgründen wurde jeweils auf die Angabe des zweiten Argumentes von  $D$  in der Legende verzichtet, das in jedem Fall durch  $n_{nl}(E) = 1$  gegeben ist.

$$(4.59)$$

Unter den Voraussetzungen, dass die Zustandsdichte im normalleitenden Zustand konstant ist, dass die Zustandsdichte im supraleitenden Zustand eine gerade Funktion ist und dass die Zustandsdichten im normalleitenden und supraleitenden Zustand ab einem gewissen Schwellenwert  $E_0$  übereinstimmen, lässt sich einfach nachrechnen, dass für  $E_m > 2E_0$

$$D\{G_{sl}^{SIS}(V), G_{nl}^{SIS}(V), V_m = E_m/e\} = 2D\{N_{sl}(E), N_{nl}(E), E_m\}. \quad (4.60)$$

Insbesondere gilt unter diesen Voraussetzungen, dass aus der Flächenerhaltung für die Zustandsdichten auch die Flächenerhaltung für die entsprechenden SIS-Leitwertsspektren folgt.

In Abbildung 4.16 sind die nach (4.59) berechneten Kenngrößen für (reduzierte) Leitwertsspektren für SIS-Kontakte aus  $s$ - und  $d$ -Wellen Supraleitern gegen die bei den berechneten Zustandsdichten verwendeten Dynes-Parameter  $\Gamma$  aufgetragen. Dabei wurde als obere Integrationsgrenze jeweils das 8-, 16- und 24-fache der Energielücke

verwendet. Für eine Energielücke von 2.5 meV, also in der Größenordnung der für die PCCO-Proben bestimmten Werte, entspricht dies einer Integration bis zu 20, 40 bzw. 60 mV.

Weiterhin wurden die Kenngrößen für die zugrundeliegenden Zustandsdichten berechnet, die Resultate verdoppelt und die Ergebnisse ebenfalls in Abbildung 4.16 als durchgezogene Kurven eingetragen. Es zeigt sich, dass die Beziehung (4.60) für  $\Gamma > 0.3\Delta$  in guter Näherung gültig bleibt, auch wenn die Zustandsdichten im normal und supraleitenden Zustand für große Energien nur annähernd übereinstimmen.

Wie Abbildung 4.16 zeigt, liegt die Kennzahl  $D$  für  $V_m > 8\Delta/e$  bei Werten unter einem Prozent und sie hängt nur sehr schwach vom Wert des Dynes-Parameters ab. Wird die obere Integrationsgrenze zu klein gewählt, so ist der Betrag von  $D$  erheblich größer und hängt auch deutlich von  $\Gamma$  ab, wie man sich durch Betrachten der Zustandsdichte für verschiedene Dynes-Parameter auch anschaulich klarmachen kann. Der Einfluss der Hintergrundleitfähigkeit auf die Flächenerhaltung bleibt im Einzelfall zu klären, je nachdem, welcher Mechanismus die Hintergrundleitfähigkeit verursacht.

# Kapitel 5

## Proben

Seit dem ersten Nachweis von Supraleitung in  $\text{La}_{2-x}\text{Ba}_x\text{CuO}_4$  wurden eine Fülle unterschiedlicher Hochtemperatur-Supraleiter entdeckt, deren gemeinsames Merkmal eine Schichtstruktur aus  $\text{CuO}_2$ -Ebenen und Zwischenschichten ist, über die Ladungsträger in die  $\text{CuO}_2$ -Ebenen dotiert werden können. Die folgende Behandlung beschränkt sich auf das Materialsystem, zu dem auch die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben gehören, und das eine vergleichsweise einfache Kristallstruktur mit der Möglichkeit verbindet, sowohl Löcher als auch Elektronen in die  $\text{CuO}_2$ -Ebenen einbringen zu können. Dabei handelt es sich um dotierte Lanthanoidenkuprate der chemischen Zusammensetzung  $\text{Ln}_{2-x}\text{D}_x\text{CuO}_4$ , wobei  $\text{Ln}$  Platzhalter für ein dreiwertiges Seltenerd-Ion, also La, Pr, Nd, Sm, Eu oder Gd<sup>1</sup>. Das Symbol  $D$  vertritt ein zwei- bzw. vierwertiges Ion wie  $\text{Sr}^{2+}$ ,  $\text{Ba}^{2+}$ ,  $\text{Ce}^{4+}$  oder  $\text{Th}^{4+}$ , über das Löcher bzw. Elektronen in die  $\text{CuO}_2$ -Ebenen eingebracht werden können.

Im folgenden Abschnitt wird die Struktur dieser Verbindungen vorgestellt. Es folgen eine kurze Beschreibung der Filmherstellung und der vermessenen Proben. Das Kapitel schließt mit einigen Bemerkungen zu Korngrenzenkontakten.

### 5.1 Kristallstruktur und Eigenschaften

Ausgangsmaterial der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Hochtemperatur-Supraleiter sind Lanthanoidenkuprate der chemischen Zusammensetzung  $\text{Ln}_2\text{CuO}_4$ . Bei den Lanthanoiden wird mit steigender Ordnungszahl die  $4f$ -Unterschale mit Elektronen aufgefüllt, Daher sind sich die Ln-Ionen chemisch sehr ähnlich, sie unterscheiden sich jedoch im Ionenradius, der mit steigender Ordnungszahl abnimmt, und in ihren magnetischen Eigenschaften. In Tabelle 5.1 sind die Elektronenkonfigurationen, die Grundzustand-Multipletts sowie einige Ionenradien der dreiwertigen Lanthanoiden-Ionen zusammengefasst. Je nach Radius des Lanthanoiden-Ions kri-

---

<sup>1</sup>Ce tritt häufiger als vierwertiges Ion auf, Pm besitzt kein stabiles Isotop und für die Lanthanoiden ab Gd lässt sich in der Verbindung  $\text{Ln}_{2-x}\text{D}_x\text{CuO}_4$  keine Supraleitung erzielen.

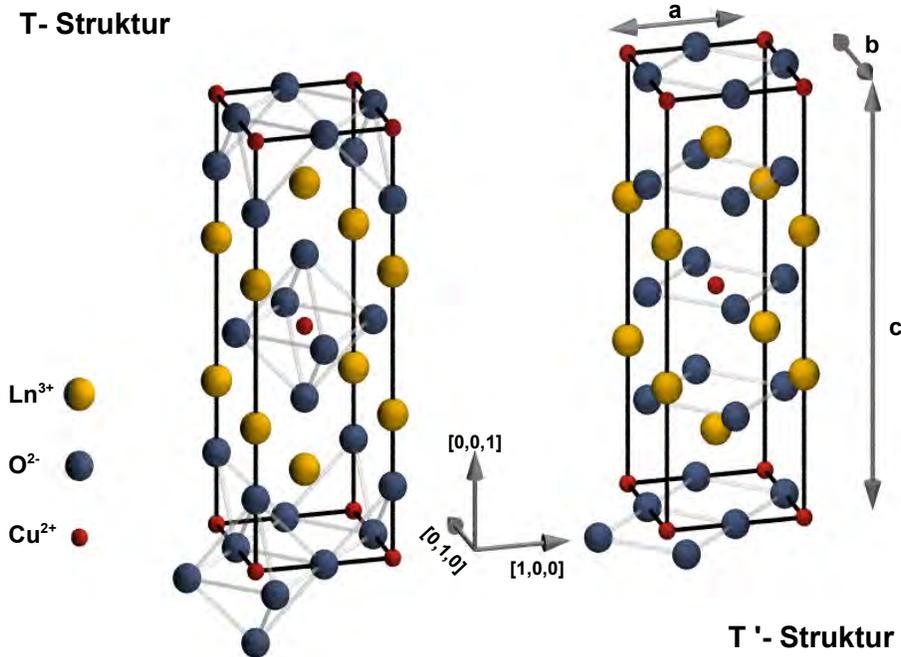


Abbildung 5.1: Vereinfachte Darstellung der Kristallstrukturen der Lanthanoidenkuprate.

stallisieren die Lanthanoidenkuprate in zwei verschiedenen Strukturen, die schematisch in Abbildung 5.1 dargestellt sind. Nur  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  kristallisiert in der sogenannten T-Struktur, für kleinere Ionenradien ergibt sich die T'-Struktur. Die T-Struktur wird auch als  $\text{K}_2\text{NiO}_4$ -Struktur, bezeichnet, die T'-Struktur als  $\text{Nd}_2\text{CuO}_4$ -Struktur. Wie Abbildung 5.1 zeigt, unterscheiden sich diese Strukturen in den Positionen der Sauerstoff-Ionen außerhalb der  $\text{CuO}_2$ -Ebenen. In der T-Struktur sind die  $\text{Cu}^{2+}$ -Ionen oktaedrisch mit  $\text{O}^{2-}$ -Ionen koordiniert. Dabei bilden die  $\text{O}^{2-}$ -Ionen außerhalb der  $\text{CuO}_2$ -Ebenen die Spitzen der  $\text{CuO}_6$ -Oktaeder, sie liegen auf den sogenannten Apex-Plätzen<sup>2</sup>. In der T'-Struktur liegen alle  $\text{O}^{2-}$ -Ionen längs der  $[001]$ -Achse übereinander, die  $\text{Cu}^{2+}$ -Ionen sind damit quadratisch planar koordiniert.

Indem einige der dreiwertigen  $\text{Ln}^{3+}$ -Ionen durch zwei- bzw. vierwertige Ionen wie  $\text{Sr}^{2+}$  oder  $\text{Ce}^{4+}$  ersetzt werden, lassen sich Löcher bzw. Elektronen in die  $\text{CuO}_2$ -Ebenen dotieren. Röntgen-Absorptions-Messungen zeigen, dass dotierte Löcher vorwiegend den Charakter von Sauerstoff  $2p$  Fehlstellen besitzen, dotierte Elektronen vorwiegend den Charakter von Kupfer  $3d$  Elektronen [Tranquada89].

Innerhalb der elektronendotierten Lanthanoidenkuprate nimmt  $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  aus

<sup>2</sup>apex (lat.) - Spitze

Ion	Elektronen-konfiguration	Grund-zustand	Ionen-Radius [Å]	$T_c$ [K]
La <sup>3+</sup>	[Xe]4f <sup>0</sup>	<sup>1</sup> S	1.160	28.8
Ce <sup>3+</sup>	[Xe]4f <sup>1</sup>	<sup>2</sup> F <sub>5/2</sub>		
Ce <sup>4+</sup>	[Xe]4f <sup>0</sup>	<sup>1</sup> S		
Pr <sup>3+</sup>	[Xe]4f <sup>2</sup>	<sup>3</sup> H <sub>4</sub>	1.126	24.4
Nd <sup>3+</sup>	[Xe]4f <sup>3</sup>	<sup>4</sup> I <sub>9/2</sub>	1.109	23.8
Pm <sup>3+</sup>	[Xe]4f <sup>4</sup>	<sup>5</sup> I <sub>4</sub>		
Sm <sup>3+</sup>	[Xe]4f <sup>5</sup>	<sup>6</sup> H <sub>5/2</sub>	1.079	19.6
Eu <sup>3+</sup>	[Xe]4f <sup>6</sup>	<sup>7</sup> F <sub>0</sub>	1.066	12.5
Gd <sup>3+</sup>	[Xe]4f <sup>7</sup>	<sup>8</sup> S <sub>7/2</sub>	1.053	0

Tabelle 5.1: Elektronenkonfigurationen und Grundzustands-Multipletts der Lanthanoiden-Ionen nach [Ashcroft76] sowie die Radien einiger dieser Ionen und maximale kritische Temperaturen der elektronendotierten Lanthanoidenkuprate nach [Hepp00].

mehreren Gründen eine Sonderstellung ein. So ist La<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> aufgrund des großen Radius des La<sup>3+</sup>-Ions die einzige Verbindung, bei dem das Ausgangsmaterial in der T-Struktur kristallisiert, also in der gleichen Struktur wie die bekannten lochdotierte Hochtemperatur-Supraleiter La<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub>. Insofern erscheint La<sub>2-x</sub>D<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> theoretisch ein geeigneter Kandidat für ein Materialsystem, bei dem Supraleitung durch Dotierung mit Elektronen und Löchern in der gleichen Kristallstruktur erzielt werden und so die Symmetrie des Phasendiagramms bezüglich Elektronen- und Loch-Dotierung untersucht werden kann.

Weiterhin ist das Materialsystem La<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> interessant, da die kritischen Temperaturen der Ln<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub>-Verbindungen mit zunehmendem Radius des Ln<sup>3+</sup>-Ions zunehmen, bei La<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> also maximal sind [Naito00b]. Die maximalen kritischen Temperaturen der einzelnen elektronen-dotierten Verbindungen werden ebenfalls in Tabelle 5.1 zusammengefasst. Schließlich besitzt das La<sup>3+</sup>-Ion kein magnetisches Moment (vgl. Tabelle 5.1), so dass zum Beispiel durch vergleichende Messungen an La<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub>- und Nd<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub>-Proben eventuell Rückschlüsse gezogen werden können, welche Eigenschaften durch die magnetischen Momente der Nd-Ionen beeinflusst werden.

Bisher ist es allerdings nicht gelungen, elektronendotierte Supraleitung in Materialien mit T-Struktur oder lochdotierte Supraleitung in Materialien mit T'-Struktur zu erzielen. Sehr aktuelle Messungen an dünnen Filmen, bei denen es gelungen ist, geringe Mengen von Ce in LaCeCuO<sub>4</sub> einzubringen und dabei die T-Struktur zu erhalten, zeigen, dass die Dotierung mit Ce die resultierende Verbindung sogar isolierender macht [Tsukada06]. Generell begünstigt die Substitution von La<sup>3+</sup>-Ionen durch die kleineren Ce<sup>4+</sup>-Ionen die T'-Struktur. Die Präparation von supraleitenden T'-La<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub>-Einkristallen ist jedoch ebenfalls schwierig und gelingt nur

Probe	Original- Bezeichnung	Material	Dotierung	Filmdicke [Å]	Messungen
L1	00-199	LCCO	0.1130	3000	Tunneln, $\rho(T, H)$
L2	00-194	LCCO	0.1216	3000	Tunneln, $\rho(T, H)$
L3	00-196	LCCO	0.1527	3000	Tunneln, $\rho(T, H)$
P1	E00-266	PCCO	0.1336	2000	Tunneln, $\rho(T, H)$
P2	E00-268	PCCO	0.1476	2000	Tunneln, $\rho(T, H)$
P3	E00-270	PCCO	0.1598	2000	Tunneln, $\rho(T, H)$
N1	E00-239	NCCO	0.1187	2000	(Tunneln), $\rho(T, H)$ , Röntgen
N2	E00-243	NCCO	0.1497	2000	(Tunneln), $\rho(T, H)$ , Röntgen
N3	E00-245	NCCO	0.1665	2000	(Tunneln), $\rho(T, H)$ , Röntgen
N4	E00-240	NCCO	0.13	2000	SEM

Tabelle 5.2: Informationen über die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben nach [Naito00a]. Alle Proben bis auf N4 wurden auf symmetrischen  $36.8^\circ$ -Bikristall Substraten aus  $\text{SrTiO}_3$  in  $[001]$ -Orientierung hergestellt, bei Probe N4 beträgt der Winkel  $15^\circ$ . Die Tunnelmessungen an den Proben der NCCO-Serie wurden aus Gründen der Probenqualität nicht in die quantitative Auswertung in Kapitel 8 einbezogen (vgl. Abschnitt A.2).

in einem sehr begrenzten Dotierungsbereich [Yamada94]. Die Idee, die den hier untersuchten  $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ -Filmen zugrunde liegt, ist es, die  $T'$ -Struktur durch epitaktische Effekte zu stabilisieren.

## 5.2 Filmherstellung und vermessene Proben

Im Rahmen dieser Arbeit wurden dünne Filme aus  $\text{La}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$ ,  $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  und  $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  (im folgenden kurz als LCCO, PCCO und NCCO bezeichnet) untersucht, die mittels Molekularstrahl-Epitaxie auf bikristallinen  $\text{SrTiO}_3$ -Substraten aufgewachsen wurden. Alle Proben wurden von Markus Hepp in der Gruppe von M. Naito bei NTT in Japan hergestellt, die Herstellung ist ausführlich in [Hepp00] dokumentiert.

Die Herstellungsbedingungen wurden für die hier untersuchten Proben für jedes Materialsystem so optimiert, dass die kritischen Temperaturen der resultierenden Filme möglichst hoch und die spezifischen Widerstände bei Raumtemperatur möglichst gering sind. In Tabelle 5.2 sind die in dieser Arbeit untersuchten Proben, ihre Originalbezeichnungen, Filmdicken und Dotierungen nach [Naito00a] sowie die an den jeweiligen Proben durchgeführten Messungen zusammengefasst.

Die in Tabelle 5.2 angegebenen Dotierungen wurden nach folgendem Verfahren ermittelt: Nach der Bestimmung der optimalen Wachstumsbedingungen wird für jedes Materialsystem eine Reihe von Testfilmen mit verschiedenen Dotierungen her-

gestellt. Testfilme und Bikristallfilme werden geröntgt, um die Gitterparameter zu bestimmen. Anschließend wird die Zusammensetzung der Testfilme mittels ICP<sup>3</sup> bestimmt. Die daraus berechneten Werte für  $x$  werden gegen die  $c$ -Achsen-Parameter aufgetragen. Da  $\text{Ce}^{4+}$  einen kleineren Ionenradius besitzt als  $\text{La}^{3+}$ , nimmt der  $c$ -Achsen-Parameter mit zunehmender Ce-Dotierung ab. Ausgedehnte Messreihen zeigen, dass der Zusammenhang in sehr guter Näherung linear ist [Hepp00]. Anhand des auf diese Weise bestimmten Zusammenhangs lassen sich nun aus den Röntgendaten der Bikristall-Proben die Dotierungen  $x$  berechnen. Für einige Proben der NCCO-Serie wurden die Gitterparameter im Rahmen dieser Arbeit noch einmal durch Röntgendiffraktometrie bestimmt.<sup>4</sup> Die aus den so ermittelten  $c$ -Achsen-Parametern und des Zusammenhangs aus [Hepp00] berechneten Werte für die Ce-Dotierung  $x$  stimmen sehr gut mit den in Tabelle 5.2 zusammengefassten Angaben aus dem den Proben beigefügten Datenblatt überein.

Schließlich stellt sich noch die Frage, inwieweit die Größe  $x$ , also die Ce-Dotierung, mit der tatsächlichen Elektronendotierung übereinstimmt. Dazu ist zu beachten, dass sich der genaue Sauerstoffgehalt der Proben nicht bestimmen lässt. Überschüssiger Sauerstoff auf Zwischengitterplätzen (insbesondere dem in der T'-Struktur nicht besetzten Apex-Platz) lokalisiert die durch die Ce-Dotierung in die  $\text{CuO}_2$ -Ebenen eingebrachten Elektronen, Beladung mit Sauerstoff wirkt also als Loch-Dotierung [Jiang93]. Messungen von Hall-Effekt und Widerstand an unter gleichen Bedingungen hergestellten überdotierten PCCO-Filmen, die entweder mit Sauerstoff beladen oder durch Ionenbeschuss geschädigt wurden, zeigen, dass die zusätzlichen Sauerstoff-Ionen stets auch als Streuzentren wirken, wobei die Auswirkungen dieses Effektes auf die kritische Temperatur und den Widerstand die Auswirkungen der Dotierung stets weit überschreiten [Higgins06]. Daher sollte die oben beschriebene Optimierung der Herstellungsparameter bezüglich kritischer Temperatur und Widerstand der resultierenden Filme dafür sorgen, dass Sauerstoff auf Zwischengitterplätzen weitgehend entfernt wird und damit  $x$  tatsächlich ein gewisses Maß für die Elektronendotierung angibt.

### 5.3 Korngrenzenkontakte

Alle in dieser Arbeit vermessenen Filme wurden auf bikristalline Substraten aufgewachsen. Dies bietet die Möglichkeit, durch geeignete Strukturierung sowohl Filmbrücken wie auch Korngrenzenkontakte auf der gleichen Probe zu erhalten. In der Literatur findet sich eine Fülle von Publikationen zum Thema Korngrenzen in Hochtemperatur-Supraleitern, zum einen um den Stromtransport durch ein polykristallines Leitermaterial besser zu verstehen, zum anderen, weil die gezielte Präparation von Korngrenzen in einem Supraleiter mit  $d$ -Wellen-Symmetrie die Her-

<sup>3</sup>inductively coupled plasma spectroscopy- induktiv gekoppelte Plasma-Spektroskopie

<sup>4</sup>Vor der Strukturierung der übrigen Proben stand der Messaufbau für die Röntgendiffraktometrie-Messungen noch nicht zur Verfügung.

stellung neuartiger Bauelemente erlaubt. Die Verwendung bikristalliner Substrate ist dabei weit verbreitet. Eine Übersicht findet sich zum Beispiel in [Hilgenkamp02].

Bei der Grenzfläche, die die beiden Hälften der Bikristalle trennt, handelt es sich nach der in [Hilgenkamp02] verwendeten Notation für jede der untersuchten Proben um eine symmetrische [001]-tilt-Korngrenze. Dies bedeutet, dass die Grenzfläche parallel zur [001]-Ebene verläuft, dass die beiden Hälften um einen Winkel  $\theta$  längs der [001]-Achse gegeneinander verdreht sind und dass schließlich die Kristallachsen in beiden Hälften die gleiche Orientierung bezüglich der Grenzfläche aufweisen. Abbildung 5.2 zeigt eine schematische Darstellung eines solchen Bikristalls.

Durch die Epitaxie wird die Korngrenze in den auf das bikristalline Substrat aufwachsenden Film übertragen. Die Gitterfehler längs dieser Korngrenze verursachen für hinreichend große Korngrenzwinkel eine isolierende Schicht, die hier als Tunnelbarriere verwendet wird.

Im Vergleich mit anderen Techniken wie Punktkontakt-Spektroskopie oder STM-Messungen bieten Tunnelmessungen an Korngrenzenkontakten den Vorteil, dass die Struktur der Tunnelbarriere sehr stabil ist. Das erlaubt ausgedehnte Mess-Serien für verschiedene Temperaturen und Magnetfelder, ohne dass sich die Eigenschaften der Tunnelbarriere ändern.

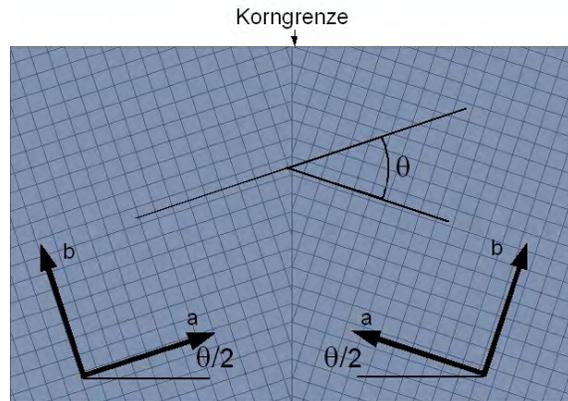


Abbildung 5.2: schematische Darstellung eines symmetrischen Bikristalls

# Kapitel 6

## Experimentelle Techniken

### 6.1 Strukturierung der Proben

Bevor Transportmessungen durchgeführt werden können, muss der Film zunächst strukturiert werden, wobei Geometrie und Position der Messbrücken auf der Probe festgelegt werden. Zur Definition der gewünschten Strukturen wurden spezielle Masken erstellt, die im folgenden kurz vorgestellt werden sollen. Die Übertragung der Strukturen von der Maske auf die Filmoberfläche erfolgt mit Hilfe von optischer Lithographie, die Freilegung der Strukturen im Film mittels Ionenstrahl-Ätzen. In beiden Fällen handelt es sich um Standard-Techniken, die zum Beispiel in [Schoop00] und [Herbstritt01] detailliert beschrieben sind.

In den im Rahmen dieser Arbeit erstellten Strukturen wird eine übliche Vier-Punkt Geometrie verwendet, wie sie in Abbildung 6.1 schematisch dargestellt ist. Zentraler

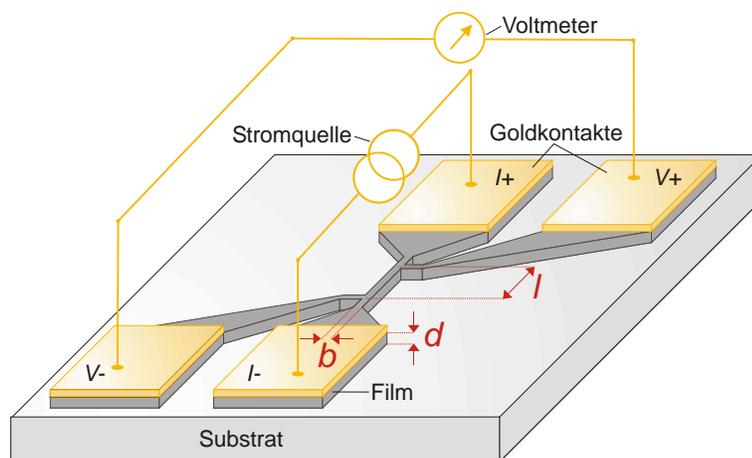


Abbildung 6.1: Schematische Darstellung eines 4-Punkt Kontaktes

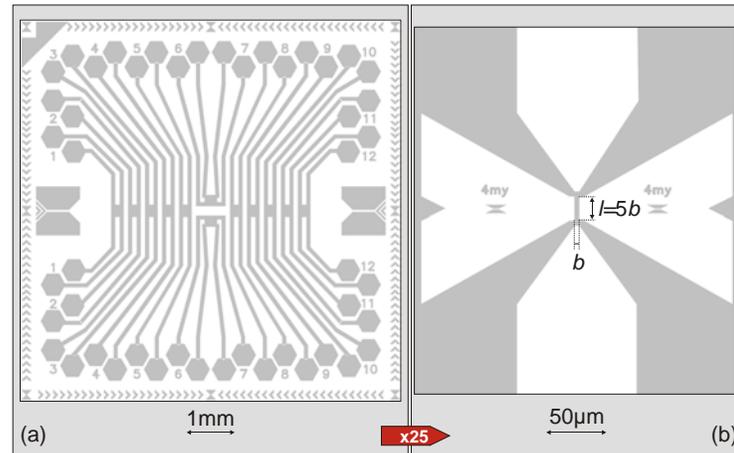


Abbildung 6.2: Masken für Grob- (a) und Feinstrukturierung (b) mittels Projektionsbelichtung nach [Herbstritt01]

Bestandteil ist dabei ein Steg der Länge  $l$ , Breite  $b$  und Dicke  $d$ , der an jedem Ende jeweils in zwei Zuleitungen mündet, einer Stromzuführung und einem Spannungsabgriff. Die Zuleitungen enden in Kontaktflächen, an denen die Messbrücke über Bonddrähte mit dem Messsystem verbunden werden kann. Der elektrische Kontakt zwischen Bonddrähten und Messbrücke kann verbessert werden, indem eine dünne Goldschicht auf die Kontaktflächen aufgebracht wird.

Um Tunnelkontakte aus einem auf einem bikristallinen Substrat aufgewachsenen Film zu erzeugen, ist es notwendig, die Messbrücken so zu positionieren, dass die Korngrenze zwischen den Spannungsabgriffen zu liegen kommt. Die erforderliche Positionierungsgenauigkeit hängt natürlich von der Länge  $l$  des jeweiligen Kontaktes ab. Häufig ist die Korngrenze unter dem optischen Mikroskop, zumindest bei zusätzlicher Beleuchtung von unten (Durchlicht) gut zu erkennen. In diesem Fall bietet sich die Technik der Projektionsbelichtung an. Dabei wird das Bild der Maske über einen halbdurchlässigen Spiegel in den Tubus eines optischen Mikroskops eingekoppelt und über die Objektivlinse auf die Probenoberfläche abgebildet, wobei die abgebildete Struktur um den Vergrößerungsfaktor  $V_{Obj}$  der Objektivlinse verkleinert wird. Der genaue Strahlengang findet sich zum Beispiel in [Herbstritt01]. Neben der kontaktlosen Belichtung bietet diese Methode den Vorteil eines sehr flexiblen Probenlayouts. Im Allgemeinen erfolgt die Strukturierung in mehreren Schritten, wobei zunächst mit dem Objektiv der kleinsten Vergrößerung eine Grobstruktur erzeugt wird. Anschließend wird die Feinstruktur, also die genaue Form der Brücken, einzeln mit einem Objektiv größerer Vergrößerung erzeugt. Die Masken selbst sind leicht im Institut selbst herzustellen, so dass neue Strukturen schnell und einfach

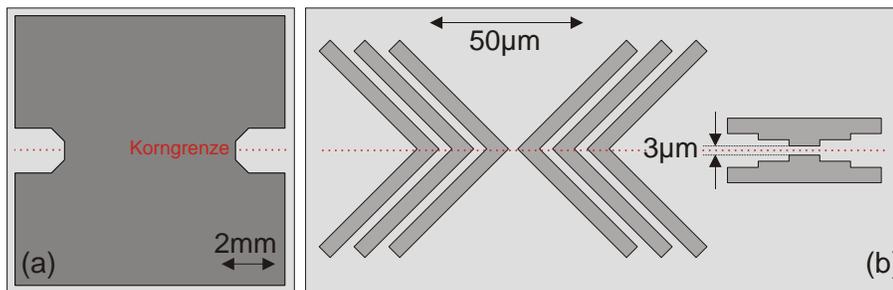


Abbildung 6.3: Struktur zur Freilegung der Randbereiche vor dem HF-Ätzen (a) und Peilstrukturen für die Kontaktbelichtung (b)

getestet werden können. Abbildung 6.2 zeigt die zur Strukturierung einer Probe (L194) verwendete Grobstruktur (a) und eine zugehörige Feinstruktur (b). Dabei wurde die Grobstruktur mit einem Objektiv der Vergrößerung 1.6, die Feinstruktur jeweils mit einem Objektiv der Vergrößerung 50 erzeugt. Die Längenangaben in Abbildung 6.2 beziehen sich auf die Längen auf der fertig strukturierten Probe. Die Struktur besteht aus 10 Korngrenzenbrücken und je einer Filmbrücke auf beiden Seiten der Korngrenze. Für die Feinstruktur wurden Brücken der Art von Abbildung 6.2(b) mit Brückenbreiten zwischen  $2\ \mu\text{m}$  und  $6\ \mu\text{m}$  verwendet, wobei das Aspektverhältnis jeweils  $b : l = 1 : 5$  beträgt. Das konstante Aspektverhältnis dient dabei zur besseren Vergleichbarkeit von an Brücken verschiedener Breite aufgenommenen Widerständen, da  $R \sim l/b$ . Allerdings ließ sich diese Methode nur auf eine einzige der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben anwenden (L194), da bei allen anderen die Korngrenze unter dem optischen Mikroskop weder im Auf- noch im Durchlicht erkennbar war.

Für diese Proben ist die Kontaktbelichtung mit einem Mask-Aligner der Projektionsbelichtung vorzuziehen. Dabei wird ein direkter Kontakt zwischen der Maske im Maßstab 1:1 und der Oberfläche des auf den Film aufgetragenen Photolackes hergestellt und die gesamte Struktur in einem Belichtungsschritt erzeugt. Ist die Korngrenze in beiden Randbereichen zu sehen, so kann durch Justierung auf geeignete Peilmarkierungen der Maske die Probe so positioniert werden, dass die Korngrenze alle Kontakte an der gewünschten Stelle schneidet.

Um die Sichtbarkeit der Korngrenze in den Randbereichen zu erhöhen, macht man sich das Verhalten von  $\text{SrTiO}_3$  beim Ätzen in Flusssäure zunutze [Kawasaki94, Lippmaa98]. Gepufferte  $\text{NH}_4\text{F}$ -HF Lösungen im pH-Bereich von 3.7 bis 4.3 werden verwendet, um atomar glatte, Ti-terminierte Oberflächen auf  $\text{SrTiO}_3$ -Substraten zu erzeugen, da Flusssäure Sr deutlich stärker angreift, als Ti. Bei niedrigeren pH-Werten, werden rechteckige Ätzgrübchen (etch pits) beobachtet. Eine Korngrenze bietet aufgrund der erhöhten Defektdichte bessere Angriffsmöglichkeiten für die Fluor-Ionen, so dass längs der Korngrenze tiefe Ätzgräben entstehen, die im opti-

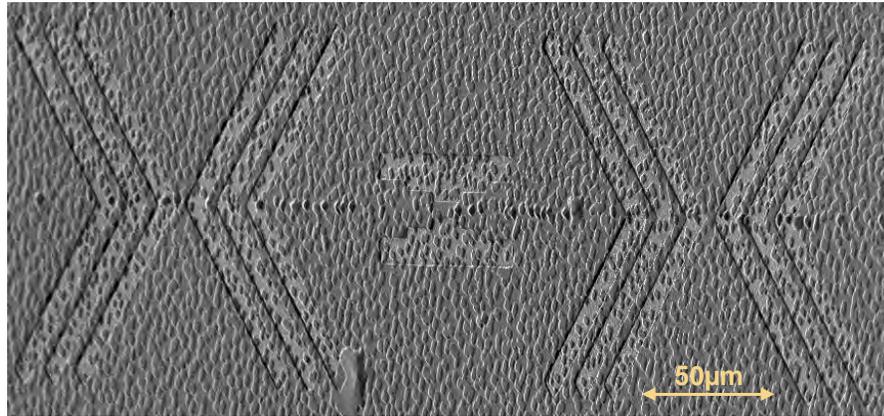


Abbildung 6.4: SEM-Bild des Substrates nach dem HF-Ätzen

schen Mikroskop deutlich zu sehen sind. Zunächst muss an den Seitenrändern der Probe in einem kleinen Bereich um die Korngränze herum der Film vom Substrat entfernt werden. Dazu wird dieser Bereich mittels einer speziellen, in Teilabbildung 6.3 (a) schematisch dargestellten Ätzmaske belichtet, der belichtete Photolack wird vom Entwickler abgelöst und die nicht durch den Lack geschützten Bereiche des Films werden durch Eintauchen in 10% HCl entfernt. Nach einem etwa 2-minütigen Bad in 3% HF ist die Korngränze in den ausgewählten Bereichen deutlich als dunkle Linie zu erkennen.

Die Masken für die Kontaktbelichtung enthalten neben den Strukturen für die Messbrücken Peilstrukturen, wie sie in Teilabbildung 6.3 (b) schematisch dargestellt sind. Um auf einer Länge von 1 cm die Korngränze auf beiden Seiten zwischen die  $3\ \mu\text{m}$  voneinander entfernten Hälften der rechten in Abbildung 6.3 (b) dargestellten Peilstruktur zu positionieren, muss sich die Probe im Mask-Aligner mit einer Winkelgenauigkeit von  $0.03^\circ$  einstellen lassen.

Abbildung 6.4 zeigt ein SEM-Bild<sup>1</sup> eines Ausschnitts des für die Justierung verwendeten Substrat-Bereichs nach der endgültigen Strukturierung der Probe. Durch den letzten Strukturierungsschritt werden auch die Peilstrukturen auf das Substrat übertragen und treten nach dem Ionenstrahl-Ätzen reliefartig hervor. Neben den Peilstrukturen sind die rechteckigen bis rautenförmigen Ätzgrübchen deutlich zu sehen, die längs der Korngränze besonders ausgeprägt sind und damit ihren Verlauf markieren.

Die Abbildungen 6.5 und 6.7 schließlich zeigen die Strukturen zweier im Rahmen dieser Arbeit zur Strukturierung von Korngränzenkontakten entwickelter Masken für die Kontaktbelichtung, wobei die Teilabbildungen (a) jeweils einen Überblick

<sup>1</sup>Scanning Electron Microscope - Rasterelektronenmikroskop

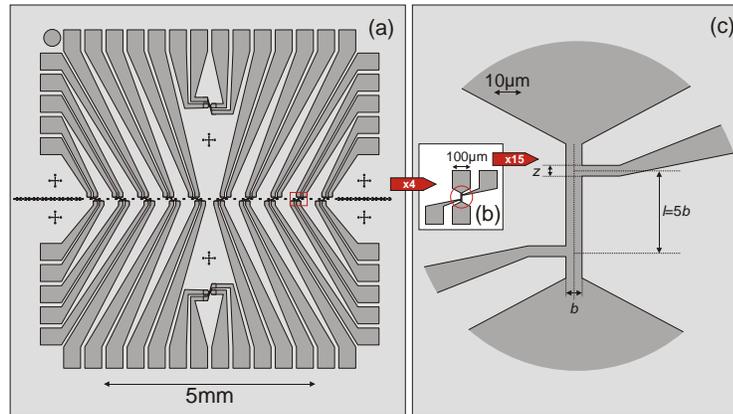


Abbildung 6.5: Maske KG00 zur Strukturierung von Korngrenzenkontakten auf  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  Proben mittels Kontaktbelichtung

über die gesamte Struktur enthalten, die Teilabbildungen (b) und (c) Ausschnittvergrößerungen jeweils einer Messbrücke. Abbildung 6.5a zeigt wiederum 10 Korngrößenbrücken und zwei Filmbrücken, deren Breiten zwischen  $1 \mu\text{m}$  und  $10 \mu\text{m}$  liegen, wobei das Aspektverhältnis auch hier stets  $b : l = 1 : 5$  beträgt. Die in den Teilabbildungen 6.5b und 6.5c dargestellte Struktur einer Messbrücke wurde im Vergleich zu 6.2 dahingehend verändert, dass der Strompfad über eine Länge vom etwa  $150 \mu\text{m}$  senkrecht auf die Korngrenze zuläuft und dass die Spannungsabgriffe so verlaufen, dass sich die durch einen Stromfluss in den Bereich der Korngrenze eingekoppelten Magnetfelder gegenseitig aufheben. Beim Strukturieren mit Maske KG00 stellte sich die besonders bei schmalen Brücken durch das konstante Aspektverhältnis notwendige Begrenzung der Breite  $z$  der Zuleitungsstrukturen als möglicher Nachteil heraus. Bei Strukturen mit einer Breite von unterhalb  $2 \mu\text{m}$  muss die Belichtungs- und Entwicklungszeit besonders sorgfältig gewählt werden, um Überbelichtungen zu vermeiden. Da ich die supraleitenden Filme im Rahmen meiner Arbeit nicht selbst hergestellt habe, war es sehr wichtig, die Proben bei der Strukturierung nicht zu beschädigen. Dazu gehört es, unnötige Belackungsschritte zu vermeiden. Wurde bei der Strukturierung also die Korngrenze getroffen, so war vor dem Ionenstrahlätzen stets abzuwägen, ob die eventuelle Zerstörung von 1-2 Kontakten in Kauf genommen werden, oder die Strukturierung wiederholt werden sollte. Weiterhin wären mehr Filmbrücken auf jeder Seite der Korngrenze wünschenswert. Diese Gesichtspunkte wurden beim Entwurf der in Abbildung 6.7 dargestellten Strukturen berücksichtigt. Durch Veränderung der gesamten Anordnung war es möglich, die Anzahl der Filmbrücken auf 6 zu erhöhen, ohne die Zahl der Korngrößenbrücken reduzieren zu müssen. Weiterhin sind die Kontaktflächen so angeordnet,

dass auf eine Lift-Off Technik zur Erzeugung der Goldkontakte verzichtet werden kann. Stattdessen wird der Aussenbereich der Probe vor der eigentlichen Strukturierung mit Gold besputtert, wobei der mittlere Bereich mit einer aufliegenden Maske verdeckt ist. Bei den in 6.7 (b) dargestellten Messbrücken schließlich wurde auf ein konstantes Aspektverhältnis zugunsten breiterer Zuleitungen verzichtet. Alle Messbrücken besitzen eine Länge von  $20\ \mu\text{m}$ , an die sich an jedem Ende ein kleiner trapezförmiger Bereich anschließt. Bei supraleitenden Tunnelkontakten spielt dies keine große Rolle, da im supraleitenden Bereich die Spannung genau an der Korngrenze abfällt. Bei Filmbrücken im normalleitenden Bereich lassen sich zur Berechnung des spezifischen Widerstandes der Beitrag einer trapezförmigen Struktur unter der vereinfachenden Annahme, dass der Strom überall senkrecht zu den Stirnflächen des Trapezes fließt, leicht berechnen. Für eine Struktur wie in Abbildung 6.6 mit spezifischem Widerstand  $\rho$  ergibt sich

$$R = \rho \frac{l \ln(b_1/b_2)}{d (b_1 - b_2)} \quad (6.1)$$

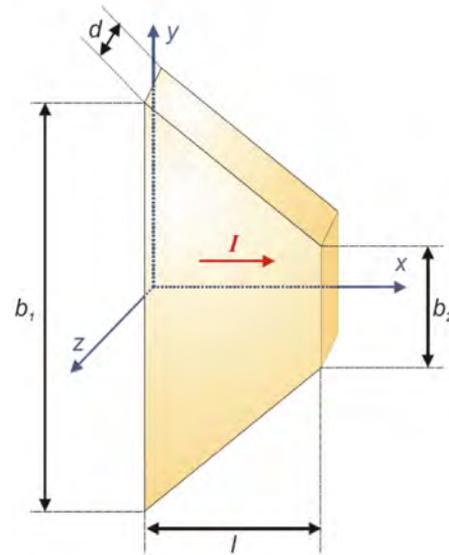


Abbildung 6.6: Skizze zum spezifischen Widerstand einer trapezförmigen Struktur

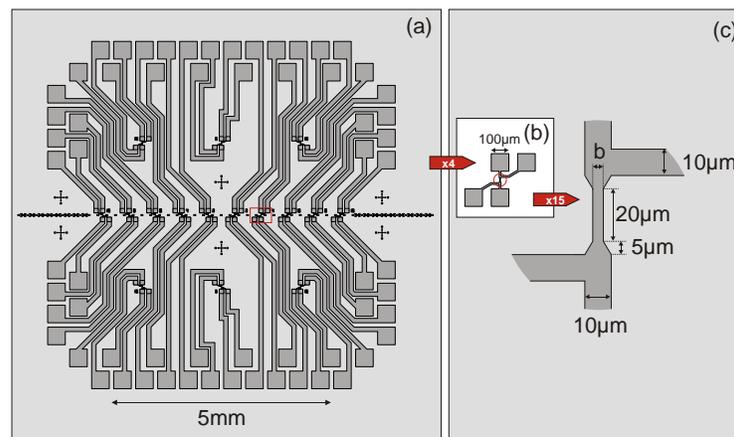


Abbildung 6.7: Maske KG01 zur Strukturierung von Korngrenzenkontakten auf  $10 \times 10\ \text{mm}^2$  Proben mittels Kontaktbelichtung

## 6.2 Lock-In Technik

Zur Aufzeichnung von Leitwertsspektren an Tunnelkontakten haben sich zwei Standard-Techniken etabliert: zum einen die Aufnahme von dc-Strom-Spannungs-Kennlinien<sup>2</sup> mit anschließender numerischer Differenzierung, zum anderen die simultane Messung der dc-Strom-Spannung-Kennlinie und des differentiellen Widerstands in Lock-In-Technik. Die in dieser Arbeit gezeigten Spektren wurden in unterschiedlichen experimentellen Umgebungen, wie verschiedenen Kryostat- und Magnetfeldsystemen im Haus sowie dem Hochfeldlabor am GHMFL<sup>3</sup> in Grenoble aufgenommen, wobei ein Hauptaugenmerk auf Messungen in hohen Magnetfeldern lag, bei denen eine optimale Abschirmung von Störsignalen häufig nicht möglich war. Daher wurde die Lock-In-Technik zur Aufzeichnung der Spektren gewählt. Der Hauptvorteil liegt in dem hervorragenden Signal-Rausch-Verhältnis, das mit Hilfe dieser Technik erreicht werden kann. Darüberhinaus kann in Lock-In-Technik der differentielle Widerstand des betrachteten Tunnelkontaktes direkt bestimmt werden.

### 6.2.1 Funktionsweise eines Lock-In-Verstärkers

Die Funktionsweise eines Lock-In-Verstärkers ist in Abbildung 6.8 schematisch dargestellt. Ganz generell wird der funktionale Zusammenhang zwischen einer Ein- und einer Ausgangsgröße eines physikalischen Systems untersucht, was in Abbildung 6.8 als „Experiment“ bezeichnet wird. Dabei wird das Ausgangssignal im Allgemeinen durch ein Rauschsignal überlagert, dessen Amplitude die des Ausgangssignals durchaus weit übersteigen kann. Ein wesentlicher Zweck der Lock-In-Technik liegt nun darin, das Ausgangssignal aus dem Rauschen herauszufiltern. Dazu wird die Eingangsgröße mit einer bestimmten Frequenz  $\omega_{ac}$  moduliert und der Lock-In detektiert die Antwort des Systems bei eben dieser Frequenz  $\omega_{ac}$ . Im vorliegenden Fall handelt es sich bei der Eingangsgröße um den dem Kontakt aufgeprägten Strom, wobei die dabei am Kontakt abfallende Spannung die Ausgangsgröße des Experimentes darstellt.

Der Funktionsgenerator, der die Modulation der Eingangsgröße des Experimentes erzeugt, ist darüberhinaus über eine phasensensitive Rückkopplung, in Abbildung 6.8 als PLL<sup>4</sup> bezeichnet, mit einem internen Oszillator im Lock-In-Verstärker verbunden, der daraufhin ein Referenzsignal mit gleicher Frequenz  $\omega_{ref} = \omega_{ac}$  und fester Phasenbeziehung zum Modulationssignal des Funktionsgenerators erzeugt. Mit einem Phasenschieber kann nun die relative Phasenverschiebung  $\varphi$  zwischen dem Referenzsignal und dem in den Signaleingang des Lock-In eingespeisten Ausgangssignal des Experimentes eingestellt werden. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit

---

<sup>2</sup>direct current - Gleichstrom

<sup>3</sup>Grenoble High Magnetic Field Laboratory

<sup>4</sup>phase locked loop. Dies ist der Ursprung der Bezeichnung Lock-In-Verstärker

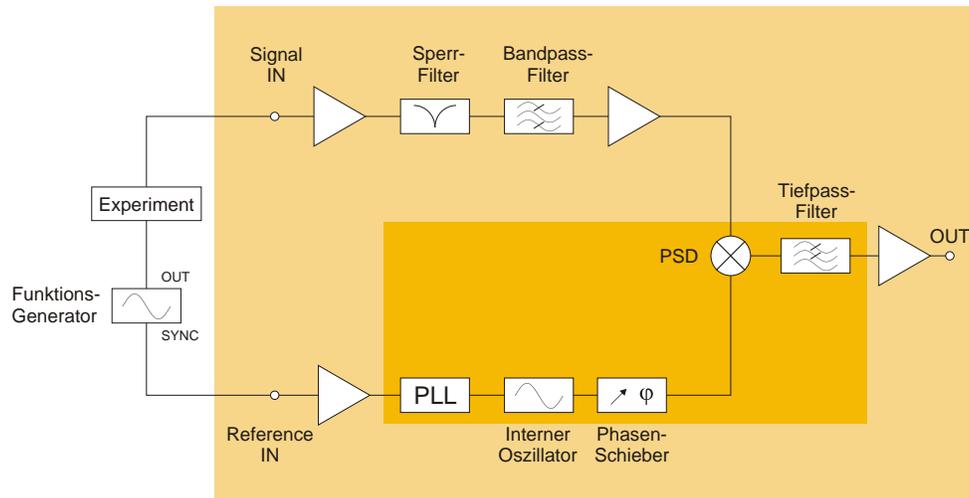


Abbildung 6.8: Schematische Darstellung der Funktionsweise eines Lock-In Verstärkers nach [Sta99] Die für die Funktionsweise des Lock-In zentralen Komponenten sind dunkelgrau hinterlegt

gilt für das Eingangs- und das Referenz-Signal des Lock-In

$$S_{in}(t) = A \sin(\omega_{act}) + S_R(t) \quad (6.2)$$

$$S_{ref}(t) = B \sin(\omega_{act} + \varphi) \quad (6.3)$$

Dabei ist  $S_R(t)$  das Rauschsignal, das dem zu messenden Signal überlagert ist. In dem als PSD (**p**hase **s**ensitive **d**etector) bezeichneten Bauelement werden nun Eingangs- und Referenz-Signal miteinander multipliziert und das resultierende Signal wird anschließend in einem RC-Tiefpassfilter zeitlich gemittelt. Mathematisch lässt sich damit das Ausgangssignal des Lock-In als

$$S_{out} = \frac{1}{T} \int_0^T S_{in}(t) \cdot S_{ref}(t) dt \quad (6.4)$$

ausdrücken. Während in digitalen Lock-In Verstärkern Referenz- und Eingangssignal digitalisiert und anschließend digital multipliziert werden, wird in analogen Geräten häufig kein analoger Multiplizierer eingesetzt [Marti03]. Stattdessen wird in diesem Fall häufig das Referenzsignal als Steuersignal für einen Synchrongleichrichter verwendet, dessen Wirkungsweise detailliert in [Tietze93] beschrieben ist. PSD und Tiefpassfilter wirken zusammen wie ein schmalbandiger Bandpassfilter, dessen Bandbreite umgekehrt proportional zur RC-Zeit  $T$  des Tiefpassfilters ist [Stachel00]. Um dies zu verdeutlichen, betrachtet man das Ausgangssignal des Lock-In, wenn für eine feste Referenzfrequenz  $\omega_{ref}$  am Eingang des Lock-In Verstärkers ein Störsignal

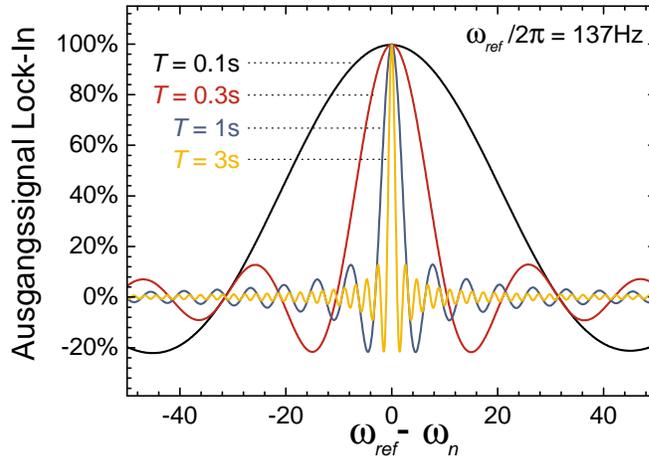


Abbildung 6.9: Ausgangssignal des Lock-In-Verstärkers als Funktion der Differenz zwischen der Signalfrequenz  $\omega_1$  und einer konstanter Referenzfrequenz von  $\omega_0/2\pi = 137\text{ Hz}$  für verschiedene Integrationszeiten  $T$ . Die Phasenverschiebung ist hier auf  $\varphi = 0$  gesetzt.

beliebiger Frequenz  $\omega_n$  anliegt. In diesem Fall ergibt sich am Ausgang des Lock-In unter Vernachlässigung aller Vorfaktoren und für  $\varphi = 0$  ein Signal der Form

$$\begin{aligned}
 S_{out} &= \frac{1}{T} \int_0^T \sin(\omega_n t) \cdot \sin(\omega_{ref} t) dt \\
 &= \frac{1}{2} \left( \frac{\sin((\omega_n - \omega_{ref})T)}{(\omega_n - \omega_{ref})T} - \frac{\sin((\omega_n + \omega_{ref})T)}{(\omega_n + \omega_{ref})T} \right) \quad (6.5)
 \end{aligned}$$

vor. In Abbildung 6.9 ist der Verlauf dieser Größe als Funktion der Differenz zwischen Referenz- und Störsignalfrequenz für eine feste Referenzfrequenz von  $\omega_{ref}/2\pi = 137\text{ Hz}$  bei verschiedenen Integrationszeiten  $T$  aufgetragen. Die Funktion zeigt deutlich die charakteristischen Eigenschaften eines Bandpass-Filters, der nur Signale mit Frequenzen sehr nahe der Referenzfrequenz passieren lässt, wobei die Bandbreite des Filters mit zunehmender Integrationszeit abnimmt. Geht man zum Beispiel von weißem Rauschen aus, so lässt sich sehr einfach mit Hilfe des Wiener-Khinchine-Theorems zeigen, dass das Verhältnis der Rauschleistungen hinter und vor einem Bandpass-Filter proportional zum Verhältnis der Bandbreite des Bandpass-Filters zur Bandbreite des Rauschens ist [Stachel00]. Im vorliegenden Fall ist die übertragene Rauschleistung also umgekehrt proportional zur  $RC$ -Zeit des Tiefpassfilters.

### 6.2.2 Messung differenzieller Größen in Lock-In-Technik

Neben der Rauschunterdrückung liefert die Lock-In-Technik ebenfalls die direkte Messung differenzieller Größen. Im vorliegenden Fall der Messung einer Strom-Spannungs-Kennlinie entspricht dies der Messung des differentiellen Widerstandes  $dI/dV$ .

Dabei wird dem zu vermessenden Kontakt ein Stromsignal aufgeprägt, das sich aus einem Gleichstromsignal  $I_{dc}$  und einem Wechselstromsignal mit einstellbarer Amplitude und Frequenz zusammensetzt, also

$$I(t) = I_{dc} + I_{ac} \cdot \sin(\omega t). \quad (6.6)$$

Dementsprechend fällt am Kontakt eine Spannung ab, für die eine Taylor-Entwicklung um  $I_{dc}$  bis zur zweiten Ordnung in  $I_{ac}$

$$\begin{aligned} V(t) &= V(I_{dc} + I_{ac} \cdot \sin(\omega t)) \\ &= V(I_{dc}) + V'(I_{dc})I_{ac} \sin(\omega t) + \frac{1}{2}V''(I_{dc})I_{ac}^2 \sin^2(\omega t) + O(I_{ac}^3) \end{aligned} \quad (6.7)$$

ergibt, wobei  $V'$  und  $V''$  die erste bzw. zweite Ableitung der Funktion  $V(I)$  ist. Dieses Signal wird dem Lock-In als Eingangssignal zugeführt, wie zuvor erläutert im PSD mit dem Referenz-Signal multipliziert und anschließend im Tiefpassfilter integriert. Nach Gleichung (6.4) ergibt sich somit für das Signal am Ausgang des Lock-In-Verstärkers:

$$\begin{aligned} S_{out} &= \frac{1}{T} \int_0^T V(t) \sin(\omega t + \varphi) \\ &= \frac{1}{2}V'(I_{dc})I_{ac} \cdot \cos(\varphi) + O(I_{ac}^3). \end{aligned} \quad (6.8)$$

Dabei verschwinden wegen

$$\int_0^T \sin^{2n+1}(\omega t) dt = 0 \quad \forall n \in \mathbb{N} \quad (6.9)$$

alle Beiträge der Taylor-Entwicklung in geraden Potenzen von  $I_{ac}$ . Ist die Amplitude des Wechselstromsignals hinreichend klein, so dass Beiträge höherer Ordnung in  $I_{ac}$  vernachlässigt werden können, so ist das Signal am Ausgang des Tiefpass direkt proportional zum differentiellen Widerstand des Kontakts bei einem Bias-Strom  $I_{dc}$ . Die absolute Größe des Signals hängt nun noch von der Phasendifferenz  $\varphi$  zwischen Eingangssignal und Referenzsignal ab. Die Notwendigkeit eines Phasenabgleichs wird durch die Verwendung eines 2-Phasen-Lock-In-Verstärkers aufgehoben, der für alle gezeigten Messungen zum Einsatz gekommen ist. Bei einem solchen Gerät werden 2 PSD eingesetzt, die eine relative Phasenverschiebung von  $\frac{\pi}{2}$  zueinander aufweisen. Damit ergibt sich für die Ausgangssignale

$$S_{out1} = \frac{1}{2}V'(I_{dc})I_{ac} \cdot \cos(\varphi) \quad (6.10)$$

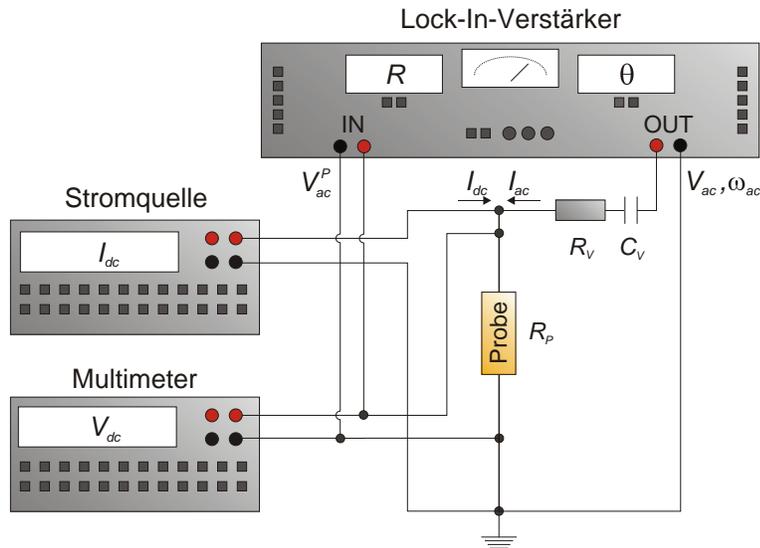


Abbildung 6.10: Messaufbau für die Aufzeichnung von Tunnelspektren

und

$$S_{out2} = \frac{1}{2} V'(I_{dc}) I_{ac} \cdot \cos(\varphi + \frac{\pi}{2}) = -\frac{1}{2} V'(I_{dc}) I_{ac} \cdot \sin(\varphi). \quad (6.11)$$

Damit lassen sich sowohl der differentiellen Widerstand  $V'(I_{dc})$  als auch die Phasenverschiebung  $\varphi$  unmittelbar aus  $S_{out1}$  und  $S_{out2}$  bestimmen.

### 6.2.3 Messaufbau zur Aufnahme von Tunnelspektren

Der für die Aufzeichnung der in dieser Arbeit gezeigten Tunnelspektren verwendete Messaufbau ist in Abbildung 6.10 dargestellt. Die Typen der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Messgeräte sind in Tabelle 6.1 zusammengefasst.

Für jeden Messpunkt wird dem Kontakt ein Gleichstrom  $I_{dc}$  aufgeprägt, die am Kontakt abfallende Gleichspannung  $V_{dc}$  und der differentielle Widerstand  $dV/dI$  werden dabei aufgezeichnet; schließlich wird der differentielle Leitwert  $(dV/dI)^{-1}$  gegen die zugehörige Gleichspannung aufgetragen. Da die internen Oszillatoren der verwendeten Lock-In-Verstärker jeweils Wechselspannungssignale liefern, werden diese durch einen im Vergleich zum Probenwiderstand  $R_p$  hinreichend groß dimensionierten Vorwiderstandes  $R_v$  in Wechselstromsignale umgewandelt. Weiterhin wird der Wechselstromkreis über eine Kapazität  $C_v$  direkt hinter dem Ausgang des Lock-In vom Gleichstromkreis abgekoppelt. Eine weitere Abkopplung des Gleichstromkreises vom Wechselstromkreis, etwa durch den Einsatz von RC-Tiefpassfiltern vor dem Eingang des Multimeters bzw. hinter dem Ausgang der Stromquelle, wurde in einigen Ein-

Gerät	Firma	Modell
Lock-In-Verstärker	Stanford Research	SR560, SR850
	EG&G	5210
Strom-Quelle	Keithley Instruments	2400
	Knick	J152
Multimeter	Keithley Instruments	2000, 2002, 2010

Tabelle 6.1: Zur Aufzeichnung von Tunnelspektren verwendete Messgeräte

zelfällen durchgeführt, hat sich aber für die meisten Fälle in der Praxis als nicht nötig erwiesen.

Bei den Parametern, die für jeden zu vermessenen Kontakt geeignet auszuwählen sind, handelt es sich um den Vorwiderstand  $R_V$ , die Frequenz  $\omega_{ac}$  und Spannungsamplitude  $V_{ac}$  des vom lokalen Oszillator des Lock-In ausgegebenen Wechselspannungssignals sowie die Integrationszeit  $T$  des Lock-In-Verstärkers. Dabei sind die folgenden Gesichtspunkte zu berücksichtigen:

**Erzeugung der Wechselspannung** Der Vorwiderstand dient dazu, das Wechselspannungssignal des Lock-In in ein Stromsignal umzuwandeln. Deswegen sollte  $R_V$  den Probenwiderstand stets um Größenordnungen übersteigen, so dass sich der differentielle Widerstand an der Probe zu

$$R_P(V_{dc}) = \frac{V_{ac}^P(V_{dc})}{I_{ac}} \quad (6.12)$$

ergibt, wobei  $V_{ac}^P(V_{dc})$  das bei einer Gleichspannung  $V_{dc}$  an der Probe abfallende Wechselspannungssignal ist. Lässt sich der Spannungsabfall über die Probe nicht vernachlässigen, so muss der Widerstand gemäß

$$R_P(V_{dc}) = \frac{V_{ac}^P(V_{dc})}{I_{ac}} \cdot \left( \frac{V_{ac}}{V_{ac} - V_{ac}^P(V_{dc})} \right) \quad (6.13)$$

korrigiert werden. Je nach Probenwiderstand wurden bei den im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Messungen Vorwiderstände zwischen  $4 \text{ k}\Omega$  für niederohmige Filmbrücken und  $10 \text{ M}\Omega$  für höherohmige Tunnelkontakte verwendet.

**Amplitude des Wechselstromsignals** Darüberhinaus müssen  $R_V$  und  $V_{ac}$  auch so gewählt werden, dass die Amplitude des Wechselstromsignals  $I_{ac} = V_{ac}/R_V$  hinreichend klein ist, damit Beiträge höherer Ordnung in  $I_{ac}$  in Gleichung (6.8) vernachlässigt werden können. Nur in diesem Fall wird am Lock-In tatsächlich der differentielle Widerstand gemessen. Wird die Amplitude des Wechselstroms zu groß gewählt, so führen diese Beiträge höherer Ordnung in  $I_{ac}$  zu deutlichen Verrundungen in den  $G(V)$ -Kennlinien, wie Abbildung 6.11 zeigt. Hier sind beispielhaft an

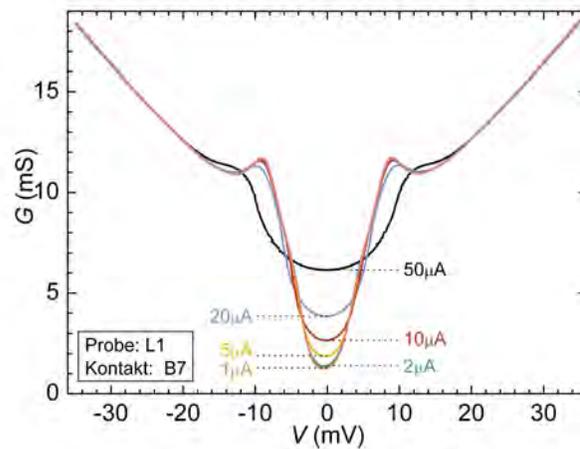


Abbildung 6.11: In Lock-In-Technik aufgenommene Leitwertsspektren an Brücke B7 der Probe L199 für verschiedene Amplituden des Wechselstromsignals zwischen  $50 \mu\text{A}$  und  $1 \mu\text{A}$

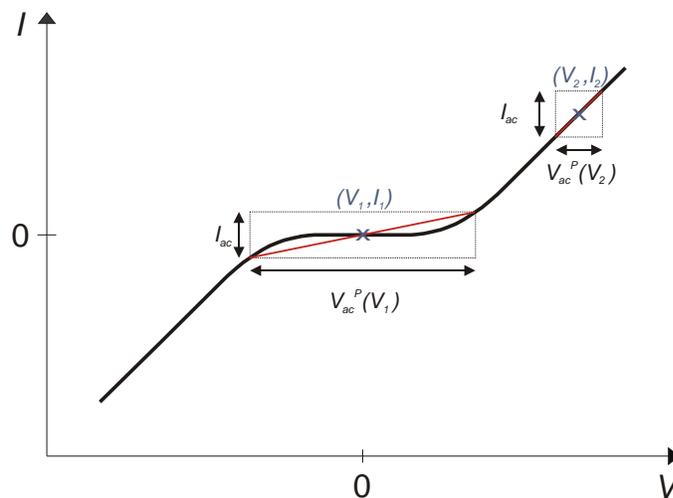


Abbildung 6.12: Schematische Darstellung einer typischen  $IV$ -Kennlinie zur Illustration der Verrundungseffekte für große Wechselstromamplituden

Brücke B7 der Probe L199 für verschiedene Wechselstromamplituden zwischen  $50 \mu\text{A}$  und  $1 \mu\text{A}$  aufgenommene  $G(V)$ -Spektren dargestellt. Eine anschauliche Erklärung dieser Verrundungseffekte liefert Abbildung 6.12. Hier ist der Verlauf einer typischen  $IV$ -Kennlinie eines supraleitenden Tunnelkontaktes schematisch dargestellt. Wie zu-

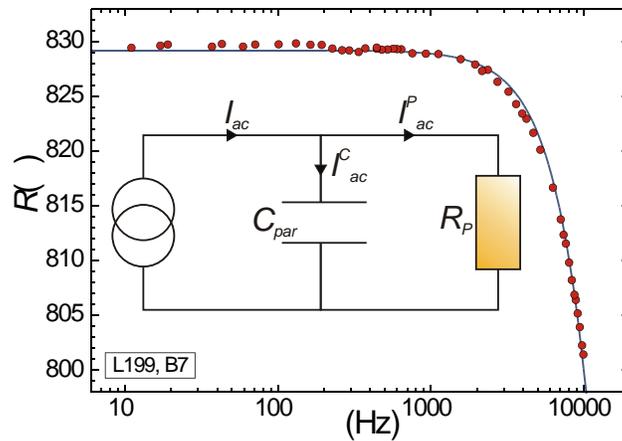


Abbildung 6.13: Bei  $V_{dc} = 0$  in Lock-In Technik gemessener Widerstand als Funktion der Oszillatorfrequenz  $\nu = \omega/2\pi$  sowie an die Messdaten angepasste Kurve nach Gleichung (6.15)

vor erläutert, wird in der Lock-In-Technik in jedem Punkt der Strom-Spannungskennlinie das Gleichstromsignal von einem Wechselstromsignal fester Amplitude  $I_{ac}$  überlagert und das dabei an der Probe abfallende Wechselspannungssignal  $V_{ac}^P$  gemessen. Insofern wird mit dem Verhältnis  $I_{ac}/V_{ac}^P$  ein Differenzenquotient gemessen, der für  $I_{ac} \rightarrow 0$  und damit  $V_{ac} \rightarrow 0$  in den Wert der ersten Ableitung übergeht. Dieser Differenzenquotient lässt sich in Abbildung 6.12 für zwei ausgewählte Punkte  $(I_1, V_1)$  und  $(I_2, V_2)$  der Strom-Spannungskennlinie für ein konstante Wechselstromamplitude  $I_{ac}$  als Steigungen der beiden rot eingezeichneten Geraden ablesen. Es ist deutlich zu erkennen, dass bei einer nichtlinearen, monoton steigenden Kennlinie wie im vorliegenden Fall der Differenzenquotient in den Punkten besonders stark von der Ableitung abweicht, in denen die Steigung der Kennlinien besonders klein ist. Der größte Effekt zeigt sich also um  $V = 0$ , wie auch die experimentellen Kurven aus Abbildung 6.11 belegen. Mit zunehmender Amplitude des Wechselstroms  $I_{ac}$  verringert sich das Verhältnis aus am Lock-In gemessenen Spannungssignal und  $I_{ac}$ , das heißt der gemessene Leitwert ist größer als der tatsächliche Leitwert. In der Praxis wird daher bei einem Gleichstromsignal von  $I_{dc} = 0$  das dem Kontakt aufgeprägte Wechselstromsignal reduziert, bis sich das dabei am Lock-In gemessene Wechselspannungssignal nicht mehr weiter erhöht und sich eine weitere Reduktion des Wechselstromsignals nur in einem erhöhten Rauschpegel äußert. Für die meisten Kontakte haben sich hier Werte zwischen  $5 \cdot 10^{-8}$  A und  $1 \cdot 10^{-6}$  A als sinnvoll herausgestellt.

**Parasitäre Kapazitäten** Ein Teil des Wechselstromsignals fließt über parasitäre Kapazitäten  $C_{par}$  parallel zur Probe ab und verringert so den tatsächlichen Wechselstrom  $I_{ac}^P$  über die Probe. Diese parasitären Kapazitäten ergeben sich schon durch die Kapazitäten der verwendeten BNC-Kabel<sup>5</sup> und sind nie ganz zu vermeiden. Die Stärke dieses Effektes nimmt mit wachsender Frequenz des Wechselstromsignals zu, wobei der Frequenzbereich, in dem die Effekte parasitärer Kapazitäten parallel zur Probe vernachlässigt werden können, sowohl vom Widerstand des jeweils vermessenen Kontaktes als auch von der Größe der parasitären Kapazitäten abhängt.

Die Aufteilung des Wechselstroms lässt sich in der einfachsten Näherung durch das in Abbildung 6.13 schematisch dargestellte Schaltbild beschreiben. Dabei wurde die Serienschaltung aus Wechselspannungsquelle und Vorwiderstand in diesem Bild bereits durch eine ideale Wechselstromquelle ersetzt. Die Anwendung der Kirchhoffschen Regeln auf diese Schaltung liefert für das Verhältnis der Amplituden des über die Probe fließenden Wechselstroms und des Gesamtstroms

$$\frac{|I_{ac}^P|}{|I_{ac}^C|} = \frac{1}{\sqrt{1 + \omega^2 R^2 C_{par}^2}}. \quad (6.14)$$

Damit ergibt sich für die Beziehung zwischen dem experimentell ermittelten Probenwiderstand und dem tatsächlichen Probenwiderstand.

$$R_{exp}^P = \frac{R_P}{\sqrt{1 + \omega^2 R_P^2 C_{par}^2}}. \quad (6.15)$$

Abbildung 6.13 zeigt neben dem schon diskutierten Schaltbild den wieder an Probe L199 und Brücke B7 in Lock-In-Technik experimentell ermittelten Widerstand für  $I_{dc} = 0$  als Funktion der Oszillatorfrequenz  $\nu = \omega/2\pi$ . Die durchgezogene Linie in Abbildung 6.13 ist das Ergebnis einer Anpassung von Gleichung (6.15) an die Messdaten. Sie belegt, dass die sich die experimentell beobachtete Abhängigkeit des gemessenen Widerstands von der verwendeten Modulationsfrequenz sehr gut durch das einfache Modell einer Kapazität parallel zur Probe beschreiben lässt. Aus dieser Anpassung ergibt sich für diesen Fall der tatsächliche Probenwiderstand zu  $R_P \approx 829 \Omega$  und die parasitäre Kapazität zu  $C_{par} = 32.8 \text{ nF}$ , was in Anbetracht der spezifischen Kapazität der verwendeten BNC-Kabel von etwa  $105 \text{ pF/m}$  durchaus als plausibler Wert erscheint. In der Praxis wurde die für die Aufnahme von Leitwertspektren an einem Kontakt verwendete Modulationsfrequenz bestimmt, indem die Oszillatorfrequenz ausgehend von hohen Werten reduziert und dabei die am Lock-in gemessene Spannung beobachtet wurde. Für die meisten Messungen wurden Oszillatorfrequenzen  $\omega_{ac}/2\pi$  im Bereich zwischen einigen zehn und einigen hundert Hz verwendet.

**Integrationszeit** Die Integrationszeit  $T$  schließlich ist umgekehrt proportional zur Bandbreite des phasensensitiven Detektors des Lock-In und damit zur mittleren

<sup>5</sup> $C_{Kabel} = 105 \text{ pF/m}$

übertragenen Rauschleistung. Eine Erhöhung der Integrationszeit reduziert also das Rauschen. Andererseits reduziert eine hohe Integrationszeit auch die erreichbare Messgeschwindigkeit. Als vernünftiger Kompromiss haben sich in den meisten Fällen Werte zwischen 300ms und 3s herausgestellt.

# Kapitel 7

## Transportmessungen an Filmbrücken

### 7.1 $R(T)$ -Messungen im Nullfeld

Die Messung des spezifischen Widerstands von Filmbrücken im Nullfeld ermöglicht eine erste Charakterisierung der untersuchten Proben. Dabei ergibt sich zum einen die kritische Temperatur  $T_c$  aus der Position des steilen Abfalls des gemessenen Widerstandes unter die Auflösungsgrenze der Messapparatur. Zum anderen erlaubt die Form der  $\rho(T)$ -Kurven oberhalb der kritischen Temperatur Rückschlüsse darauf, welche Streumechanismen das Transportverhalten der Ladungsträger beeinflussen.

Abbildung 7.1 zeigt  $\rho(T)$ -Kurven<sup>1</sup>, die im Nullfeld an Filmbrücken der Proben der LCCO- (a), der PCCO- (b) und der NCCO-Serie (c) aufgenommen wurden. Insgesamt nimmt der spezifische Widerstand mit zunehmender Dotierung ab, was sich dadurch erklären lässt, dass durch die Dotierung mit Ce zusätzliche bewegliche Ladungsträger in die  $\text{CuO}_2$ -Ebenen eingebracht werden. Eine Ausnahme bildet die optimal dotierte LCCO-Probe (L2), die den größten spezifischen Widerstand der LCCO-Serie aufweist. Dies könnte einerseits darauf zurückzuführen sein, dass die tatsächlichen Abmessungen der Brücke, zum Beispiel durch Überbelichtung, etwas von den Abmessungen der zur Strukturierung verwendeten Lithographie-Maske abweichen, die zur Berechnung des spezifischen Widerstandes herangezogen wurden. Andererseits könnte der Widerstand der Probe L2 jedoch auch aus anderen, herstellungsbedingten Gründen ungewöhnlich hoch sein. Dafür spricht, dass bei den Tunnelmessungen besonders grosse Effekte beim Übergang vom supraleitenden in den normalleitenden Zustand auftreten (vgl. Tabelle 8.2.2 in Abschnitt 8.2.2).

Alle Kurven zeigen für hohe Temperaturen metallisches Verhalten, also einen Anstieg des Widerstands mit wachsender Temperatur. Ab einer gewissen, probenspezifischen

---

<sup>1</sup>Sofern nicht ausdrücklich anders dargestellt, soll im Folgenden  $\rho$  stets den Widerstand in der  $ab$ -Ebene bezeichnen, also  $\rho = \rho_{ab}$

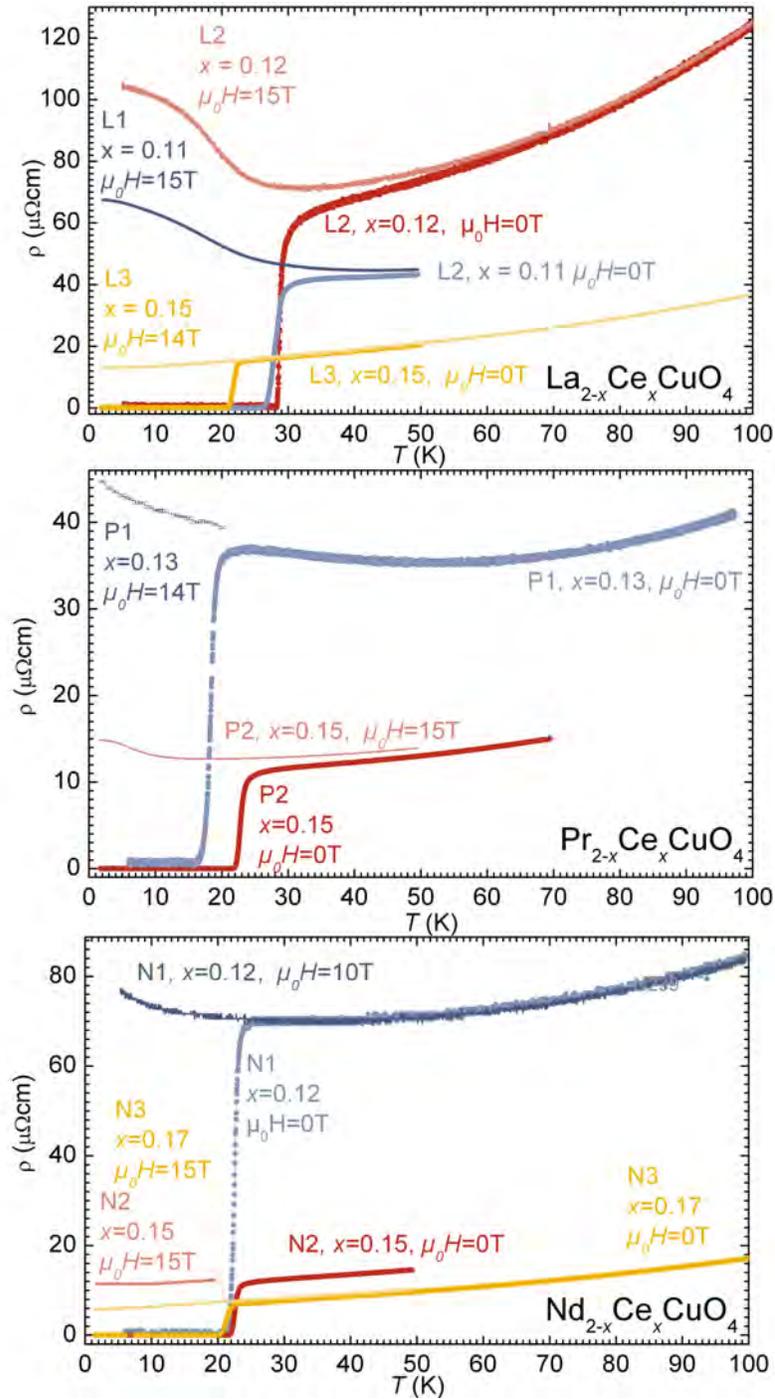


Abbildung 7.1: spezifischer Widerstand als Funktion der Temperatur für  $H = 0$  und  $\mu_0H \geq 14\text{ T}$  für die Proben der LCCO- (a), PCCO- (b) und NCCO - Serie (c)

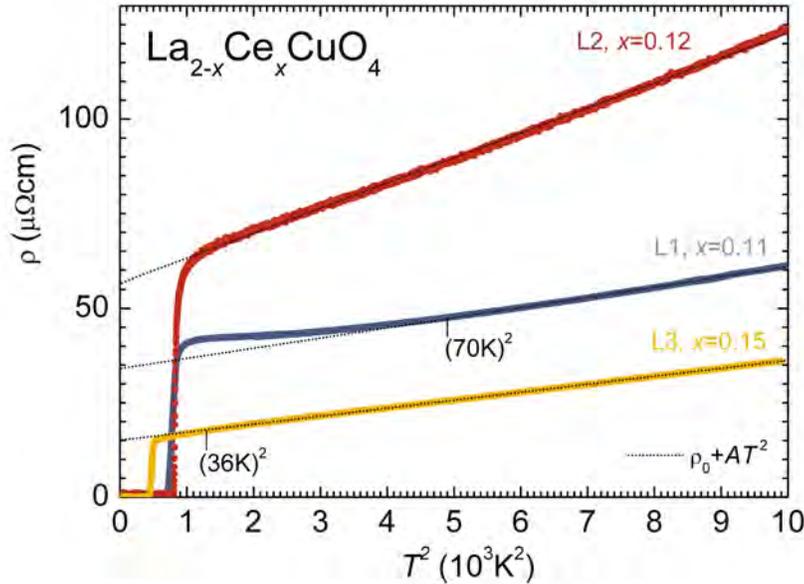


Abbildung 7.2: Spezifischer Widerstand im Nullfeld als Funktion des Quadrates der Temperatur für die Proben der LCCO-Serie sowie an die linearen Bereiche der experimentellen Kurven angepasste Fitgeraden

Temperatur, die für die untersuchten Proben zwischen 30 und 70 K liegt, lässt sich der Verlauf der  $\rho(T)$ -Kurven gut durch eine quadratische Funktion der Form

$$\rho_0 + AT^2 \quad (7.1)$$

beschreiben. Beispielhaft ist dies in Abbildung 7.2 für die Proben der LCCO-Serie dargestellt, worin die spezifischen Widerstände gegen das Quadrat der Temperatur aufgetragen sind. In dieser Darstellung ist besonders gut zu erkennen, in welchem Temperaturbereich die  $\rho(T^2)$ -Kurven linear, die  $\rho(T)$ -Kurven also quadratisch verlaufen. In diesen Temperaturbereichen wurden Geraden an die  $\rho(T^2)$ -Kurven angepasst und in Abbildung 7.2 als gestrichelte Linien dargestellt. Der spezifische Widerstand der unterdotierten LCCO-Probe (L1,  $x = 0.11$ ) zeigt für  $T > 70$  K quadratisches Verhalten, für kleinere Temperaturen weicht die  $\rho(T^2)$ -Kurve nach oben von der Fitgeraden ab. Bei der optimal dotierten LCCO-Probe (L2,  $x = 0.12$ ) lässt sich die  $\rho(T^2)$ -Kurve bis zum Übergang in die supraleitende Phase gut durch eine Gerade beschreiben, während die  $\rho(T^2)$ -Kurve der überdotierten Probe (L3,  $x = 0.25$ ) für  $T \lesssim 36$  K nach unten von der entsprechenden Fitgeraden abweicht. Ähnliche Abweichungen vom quadratischen Verhalten nahe  $T_c$  nach oben für unter- nach unten für überdotierte Proben zeigen sich auch in den in Abbildung 7.1 (b) und (c) dargestellten  $\rho(T)$ -Kurven der PCCO- und NCCO- Serie und wurden bereits zuvor für NCCO-Filme dokumentiert [Gollnik97]. Es handelt sich hierbei mit hoher

Probe	$T_c$ (K)	$\Delta T$ (K)	$\rho_0$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )	$A$ ( $\mu\Omega\text{cm}/\text{K}^2$ )	$\rho_N$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )	$\rho(50\text{ K})$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )	$\rho(100\text{ K})$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )
L1	28.1	1.2	34.1	$2.69 \cdot 10^{-3}$	42.0	43	61
L2	28.8	0.4	56.5	$6.63 \cdot 10^{-3}$	64.3	74	124
L3	21.8	0.6	15.1	$2.12 \cdot 10^{-3}$	15.0	21	37
P1	18.4	0.9	30.0	$1.07 \cdot 10^{-3}$	38.1	35	42
P2	22.9	0.7	10.9	$8.40 \cdot 10^{-4}$	11.5	13	-
P3	20.0	2.0	-	-	-	-	-
N1	22.5	0.7	65.6	$1.83 \cdot 10^{-3}$	70.4	72	84
N2	22.6	0.6	-	-	11.8	15	-
N3	21.3	0.8	7.2	$1.00 \cdot 10^{-3}$	6.9	10	17

Tabelle 7.1: Aus den  $\rho(T)$ -Messungen im Nullfeld ermittelte Kenngrößen der Proben der LCCO-, PCCO- und NCCO-Serien

Wahrscheinlichkeit um Auswirkungen der unterschiedlichen Transporteigenschaften unter- und überdotierter Proben bei tiefen Temperaturen im Normalzustand, worauf im folgenden Abschnitt näher eingegangen wird. Die Parameter der Fitgeraden, also die Parabolizitäten  $A$  und die Restwiderstände  $\rho_0$  sowie die Werte des spezifischen Widerstandes bei 50 K und 100 K und die im folgenden Abschnitt bestimmten kritischen Temperaturen und Übergangsbreiten sind in Tabelle 7.1 zusammengefasst. Die Parabolizitäten liegen etwa um einen Faktor 10 unter den beispielsweise in [Tsuei89] an optimal dotierten NCCO-Filmen bestimmten Werten, allerdings sind auch die hier gemessenen spezifischen Widerstände um den gleichen Faktor kleiner, und sowohl die Werte in Tabelle 7.1 als auch die Ergebnisse anderer Gruppen zeigen, dass die Parabolizität mit zunehmendem Restwiderstand ebenfalls zunimmt [Beom-Hoan93]. Im Temperaturbereich bis etwa 200 K wird für alle elektronendotierten Kuprate die auch hier auftretende quadratische Abhängigkeit des spezifischen Widerstandes von der Temperatur beobachtet; für höhere Temperaturen weichen die experimentellen  $\rho(T)$ -Kurven etwas nach unten von der  $T^2$ -Abhängigkeit ab.

In der Literatur werden im Wesentlichen zwei Streumechanismen als Ursache der an elektronendotierten Kupraten beobachteten Temperaturabhängigkeit des spezifischen Widerstandes diskutiert. Dabei wird in den meisten Publikationen auf Elektron-Elektron-Streuung verwiesen, die im Rahmen eines einfachen dreidimensionalen Fermiflüssigkeit-Modells zu einem Beitrag  $\rho_{e-e} \sim T^2$  führt [Ashcroft76]. Die Parabolizität  $A = A_{e-e}$  der  $\rho(T)$ -Kurve nach (7.1) liefert dabei ein Maß für die Streuamplitude.

C. C. Tsuei erklärt die bei hohen Temperaturen beobachteten Abweichungen mit einem Übergang von dreidimensionalem zu zweidimensionalem Verhalten bei einer Temperatur  $T_x \approx 200\text{ K}$  und kann mit der aus dieser Erweiterung resultierenden

Formel

$$\rho(T) = \begin{cases} \rho_0 + AT^2 & \text{für } T_c < T < T_x \\ \rho_0 + AT^2 [\ln(T_F/T_x)]^{-1} \cdot \ln(T_F/T) & \text{für } T > T_x \end{cases} \quad (7.2)$$

das Verhalten des spezifischen Widerstandes von optimal dotierten NCCO-Filmen im Temperaturbereich  $25 \text{ K} < T < 300 \text{ K}$  gut beschreiben [Tsuei89]. Dabei ist  $T_F = E_F/k_B$  die der Fermienergie entsprechende Temperatur.

Andere Autoren können mit einem rein dreidimensionalen Modell ebenfalls über den gesamten Temperaturbereich eine zufriedenstellende Übereinstimmung von Theorie und Experiment erzielen, indem sie zusätzlich den Beitrag  $\rho_{e-ph}$  der Elektron-Phonon-Streuung zum spezifischen Gesamtwiderstand  $\rho(T)$  berücksichtigen, so dass

$$\rho(T) = \rho_0 + \rho_{e-e} + \rho_{e-ph} \quad . \quad (7.3)$$

Dabei wird der Beitrag der Elektron-Phonon-Streuung in einem Fall aus der aus Tunnelspektren gewonnenen Elektron-Phonon-Spektralfunktion  $\alpha^2 F(\omega)$  abgeschätzt [Tralshawala91], in einem anderen Fall nach dem Bloch-Grüneisen-Modell berechnet [Varshney02].

Ein umstrittener Punkt bei der Interpretation der Temperaturabhängigkeit des spezifischen Widerstandes als Auswirkung von Elektron-Elektron-Streuung bleibt die ungewöhnlich große Streuamplitude  $A_{ee}$ , die den theoretisch erwarteten und bei klassischen Metallen und Alkalimetallen auch beobachteten Wert von  $10^{-2} \mu\Omega\text{cm}$  um mehrere Größenordnungen übersteigt. Als Grund dafür wird häufig die geringe Ladungsträgerdichte in Verbindung mit der speziellen Topologie der Fermifläche elektronendotierter Kuprate angeführt [Tsuei89, Tralshawala91, Varshney02]. Weiterhin spricht gegen den von Tsuei vorgeschlagenen Übergang von drei- zu zweidimensionalem Verhalten bei hohen Temperaturen als Ursache für die logarithmische Abweichung der  $\rho(T)$ -Kurven vom rein quadratischen Verlauf, dass diese Abweichungen sowohl für Messungen des spezifischen Widerstandes längs der  $\text{CuO}_2$ -Ebenen als auch senkrecht dazu beobachtet werden [Crusellas91].

Die Nähe zur antiferromagnetischen Phase und die Existenz antiferromagnetischer Fluktuationen in supraleitendem NCCO [Motoyama07, Matsuda92] legt einen magnetischen Beitrag zur Streuung als Alternative zur Elektron-Elektron-Streuung nahe. Tatsächlich können O. Beom-hoan und Mitarbeiter die experimentellen  $\rho(T)$ -Daten an NCCO-Einkristallen verschiedener Dotierungen sowohl in  $ab$ - als auch in  $c$ -Richtung durch Streuung von Elektronen an antiferromagnetischen Spinfluktuationen erklären [Beom-Hoan93].

Eine weitere wichtige Kenngröße, die den  $\rho(T)$ -Kurven im Nullfeld entnommen werden kann, ist natürlich die kritische Temperatur  $T_c$ . Bei der Bestimmung von  $T_c$  ist zu beachten, dass die  $\rho(T)$ -Kurven knapp oberhalb des Übergangs je nach Dotierung ein unterschiedliches Krümmungsverhalten aufweisen. Daher wurde das folgende, in Abbildung 7.3 (a) illustrierte Verfahren zur Bestimmung von  $T_c$  gewählt.  $T_c$  ergibt

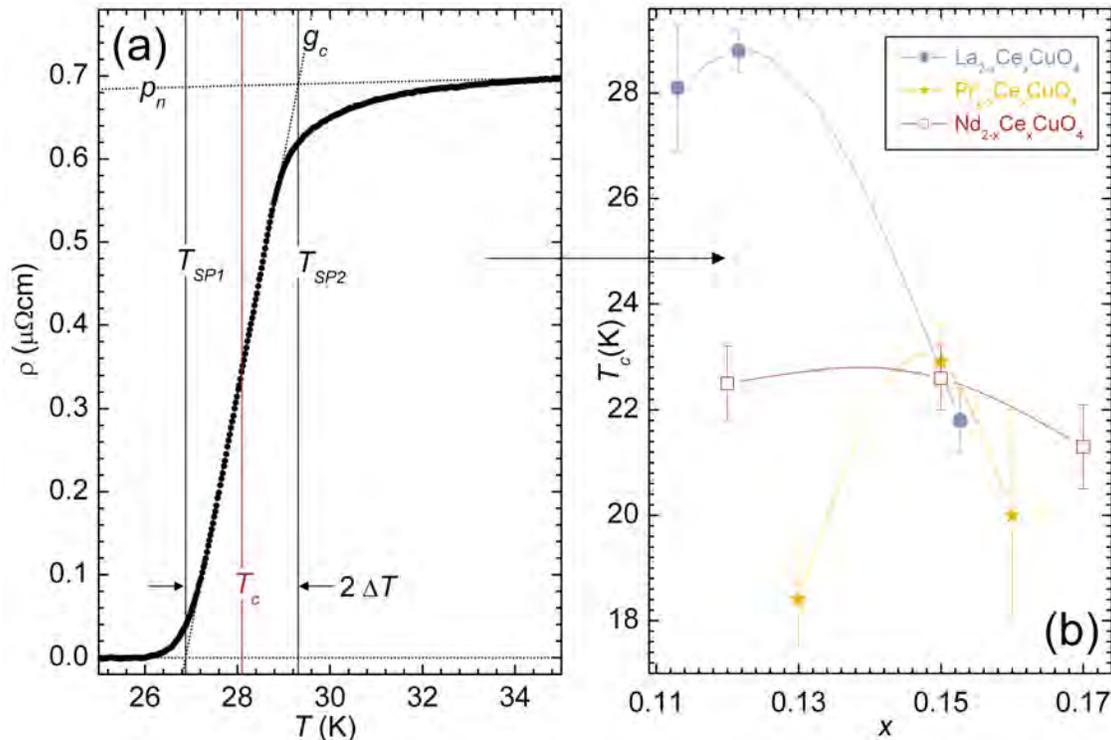


Abbildung 7.3: Illustration zur Bestimmung der kritischen Temperatur  $T_c$  aus  $\rho(T)$ -Messungen im Nullfeld (a) und auf diese Weise bestimmte kritische Temperaturen als Funktion der Dotierung (b)

sich als Mittelpunkt der Schnittpunkte  $T_{SP1}$  und  $T_{SP2}$  der an den linearen Bereich des Übergangs angepassten Geraden  $g_c$  mit der  $\rho = 0$ -Linie einerseits und einem an den Bereich oberhalb  $T_c$  angepassten Polynom  $P_n$  erster oder zweiter Ordnung andererseits. Der Abstand der Schnittpunkte liefert ein Maß für die Breite des resistiven Übergangs. Die auf diese Weise ermittelten kritischen Temperaturen für die Proben der LCCO-, der PCCO- und der NCCO-Serie sind in Teilabbildung 7.3 (b) gegen die jeweiligen Dotierungen aufgetragen und liefern so einige Punkte des jeweiligen Phasendiagramms. Die Übergangsbreite  $\Delta T$  wurde dabei als Fehlerbalken eingezeichnet. Die gestrichelt eingezeichneten Linien deuten einen möglichen Verlauf der  $T_c(x)$ -Linie an und sind nur als Orientierungshilfen zu verstehen. Da auf der überdotierten PCCO-Probe leider keine intakten Filmbrücken für  $\rho(T)$ -Messungen zur Verfügung stehen, wurde für diese Probe die kritische Temperatur und die Übergangsbreite aus Tunnelmessungen abgeschätzt [vgl. dort]. Um einen leichteren Vergleich mit Literaturwerten zu ermöglichen, sind in Abbildung 7.4 die kritischen Temperaturen aus Abbildung 7.3(b) noch einmal zusammen mit einigen in der Literatur dokumentierten Ergebnissen für dünne Filme der entsprechenden Materialsysteme jeweils als Funktion der Ce-Konzentration  $x$  dargestellt.

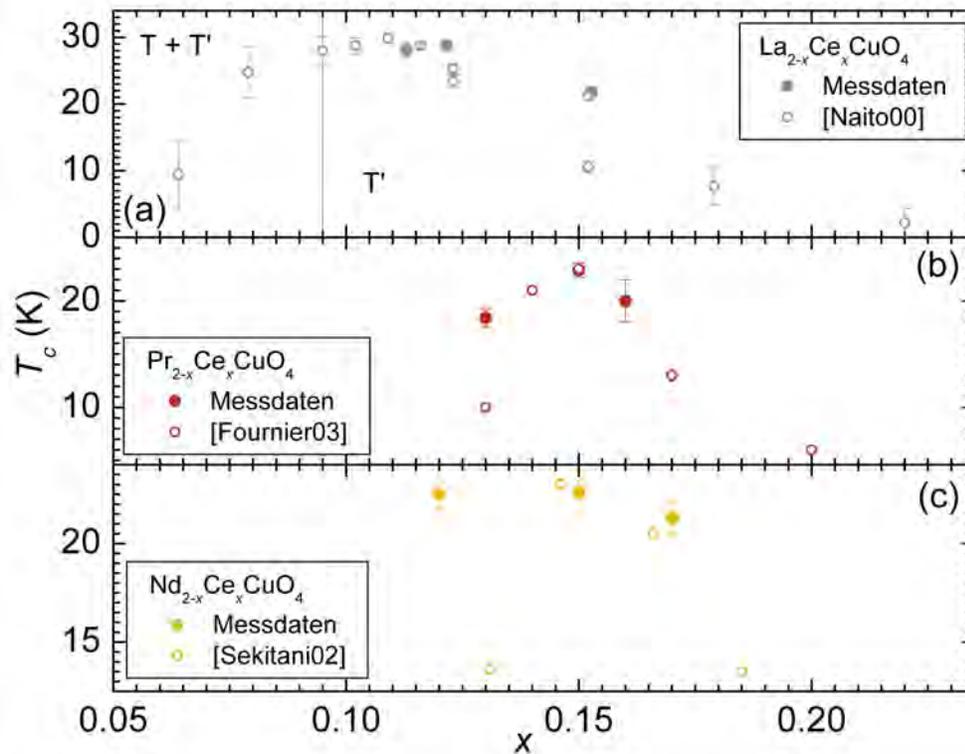


Abbildung 7.4: Vergleich der kritischen Temperaturen der hier untersuchten Proben (ausgefüllte große Punkte) mit Literaturwerten nach [Naito00b],[Fournier03] und [Sekitani02] (unausgefüllte kleine Punkte)

Folgende Beobachtungen bezüglich der Abbildungen 7.3 (b) und 7.4 sind festzuhalten:

Die optimale Dotierung, also die Dotierung, bei der die kritische Temperatur maximal ist, ist für die LCCO-Serie gegenüber den PCCO- und NCCO-Serien zu kleineren Dotierungen hin verschoben. Dabei sind die kritischen Temperaturen der LCCO-Serie auch deutlich größer als bei den anderen Probenreihen. Solch eine Verschiebung wird übereinstimmend in verschiedenen Studien über die Dotierungsabhängigkeit der kritischen Temperatur von LCCO-Filmen dokumentiert, sowohl bei der Herstellung durch Molekularstrahl-Epitaxie [Naito00b], als auch durch gepulste Laser-Deposition [Sawa02] oder Magnetron-Sputtern [Wu06]. Dieser Effekt wie auch die vergleichsweise hohen kritischen Temperaturen der LCCO-Filme werden in Verbindung mit dem großen Radius des  $\text{La}^{3+}$ -Ions gebracht [Sawa02].

Wie Abbildung 7.3 (b) zeigt, stimmen die maximalen kritischen Temperaturen der PCCO und NCCO-Serien innerhalb der durch die Übergangsbreiten bestimmten Grenzen überein. Auch ist für alle drei Materialsysteme die Übergangsbreite der jeweils optimal dotierten Probe am kleinsten.

Abbildung 7.4 belegt, dass die kritischen Temperaturen der hier untersuchten Filme für alle Proben der LCCO-Serie sowie für die optimal- und überdotierten Filme der PCCO- und NCCO-Serien recht gut mit den Ergebnissen anderer Gruppen übereinstimmen. Die Werte für  $T_c$  der unterdotierten PCCO und NCCO-Filme liegen jedoch oberhalb der Literaturwerte, besonders deutlich bei der unterdotierten NCCO-Probe. Eine mögliche Erklärung ist die Abhängigkeit der kritischen Temperatur von den Wachstumsbedingungen [Hepp00].

Die aus den  $\rho(T)$ -Messungen an Filmbrücken im Nullfeld ermittelten Kennzahlen, also  $T_c$ ,  $\Delta T$ , die Parameter  $\rho_0$  und  $A$  des quadratischen Fits gemäß Formel (7.1) sowie die Werte des spezifischen Widerstandes bei 50 K und 100 K sind in Tabelle 7.1 noch einmal zusammengefasst.

## 7.2 $R(T)$ -Messungen im Normalzustand

Die relativ geringen kritischen Felder elektronendotierter Kuprate ermöglichen es, die Supraleitung auch bei tiefen Temperaturen durch ein unter normalen Laborbedingungen erzeugbares, permanentes Magnetfeld zu unterdrücken. Für die im Rahmen dieser Arbeit vermessenen Proben reichten hierfür im Temperaturbereich  $T \gtrsim 1.4$  K stets Felder zwischen 10 T und 15 T aus. Eine genauere Bestimmung der kritischen Felder für die einzelnen Proben wird im folgenden Abschnitt behandelt. Solange magnetoresistive Effekte im normalleitenden Bereich klein sind und sich die  $\rho(T)$ -Kurven für verschiedene Felder oberhalb von  $H_{c2}$  im wesentlichen durch eine leichte Verschiebung längs der  $\rho$ -Achse voneinander unterscheiden, lässt sich davon ausgehen, dass die bei hohen Magnetfeldern aufgenommenen  $\rho(T)$ -Kurven in guter Näherung die Transporteigenschaften im normalleitenden Zustand für  $H = 0$  widerspiegeln, insbesondere auch im Bereich kleiner Temperaturen, der im Nullfeld aufgrund der Supraleitung experimentell nicht zugänglich ist [Boebinger96]. Abbildung 7.1 zeigt neben den  $\rho(T)$ -Kurven in Nullfeld auch Kurven, die für ein angelegtes Magnetfeld aufgenommen wurden, das die Supraleitung unterdrückt. Auch in diesem Fall zeigen alle Kurven bei hohen Temperaturen metallisches Verhalten, das nur wenig vom Verhalten im Nullfeld abweicht. Bei den unter- und optimal dotierten Proben jeder Probenserie erreicht der spezifische Widerstand bei einer Temperatur  $T_{min}$  ein Minimum und wächst für  $T < T_{min}$  mit fallender Temperatur wieder an. Es kommt somit zu einem Übergang von metallischem zu isolierendem Verhalten.<sup>2</sup> In der Literatur wird in diesem Zusammenhang häufig der Wert für das Produkt aus mittlerer freier Weglänge  $l$  und Fermi-Wellenzahl  $k_F$  am Übergang angegeben. Für ein System leitfähiger Ebenen im Abstand  $d$  mit zylinderförmiger Fermifläche

<sup>2</sup>Man könnte auch von halbleitendem Verhalten sprechen, in der Literatur zu diesem Thema wird jedoch der häufiger Begriff „isolierend“ zur Kennzeichnung der Temperaturabhängigkeit des Widerstandes verwendet.

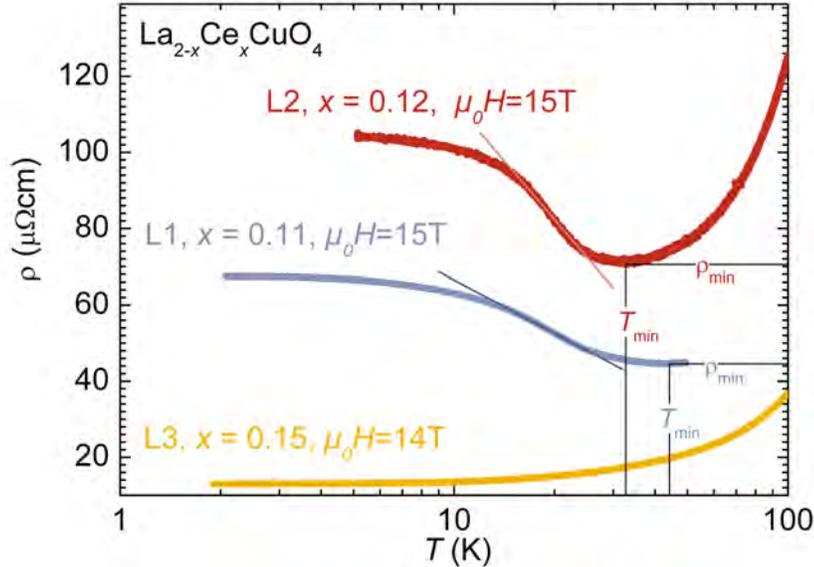


Abbildung 7.5: Spezifischer Widerstand für  $\mu_0 H = 15 \text{ T}$  als Funktion der Temperatur für die Proben der LCCO-Serie

lässt sich dieses Produkt aus dem Flächenwiderstand  $R_{\square} = \rho/d$  bei  $T_{min}$  gemäß

$$R_{\square} = \frac{h/e^2}{k_F l} \quad (7.4)$$

berechnen. Wird die Streuung z. B. durch Erhöhung der Verunreinigungsdichte erhöht, so nimmt die mittlere freie Weglänge ab, der Flächenwiderstand nimmt zu. Das Ioffe-Regel Kriterium

$$k_F l = 1 \quad (7.5)$$

gibt eine minimale freie Weglänge für metallischen Transport an [Gurvitch81, Ioffe60], für  $k_F l < 1$  wird nach diesen Überlegungen isolierendes Verhalten angenommen. Am Übergang zwischen metallischem und isolierendem Verhalten zeigen die hier untersuchten Proben Flächenwiderstände zwischen  $200 \Omega$  und  $1200 \Omega$ , was nach (7.4) Werten zwischen 130 und 22 für  $k_F l$  entspricht; die genauen Werte sind in Tabelle 7.2 zusammengefasst. Isolierendes Verhalten in einem Widerstandsbereich, in dem nach 7.5 metallischer Transport erwartet würde, wird auch von anderen Gruppen beobachtet und als Hinweis auf den großen Einfluss von Verunreinigungen gewertet [Boebinger96, Fournier98].<sup>3</sup>

<sup>3</sup>Bei genauerer Betrachtung lässt sich mit den einfachen Überlegungen bezüglich der freien Weglänge, die dem Ioffe-Regel Kriterium zugrunde liegen, allerdings prinzipiell keine isolierende Phase erklären, die bei kleineren Temperaturen als die metallische Phase auftritt.

Die überdotierten Proben dahingegen zeigen bis hinunter zu  $T = 1.4$  K hin metallisches Verhalten. Der Normalzustand elektronendotierter Kuprate bei tiefen Temperaturen zeigt also unterschiedliche Transporteigenschaften für unter- und überdotierte Proben, wie auch die Messungen anderer Gruppen an Serien von NCCO- [Miura02] PCCO- [Fournier98] und LCCO-Proben [Sawa02] verschiedener Dotierungen zeigen. Diese Dotierungsabhängigkeit wird auch für den lochdotierten Kuprat-Supraleiter  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$  beobachtet [Boebinger96] und als Hinweis auf einen quantenkritischen Punkt bei optimaler Dotierung bewertet, also auf einen Übergang zwischen einer metallischen und einer isolierenden Phase bei  $T = 0$  K [Orenstein00].

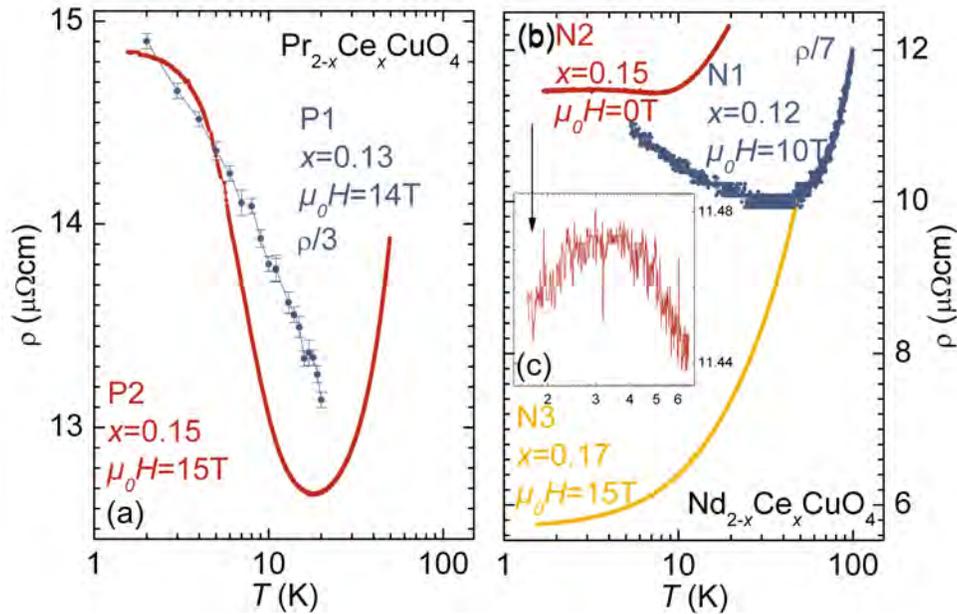


Abbildung 7.6: Spezifischer Widerstand für  $\mu_0 H = 15$  T als Funktion der Temperatur für die Proben der PCCO-Serie (a) und NCCO-Serie (b) sowie eine Ausschnittvergrößerung der Kurve für die optimal dotierte NCCO-Probe (c).

Um zu untersuchen, welcher Mechanismus für das isolierende Verhalten der unter- und optimal dotierten Proben bei tiefen Temperaturen verantwortlich sein könnte, soll im folgenden der Verlauf der  $\rho(T)$ -Kurven im isolierenden Bereich näher untersucht werden. Dazu sind die  $\rho(T)$ -Kurven im Normalzustand bei hohen Magnetfeldern in Abbildung 7.5 für die Proben der LCCO-Serie und in Abbildung 7.6 für die Proben der PCCO- (a) und NCCO -Serie (b) noch einmal vergrößert und in halblogarithmischer Darstellung abgebildet. Um alle Kurven auf einer Skala abbilden zu können, auf der sich das Steigungsverhalten gut erkennen lässt, wurden die Widerstandswerte der unterdotierten PCCO und NCCO-Proben jeweils durch einen konstanten Faktor geteilt, der in Abbildung 7.6 an den entsprechenden Kurven angegeben ist. Alle  $\rho(T)$ -Kurven mit isolierendem Verhalten für tiefe Temperaturen

Probe	$x$	$B$ (T)	$T_{min}$ (K)	$\rho_{min}$ ( $\mu\Omega cm$ )	$R_{\square}$ ( $\Omega$ )	$k_{Fl}$	log(1/T)-Bereich	$m/\rho_0$ (%)
L1	0.11	15	44.2	44.5	371	70	14 K < $T$ < 25 K	41
L2	0.12	15	32.7	70.4	587	44	16 K < $T$ < 25 K	47
P1	0.13	14	51.6	34.7	289	90	5 K < $T$ < 11 K	12
P2	0.15	15	17.6	12.7	106	246	5 K < $T$ < 10 K	25
N1	0.12	10	38.4	69.6	580	45	5 K < $T$ < 15 K	13
N2	0.15	14.5	7.0	11.4	95	273	4 K < $T$ < 7 K	2

Tabelle 7.2: Kennzahlen der  $\rho(T)$ -Kurve mit isolierendem Verhalten im Normalzustand für kleine Temperaturen

zeigen qualitativ ein sehr ähnliches Verhalten. In einem gewissen Temperaturbereich folgen sie einem  $\log(1/T)$ -Verlauf, zeigen also auf einer halblogarithmischen Skala lineares Verhalten. In diesem Temperaturbereich wurde eine Gerade

$$y = \rho_0 + m * \log(T/K) \quad (7.6)$$

an die  $\rho(\log T)$ -Kurven angepasst. Unterhalb dieses Temperaturbereiches weichen die Kurven nach unten von dem  $\log(1/T)$ -Verhalten ab, bei einigen Kurven ist eine Sättigung bei Annäherung an die kleinsten erreichten Messtemperaturen zu beobachten. Der Temperaturbereich des  $\log(1/T)$ -Verhaltens, die Steigung der  $\rho(\log T)$ -Kurve in diesem Bereich sowie gegebenenfalls der Sättigungswert sind dabei probenspezifisch. Für die unterdotierte NCCO-Probe liegen nur Messdaten für  $T \geq 4.2$  K vor. Bis zu dieser Temperatur lässt sich die entsprechende  $\rho(T)$ -Kurve gut durch ein  $\log(1/T)$ -Gesetz beschreiben, wobei eine Sättigung für kleinere Temperaturen natürlich nicht auszuschließen ist. Die  $\rho(T)$ -Kurve der optimal dotierten NCCO Probe schließlich zeigt für sehr kleine Temperaturen noch eine Besonderheit, die sich auf der Skala der Abbildung 7.6 (b) nur schlecht erkennen lässt und deshalb in Teilabbildung (c) noch einmal vergrößert dargestellt ist. Bei der bei 15 T aufgenommenen  $\rho(T)$ -Kurve ist etwa bei 3 K ein lokales Maximum zu erkennen, so dass es zu einem weiteren Übergang von isolierendem zu metallischem Verhalten bei dieser Temperatur kommt. Um dieses Verhalten näher zu untersuchen, wurden weitere  $\rho(T)$ -Messungen an dieser Filmbrücke bei verschiedenen Magnetfeldern im Bereich kleiner Temperaturen durchgeführt, die in Abschnitt 7.3.1 im Rahmen der Diskussion des Magnetwiderstands im normalleitenden Bereich dargestellt und diskutiert werden.

Die logarithmische Temperaturabhängigkeit des spezifischen Widerstandes im isolierenden Bereich, verbunden mit einer Tendenz zur Sättigung für  $T \rightarrow 0$  ist für LCCO- [Sekitani03] und PCCO-Proben [Fournier98, Fournier00] bis zur optimalen Dotierung auch in der Literatur dokumentiert. Bei NCCO ist die experimentelle

Situation weniger übersichtlich. Einige Gruppen beobachten eine Sättigung oder zumindest Abweichung der  $\rho(T)$ -Kurven vom  $\log(1/T)$ -Verhalten für tiefe Temperaturen [Sekitani03, Hidaka91], bei anderen lassen sich die Messkurven bis zu den kleinsten gemessenen Temperaturen durch ein  $\log(1/T)$ -Gesetz beschreiben [Fournier00, Maiser97]. Für  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , also auf der lochdotierten Seite, wird stets eine logarithmische Divergenz der  $\rho(T)$ -Kurven für  $T \rightarrow 0$  beobachtet [Ando95, Boebinger96]. Um die logarithmische Temperaturabhängigkeit des spezifischen Widerstandes im isolierenden Bereich zu erklären, werden in der Literatur im Wesentlichen zwei Modelle eingesetzt, zum einen *schwache Lokalisierung* in zwei Dimensionen, zum anderen der *Kondo-Effekt*.

Die schwache Lokalisierung ist ein Quanteninterferenzeffekt in einem freien Elektronengas unter Berücksichtigung von elastischer Streuung an zufällig verteilten Verunreinigungen mit einer charakteristischen Streuzeit  $\tau_{el}$ . Störungstheoretisch ergeben sich die Korrekturen zum Leitwert durch Berücksichtigung von Termen höherer Ordnung in der Dichte der Verunreinigungen. Diese Terme lassen sich schematisch durch Diagramme darstellen, deren Form in Abbildung 7.7 skizziert ist. Dabei verläuft die Zeitachse horizontal von links nach rechts, die Orts- oder Impulsachse vertikal, die gestrichelten Linien stehen für Streuung an den durch Kreuze symbolisierten Verunreinigungen. Die relevanten Prozesse sind also solche, bei denen ein Elektron-Loch-Paar an den gleichen Verunreinigungen, aber in umgekehrter Reihenfolge gestreut wird. In der Skalierungstheorie der Lokalisierung wird untersucht, wie sich der Leitwert eines Systems als Funktion der Systemgröße verändert [Thouless74]. Inelastische Streuung, charakterisiert durch eine Streuzeit  $\tau_{in}$ , zerstört die Kohärenz von Wellenfunktionen. Daher entspricht die Systemgröße  $L$ , auf der Quanteninterferenzeffekte eine Rolle spielen, der Strecke, die ein Elektron zwischen zwei inelastischen Streuprozessen zurücklegt. Für  $\tau_{in} \gg \tau_{el}$  ist diese Strecke, die auch als Thouless-Länge  $L_{Th}$  bezeichnet wird, durch

$$L = \sqrt{\frac{1}{d}(v_F\tau_{el})(v_F\tau_{in})} = \sqrt{\frac{1}{d}l_{el}l_{in}} \quad (7.7)$$

gegeben, wobei  $v_F$  die Fermigeschwindigkeit ist,  $d$  die Anzahl der Dimensionen des betrachteten Systems. Gemäß

$$\tau_{in} \sim T^{-p} \quad (7.8)$$

hängt die inelastische Streuzeit und damit auch die Thouless-Länge von der Temperatur  $T$  ab, wobei der Wert des Exponenten  $p$  durch den speziellen Streumechanis-

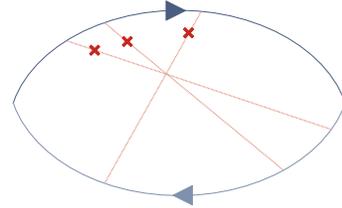


Abbildung 7.7: Diagramm für logarithmische Korrekturen zum Leitwert nach [Altshuler80b]

mus bestimmt wird. Insgesamt ergibt sich der Leitwert als Funktion der Temperatur in zwei Dimensionen zu

$$\sigma_{2d}^{loc}(T) = \sigma_0 + Cp \ln \left( \frac{T}{T_0} \right) \quad . \quad (7.9)$$

Dabei ist  $C$  eine Konstante Für kleine Korrekturen  $|(\sigma_{2d}(T) - \sigma_0)/\sigma_0| < 1$  lässt sich der spezifische Widerstand also durch

$$\rho_{2d}^{loc}(T) = \rho_0 + \rho_0^2 Cp \ln \left( \frac{T_0}{T} \right) \quad (7.10)$$

nähern. Altshuler, Aronov und Lee zeigen, dass neben der Lokalisierung auch die Wechselwirkung zwischen den Elektronen in zwei Dimensionen zu einer ganz ähnlichen Korrektur des Leitwerts führen kann [Altshuler80a, Lee85]. Die beiden Mechanismen, also Lokalisierungs- und Korrelationseffekte, lassen sich aber anhand ihrer Magnetfeldabhängigkeit unterscheiden. Die konstruktive Interferenz zwischen den Wellenfunktionen des in Abbildung 7.7 dargestellten Elektron-Loch Paares wird durch ein senkrecht zur Bewegungsebene der Ladungsträger angelegtes Magnetfeld gestört, da die Wellenfunktionen von Elektron und Loch beim Durchlaufen der dargestellten Bahnen im Magnetfeld unterschiedliche Phasen aufnehmen. Die Lokalisierung wird also unterdrückt. Damit ergibt sich ein stark anisotroper, negativer magnetoresistiver Effekt. Das heißt, der Widerstand nimmt mit wachsender Feldkomponente senkrecht zu den supraleitenden Ebenen ab.<sup>4</sup> Korrelationseffekte dagegen führen zu einem isotropen, positiven Magnetwiderstand.

Als Kondo-Effekt wird die Streuung der Leitungselektronen an lokalisierten magnetischen Momenten im Material bezeichnet, die auf der  $sd$ -Austausch-Wechselwirkung zwischen den Spins der Leitungselektronen und den lokalisierten Momenten beruht. Berechnungen zeigen, dass dieser Prozess zu einem Minimum in der  $\rho(T)$ -Kurve und zu einem logarithmischen Anstieg des Widerstands für  $T < T_{min}$  führt, wobei der Widerstand für  $T \rightarrow 0$  jedoch einem endlichen Wert zustrebt [Winzer75]. Da die Kondo-Streuung mit einem Flip des Elektronenspins sowie des entsprechenden lokalisierten Momentes verbunden ist, unterdrückt ein äusseres Magnetfeld diesen Effekt, was zu einem negativen, isotropen Magnetwiderstand führt.

Anhand der vorliegenden Messungen ist es allerdings nicht möglich, zu entscheiden, welches der beiden vorgestellten Modelle die  $\rho(T, H)$ -Kurven der unter- und optimal dotierten Proben im isolierenden Bereich besser beschreibt. Insbesondere kann kein eindeutiger Zusammenhang zwischen dem isolierenden Verhalten der unter- und optimal dotierten Proben und einer bestimmten Magnetfeldabhängigkeit des Widerstands in diesem Bereich hergestellt werden, wie in Abschnitt 7.3.1 näher erläutert wird.

<sup>4</sup>Magnetoresistive Effekte werden in Abschnitt 7.3.1 genauer erläutert.

## 7.3 $R(T, H)$ -Messungen

In dem Temperatur- und Magnetfeldbereich, in dem auch die meisten Tunnelmessungen durchgeführt wurden, also  $1.4\text{ K} \leq T \leq 40 - 50\text{ K}$  und  $0\text{ T} \leq \mu_0 H \leq 15\text{ T}$ , wurden detaillierte Messungen des spezifischen Widerstands als Funktion der Temperatur für verschiedene, feste Magnetfelder sowie als Funktion des Magnetfeldes für verschiedene, feste Temperaturen aufgezeichnet. Die resultierenden  $\rho(T)$ - und  $\rho(H)$ -Kurven für die drei Proben der LCCO-Serie sind in Abbildung 7.8 (a)-(c) jeweils in einer dreidimensionalen Darstellung zusammengefasst. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich die  $\rho(T)$ - und  $\rho(H)$ -Kurven so kreuzen, dass sich eine durchgehende  $\rho(T, H)$ -Fläche ergibt. Dies trifft sogar für die bei 30-40 K aufgenommenen  $\rho(H)$ -Messungen an Probe L3 in 7.8(c) zu, bei denen die Temperatur ersichtlich nicht ganz konstant gehalten wurde. Hysterese-Effekte können daher ausgeschlossen werden. Ein weiterer Vorteil der dreidimensionalen Darstellung besteht darin, das Zusammenspiel der Auswirkungen von Temperatur und Magnetfeld auf die Transporteigenschaften der untersuchten Materialien besser zu veranschaulichen. Für eine genauere Betrachtung ist jedoch eine zweidimensionale Darstellung der  $\rho(T)$ - und  $\rho(H)$ -Kurvenscharen häufig vorteilhafter. Die entsprechenden Abbildungen für die Kurven der LCCO- PCCO- und NCCO-Serie wurden aus Platzgründen in den Anhang A.4 verschoben. Die  $\rho(T)$ - und  $\rho(H)$ -Kurven lassen sich entlang der  $T$ - bzw.  $H$ -Achse jeweils in drei Bereiche aufteilen, den supraleitenden Bereich, den Übergangsbereich und den normalleitenden Bereich. Im folgenden Unterabschnitt wird der Verlauf der Messkurven im normalleitenden Bereich im Hinblick auf magneto-resistive Effekte genauer untersucht. Der Übergangsbereich ist das Thema des letzten Unterabschnitts, in dem insbesondere die Bestimmung des kritischen Feldes  $H_{c2}(T)$  genauer diskutiert werden soll.

### 7.3.1 Der normalleitende Bereich: Magnetwiderstand

Der Magnetwiderstand  $\frac{\Delta\rho}{\rho}(T, B)$  ist definiert als die Änderung des Widerstands in einem Magnetfeld  $B$  bezogen auf den Wert im Nullfeld bei gleicher Temperatur, also

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} \equiv \frac{\rho(T, B) - \rho(T, B = 0)}{\rho(T, B = 0)} \quad . \quad (7.11)$$

Alle Metalle zeigen einen geringen Anstieg des Widerstandes im Magnetfeld, zurückzuführen auf die Lorentzkraft, die das Feld auf die Leitungselektronen ausübt. Gemäß der Kohler-Regel hängt dieser positive Magnetwiderstand ausschließlich vom Quotienten  $B/\rho(T, B = 0)$  ab, wobei die Abhängigkeit in erster Näherung quadratisch ist. Im untersuchten Temperatur- und Magnetfeldbereich weichen die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen  $\rho(T, H)$ -Kurven deutlich von der Kohler-Regel ab, wie Abbildung 7.9 exemplarisch für die unterdotierte LCCO-Probe zeigt. Aufgetragen ist der Magnetwiderstand als Funktion von  $(B/\rho(T, B = 0))^2$ , berechnet aus  $\rho(H)$ -Kurven bei Temperaturen oberhalb von  $T_c$ . Nach der Kohler-Regel sollten alle Da-

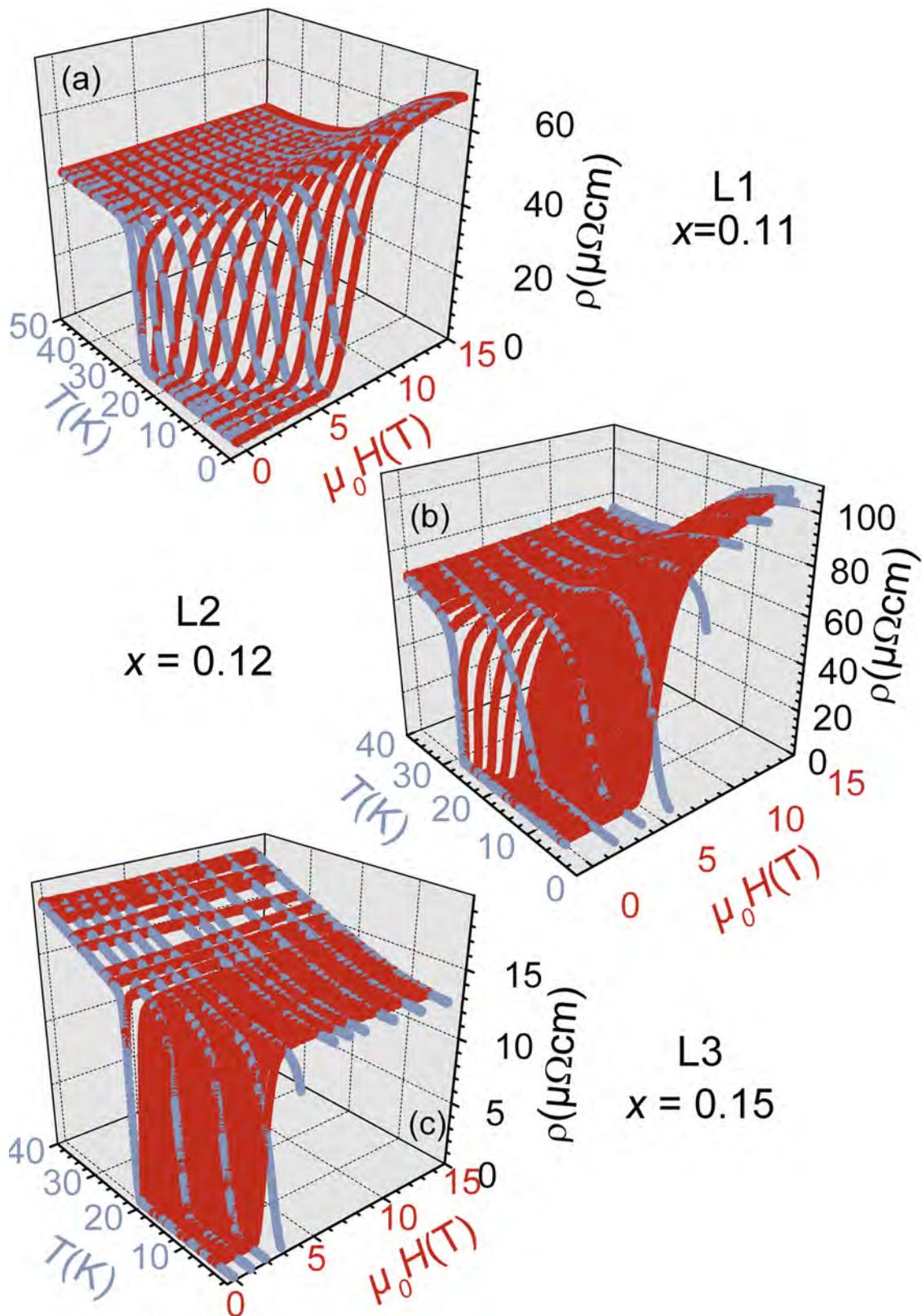


Abbildung 7.8: spezifischer Widerstand der Filmbrücken für die Proben der LCCO-Serie als Funktion der Temperatur und des Magnetfeldes

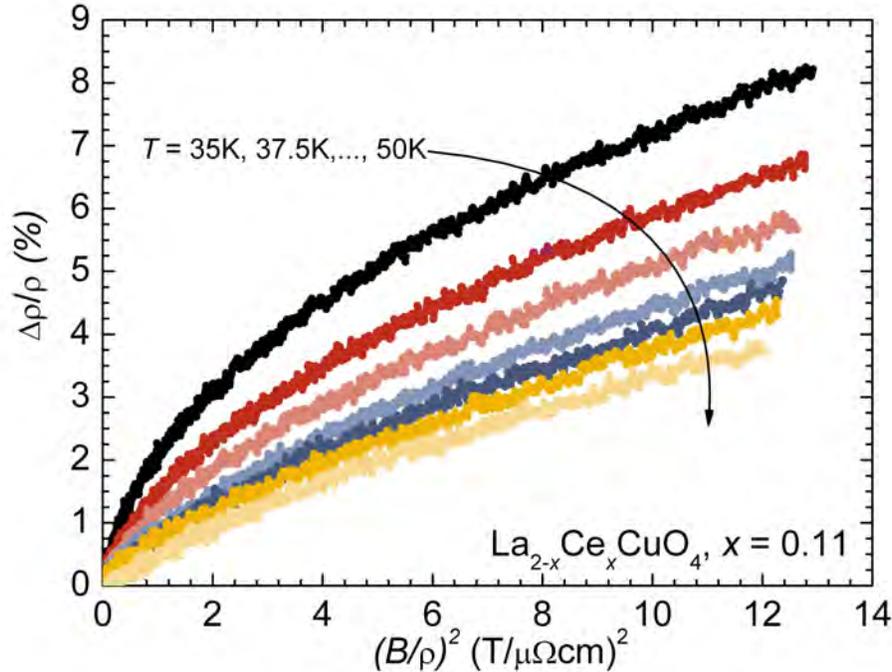


Abbildung 7.9: Magnetwiderstand gemäß (7.11) als Funktion von  $(B/\rho(T, B = 0))^2$  für die Probe L1

tenpunkte auf einer Geraden zusammenfallen. Hier ergibt sich jedoch für jede Temperatur eine deutlich von den anderen zu unterscheidende Kurve. Weiterhin zeigt die Krümmung der für  $T < 50$  K aufgenommenen Kurven, dass der Widerstand im betrachteten Temperatur und Magnetfeldbereich eher eine lineare als eine quadratische Funktion des Magnetfeldes ist, wie auch die zweidimensionalen Darstellungen der  $\rho(H)$ -Kurven im Anhang (Abb. A.3-A.11) zeigen. Allerdings nimmt der Abstand der Kurven mit wachsender Temperatur ab und auch die Form nähert sich der einer Gerade. Dieser Trend passt zu Widerstandsmessungen an NCCO-Filmen bei Temperaturen bis zu 300 K, die eine gute Erfüllung der Kohler-Regel bei Temperaturen  $T > 50$  K zeigen [Gollnik97]. Die Abweichungen von der Kohler-Regel für  $T \leq 50$  K könnten auf Fluktuationseffekte zurückzuführen sein, die, wie im folgenden Abschnitt erläutert wird, einen deutlichen Einfluss auf die Form der  $\rho(T, H)$ -Kurven in endlichen Magnetfeldern haben. Der Magnetwiderstand bei tiefen Temperaturen und hohen Feldern ist besonders interessant im Hinblick auf das isolierende Verhalten der unter- und optimal dotierten Proben, da wie am Ende von Abschnitt 7.2 erläutert, sowohl das Modell der schwachen Lokalisierung als auch das Kondo-Modell einen bestimmten Verlauf der Magnetwiderstands-Kurve in diesem Bereich vorhersagen. Beide Modelle erwarten einen deutlich negativen Magnetwiderstand, isotrop im

Falle des Kondo-Effektes und stark anisotrop im Falle der schwachen Lokalisierung. In der Literatur sind für elektronendotierte Materialien tatsächlich häufig negative Magnetwiderstände dokumentiert [Hagen92, Miura02, Sekitani03, Dagan05a], wobei die Ergebnisse bezüglich der Richtungsabhängigkeit jedoch kein ganz klares Bild liefern. Einige Experimente zeigen einen stark anisotropen negativen Magnetwiderstand [Hagen92], andere nur schwache Anisotropie [Sekitani03] bis zu einer verschwindenden Richtungsabhängigkeit [Miura02]. In neueren Veröffentlichungen wird von einer Überlagerung mehrerer Effekte ausgegangen, wobei nur der isotrope Anteil des negativen Magnetwiderstandes im gleichen Temperatur- und Dotierungsbereich auftritt, wie das isolierende Verhalten bei tiefen Temperaturen [Dagan05a]. Die Abbildungen A.3-A.11 zeigen, dass die im Rahmen dieser Arbeit aufgezeichneten

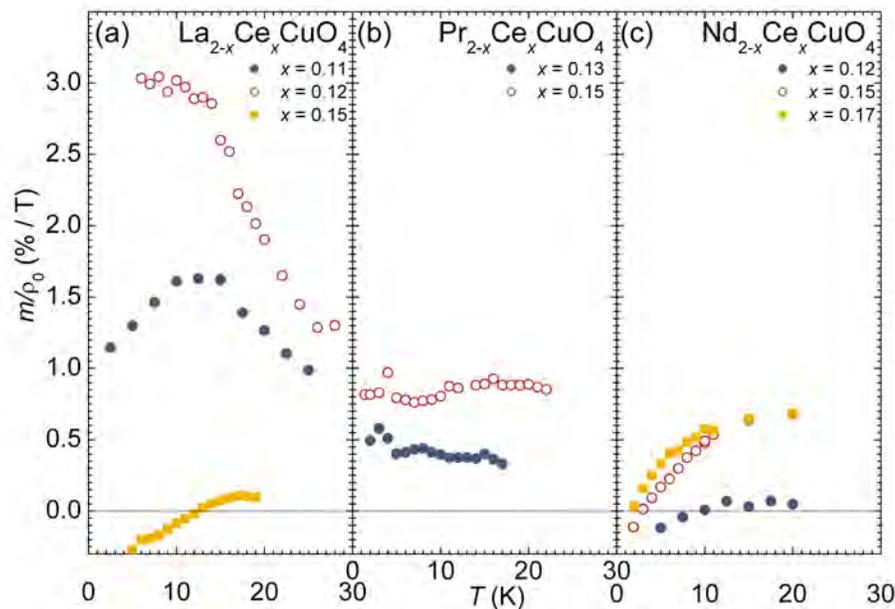


Abbildung 7.10: Steigungen der an den normalleitenden Bereich der  $\rho(H)$ -Kurven angepassten Geraden, bezogen auf den jeweiligen zu  $H = 0$  extrapolierten Wert.

$\rho(H)$ -Kurven im normalleitenden Bereich in erster Näherung linear verlaufen. Daher wurden Geraden  $y = \rho_0 + mH$  an die  $\rho(H)$ -Kurven angepasst und in Abbildung 7.10 ist der Quotient  $m/\rho_0$  gegen die Temperatur aufgetragen, bei der die jeweilige  $\rho(H)$ -Kurve aufgenommen wurde. Allen Proben ist gemeinsam, dass die Steigung pro Tesla für alle Temperaturen nur wenige Prozent des zu  $H = 0$  extrapolierten Wertes  $\rho_0$  beträgt. Nur die überdotierte LCCO-Probe sowie die optimal dotierte und die überdotierte NCCO-Probe zeigen für kleine Temperaturen eine negative Steigung, also einen negativen Magnetwiderstand. Der Verlauf der Kurve für die unterdotierte NCCO Probe legt nahe, dass für Temperaturen unterhalb von 1K eventuell ebenfalls ein negativer Magnetwiderstand auftreten könnte. Abbildung 7.11 veranschaulicht den Zusammenhang zwischen dem bei tiefen Temperaturen beobachteten negativen

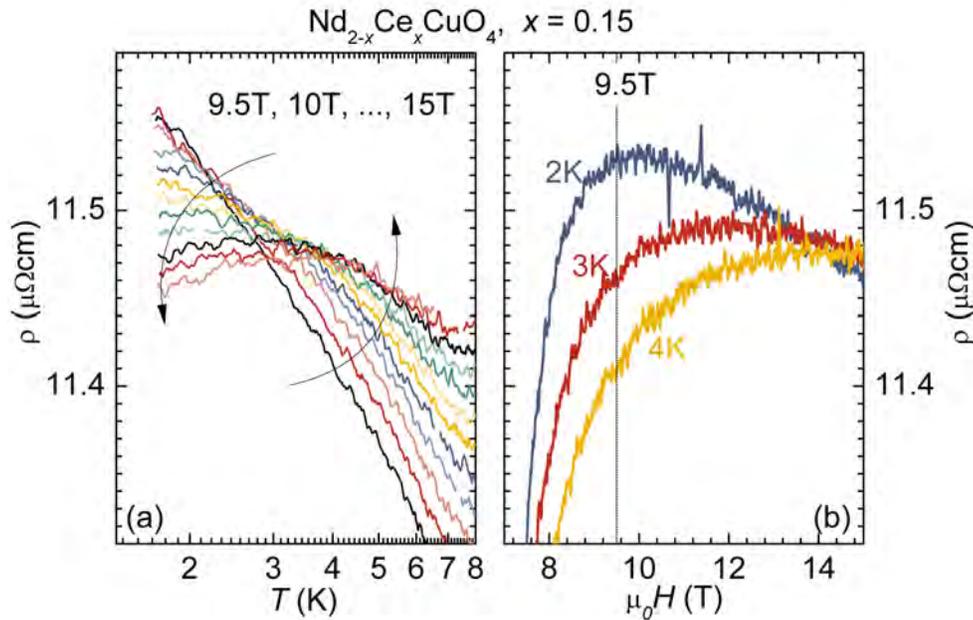


Abbildung 7.11: Spezifischer Widerstand für die optimal dotierte NCCO-Probe als Funktion der Temperatur für Felder zwischen 9.5 T und 15 T (a) sowie als Funktion des Magnetfeldes für Temperaturen für Temperaturen zwischen 2 K und 4 K (b).

Magnetwiderstand der optimal dotierten NCCO-Probe und dem ungewöhnlichen Verhalten der entsprechenden  $\rho(T)$ -Kurven bei kleinen Temperaturen und hohen Feldern. Bereits in Abschnitt 7.2 wurde gezeigt, dass die  $\rho(T)$ -Kurve dieser Probe bei 15 T ein lokales Maximum etwa bei 3 K aufweist. In Teilabbildung 7.11 (a) sind die für  $\mu_0 H \geq 9.5$  T aufgezeichneten  $\rho(T)$ -Kurven im Temperaturbereich unterhalb von 8 K in halblogarithmischer Darstellung aufgetragen. Es ist deutlich zu erkennen, dass für Temperaturen unterhalb von 3 K der Widerstand mit wachsendem Feld unterdrückt wird, während er oberhalb von 3 K mit zunehmendem Feld anwächst. Für die  $\rho(H)$ -Kurven im normalleitenden Bereich entspricht dies einer negativen Steigung für  $T < 3$  K und einer positiven Steigung für  $T > 3$  K, wie in Teilabbildung 7.11 (b) belegt ist.

Auf jeden Fall lässt sich anhand der hier aufgezeichneten  $\rho(T, H)$ -Messungen keine direkte Kopplung eines negativen Magnetwiderstandes mit dem isolierenden Verhalten feststellen, das bei den unter- und optimal dotierten Proben für kleine Temperaturen und hohe Felder beobachtet wird. Auch lässt sich anderweitig kein offensichtlicher Zusammenhang zwischen der Dotierung und dem in Abbildung 7.10 dargestellten Magnetwiderstand der untersuchten Proben erkennen. Zusammen mit den verschiedenen in der Literatur dokumentierten Beobachtungen [Hagen92, Miura02, Sekitani03, Dagan05a] legt dies die Vermutung nahe, dass sich der Magnetwiderstand elektronendotierter Kuprate durch eine Überlagerung verschiedenartiger Effekte er-

gibt, die durch andere Faktoren als die Elektronendotierung entscheidend beeinflusst werden.

### 7.3.2 Der Übergangsbereich: $H_{c2}(T)$

Die Temperaturabhängigkeit des kritischen Feldes  $H_{c2}(T)$  liefert Informationen über die Kohärenzlänge  $\xi(T)$ , eine der wesentlichen charakteristischen Größen eines Supraleiters. Im reinen Grenzfall ist der Zusammenhang für einen  $s$ -Wellen Supraleiter durch

$$H_{c2}(T) = \frac{\phi_0}{2\pi\xi(T)^2} \quad (7.12)$$

gegeben, im schmutzigen Grenzfall durch

$$H_{c2}(T) = \frac{\phi_0}{2\pi\xi(T)l(T)}. \quad (7.13)$$

Dabei ist  $\phi_0 = h/2e \approx 2.068 \cdot 10^{-11} \text{ Tcm}^2$  das Flussquantum,  $l(T)$  die mittlere freie Weglänge.  $\xi(T)$  ist bei anisotropen Materialien die Kohärenzlänge in der Ebene senkrecht zur Feldrichtung, im Rahmen dieser Arbeit gilt also stets  $\xi = \xi_{ab}$ . Die Frage, inwieweit Form und Position des Übergangsbereiches der  $\rho(T)$  und  $\rho(H)$ -Kurven in der  $(T, H)$ -Ebene Aufschluss über  $H_{c2}(T)$  geben, ist daher wichtig und bei Hochtemperatur-Supraleitern auch bis heute nicht unumstritten. Die im Vergleich zu klassischen Supraleitern hohen Sprungtemperaturen und kleinen Kohärenzlängen sowie die Schichtstruktur der Kuprate führen zu zwei Effekten, die die Form der  $\rho(T, H)$ -Kurven im Übergangsbereich erheblich beeinflussen können und die Eignung von Widerstandsmessungen zur Bestimmung von  $H_{c2}(T)$  in Frage stellen. Dabei handelt es sich um die thermisch aktivierte Bewegung von Flusslinien einerseits und Fluktuationen des Ordnungsparameters auf der anderen Seite.

Da diese Effekte in elektronendotierten Supraleitern jedoch eine kleinere Rolle spielen als in lochdotierten Materialien und auch die Messungen zeigen, dass die Form der  $\rho(T)$  und  $\rho(H)$ -Kurven sich im Übergangsbereich mit steigendem Feld bzw. Temperatur nicht extrem ändert, sollen vor einer genaueren Diskussion in einem mehr phänomenologischen Ansatz charakteristische Felder  $H_{Kriterium}^\rho(T)$  bzw. charakteristische Temperaturen  $T_{Kriterium}^\rho(H)$  anhand verschiedener Kriterien bestimmt werden, die in der Literatur traditionell zum Einsatz kommen.

#### Charakteristische Felder

In Abbildung 7.12 sind die nach den im folgenden beschriebenen Kriterien bestimmten charakteristischen Felder exemplarisch für eine bei 5 K an der unterdotierten PCCO-Probe aufgenommene  $\rho(H)$ -Kurve eingezeichnet. Um die Ausdrucks-

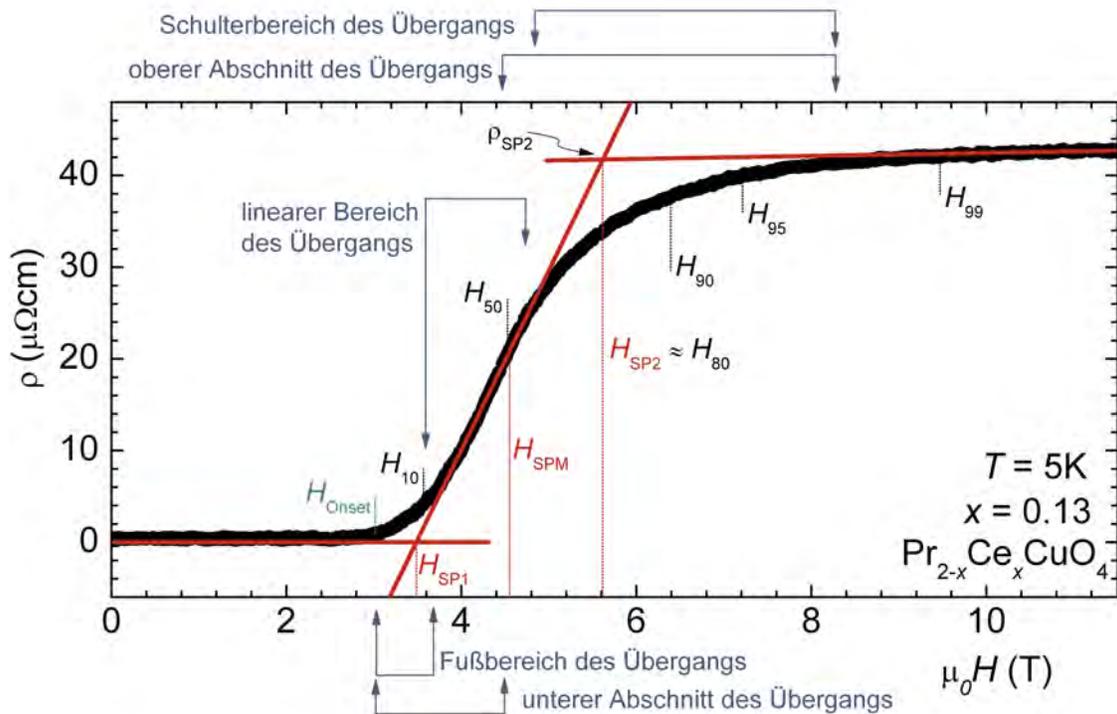


Abbildung 7.12: Illustration zur Bestimmung kritischer Feldwerte  $H_{\text{Kriterium}}$  aus einer  $\rho(H)$ -Kurve bei einer konstanten Temperatur anhand verschiedener, im Text näher erläuteter Kriterien.

weise in den folgenden Abschnitten zu erleichtern, sind in 7.12 weiterhin einige Unterabschnitte markiert, in die sich der Übergangsbereich aufteilen lässt. Die folgenden Erläuterungen bezüglich dieser Unterabschnitte und bezüglich der verwendeten Kriterien zur Bestimmung charakteristischer Felder lassen sich analog auf den Übergangsbereich der  $\rho(T)$ -Kurven bzw. auf die Bestimmung charakteristischer Temperaturen aus  $\rho(T)$ -Messungen übertragen.

Der mittlere Teil des Übergangsbereiches der dargestellten  $\rho(H)$ -Kurve lässt sich in erster Näherung gut durch eine Gerade beschreiben. Bei näherer Betrachtung nimmt die Steigung der  $\rho(H)$ -Kurve jedoch mit steigendem Feld bis zum Wendepunkt etwa in der Mitte des Übergangs zu, anschließend nimmt die Steigung wieder ab. Der Wendepunkt teilt den Übergangsbereich in zwei Abschnitte, wobei der an die supraleitende Phase grenzende Teil im folgenden als unterer Abschnitt, der an die normalleitende Phase grenzende Teil als oberer Abschnitt des Übergangs bezeichnet wird. Weiterhin soll der Teil des unteren Abschnitts, in dem die Form der  $\rho(H)$ -Kurve deutlich vom linearen Verlauf abweicht im folgenden als Fußbereich, der entsprechende Teil des oberen Abschnitts als Schulterbereich des Übergangs bezeichnet werden.

In Abschnitt 7.1 wurde ein Verfahren vorgestellt, um aus den Schnittpunkten von Kurven, die an den normalleitenden, den supraleitenden und den Übergangsbereich einer  $\rho(T)$ -Kurve angepasst werden, charakteristische Temperaturen  $T_{SP1}$ ,  $T_{SP2}$  und  $T_{SPM}$  zu bestimmen. Ganz analog lassen sich die Felder  $H_{SP1}(T)$ ,  $H_{SP2}(T)$  und  $H_{SPM}(T)$  definieren, die anhand entsprechender  $\rho(H)$ -Messungen bestimmt werden. Diese Methode wird zum Beispiel von M. Hikita und Mitarbeitern angewandt, um  $\rho(H)$ -Messungen an  $\text{LaBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ -Einkristallen auszuwerten, wobei das kritische Feld  $H_{c2}$  mit  $H_{SP2}$  identifiziert wird [Hikita89].

Weiterhin lassen sich die an den normalleitenden Bereich der  $\rho(H)$  bzw.  $\rho(T)$ -Kurven angepassten Funktionen auch in den supraleitenden Bereich extrapolieren und die Felder  $H_p$  bzw. Temperaturen  $T_p$  im Übergangsbereich bestimmen, bei denen der Widerstand gerade  $p\%$  des extrapolierten normalleitenden Wertes beträgt. Exemplarisch sind in Abbildung 7.12 die  $H_p$ -Werte für  $p = 10, 50, 90, 95$  und  $99$  eingetragen. Diese Methode wird zum Beispiel in [Mackenzie93], [Ando99] oder [Fournier03] verwendet.

Ausgehend vom supraleitenden Zustand lässt sich schließlich das Feld  $H_{onset}$  bestimmen, bei dem der Übergang in die normalleitende Phase beginnt, der gemessene Widerstand also die Auflösungsgrenze der Messapparatur übersteigt. In der Praxis wird dazu für den supraleitenden Bereich der Mittelwert und die Standardabweichung der gemessenen  $\rho(H)$ -Werte berechnet und  $H_{onset}$  als das Feld bestimmt, bei dem der Widerstand zum ersten Mal den Mittelwert um beispielsweise das fünffache der Standardabweichung übersteigt. Die Wahl dieses Kriteriums unterliegt natürlich einer gewissen Willkür, wie Abbildung 7.12 jedoch zeigt, stimmt das auf diese Weise bestimmte Feld  $H_{onset}$  sehr gut mit dem Wert überein, bei dem die  $\rho(H)$ -Kurve deutlich erkennbar vom supraleitenden Wert abzuweichen beginnt. Ganz analog können aus  $\rho(T)$ -Kurven Onset-Temperaturen bestimmt werden. Da der Fußbereich des Übergangs bei  $\rho(T)$ - und  $\rho(H)$ -Kurven in Hochtemperatur-Supraleitern maßgeblich von dem Verhalten der Vortizes bestimmt wird, wird  $H_{onset}(T)$  allerdings nicht mit dem kritischen Feld  $H_{c2}(T)$ , sondern einer Veränderung im System der Flusslinien in Verbindung gebracht, beispielsweise mit einem Übergang von einem Flussliniengitter zu einer Vortex-Flüssigkeit. Dieser Übergang wird auch als Ursache der in Magnetisierungsmessungen beobachteten Irreversibilitätskurve vermutet, also der Existenz einer Kurve  $H_{irr}(T)$  in der  $(T, H)$ -Ebene, unterhalb der die Magnetisierung  $M(H, T)$  von der Vorgeschichte der Probe abhängt. Tatsächlich zeigen Messungen des Widerstands und der magnetischen (ac) Suszeptibilität an PCCO-Proben, dass die Kurven  $H_{irr}(T)$  und  $H_{onset}(T)$  gut übereinstimmen [Fournier03].

Um zunächst einen Überblick über die Position und die Größe des Übergangsbereiches in der  $(H, T)$ -Ebene zu geben, sind in Abbildung 7.13 die für alle Proben der LC-CO (a1-c1), PCCO (a2-b2) und NCCO-Serie (a3-c3) auf diese Weise bestimmten  $H_{SPM}$ -Werte gegen  $T$  sowie  $H$  gegen  $T_{SPM}$  aufgetragen, wobei der Bereich zwischen  $H_{SP1}$  und  $H_{SP2}$  bzw. zwischen  $T_{SP1}$  und  $T_{SP2}$  farblich hinterlegt ist. Um die Proben der verschiedenen Serien besser vergleichen zu können, ist die Skalierung der  $T$ - und

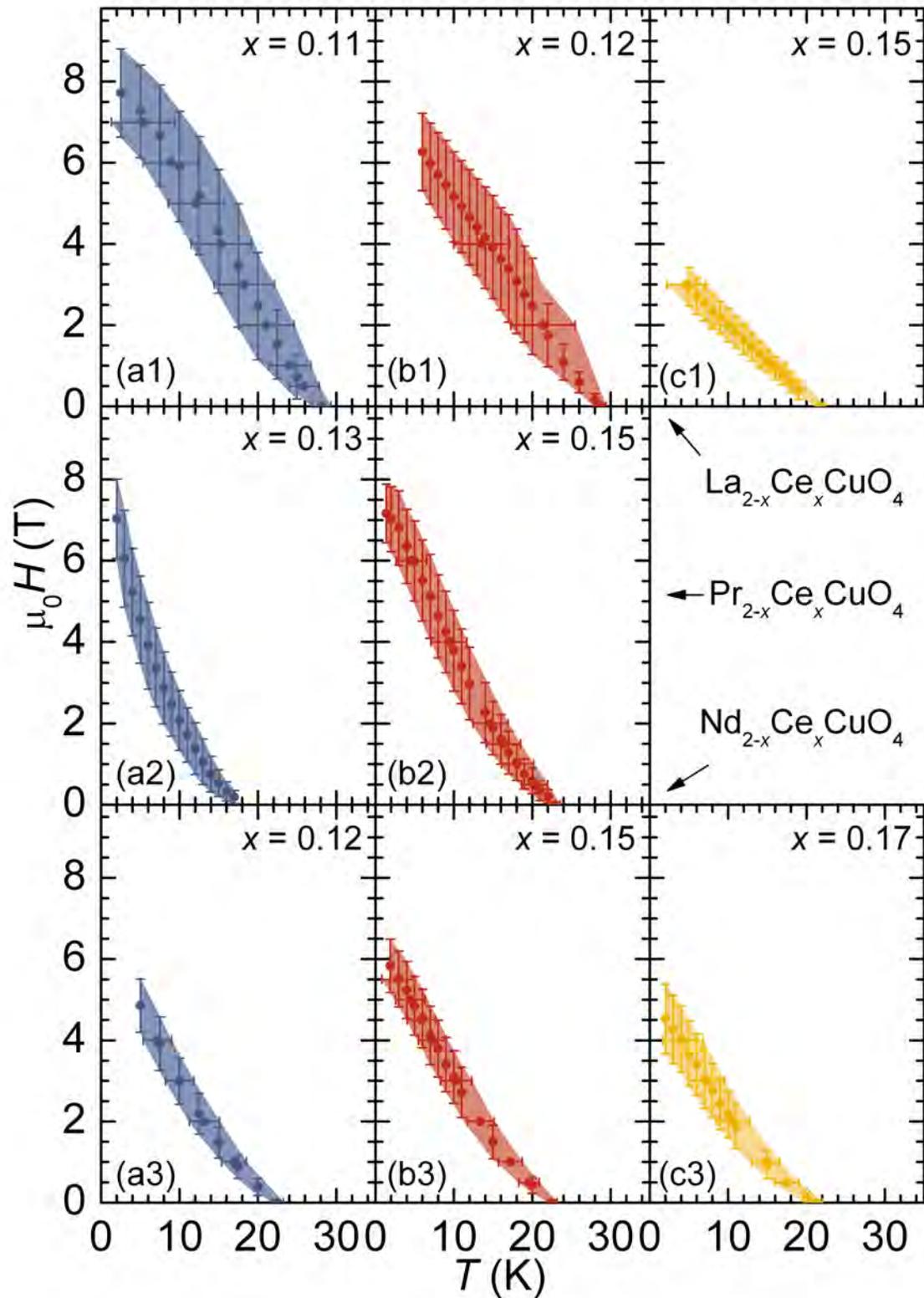


Abbildung 7.13: Nach der Schnittpunkt-Methode bestimmte Position und Breite des Übergangs zwischen normal- und supraleitender Phase in LCCO (a), PCCO (b) und NCCO (c)

$H$ -Achsen für alle Teilabbildungen identisch.

Zunächst ist festzuhalten, dass die  $(T, H_{SPM}(T))$ -Punkte aus  $\rho(H)$ -Messungen und die  $(T_{SPM}(H), H)$ -Punkte aus  $\rho(T)$ -Messungen, zu erkennen an vertikalen bzw. horizontalen Fehlerbalken, recht gut auf einer Kurve liegen. Wie die farbig markierten Flächen in Abbildung 7.13 zeigen, ist der Übergangsbereich bei den unter- und optimal dotierten Proben der LCCO-Serie am größten und liegt auch bei etwas höheren Temperaturen und Feldern, als die entsprechenden Übergangsbereiche der anderen Proben. Für alle Proben ist die Übergangsbreite nahe dem Punkt  $(T_c(H = 0), H = 0)$  am kleinsten. Dies ist wahrscheinlich darauf zurückzuführen, dass in dieser Region der  $(T, H)$ -Ebene der Einfluss von Vortizes am geringsten ist.

Das zur Bestimmung eines charakteristischen Feldes verwendete Kriterium kann den Verlauf der resultierenden  $H_{Krit}(T)$ -Kurve entscheidend beeinflussen, wie die in Abbildung 7.14 exemplarisch für die unterdotierte LCCO-Probe dargestellten  $H_{onset}(T)$ -,  $H_{SP2}(T)$ - und  $H_{95}(T)$ -Kurven deutlich zeigen. So ist die Krümmung der resultierenden Kurve im Temperaturbereich  $10 \text{ K} \leq T \leq 25 \text{ K}$  für  $H_{onset}$  positiv und für  $H_{95}$  negativ, für  $H_{SP2}$  ist der Verlauf der Kurve annähernd linear.

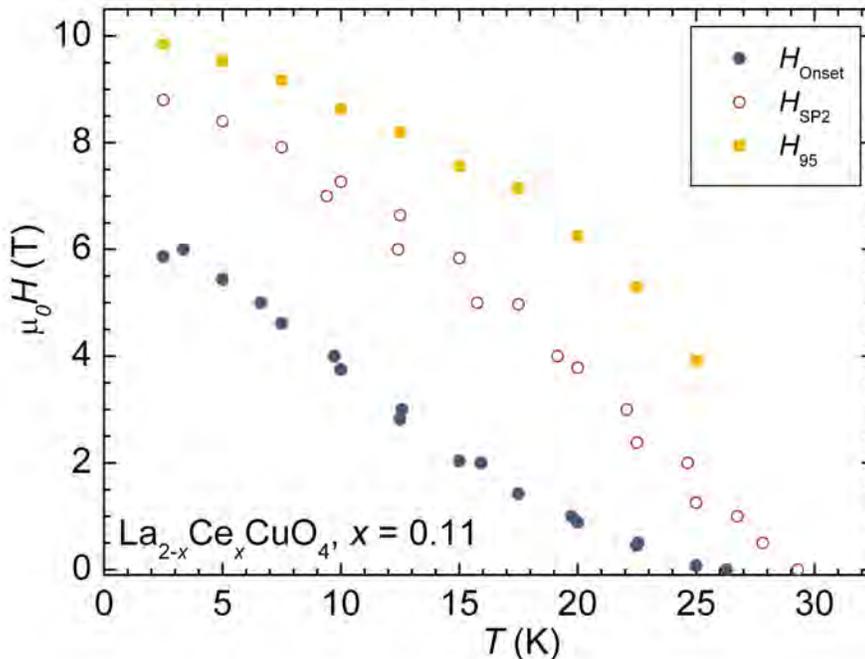


Abbildung 7.14: Vergleich von anhand verschiedener Kriterien bestimmter charakteristischer Felder für die Probe L1

In der Praxis stimmen  $H_{SPM}(T)$  und  $H_{50}(T)$ , sowie  $H_{SP2}(T)$  und  $H_{80}(T)$  häufig überein, was auch für die in Abbildung 7.12 dargestellte Messung zutrifft.  $H_{SPM}(T)$

bzw.  $H_{50}(T)$  beschreiben in erster Linie die Position des Übergangs, die Differenz  $H_{SP2}(T) - H_{SP1}(T)$  seine Breite.  $H_{onset}(T)$  bzw.  $H_p(T)$  mit  $p > 90$  dagegen werden zusätzlich stark davon beeinflusst, wie sich die Form der  $\rho(H)$ -Kurven im Fuß- bzw. Schulterbereich als Funktion der Temperatur ändert.

In Abschnitt 7.1 wurde  $T_{SPM}(H = 0)$  mit  $T_c(H = 0)$  identifiziert. Es liegt nun zunächst nahe, auch für die Bestimmung des kritischen Feldes  $H_{c2}(T)$  das entsprechende Kriterium zu verwenden. Obwohl die Verbreiterung der  $\rho(T)$ -Kurven im Magnetfeld bei elektronendotierten Hochtemperatursupraleitern deutlich geringer ausfällt, als bei den lochdotierten Materialien, zeigt zum Beispiel Abbildung A.3 (a), dass der Übergangsbereich der  $\rho(T)$ -Kurven für  $H > 0$  deutlich breiter ausfällt, als bei der Nullfeldkurve. Auch die  $\rho(H)$ -Kurven in Abbildung A.3 (b) zeigen einen Übergangsbereich, dessen Breite nicht vernachlässigt werden kann. Insofern ist es fraglich, ob für  $T > T_{SPM}(H)$  bzw.  $H > H_{SPM}(T)$  Vortizes tatsächlich keine Rolle mehr spielen,  $H_{SPM}(T)$  also mit  $H_{c2}(T)$  verglichen werden sollte. Auf der anderen Seite wird  $H_p(T)$  mit  $p > 90$  mit hoher Wahrscheinlichkeit durch Fluktuationen beeinflusst, so dass auf diese Weise die Größe von  $H_{c2}(T)$  überschätzt wird.  $H_{SP2}$  erscheint als vernünftiger Kompromiss und wird auch in zahlreichen Publikationen als Maß für  $H_{c2}$  verwendet. Daher soll im folgenden der Verlauf der  $H_{SP2}(T)$ -Kurven näher betrachtet und mit theoretischen Vorhersagen für das kritische Feld verglichen werden.

Die Theorie von Werthamer, Helfand und Hohenberg sagt ein charakteristisches Krümmungsverhalten von  $H_{c2}(T)$ -Kurven für konventionelle BCS-Supraleiter voraus: Nahe  $T_c(H = 0)$  verläuft die  $H_{c2}(T)$ -Kurve demnach annähernd linear, im mittleren Temperaturbereich ist die Krümmung negativ, d.h. die Steigung nimmt mit zunehmender Temperatur ab und für  $T \rightarrow 0$  kommt es zu einer Sättigung [Helfand66, Werthamer66]. Im schmutzigen Grenzfall ist die Beziehung zwischen diesem Sättigungswert und der Steigung der  $H_{c2}(T)$ -Kurve bei  $T_c$  durch

$$H_{c2}(T = 0) \approx 0.691T_c \left( -\frac{dH_{c2}}{dT} \right)_{T=T_c} \quad (7.14)$$

gegeben.

Wie Abbildung 7.13 (a1)-(c1) zeigt, verlaufen die  $H_{SP2}(T)$ -Kurven der LCCO-Serie, gebildet durch die oberen Enden der vertikalen und die rechten Enden der horizontalen Fehlerbalken, für Temperaturen nahe  $T_c$  in guter Näherung linear, für die unter- und die optimal dotierte Probe ergibt sich für kleinere Temperaturen sogar eine deutlich negative Krümmung, wie von der WHH-Theorie vorhergesagt wird. Um dies näher zu untersuchen, wurden an die  $H_{SP2}(T)$ -Kurven der LCCO-Proben in der Nähe von  $T_c$  jeweils Geraden

$$y = H_0 + m_H T \quad (7.15)$$

angepasst. Es gilt also

$$m_H \approx \left( \frac{dH_{SP2}}{dT} \right)_{T=T_c}. \quad (7.16)$$

Probe	$x$	$T_{SP2}$ (K)	$\mu_0 H_0$ (T)	$\mu_0 m_h$ (T/K)	$H_{c2}(T = 0)$ (T)	$\xi(T = 0)$ (nm)
L1	0.11	$29.3 \pm 0.1$	$12.1 \pm 0.4$	$0.42 \pm 0.02$	$8.4 \pm 0.4$	$6.2 \pm 0.1$
L2	0.12	$29.4 \pm 0.1$	$11.3 \pm 0.6$	$0.39 \pm 0.03$	$8 \pm 0.5$	$6.4 \pm 0.2$
L3	0.15	$22.4 \pm 0.1$	$4.3 \pm 0.1$	$0.19 \pm 0.003$	$2.95 \pm 0.05$	$10.6 \pm 0.1$

Tabelle 7.3: Parameter der Geradenanpassung an die  $H_{SP2}(T)$ -Kurven der LCCO-Proben nahe  $T_c$  und daraus nach (7.14) und (7.12) bestimmte Werte für  $H_{c2}(T = 0)$  und  $\xi(T = 0)$

Damit wurden reduzierte Felder

$$h^* = \frac{H_{SP2}/T_{SP2}(H = 0)}{-m_H} \quad (7.17)$$

berechnet und gegen die reduzierten Temperaturen

$$t = T/T_{SP2}(H = 0) \quad (7.18)$$

in Abbildung 7.15 aufgetragen. Weiterhin wurde der theoretische Zusammenhang zwischen  $h^*$  und  $t$  aus Gleichung (28) in [Werthamer66] berechnet und die resultierende Kurve ebenfalls in Abbildung 7.15 dargestellt. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich die  $H_{SP2}(T)$ -Kurven der unterdotierten und optimal dotierten LCCO-Proben sehr gut durch die WHH-Theorie beschreiben lassen. Die Kurve der überdotierten LCCO-Probe dahingegen weicht im gesamten Temperaturbereich nicht vom linearen Verhalten ab. In Tabelle 7.3 sind die Parameter der Geradenanpassung sowie die aus  $m_H$  und  $T_{SP2}(H = 0)$  gemäß (7.14) bestimmten Werte für  $H_{c2}(T = 0)$  und die entsprechenden Werte für die Kohärenzlänge nach (7.12) zusammengefasst.

Die Proben der PCCO- und NCCO-Serie zeigen qualitativ ein etwas anderes Verhalten. In den Teilabbildungen 7.16 (a) und 7.17 (a) sind noch einmal gesondert  $H_{SP2}$  gegen  $T$  für die entsprechenden Proben aufgetragen. Am auffälligsten ist, dass im Gegensatz zur LCCO-Serie alle Kurven für  $T > 5$  K eine deutlich positive Krümmung aufweisen. Eine solche positive Krümmung von aus Widerstandsmessungen bestimmten  $H_{c2}(T)$ -Kurven wird an einigen Hochtemperatur-Supraleitern beobachtet, so an unterdotiertem  $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ , Bi-2212 [Ando99], überdotiertem  $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{CuO}_4$  [Mackenzie93] sowie optimal dotiertem  $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  [Sumarlin92] und NCCO in verschiedenen Dotierungen [Gollnik98]. Dabei lässt sich häufig eine Abhängigkeit der Form

$$H_{c2}(T) = H_0(1 - T/T_c)^p \quad (7.19)$$

mit  $p \approx 3/2$  feststellen. Um den Verlauf der hier an den Proben der PCCO und NCCO-Serie bestimmten  $H_{SP2}(T)$ -Kurven mit dem Verhalten nach (7.19) zu vergleichen, ist in den Teilabbildungen 7.16 und 7.17 (b) jeweils  $H_{SP2}$  gegen  $1 -$

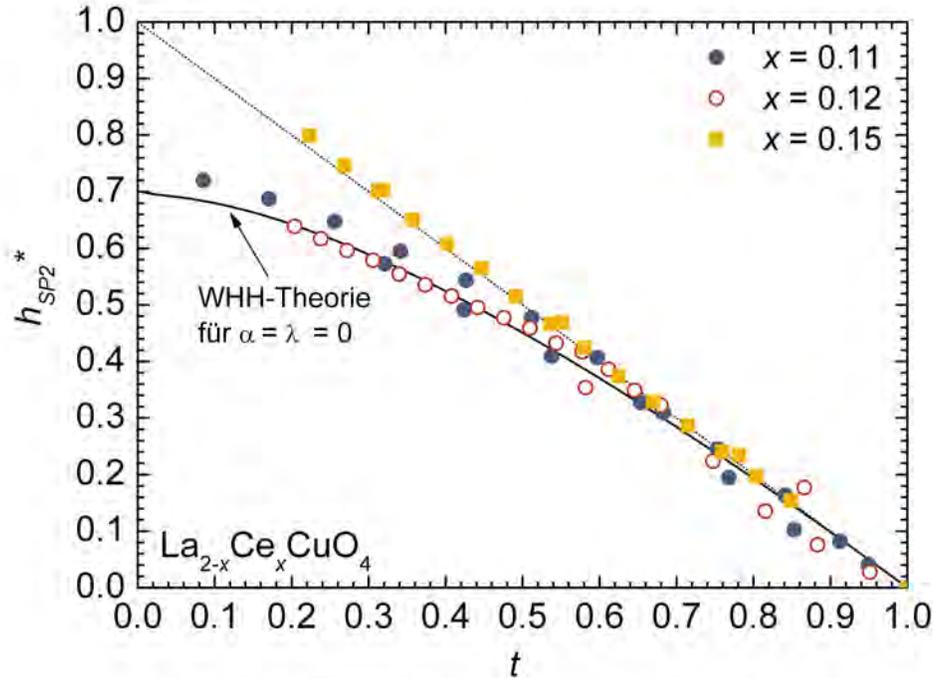


Abbildung 7.15: Aus  $H_{c2}(T)$  bestimmtes reduziertes Feld als Funktion der reduzierten Temperatur für die Proben der LCCO-Serie sowie die entsprechende Kurve der WHH-Theorie nach Gleichung (28) aus [Werthamer66]. Die Angabe  $\lambda = \alpha = 0$  bedeutet, dass sowohl Spin-Bahn-Streuung als auch paramagnetische Effekte der Spins vernachlässigt werden.

$T/T_{SP2}(H = 0)$  in doppelt-logarithmischer Darstellung aufgetragen. Zusätzlich enthalten diese Abbildungen noch die Darstellung einer Kurvenschar  $y_a(x) = ax^{1.5}$ , in doppelt-logarithmischer Darstellung also einer Geradenschar mit Steigung 1.5. Wie die Abbildungen zeigen, lassen sich alle Kurven recht gut durch ein Potenzgesetz der Form (7.19) beschreiben, wenn man von der Sättigung der Kurve der optimal dotierten PCCO-Probe für  $T < 5\text{K}$  absieht. Der Exponent dieses Potenzgesetzes beträgt jedoch nur für die unterdotierte PCCO-Probe und nur im Bereich nahe  $T_c$  den in der Literatur zitierten Wert von  $p \approx 3/2$ . Für kleinere Temperaturen wird die Krümmung dieser Kurve etwas größer, so dass sich das Verhalten im gesamten Temperaturbereich recht gut mit einem Exponenten von  $p = 1.67$  beschreiben lässt. Für alle anderen Kurven liegt der Exponent deutlich unter 1.5. An alle  $H_{SP2}(T)$ -Kurven wurden daher Funktionen der Form (7.19) mit den Fitparametern  $H_0$  und  $p$  angepasst und in den Teilabbildungen 7.16 (a) und 7.17 (a) als gestrichelte Linien dargestellt. Geht man davon aus, dass  $H_{SP2}(T)$  mit  $H_{c2}(T)$  übereinstimmt und sich das beobachtete Verhalten gemäß (7.19) zu  $T = 0$  extrapolieren lässt, gibt der

Fitparameter  $H_0$  den Wert von  $H_{c2}(T = 0)$  an, aus dem dann gemäß (7.12) die Kohärenzlänge bei  $T = 0$  berechnet werden kann. In Tabelle 7.4 sind die Werte der Fitparameter und die daraus ermittelten Werte von  $H_{c2}(T = 0)$  und  $\xi(T = 0)$  für die Proben der PCCO und NCCO-Serie zusammengefasst.

Prinzipiell gibt es zwei Interpretationsmöglichkeiten für das ungewöhnliche Krümmungsverhalten. Zum einen gibt es eine Vielzahl von theoretischen Ansätzen, die dieses Verhalten auf besondere Eigenschaften der Kuprate zurückführen, so zum Beispiel die große Rolle von Inhomogenitäten [Caixeiro04, Geshkenbein98], Streuung an magnetischen Verunreinigungen in Kombination mit der Schichtstruktur der Kuprate [Ovchinnikov95], Kondensation von oberhalb  $T_c$  gebildeten Bosonen [Alexandrov96] oder dem Schmelzen des Flussliniengitters in der Nähe eines quantenkritischen Punktes [Kotliar96].

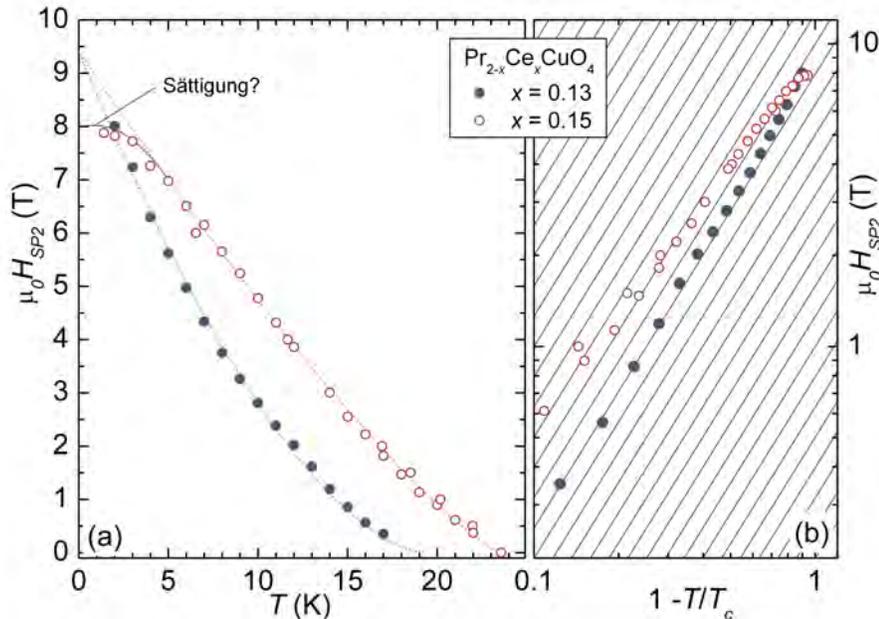


Abbildung 7.16:  $H_{SP2}$  als Funktion der Temperatur für die Proben der PCCO-Serie, zum einen mit an die experimentellen Daten angepassten Kurven nach Gleichung (7.19) (a), zum anderen in doppelt-logarithmischer Darstellung zusammen mit einer Kurvenschar  $y_a(x) = ax^{1.5}$  (b).

Andere Autoren vertreten die Auffassung, dass die aus Widerstandsmessungen nach einem der bisher beschriebenen Kriterien bestimmten charakteristischen Felder keine Informationen über das tatsächliche kritische Feld  $H_{c2}(T)$  liefern, da die Form der  $\rho(T, H)$ -Kurven im Übergangsbereich maßgeblich von Effekten wie Fluktuationen des Ordnungsparameters [Han92] oder Bewegung von Vortizes [Suzuki90, Fournier03] beeinflusst werden. Diese Effekte sollen im Folgenden näher diskutiert werden.

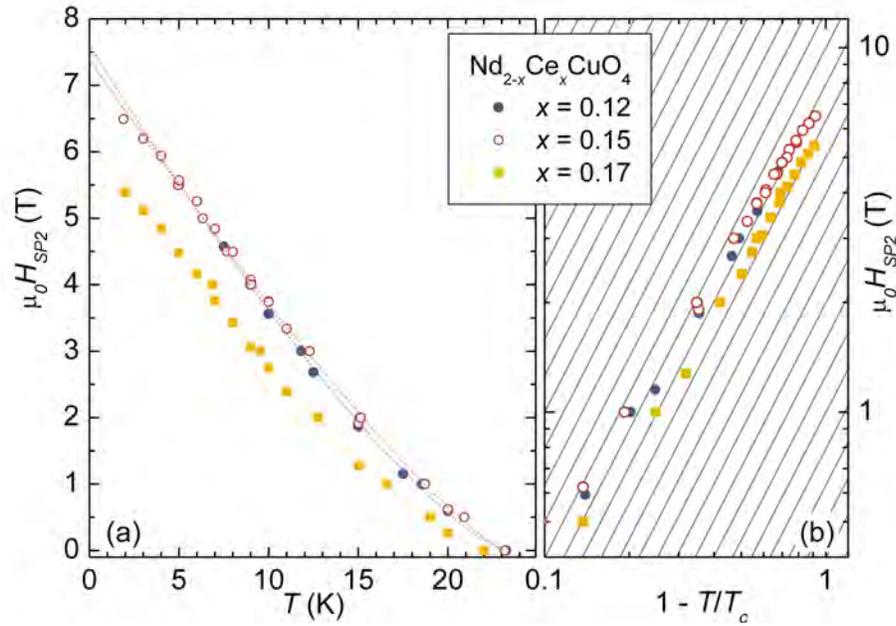


Abbildung 7.17:  $H_{SP2}$  als Funktion der Temperatur für die Proben der NCCO-Serie, zum einen mit an die experimentellen Daten angepassten Kurven nach Gleichung (7.19) (a), zum anderen in doppelt-logarithmischer Darstellung zusammen mit einer Kurvenschar  $y_a(x) = ax^{1.5}$  (b).

Probe	$x$	$T_{SP2}$ (K)	$\mu_0 H_0$ (T)	$p$	$H_{c2}(T=0)$ (T)	$\xi(T=0)$ (nm)
P1	0.13	$19.4 \pm 0.1$	$9.4 \pm 0.1$	$1.67 \pm .03$	$9.4 \pm 0.1$	$5.92 \pm 0.03$
P2	0.15	$23.6 \pm 0.1$	$9.4 \pm 0.1$	$1.24 \pm .02$	$9.4 \pm 0.1$	$5.93 \pm 0.03$
N1	0.12	$23.2 \pm 0.1$	$7.6 \pm 0.1$	$1.32 \pm .02$	$7.6 \pm 0.1$	$6.59 \pm 0.04$
N2	0.15	$23.2 \pm 0.1$	$7.4 \pm 0.1$	$1.22 \pm .02$	$7.4 \pm 0.1$	$6.67 \pm 0.02$
N3	0.17	$22 \pm 0.1$	$6.3 \pm 0.1$	$1.33 \pm .02$	$6.3 \pm 0.1$	$7.26 \pm 0.04$

Tabelle 7.4: Parameter der Anpassung von Gleichung (7.19) an die  $H_{SP2}(T)$ -Kurven der PCCO- und NCCO-Proben sowie daraus bestimmte Werte für  $H_{c2}(T=0)$  und  $\xi(T=0)$

## Vortizes

Hochtemperatur-Supraleiter sind extreme Typ II Supraleiter, d. h. die Supraleitung wird erst durch ein äußeres Feld  $H_{c2}$  vollständig unterdrückt, das deutlich oberhalb des thermodynamischen kritischen Feldes  $H_{cth}$  liegt. In einem weiten Feldbereich unterhalb von  $H_{c2}$  wird das Verhalten der Materialien durch die Physik der Flusslinien (Vortizes) bestimmt. Generell dringen bei einem Typ II Supraleiter

ab einem Feld  $H_{c1}$  Vortizes in die Probe ein. Aufgrund ihrer repulsiven Wechselwirkung bildet sich ein Flussliniengitter aus, dessen Struktur und Position in der Probe durch Pinning an Defekten bestimmt wird. Die Bewegung von Flusslinien führt zu Dissipation und somit zu einem endlichen Widerstand. Übersteigt die durch einen Transportstrom auf die Vortizes ausgeübte Lorentzkraft die Pinningkraft, so können sich die Vortizes frei bewegen, man spricht vom Fluss-Fließen (flux flow). Ist die Lorentzkraft dagegen kleiner als die Pinningkraft, so kann es für  $T > 0$  zu einer thermisch aktivierten Bewegung der Flusslinien kommen. Dieser Effekt wird als Fluss-Kriechen (flux creep) bezeichnet. Verschiedene Modelle für den Widerstand im Bereich des Fluss-Kriechens können die  $\rho(T)$ -Kurven im Magnetfeld für einige Messungen an Hochtemperatur-Supraleitern gut reproduzieren. So modelliert M. Tinkham an  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  gemessene  $\rho(T)$ -Kurven in Feldern bis zu 9 T [Tinkham88], M. Suzuki beschreibt nach einem etwas anderen Modell an NCCO gemessene Kurven für  $\mu_0 H \leq 12$  T [Suzuki90]. Diese beiden Modelle werden im folgenden kurz vorgestellt und mit den experimentellen Daten verglichen.

Generell hängen thermisch aktivierte Prozesse exponentiell vom Quotienten

$$\gamma(T, H) = \frac{U(T, H)}{k_B T} \quad (7.20)$$

aus der Aktivierungsenergie  $U(T, H)$  und der thermischen Energie  $k_B T$  ab, der sich anschaulich als eine normierte Barrierenhöhe verstehen lässt. In Analogie zum Modell für die thermisch angeregte Schwankung der Phasendifferenz in einem stark gedämpften Josephson-Kontakt nach Ambegaokar und Halperin [Ambegaokar69] schlägt Tinkham folgenden Ausdruck für den Widerstand vor

$$\rho(T, H) = \rho_n / (I_0(\gamma/2))^2, \quad (7.21)$$

wobei  $I_0(x)$  die modifizierte Besselfunktion ist.  $\rho_n$  ist der Widerstand im normalleitenden Zustand. Da im Rahmen dieses Modelles die Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit des Widerstands in der normalleitenden Phase vernachlässigt werden, kann für eine Beschreibung der experimentellen Daten im Bereich  $T \leq T_c(H)$   $\rho_n(H) = \rho(H, T_c(H))$  angesetzt werden. Energiebetrachtungen und Annahmen über die Temperaturabhängigkeit der Eindringtiefe und des thermodynamischen kritischen Feldes  $H_{cth}$  führen zu einer normierten Barrierenhöhe von

$$\gamma(T, H) = A \frac{(1 - T/T_c(H))^{3/2}}{2HT_c(H)}. \quad (7.22)$$

Dabei hängt  $A$  nur von Naturkonstanten, numerischen Vorfaktoren und der kritischen Stromdichte  $j_0$  bei  $T = 0$  und  $H_0$  ab

$$A = \beta \cdot 322.810^{-4} \text{ TK}/(\text{A}/\text{cm}^2) \cdot j_{c0} \text{ mit } \beta \approx 1. \quad (7.23)$$

$T_c(H)$  ist die kritische Temperatur im Magnetfeld (*mean field critical temperature*) und wird als Umkehrfunktion von  $H_{c2}(T)$  verstanden. Um eine  $\rho(T)$ -Kurve bei vorgegebenem Magnetfeld nach diesem Modell zu beschreiben, sind also drei Parameter

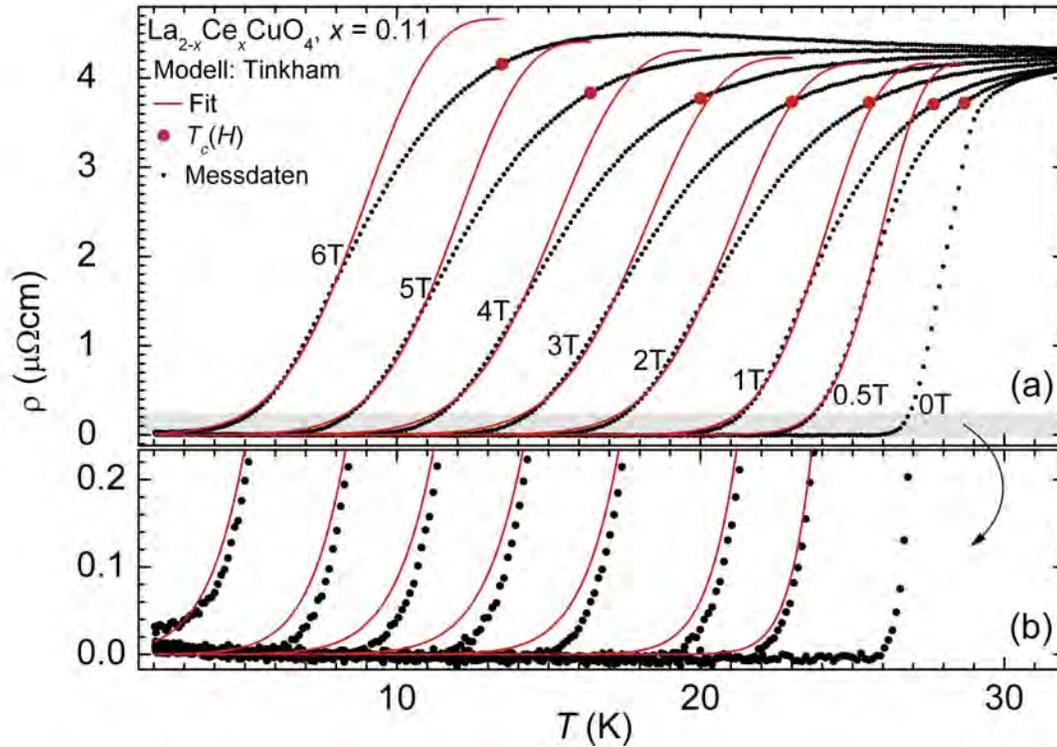


Abbildung 7.18: Illustration zur Bestimmung der kritischen Temperaturen im Magnetfeld nach Tinkham

nötig:  $\rho_n(H)$ ,  $A$  und  $T_c(H)$ . Beim Vergleich der im Rahmen dieser Arbeit aufgezeichneten  $\rho(T)$ -Kurvenscharen mit diesem Modell gemäß (7.21)-(7.23) ergibt sich ein Hauptproblem. Während sich die Gleichungen (7.21)-(7.23) durch Wahl geeigneter Parameter recht gut an die unteren Abschnitte des Übergangs der  $\rho(T)$ -Kurven anpassen lassen, sind die oberen Abschnitte zu stark verrundet, um durch dieses Modell beschrieben zu werden. Wie im folgenden Paragraph näher diskutiert wird, können gerade in diesen Bereichen Fluktuationen eine größere Rolle spielen, eventuell in Verbindung mit der Temperatur- und Magnetfeldabhängigkeit des Widerstandes im normalleitenden Zustand. Daher wird im Folgenden als Grundlage einer Kurvenanpassung nach (7.21)-(7.23) für jede  $\rho(T)$ -Kurve der Bereich zwischen  $T_{onset}$  und dem Wendepunkt etwa in der Mitte des Übergangsbereiches ausgewählt. Problematisch dabei ist, dass sich der Widerstand  $\rho_n(H) = \rho_n(H, T_c(H))$  auf Grundlage dieser Daten nur schlecht bestimmen lässt. Bei der zu Beginn dieses Abschnittes beschriebenen Bestimmung von  $T_{SP2}(H)$  wurde der normalleitende Bereich der  $\rho(T)$ -Kurven durch ein Polynom erster oder zweiter Ordnung angepasst. Der Wert dieser Funktion an der Stelle  $T_{SP2}(H)$  erscheint als sinnvolle Abschätzung für  $\rho_n(H)$  und wird zunächst fest vorgegeben.

Damit bleiben zwei Parameter, um die gemessenen  $\rho(T)$ -Daten zu beschreiben,  $A$

und  $T_c(H)$ . Es stellt sich jedoch heraus, dass es nicht möglich ist, alle für eine Probe in verschiedenen Magnetfeldern aufgenommenen  $\rho(T)$ -Kurven gut durch einen gemeinsamen Parameter  $A$  nach dem Modell von Tinkham zu beschreiben. Daher wird dieses Modell insofern erweitert, indem auch eine Magnetfeldabhängigkeit des Parameters  $A = A(H)$  zugelassen wird. Die von Tinkham vorgeschlagene Abhängigkeit des Widerstandes von der normierten Barrierenhöhe  $\gamma(T, H)$  wird also beibehalten, ebenso die Art in der  $\gamma(T, H)$  von der Temperatur abhängt, aber die Magnetfeldabhängigkeit von  $\gamma(T, H)$  wird modifiziert, um die experimentellen Kurven besser zu beschreiben.

In Abbildung 7.18 ist exemplarisch eine Schar von in verschiedenen Magnetfeldern an der Probe L1 aufgenommenen  $\rho(T)$ -Kurven zusammen mit den Kurven dargestellt, die an die Messdaten jeweils im unteren Abschnitt des Übergangsbereiches gemäß (7.21)-(7.23) angepasst wurden. Die dabei als Fitparameter erhaltenen Werte für die kritischen Temperaturen  $T_c(H)$  sind ebenfalls in Abbildung 7.18 an den jeweiligen Messkurven eingetragen. Um einen Überblick zu vermitteln, inwieweit die Fitkurven im oberen Abschnitt des Übergangsbereiches von den Messdaten abweichen, wurden die Kurven nach (7.21)-(7.23) mit den jeweiligen Fitparametern bis zu den jeweiligen kritischen Temperaturen berechnet und in 7.18 dargestellt. Es ist offensichtlich, dass die Messkurven in der Nähe der normalleitenden Phase stärker verrundet sind als die entsprechenden Fitkurven und der Widerstand der experimentellen  $\rho(T)$ -Kurven in diesem Bereich deutlich unterhalb der Werte liegt, die nach dem Verlauf im unteren Abschnitt des Übergangsbereiches und dem Modell von Tinkham erwartet werden würden. Dies lässt sich mit hoher Wahrscheinlichkeit wenigstens teilweise auf Fluktuationen des Ordnungsparameters zurückführen, die im folgenden Abschnitt näher diskutiert werden. Da der dissipative Stromtransport im Supraleiter aufgrund der Bewegung der Flusslinien und der Transport über Fluktuationen parallele Mechanismen sind, addieren sich die entsprechenden Leitwerte. Daher sinkt der Gesamtwiderstand bei Anwesenheit von Fluktuationseffekten. Weiterhin könnte es bei hohen Feldern und Temperaturen zu einem Übergang vom Fluss-Kriechen zum Fluss-Fließen kommen, was ebenfalls für ein Absinken des Gesamtwiderstandes im Vergleich zum Modell von Tinkham führen würde. Die gemessenen  $\rho(T)$ -Kurven lassen sich im jeweiligen unteren Abschnitt des Übergangsbereiches im Hinblick auf ihre Lage und ihr Krümmungsverhalten auf der in 7.18 (a) dargestellten Skala gut durch die Fitkurven beschreiben. Im Bereich  $\rho(T) \lesssim \rho_n/20$  verlaufen die Fitkurven jedoch etwas oberhalb der zugrundeliegenden Messkurven, wie Teilabbildung 7.18 (b) belegt, in der der in (a) hellgrau hinterlegte Bereich noch einmal vergrößert dargestellt ist. In Abbildung 7.19 sind die Felder  $H$  gegen die als Fitparameter aus der Anpassung des Tinkham-Modells gewonnenen Werte von  $T_c(H)$  für die Proben der LCCO-Serie aufgetragen, zusammen mit den  $(T, H_{SP2}(T))$  und den  $(T_{SP2}(H), H)$ -Punkten, die nach der Schnittpunkt-Methode aus den  $\rho(T)$ - bzw.  $\rho(H)$ -Messungen derselben Proben bestimmt wurden. Es ist zu erkennen, dass beide Methoden zu übereinstimmenden Ergebnissen führen. Diese Übereinstimmung trifft für alle vermessenen Proben zu.

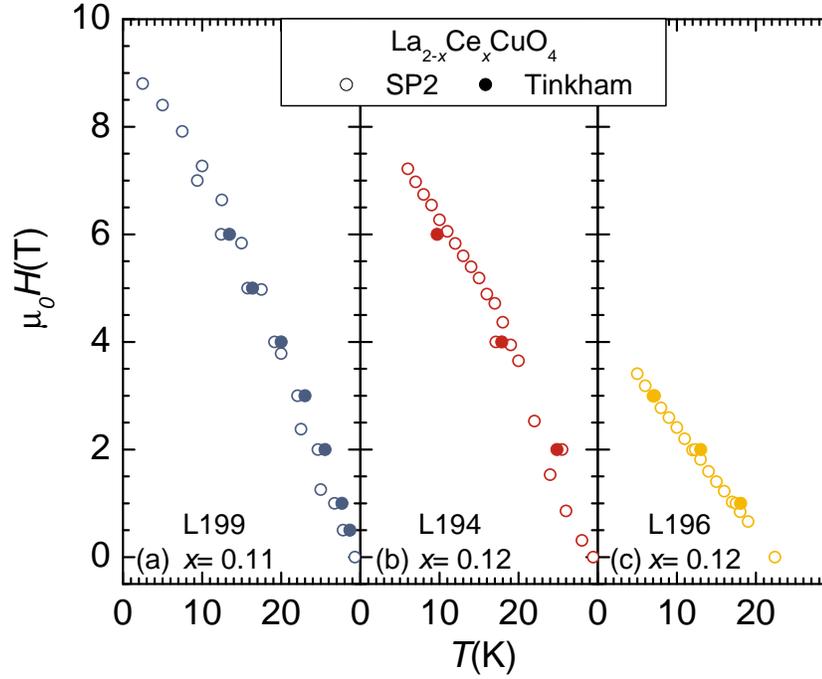


Abbildung 7.19: Nach der Schnittpunktmethode (SP2) sowie aus Anpassung des Tinkham-Modells nach (7.21)-(7.23) an die  $\rho(T)$ -Kurven im Magnetfeld gewonnene kritische Felder für die Proben der LCCO-Serie

Aufgrund von Beobachtungen an Bi 2212 [Palstra88] und NCCO [Suzuki90], nach denen die  $\rho(T)$ -Kurven im Fußbereich des Übergangs einem Arrhenius-Gesetz folgen, schlägt M. Suzuki in einem mehr phänomenologischen Ansatz die Formel

$$\rho(T, H) = \rho_n \exp(-\gamma(T, H)) \quad (7.24)$$

mit

$$\gamma(T, H) = \frac{U(T, H)}{k_B T} = U_0(H) \frac{(1 - T/T_c(H))^n}{k_B T} \quad (7.25)$$

zur Beschreibung der  $\rho(T, H)$ -Kurven vor.  $U_0(H)$  ist die Barrierenhöhe bei  $T = 0$ , für den Exponenten  $n$ , der die Temperaturabhängigkeit der Barrierenhöhe kennzeichnet, erhalten M. Suzuki und Mitarbeiter für  $\rho(T, H)$ -Kurven an NCCO für  $H \parallel c$  unabhängig vom Betrag des Magnetfeldes einen Wert von  $n = 3 \pm 0.1$ . Die Autoren können diesen Wert auf das Pinning von Flusslinien in einem quasi-zweidimensionalen System an schwachen aber dicht verteilten Pinning-Zentren zurückführen. Ist der Exponent vorgegeben, so bleiben auch in diesem Modell 3 Parameter, um die  $\rho(T)$ -Kurven im Magnetfeld zu beschreiben:  $\rho_n$ ,  $U_0(H)$  und  $T_c(H)$ . Es zeigt sich, dass

auch dieses Modell nicht geeignet ist, die Form der  $\rho(T)$ -Kurven im oberen Abschnitt des Übergangsbereiches zu reproduzieren.<sup>5</sup> Daher wird auch in diesem Fall der Wert des an den normalleitenden Bereiches angepassten Polynoms an der Stelle  $T_{SP2}(H)$  als Wert für  $\rho_n$  fest vorgegeben. Es zeigt sich allerdings, dass die auf diese Weise als Fitparameter bestimmten Werte für  $T_c(H)$  deutlich oberhalb der Werte von  $T_{SP2}(H)$  liegen. Daher wurden in einem zweiten Schritt die Werte der an den normalleitenden Bereich der  $\rho(T)$ -Kurven angepassten Funktionen an den Stellen  $T_c(H)$  aus dem ersten Fit als neue Werte für  $\rho_n$  vorgegeben und der Fit damit wiederholt. Die auf diese Weise bestimmten Werte für  $T_c(H)$  liegen etwas unterhalb der Ergebnisse des ersten Fits, an der qualitativen Form der  $T_c(H)$ -Kurve ändert sich jedoch nichts, weswegen auf eine weitere Wiederholung des zweiten Schrittes verzichtet wurde. Analog zu Abbildung 7.18 sind in Abbildung 7.20 die Ergebnisse der ersten und zweiten Kurvenanpassung für die gleichen Messdaten nach dem Modell von Suzuki dargestellt. Um einen leichteren Vergleich zu ermöglichen, sind die Skalierungen der Achsen in 7.18 und 7.20 identisch.

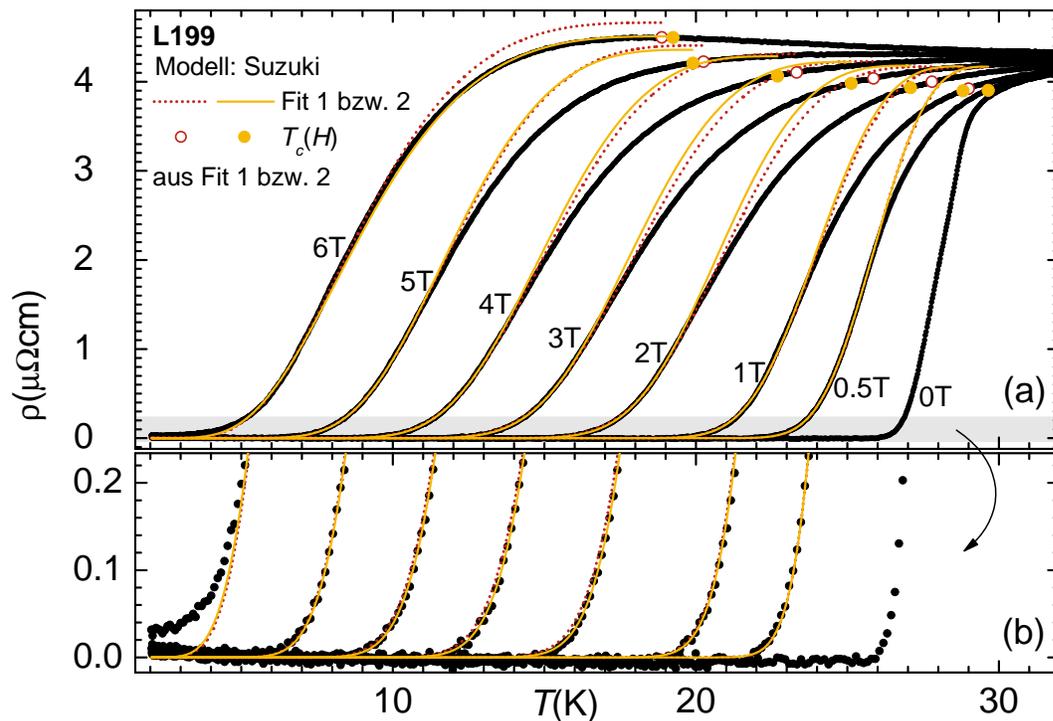


Abbildung 7.20: Illustration zur Bestimmung der kritischen Temperaturen im Magnetfeld nach Suzuki

<sup>5</sup>Für größere Werte des Exponenten ( $n \geq 7$ ) ergibt sich eine bessere Übereinstimmung zwischen Messdaten und Fit auch im oberen Abschnitt, aber dies führt zu unphysikalischen Ergebnissen wie einer kritischen Temperatur, die mit zunehmendem Feld ansteigt.

Die Übereinstimmung zwischen den experimentellen Daten und den Fitkurven bis zur Mitte des Übergangsbereiches ist für das Modell von Suzuki noch etwas besser als für das Modell von Tinkham, insbesondere im Fußbereich des Übergangs, wie ein Vergleich der Teilabbildungen 7.18 (b) und 7.20 (b) zeigt. Die auf diese Weise bestimmten kritischen Temperaturen liegen oberhalb der nach dem modifizierten Tinkham-Modell bestimmten Werte und stimmen für die meisten Proben recht gut mit den  $T_{95}(H)$ -Werten überein.

### Fluktuationen

In der Ginzburg-Landau-Theorie wird der Ordnungsparameter  $\psi_0(\mathbf{r})$ , der den supraleitenden Zustand beschreibt, durch Minimieren der freien Energie  $F$  bestimmt. Bei endlichen Temperaturen  $T > 0$  müssen bei der Bildung thermodynamischer Mittelwerte jedoch alle Zustände  $\psi(\mathbf{r})$  berücksichtigt werden, für die die freie Energie den Minimalwert um bis zu  $\Delta F = k_B T$  übersteigt. Bei Experimenten an Hochtemperatur-Supraleitern in der Nähe von  $T_c$  spielen Fluktuationen des Ordnungsparameters daher schon aufgrund der höheren Temperaturen eine größere Rolle. Außerdem begünstigen sowohl die im Vergleich zu klassischen Supraleitern kleinen Kohärenzlängen als auch die Schichtstruktur der Hochtemperatur-Supraleiter Fluktuationen.

S. Ullah und A. T. Dorsey berechnen die Auswirkungen von Fluktuationen auf die Transporteigenschaften von Typ-II-Supraleitern mit einer geschichteten Struktur in einem äußeren Magnetfeld [Ullah90, Ullah91]. Eine wesentliche Näherung besteht in der Annahme, dass das effektive Magnetfeld mit dem äußeren Feld übereinstimmt. Effekte durch Vortices können in diesem Modell also nicht berücksichtigt werden. Die Schichtstruktur der Hochtemperatur-Supraleiter wird durch ein System paralleler supraleitender Ebenen mit Josephson-Kopplung zwischen benachbarten Ebenen modelliert. Grundlage der Berechnungen ist die zeitabhängige Ginzburg-Landau-Theorie, was die Gültigkeit der Vorhersagen auf Temperaturen nahe  $T_c(H = 0)$  beschränkt. Wechselwirkungen zwischen den Fluktuationen werden in der Hartree-Näherung behandelt.

Wie diese Berechnungen zeigen, lassen sich die Fluktuationsleitfähigkeit und die Temperatur so reskalieren, dass sich die folgenden universellen Skalierungsbeziehungen

$$\tilde{\sigma}_F^\alpha = \mathcal{F}_\alpha(C_\alpha x_\alpha) = \tilde{\mathcal{F}}_\alpha(x_\alpha), \quad \text{mit } \alpha = 2d, 3d \quad (7.26)$$

zwischen reskalierten Fluktuationsleitfähigkeiten

$$\tilde{\sigma}_F^\alpha = \begin{cases} \sigma_F \cdot (H/T)^{1/2} & \text{für } \alpha = 2d \\ \sigma_F \cdot (H/T^2)^{1/3} & \text{für } \alpha = 3d \end{cases} \quad (7.27)$$

und reskalierten Temperaturen

$$x_\alpha = \begin{cases} \left( \frac{T}{T_c} - 1 + \frac{H}{H_{c2}} \right) / (HT)^{1/2} & \text{für } \alpha = 2d \\ \left( \frac{T}{T_c} - 1 + \frac{H}{H_{c2}} \right) / (HT)^{2/3} & \text{für } \alpha = 3d \end{cases} \quad (7.28)$$

in zwei bzw. drei Dimensionen ergeben. Dabei werden die Abkürzungen  $T_c \equiv T_c(H = 0)$  und  $H_{c2} \equiv H_{c2}(T = 0)$  verwendet. Die Skalierungsfunktionen  $\mathcal{F}_{2d}$  und  $\mathcal{F}_{3d}$ , deren genaue Form unbekannt ist, hängen dabei nicht vom betrachteten Materialsystem ab. Materialparameter wie der Ginzburg-Landau-Parameter oder der Abstand der supraleitenden Ebenen gehen nur in die Konstanten  $C_\alpha$  ein. Diese Konstanten lassen sich in die Funktionen einbeziehen, wodurch sich die materialspezifischen Skalierungsfunktionen  $\tilde{\mathcal{F}}_{2d}$  bzw.  $\tilde{\mathcal{F}}_{3d}$  ergeben.

Damit bietet sich die Möglichkeit, aus einem Satz von durch Transportmessungen bestimmten Datentripeln  $\{(T_j, H_j, \sigma_{Fj})\}_{j=1\dots N}$  das kritische Feld  $H_{c2}(T = 0)$  und die kritische Temperatur  $T_c(H = 0)$  als die Parameter zu bestimmen, für die die aus den Ausgangsdaten gemäß (7.26)-(7.28) berechneten  $(x_j, \tilde{\sigma}_{Fj})$ -Punkte am besten auf einer Kurve liegen. F. Gollnik berechnet auf diese Weise die kritischen Felder von NCCO-Filmen verschiedener Dotierung [Gollnik97, Gollnik98]<sup>6</sup>.

Bei der praktischen Durchführung der beschriebenen Fluktuationsanalyse gibt es zwei Schwierigkeiten, zum einen die Bestimmung der Fluktuationsleitfähigkeit und zum anderen die Beurteilung, wie gut die berechneten  $(x_j, \tilde{\sigma}_{Fj})$ -Punkte auf einer Kurve liegen. In der Nähe des Übergangs von der normalleitenden in die supraleitende Phase lässt sich die im Experiment gemessene Gesamtleitfähigkeit  $\sigma_{exp}$  aus dem Beitrag der normalleitenden Phase und aus dem Beitrag der Fluktuationen gemäß

$$\sigma_{exp}(H, T) = \sigma_F(H, T) + \sigma_n(H, T) \quad (7.29)$$

zusammensetzen. Der Verlauf von  $\sigma_n(H, T)$  in der Nähe des Übergangs lässt sich jedoch nur aus dem Verlauf weit im normalleitenden Bereich extrapolieren, in dem Fluktuationen vernachlässigt werden können. Wie in Abschnitt 7.2 diskutiert, hängt der qualitative Verlauf der  $\rho(T)$ -Kurven für feste Magnetfelder im normalleitenden Bereich entscheidend von der Dotierung ab und folgt keinem einfachen funktionalen Zusammenhang. Dahingegen verlaufen die  $\rho(H)$  für feste Temperaturen im normalleitenden Bereich für alle Proben annähernd linear, wobei die Steigung so klein ist, dass auch der Leitwert in diesem Bereich in erster Näherung als lineare Funktion des Magnetfeldes betrachtet werden kann. Daher werden für die folgende Analyse nur  $\rho(H)$ -Messungen für feste Temperaturen herangezogen. Beispielhaft ist eine für eine feste Temperatur gemessene  $\sigma_{exp}(H)$ -Kurve in Teilabbildung 7.21 (a) dargestellt, Teilabbildung (b) zeigt die zugehörige  $\rho_{exp}(H)$ -Kurve. An den normalleitenden Bereich wird eine Gerade  $\sigma_n(H)$  angepasst, die Fluktuationsleitfähigkeit ergibt sich als Differenz der  $\sigma_{exp}(H)$ - und der  $\sigma_n(H)$ -Kurve. Nun bleibt noch zu bestimmen, in welchem Magnetfeldbereich für die betrachtete Temperatur die Gleichung

<sup>6</sup>In [Ullah90] wird der Zähler des Quotienten in (7.28) unter bestimmten Voraussetzungen durch einen Ausdruck  $\propto (T - T_{c2}(H))$  genähert. In [Gollnik97] wird nun eine Fourier-Entwicklung dieses Ausdrucks nahe  $T_{c2}(H = 0)$  durchgeführt und mit Gleichung (7.14) eine Formel erhalten, die aus (7.28) hervorgeht, indem  $H_{c2}$  durch  $H_{c2}/0.691$  ersetzt wird. Im folgenden werde ich die reskalierten Temperaturen nach (7.28) aus der Originalveröffentlichung verwenden und somit Werte für  $H_{c2}$  erhalten, die um 30% über den entsprechenden Werten aus der Analyse nach [Gollnik97] liegen

(7.29) anwendbar ist. Für kleine Felder ( $\sigma_f > \sigma_n$ ) wird der Widerstand von Typ-II-Supraleitern primär durch die Bewegung von Vortizes bestimmt, die in dem Modell von Ullah und Dorsey prinzipiell nicht beschrieben werden können. Für große Felder ( $\sigma_f < \sigma_n$ ) ist der Unterschied zwischen  $\sigma_{exp}(H)$  und  $\sigma_n(H)$  sehr klein, so dass die relative Unsicherheit in  $\sigma_f(H)$  aufgrund der Willkür in der Anpassung der  $\sigma_n(H)$ -Kurve (etwa durch die Auswahl des Magnetfeldbereiches für die Geradenanpassung) gross wird. Daher wird nur der Bereich für die Fluktuationsanalyse ausgewählt, in dem

$$0.05 < \sigma_f / \sigma_n < 1.2 \quad (7.30)$$

gilt. Bei der Wahl der Grenzen habe ich mich an [Gollnik97] orientiert, die untere Grenze aufgrund der Unsicherheiten bei der Geradenanpassung jedoch um einen Faktor 10 größer gewählt. Der entsprechende Magnetfeldbereich für die Beispielkurven in den Abbildungen 7.21 (a) und (b) ist hellgrau hinterlegt.

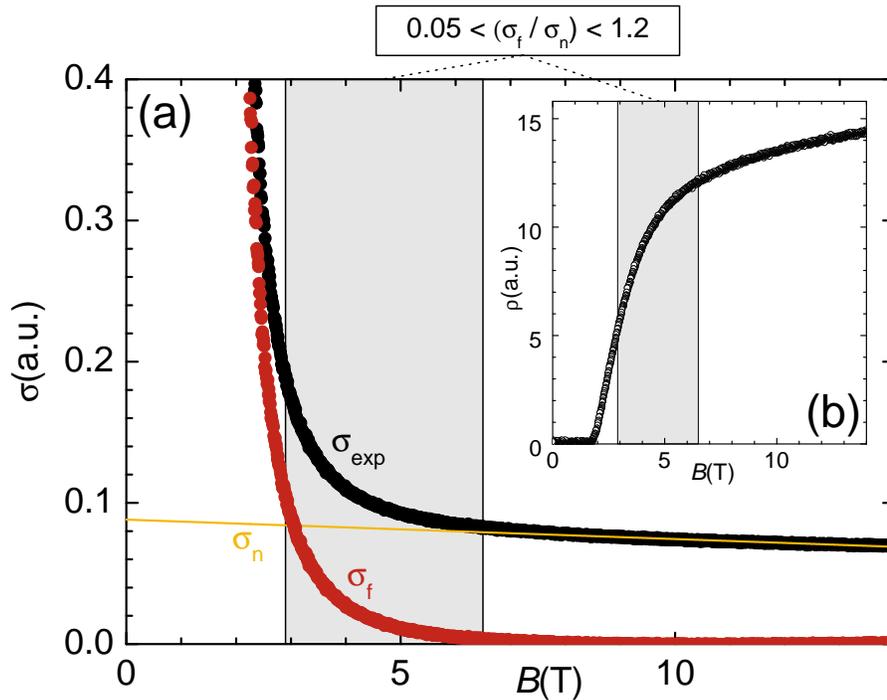


Abbildung 7.21: Illustration zur Bestimmung der Fluktuationsleitfähigkeit  $\sigma_f$  (a) aus einer  $\rho(H)$ -Messung bei konstanter Temperatur (b). Der Magnetfeldbereich, in dem  $\sigma_f$ -Daten für die Fluktuationsanalyse verwendet werden, ist hellgrau hinterlegt.

Die zweite Schwierigkeit bei der Durchführung der Fluktuationsanalyse besteht darin, die Qualität der berechneten Skalierungskurve zu beurteilen. Genauer gesagt soll

eine Kennzahl  $\tilde{\chi}$  etabliert werden, die misst, wie gut die berechneten  $(x_j, \tilde{\sigma}_{Fj})$ -Punkte auf einer Kurve liegen. In [Gollnik97] wird zum Beispiel der Logarithmus der  $\tilde{\sigma}_{Fj}$ -Werte als Funktion der  $x_j$ -Werte durch ein Polynom niedriger Ordnung angepasst und die Standardabweichung dieser Anpassung als Kennzahl verwendet. Genau betrachtet misst diese Kennzahl jedoch nicht, wie gut die berechneten Punkte auf einer Kurve liegen, sondern setzt zusätzlich eine bestimmte Form dieser Kurve voraus. Um diese Beschränkung auf eine spezielle Funktion aufzuheben, wird daher das folgende Verfahren vorgeschlagen, welches lediglich voraussetzt, dass sich die Kurve in jedem Punkt lokal durch eine Gerade annähern lässt.

Gegeben seien ein Satz von Ausgangsdaten  $\{(T_j, H_j, \sigma_{Fj})\}_{j=1\dots N}$  und feste Werte für die Parameter  $T_c$  und  $H_{c2}$ . Daraus wird gemäß (7.26)-(7.28) ein Datensatz  $\{(x_j, \tilde{\sigma}_{Fj})\}_{j=1\dots N}$  berechnet und nach monoton steigenden  $x_j$ -Werten sortiert. Beginnend mit dem kleinsten Wert wird über jeweils  $L$  benachbarte Punkte der  $(x_j, \tilde{\sigma}_{Fj})$ -Kurve eine Geradenanpassung durchgeführt (hier wurde stets  $L = 50$  gewählt) und die Standardabweichung dieser Geradenanpassung berechnet. Da die Punkte längs der x-Achse nicht gleichmäßig dicht verteilt sind, wird diese Standardabweichung noch mit der Länge des Intervalls in x-Richtung gewichtet. Die Kennzahl  $\tilde{\chi}$  ergibt sich nun als Quotient der Summe aus den auf diese Weise erhaltenen gewichteten Standardabweichungen und der Anzahl  $(N-L)$  der durchgeführten Geradenanpassungen. Je kleiner  $\tilde{\chi}$  ist, desto besser liegen die  $(x_j, \tilde{\sigma}_{Fj})$ -Punkte auf einer Kurve. Leider lassen sich die nach dieser Methode für verschiedene Proben berechneten minimalen Kennzahlen  $\tilde{\chi}_{min}$  aufgrund der unterschiedlichen Temperatur- und Magnetfeldbereiche in den Ausgangsdaten nicht direkt vergleichen. Allerdings lässt sich der Bereich der  $(T_c, H_{c2})$ -Ebene um das Minimum, in dem der Wert von  $\tilde{\chi}$  auf einen bestimmten Prozentsatz ansteigt als grobes Maß für die Güte der Skalierung verwenden. (Gelingt die Skalierung nicht gut, so wird auch eine Änderung der Parameter  $T_c$  und  $H_{c2}$  den Wert von  $\tilde{\chi}$  nicht wesentlich verändern.)  $\tilde{\chi}$  als Funktion von  $T_c$  und  $H_{c2}$  numerisch zu minimieren, etwa nach dem in [Press88] dargestellten Verfahren von Nelder und Mead, führt bei genau zwei Variablen häufig zu Konvergenzproblemen. Gerade in diesem Fall bietet es sich jedoch an, die Kennzahl  $\tilde{\chi}$  für ein geeignetes Parameterfeld zu berechnen und in Form eines Höhenprofils über diesem Parameterfeld grafisch darzustellen. Abbildung 7.22 zeigt beispielhaft ein solches Höhenprofil, das aus den  $\rho(T, H)$ -Daten der unterdotierten PCCO-Probe nach dem soeben geschilderten Verfahren für zwei Dimensionen berechnet wurde. Es ergibt sich ein eindeutiges Minimum, auf dessen Wert die  $\tilde{\chi}$ -Werte normiert wurden, in diesem Fall bei  $T_c = 18.1$  K und  $H_{c2} = 12.0$  T. Die für diese Werte nach (7.26)-(7.28) berechneten reskalierten Leitwerte sind in Abbildung 7.23 gegen die entsprechenden reskalierten Temperaturen aufgetragen. Weiterhin sind in Abbildung 7.22 Höhenlinien im Abstand von 25 % eingetragen. Der Bereich in dem die  $\tilde{\chi}$ -Werte um bis zu 25 % ansteigen, wird als Maß für die Fehler der als Minimum bestimmten  $(T_c, H_{c2})$ -Werte verwendet. Die Werte für  $T_c$  und  $H_{c2}$ , die sich nach dieser Analyse in zwei bzw. drei Dimensionen für die Proben der LCCO, PCCO und NCCO-Serien ergeben, sind in Tabelle 7.5 zusammengefasst.

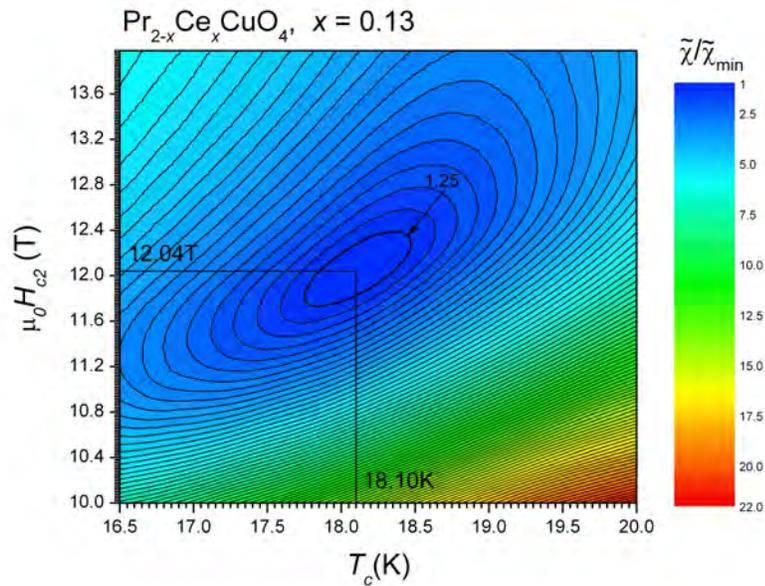


Abbildung 7.22: Kennzahl der Fluktuationsanalyse für P1 in 2 Dimensionen als Funktion der Parameter  $T_c$  und  $H_{c2}$

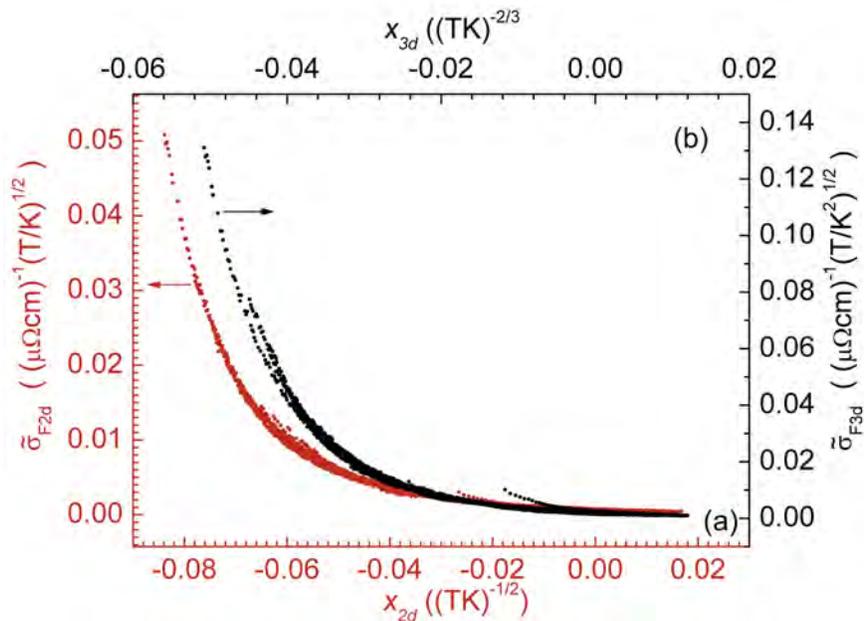


Abbildung 7.23: Reskalierter Leitwert als Funktion der reskalierten Temperatur nach (7.26)-(7.28) für die Probe P1 in 2 und 3 Dimensionen

Probe	$x$	2dim		3dim	
		$T_c$ (K)	$\mu_0 H_{c2}$ (T)	$T_c$ (K)	$\mu_0 H_{c2}$ (T)
L1	0.11	$23.8 \pm 1$	$8.9 \pm 0.4$	$25.8 \pm 0.8$	$9.6 \pm 0.3$
L2	0.12	$25.7 \pm 1.4$	$7.8 \pm 0.5$	$27.2 \pm 0.9$	$8.3 \pm 0.3$
L3	0.15	$21.2 \pm .8$	$4.6 \pm 0.6$	$21.4 \pm 0.7$	$4.6 \pm 0.4$
P1	0.13	$18.2 \pm .4$	$12.1 \pm 0.4$	$17.7 \pm 0.5$	$11.7 \pm 0.5$
P2	0.15	$20.2 \pm 3$	$9.2 \pm 1.2$	$22 \pm 3$	$10 \pm 3$
N1	0.12	$22.1 \pm 2$	$8.8 \pm 1$	$22.1 \pm 0.9$	$8.9 \pm 0.7$
N2	0.15	$18.3 \pm 1.5$	$7.2 \pm 0.3$	$19 \pm 1$	$7.4 \pm 0.5$
N3	0.17	$18.2 \pm 4.5$	$6.6 \pm 1$	$18.8 \pm 4$	$6.8 \pm 0.8$

Tabelle 7.5: Zusammenfassung der Ergebnisse der Fluktuationsanalyse für zwei- bzw. dreidimensionale Systeme

Abbildung 7.23 zeigt die  $\tilde{\sigma}_F(x)$ -Kurven mit den auf diese Weise bestimmten Werten für  $T_c$  und  $H_{c2}$  für die gleiche Probe nach der Analyse für zwei und für drei Dimensionen. Erstaunlicherweise zeigt sich, dass anhand dieser Daten nicht entschieden werden kann, ob die nach dem zweidimensionalen oder nach dem dreidimensionalen Modell berechneten  $(x, \tilde{\sigma}_F)$ -Punkte besser auf einer Kurve liegen, welches Modell also geeigneter ist, die experimentellen Daten zu beschreiben. Dies gilt gleichermaßen für alle untersuchten Proben. Lassen sich die Fluktuationsleitfähigkeiten und Temperaturen so reskalieren, dass die resultierenden  $(x, \tilde{\sigma}_F)$ -Punkte für das zweidimensionale Modell gut auf einer Kurve liegen, so gilt das auch für das dreidimensionale Modell und gelingt umgekehrt die Reskalierung für das zweidimensionale Modell weniger gut, so trifft diese Aussage auch für das dreidimensionale Modell zu. Dies steht im Widerspruch zu der Skalierungsanalyse in [Gollnik97], die eine deutlich bessere Übereinstimmung der Messdaten mit dem zweidimensionalen Modell liefert. Allerdings zeigen auch die Werte in Tabelle 7.5, dass auch die Ergebnisse für  $T_c$  und  $H_{c2}$  nach dem zwei- bzw. dreidimensionalen Modell recht gut übereinstimmen. Insofern könnte es sein, dass sich die untersuchten Materialien tatsächlich in einem Bereich zwischen dem zwei- bzw. dreidimensionalen Grenzfall befinden. Weiterhin zeigt ein Vergleich der Werte aus Tabelle 7.5 mit den Ergebnissen der vorhergehenden Abschnitte, dass die Werte der zu  $T = 0$  extrapolierten  $H_{SP2}(T)$ -Kurven relativ gut mit den  $H_{c2}(0)$ -Werten aus der Fluktuationsanalyse übereinstimmen. Die verschiedenen Auswertungsmethoden ergeben also ein recht konsistentes Bild. Im Hinblick auf die im nächsten Kapitel diskutierten Tunnelmessungen ist insbesondere festzuhalten, dass ein Magnetfeld von 15 T für alle untersuchten Proben ausreicht, um die Supraleitung auch bis zu einer Temperatur von 1 K zu unterdrücken.

# Kapitel 8

## Tunnelspektroskopie-Messungen an Korngrenzenkontakten

Die Tunnelspektroskopie-Messungen an den Korngrenzenkontakten der LCCO- und PCCO-Proben in verschiedenen Dotierungen bilden den Haupt-Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit. Die Ergebnisse dieser Messungen werden in den folgenden drei Abschnitten dargestellt und analysiert.<sup>1</sup> Dabei beschäftigt sich der erste Abschnitt mit Messungen im supraleitenden und im Übergangsbereich der  $(T, H)$ -Ebene. Anschließend werden die Resultate der Messungen vorgestellt, bei denen die Supraleitung durch ein hinreichend großes Magnetfeld unterdrückt wurde. Dabei beschränkt sich die Behandlung in diesem Abschnitt auf die Proben der PCCO-Serie sowie die unterdotierte und die optimal dotierte LCCO-Probe. Die Tunnelspektren der überdotierten LCCO-Probe L3 im Magnetfeld unterscheiden sich grundlegend von den entsprechenden Spektren aller übrigen Proben. Daher wird diesem ungewöhnlichen Verhalten der dritte Abschnitt des vorliegenden Kapitels gewidmet.

### 8.1 Tunnelspektroskopie an supraleitenden Kontakten

Schwerpunktthemen bei der folgenden Analyse der Tunnelspektren an supraleitenden Kontakten sind eine vergleichende Charakterisierung der Kontakte bei möglichst tiefen Temperaturen sowie die Veränderungen der Spektren durch ein äußeres Magnetfeld und durch Erhöhung der Temperatur.

---

<sup>1</sup>Die Resultate der Tunnelmessungen an den Proben der NCCO-Reihe werden aus Gründen der Probenqualität nicht in die folgenden Auswertungen einbezogen. Die Probleme, die sich bei der Untersuchung der NCCO-Proben ergaben, werden im Anhang A.2 erläutert.

### 8.1.1 Charakterisierung der Kontakte bei tiefen Temperaturen im Nullfeld

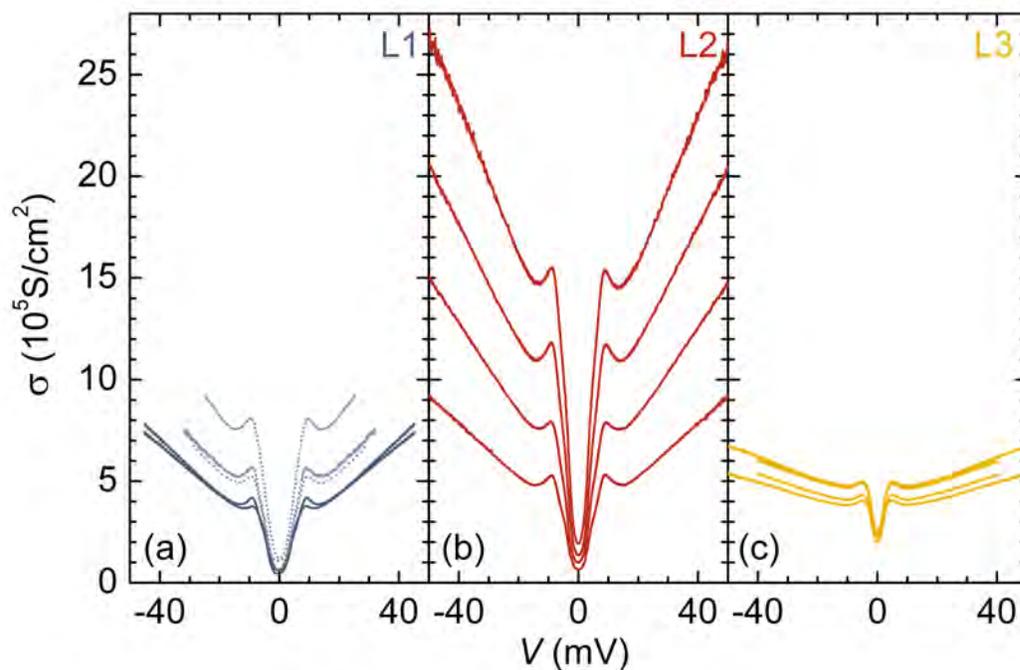


Abbildung 8.1: Tunnelspektren an den Proben der LCCO-Reihe im Nullfeld bei 1.4 K (durchgezogene Linien) und 4.2 K (gestrichelte Linien für L1). Dargestellt ist der spezifische Tunnelleitwert als Funktion der Spannung. Unterschiedliche Kurven in einer Teilabbildung beziehen sich auf unterschiedliche Kontakte einer Probe.

Tunnelspektren an Korngrenzenkontakten, die im Nullfeld und bei möglichst niedriger Temperatur aufgenommen werden<sup>2</sup>, dienen der ersten Charakterisierung sowie als Bezugspunkt für nachfolgende Mess-Serien mit variierender Temperatur oder Magnetfeld. Häufig können solche für die niedrigste erreichbare Temperatur aufgenommenen Kurven in guter Näherung durch theoretische Vorhersagen für  $T = 0$  beschrieben werden. Weiterhin zeigt der Vergleich von an verschiedenen Kontakten derselben Probe unter gleichen Bedingungen aufgenommenen Spektren, welche Merkmale der Kennlinien charakteristisch für die betrachtete Probe sind, und welche Merkmale stark variieren und deswegen wahrscheinlich auf lokale Eigenschaften der einzelnen Kontakte wie Defekte oder Facettierung der Korngrenze zurückzuführen sind. Um einen ersten Überblick zu vermitteln, werden in den Abbildungen 8.1

<sup>2</sup>Bei dem im Rahmen dieser Arbeit hauptsächlich verwendeten Messsystem liegt die niedrigste erreichbare Temperatur bei etwa 1.4 K.

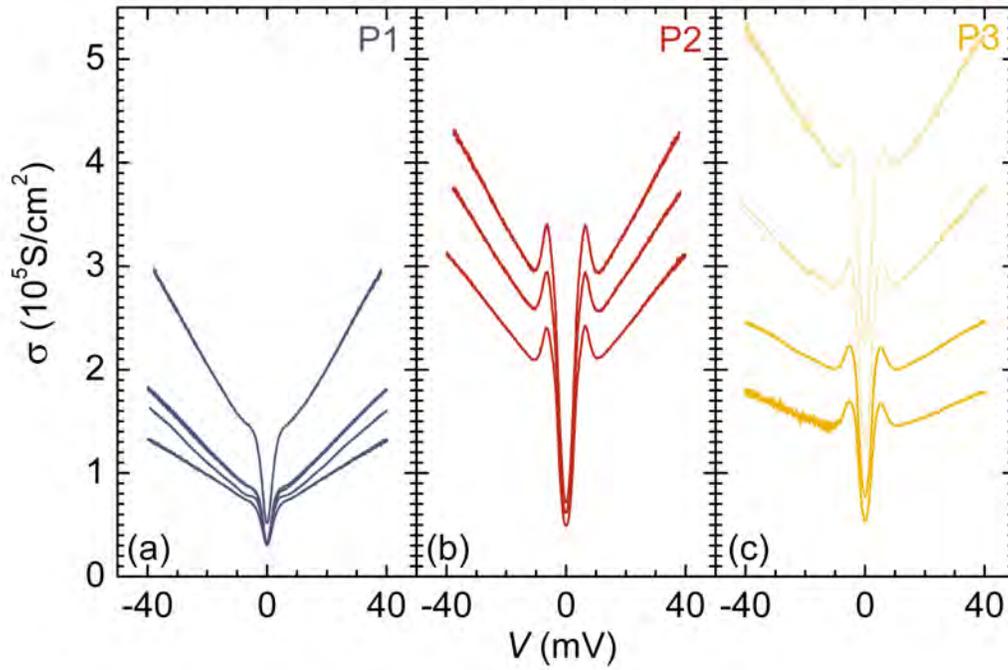


Abbildung 8.2: Tunnelspektren an den Proben der PCCO -Reihe im Nullfeld bei 1.4 K (durchgezogene Linien) und 2 K (gestrichelte Linien für P3). Dargestellt ist der spezifische Tunnelleitwert als Funktion der Spannung. Unterschiedliche Kurven in einer Teilabbildung beziehen sich auf unterschiedliche Kontakte einer Probe.

und 8.2 die den folgenden Auswertungen zugrunde liegenden Tunnelspektren an den Proben der LCCO- und PCCO-Reihe zusammengefasst, also an jeweils einer unterdotierten (a), einer optimal dotierten (b) und einer überdotierten Probe (c). Die in durchgezogenen Linien dargestellten Kurven wurden im Nullfeld und bei  $T = 1.4 \text{ K}$  aufgenommen. Die in gestrichelten Linien dargestellten Kurven, die bei 4.2 K für Probe L1 und 2 K für Probe P3 im Nullfeld aufgezeichnet wurden, wurden in die Auswertungen mit einbezogen, da ansonsten für die betreffenden Proben nur Messungen an jeweils zwei Kontakten vorliegen. Alle in den Abbildungen 8.1 und 8.2 dargestellten Spektren wurden auf die Flächen der jeweiligen Tunnelkontakte (Produkt aus Filmdicke und Brückenbreite) normiert, so dass der spezifische Tunnelleitwert in  $\text{S/cm}^2$  angegeben ist. Folgende Beobachtungen sind festzuhalten:

Zunächst zeigen alle Spektren ein deutlich ausgeprägtes Minimum symmetrisch um  $V = 0$ . Anzeichen einer Nullspannungsanomalie wie sie bei lochdotierten Materialien häufig auftritt, also eines Maximums im Zentrum der Lücke, werden jedoch an keinem einzigen der untersuchten Kontakte beobachtet. Die Lücke wird zu beiden

Seiten durch mehr oder weniger ausgeprägte Kohärenzmaxima begrenzt. Im Hintergrundbereich steigt der Leitwert in guter Näherung linear mit dem Betrag der Spannung an. Ein Vergleich der Leitwertskalen für die Abbildungen 8.1 und 8.2 zeigt, dass die spezifischen Tunnelleitwerte für die LCCO-Serie im Mittel etwa eine halbe Größenordnung über den Werten der PCCO-Serie liegen. Abstand und Ausprägung der Kohärenzmaxima scheinen charakteristisch für die jeweils untersuchte Probe zu sein, während die Größen der spezifischen Tunnelleitwerte sich für verschiedene Kontakte einer Probe zum Teil stark unterscheiden können. Besonders bemerkenswert sind in diesem Zusammenhang die Spektren der unterdotierten PCCO-Probe in 8.2 (a), bei der die Kohärenzmaxima fast völlig unterdrückt sind. Weiterhin wird in keinem der untersuchten Kontakte ein messbarer Josephson-Strom beobachtet, was mit hoher Wahrscheinlichkeit auf den großen Korngrenzenwinkel von  $36.8^\circ$ , den steilen exponentiellen Abfall der maximalen Josephson Stromdichte mit zunehmendem Korngrenzenwinkel [Kleefisch00] und die mangelnde Abschirmung äußerer Magnetfelder zurückzuführen ist, die sich in einem Labor für Messungen in Feldern bis zu 15 T nicht ganz vermeiden lässt.

Um einen besseren Vergleich zwischen Spektren an verschiedenen Kontakten derselben Probe zu ermöglichen, wurden alle Spektren in einem nächsten Schritt auf ihre Werte bei  $V = 20$  mV skaliert und in den Abbildungen 8.3 und 8.4 dargestellt. Hier zeigt sich deutlich, dass sowohl Form und Tiefe der Lücke als auch die Hintergrundleitfähigkeit für diese skalierten Kurven bei den meisten Proben für verschiedene Kontakte derselben Probe gut übereinstimmen. Diese Eigenschaften sind also charakteristisch für die jeweils betrachtete Probe. Am besten ist die Übereinstimmung bei der überdotierten LCCO-Probe (L3) und der optimal dotierten PCCO-Probe (P2). Die skalierten Spektren der unterdotierten LCCO-Probe (L1) und der überdotierten PCCO-Probe (P3) zeigen dagegen noch deutliche Unterschiede im Hinblick auf die Höhe der Kohärenzpeaks und die Tiefe der Lücke, was darauf schließen lässt, dass diese Proben im Vergleich zu den übrigen größere Inhomogenitäten aufweisen.

Bevor die Eigenschaften der aufgezeichneten Spektren quantitativ genauer charakterisiert werden, beschäftigt sich der folgende Unterabschnitt näher mit zwei wichtigen qualitativen Eigenschaften.

### **Nullspannungsanomalie und Hintergrund**

Der vielleicht auffallendste qualitative Unterschied zwischen Tunnelspektren an loch- und elektronendotierten Supraleitern besteht darin, dass für lochdotierte Materialien nahezu in allen Experimenten eine sogenannte **Nullspannungsanomalie** (ZBA<sup>3</sup>), also ein ausgeprägtes Maximum bei  $V = 0$  auftritt, während eine ähnliche Struktur in Kontakten aus elektronendotierten Supraleitern mit ganz wenigen Ausnahmen nicht beobachtet wird [Kashiwaya00, Alff98, und Referenzen darin]. Dieser Unter-

---

<sup>3</sup>zero bias anomaly

schied wird in Abbildung 8.5 am Beispiel eines Spektrums für einen Kontakt der hier untersuchten optimal dotierten PCCO-Probe (a) und für einen Korngrenzenkontakt aus sauerstoffreduziertem  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (b) illustriert, den ich im Rahmen meiner Diplomarbeit untersucht habe. Die Abwesenheit einer Nullspannungsanomalie bei dem im Rahmen dieser Arbeit aufgezeichneten Spektren wird in Abschnitt A.1 im Hinblick auf die Symmetrie des Ordnungsparameters noch einmal näher diskutiert und mit anderen in der Literatur veröffentlichten Ergebnissen verglichen.

Natürlich lässt sich die Abwesenheit einer Struktur schwer näher untersuchen, auf jeden Fall ist jedoch festzuhalten, dass für keinen einzigen der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Kontakte im supraleitenden Zustand (auch für die Kontakte der NCCO-Serie, die nicht in die quantitative Auswertung einbezogen wurden, vgl. Abschnitt A.2) ein Anzeichen eines Maximums bei  $V = 0$  beobachtet wird, insbesondere ändert sich die Form der Spektren nahe  $V = 0$  nicht qualitativ als Funktion der Dotierung  $x$ . Insofern lassen sich im Rahmen der hier vorgestellten Messungen auch keine Aussagen über einen möglichen Übergang zwischen verschiedenen Symmetrien als Funktion der Dotierung machen, der in einigen Veröffentlichungen vorgeschlagen wird [Biswas02, Qazilbash03].

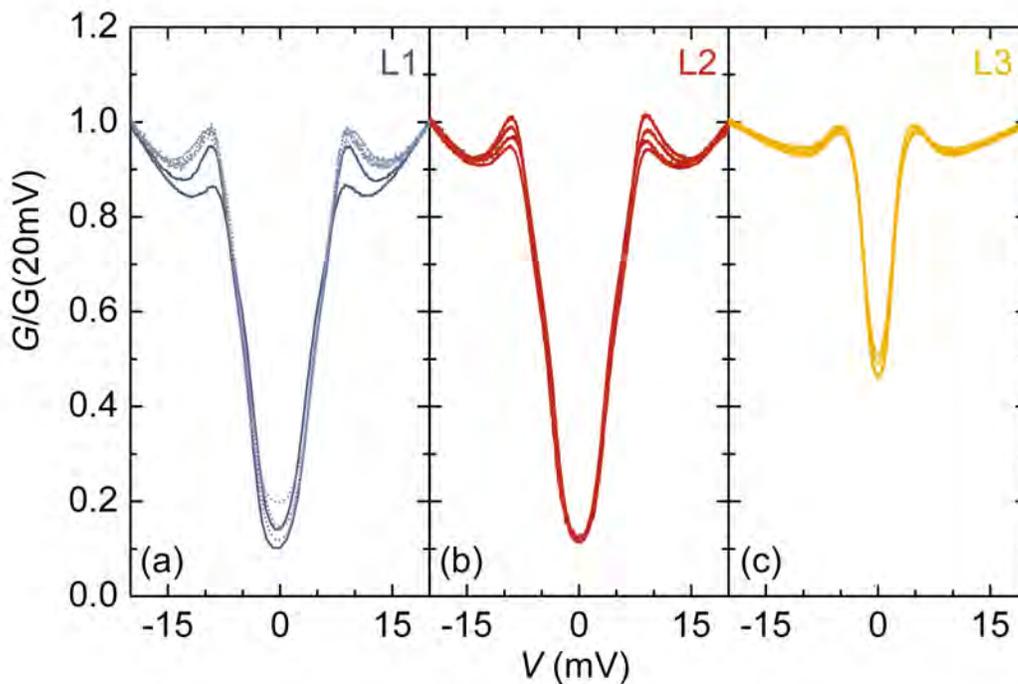


Abbildung 8.3: Auf ihre Leitwerte bei  $V = 20$  mV skalierte Tunnelspektren an LCCO-Proben aus Abbildung 8.1

Ein weiteres auffälliges Merkmal der Spektren in den Abbildungen 8.1 und 8.2 ist die Hintergrundleitfähigkeit. Abbildung 8.6 zeigt, dass der Zusammenhang zwischen dem Leitwert und dem Betrag der Spannung im Hintergrundbereich für Spannungen bis zu 80 mV in guter Näherung durch eine Gerade beschrieben werden kann. Messungen, die im Rahmen einer zeitgleich mit dieser Arbeit durchgeführten Diplomarbeit an den gleichen PCCO-Proben durchgeführt wurden, zeigen, dass es erst für Spannungen von mehreren hundert mV zu Abweichungen von diesem Verhalten kommt [Krockenberger02], die eventuell in Verbindung mit einem Effekt stehen, der in Abschnitt 2.3 als große Pseudolücke bezeichnet wird und beispielsweise in ARPES-Messungen an elektronendotierten Materialien beobachtet wird [Onose04]. Auf eine nähere Untersuchung im Rahmen dieser Arbeit wurde jedoch verzichtet, da durch die hohen Ströme, die bei den entsprechenden Messungen über die Korngrenzen fließen, bereits zahlreiche Messbrücken zerstört wurden.

Abbildung 8.6 illustriert jedoch noch ein weiteres Problem, das bei dem Versuch auftritt, die Form der  $G(V)$ -Spektren quantitativ genauer zu beschreiben. Ein linearer Zusammenhang ist natürlich der Sonderfall eines Potenzgesetzes der Form

$$f(V) = A + B|V|^p \quad (8.1)$$

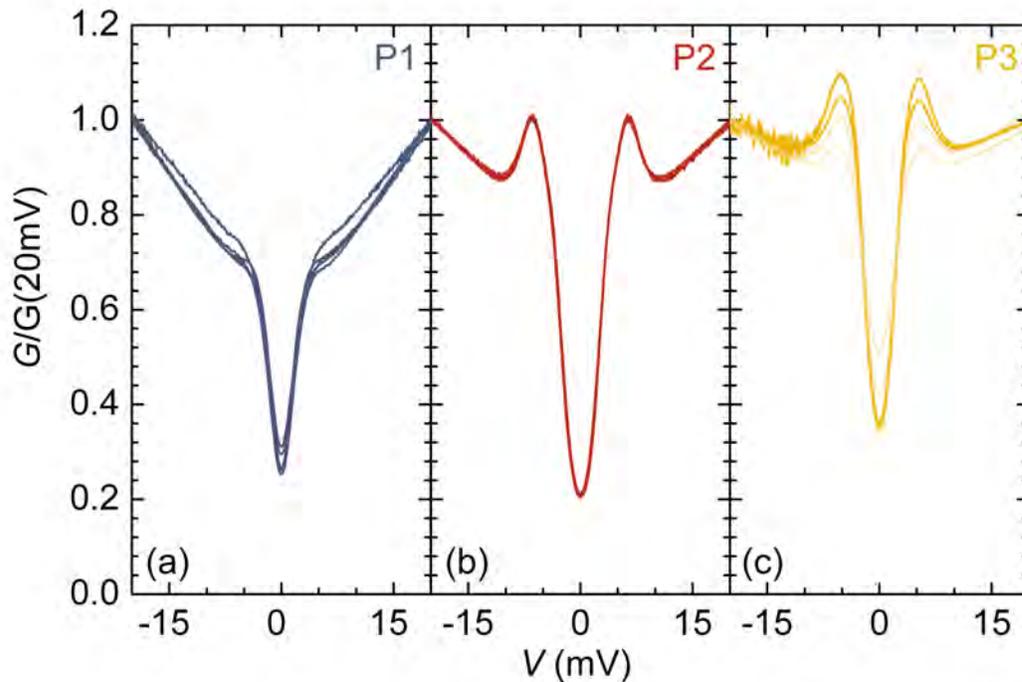


Abbildung 8.4: Auf ihre Leitwerte bei  $V = 20$  mV skalierte Tunnelspektren an PCCO-Proben aus Abbildung 8.2

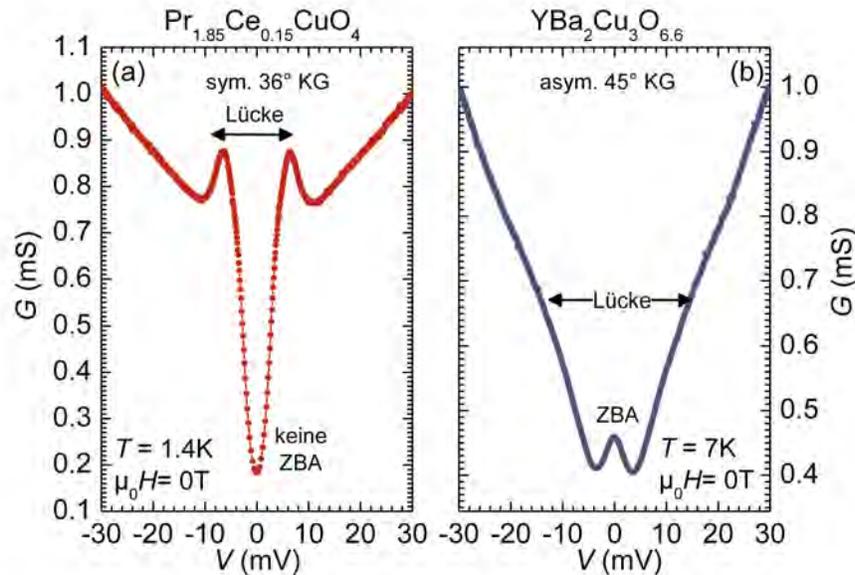


Abbildung 8.5: Vergleich typischer Tunnelspektren für elektronen- und lochdotierte Hochtemperatursupraleiter am Beispiel eines Spektrums aus Abbildung 8.2(a) und eines Spektrums aus [Welter00] (b).

für  $p = 1$ . Es ist anhand der Messdaten nicht leicht zu entscheiden, ob durch Variation von  $p$  eventuell noch eine bessere Übereinstimmung mit der experimentellen Leitwertkurve im Hintergrundbereich erreicht werden kann. Exemplarisch wurden durch Variation der Parameter  $A$  und  $B$  Gleichungen der Form (8.1) für  $p = 0.8$ ,  $p = 1.0$  und  $p = 1.2$  an die Messdaten in Abbildung 8.6 angepasst. Der Bereich, in dem sich die resultierenden Kurven signifikant unterscheiden, entspricht genau dem Bereich der Energielücke, in dem keine Messdaten für die Anpassung zur Verfügung stehen. Insbesondere lässt sich aus diesem Grund der Exponent  $p$  nicht durch eine doppeltlogarithmische Darstellung der Messdaten ermitteln. Für einen Zusammenhang der Form (8.1) kann man prinzipiell der Exponent  $p$  als Steigung der Gerade bestimmen, die entsteht, wenn man die Größe  $f(V) - A$  doppeltlogarithmisch gegen  $|V|$  aufträgt. Aus den Messdaten im Nullfeld lässt sich der Parameter  $A$  jedoch nicht bestimmen, denn wie Abbildung 8.6 zeigt, hängt der Parameter  $A = f(V = 0)$  entscheidend davon ab, welcher Wert für den Parameter  $p$  vorausgesetzt wird.

In Abschnitt 4.2 werden einige Modelle für Prozesse vorgestellt, die zu einer linearen Hintergrundleitfähigkeit führen, etwa eine entsprechende Energieabhängigkeit der Zustandsdichte, direktes inelastisches Tunneln für eine bestimmten Form der Anregungsmoden oder eine bestimmte Form der Tunnelwahrscheinlichkeit, die eventuell auf resonantes Tunneln über eine Verteilung von Zwischenzuständen zurückgeführt werden kann. Andererseits würde inelastisches Tunneln über einen Zwischenzu-

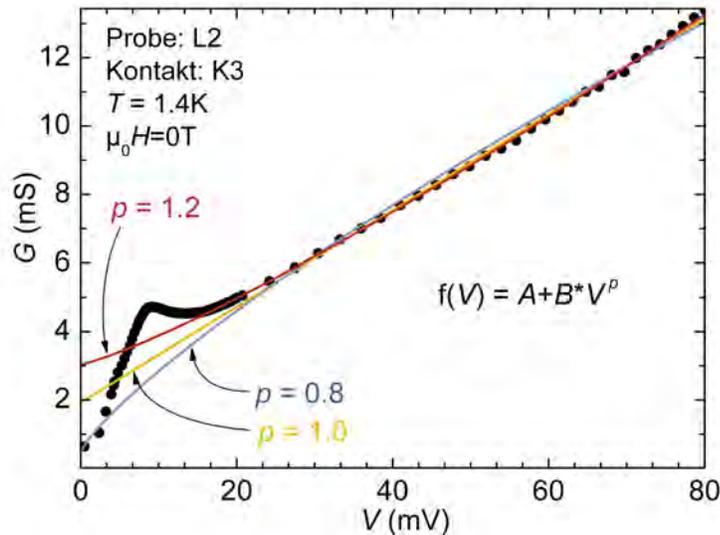


Abbildung 8.6: An einem Kontakt der optimal dotierten LCCO-Probe aufgenommenes Leitwertsspektrum mit verschiedenen an den Hintergrundbereich angepassten Funktionen der Form  $A + Bx^p$ .

stand zu einem Exponenten von  $p = 4/3$  führen, was den Verlauf der Hintergrundleitfähigkeit in Abbildung 8.6 ebenfalls erklären könnte. Gegen inelastisches Tunneln spricht allerdings zum einen, dass die Hintergrundleitfähigkeit nahezu temperaturunabhängig ist (vgl. Abschnitt 8.1.3), zum anderen dass in den Tunnelspektren Strukturen wie die Kohärenzmaxima, die auf die Zustandsdichte der Elektroden zurückgehen, deutlich zu erkennen sind. Bei inelastischen Prozessen verliert die tunnelnde Anregung die Information über die Energie vor dem Tunnelprozess. Insofern sollten Spektren, bei denen inelastische Prozesse eine große Rolle spielen, keine Informationen mehr über die Zustandsdichte der Elektroden zu entnehmen sein. Aus diesem Grund wird für die genauere Auswertung in den folgenden Abschnitten zunächst von der einfachsten Möglichkeit eines linearen Zusammenhangs zwischen dem Tunnelleitwert und dem Betrag der am Kontakt abfallenden Spannung ausgegangen. Die Möglichkeit eines Potenzgesetzes zur Beschreibung der  $G(V)$ -Spektren wird in Abschnitt 8.2.8 bei der Behandlung der Spektren in hohen Magnetfeldern im Rahmen des Modells der Korrelationslücke noch einmal aufgegriffen.

### Kenngrößen

Um die Eigenschaften der Spektren quantitativ besser erfassen und vergleichen zu können, lassen sich eine Reihe von Kenngrößen definieren. Anhand von Abbil-

Abbildung 8.1.1 soll die Bestimmung dieser Kenngrößen aus den Tunnelspektren näher erläutert werden. Dargestellt ist ein typisches Tunnelspektrum mit ausgeprägten Kohärenzmaxima und einer linearen Hintergrundleitfähigkeit. Zunächst wird im Bereich dieser linearen Hintergrundleitfähigkeit eine Funktion  $f_{lin}(V, C, m)$  gemäß (4.23) an die experimentellen Daten angepasst. Der auf diese Weise erhaltene Hintergrund  $f_{lin}(V, C, m)$  ist in Abbildung 8.1.1 als Linie eingezeichnet. Als Kenngröße wurde der Quotient  $m/C$  ausgewählt, da für Tunnelspektren an Kontakten aus Hochtemperatursupraleitern wie  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  [Cucolo96] und auf Basis von Bismuth-Blei-Oxiden [Sharifi91] eine direkte Proportionalität  $m \sim C$  beobachtet wird, wenn für ein Elektrodenmaterial die Beschaffenheit der Tunnelbarrieren (durch unterschiedliche Präparationsmethoden) verändert wird.  $m/C$  wird im folgenden kurz als normierte Hintergrundsteigung bezeichnet.

Um erste Aussagen über die Energielücke und die Kohärenzmaxima zu ermöglichen, bietet es sich an, zunächst die Lage und Höhe der Extrema zu bestimmen, die in Abbildung 8.1.1 durch unausgefüllte Punkte markiert und mit den Zahlen 1-5 gekennzeichnet sind. Der Abstand  $V_\Delta$  der Extrema 3 und 4 liefert ein erstes Maß für die Breite der Energielücke. So werden für einen klassischen  $s$ -Wellen Supraleiter scharf ausgeprägte Extrema mit  $eV_\Delta = 4\Delta$  erwartet.

Die mittlere Leitwert der beiden Kohärenzmaxima (Extrema 3-4) wird im folgenden als  $G_{CP}$ , der mittlere Leitwert der Extrema 1 und 2 wird als  $G_{BG}$  und der Leitwert im tiefsten Punkt der Energielücke (5) wird als  $G_{ZB}$  bezeichnet.<sup>4</sup> Ausgehend von

<sup>4</sup>Die Abkürzungen stehen für **co**herence **p**eak, **b**ackground und **z**ero **b**ias

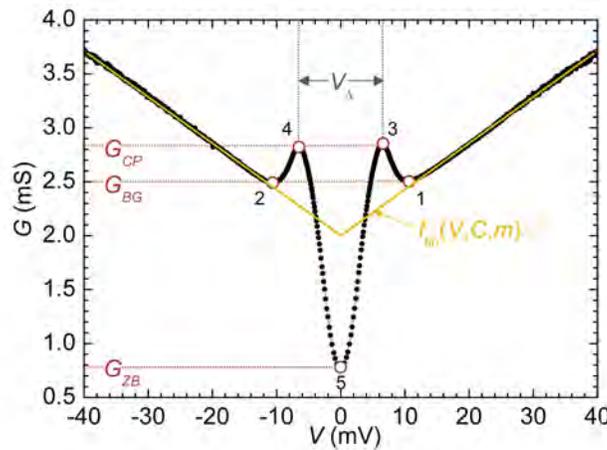


Abbildung 8.7: Schematische Darstellung eines bei niedriger Temperatur ( $T \leq 5$  K) im Nullfeld aufgenommenen Tunnelspektrums sowie der daraus gewonnenen Kenngrößen. Die genaue Beschreibung der einzelnen Kenngrößen erfolgt im Text.

diesen Größen lassen sich

$$\text{die Peakhöhe } PH = (G_{CP} - G_{BG})/G_{BG} \quad (8.2)$$

und

$$\text{die Modulationstiefe } MT = (G_{BG} - G_{ZB})/G_{BG} \quad (8.3)$$

als neue Kenngrößen definieren. Für die an der unterdotierten PCCO-Probe P1 aufgenommenen Spektren, bei denen von den in Abbildung 8.1.1 gut zu erkennenden Extrema 1-4 nur noch eine Art Schulterstruktur geblieben ist, muss eine leicht modifizierte Auswertungsmethode angewandt werden. Um zu demonstrieren, dass diese modifizierte Auswertungsmethode für Spektren mit ausgeprägten Kohärenzmaxima zu den gleichen Ergebnissen führt, wie das ursprüngliche Verfahren, wird die modifizierte Auswertungsmethode in Abbildung 8.8 anhand von Spektren beider Sorten illustriert.

Teilabbildung (a1) zeigt ein Spektrum mit ausgeprägten Kohärenzmaxima, Teilabbildung (a2) ein Spektrum ohne solche Extrema. An den Hintergrund beider Spektren wird jeweils wieder eine Funktion  $f_{lin}(V, C, m)$  angepasst und in den Abbildungen als durchgezogene Linie dargestellt. Die Teilabbildungen (b1) und (b2) zeigen die jeweiligen Differenzkurven aus ursprünglichen Daten und Hintergrundfunktionen. Dabei ist die Skalierung der horizontalen  $V$ -Achse jeweils für die Teilabbildungen (a1) und (b1) bzw. für (a2) und (b2) identisch. Anhand dieser Differenzkurven lassen sich nun charakteristische Spannungen 1'-4' wie folgt bestimmen: Die Maxima der Differenzkurve liegen bei den Spannungen 3' bzw. 4'. Die Spannungen 1' und 2' ergeben sich aus den Schnittpunkten der  $G - f_{lin} = 0$ -Achse und den beiden Geraden, die jeweils an den linearen Bereich der äußeren Flanken der beiden Maxima angepasst werden und in den Teilabbildungen (b1) und (b2) als durchgezogene Linien dargestellt sind. Die Bereiche, die den jeweiligen Geradenanpassungen zugrundeliegen sind in den Teilabbildungen grau hinterlegt.

Die auf diese Weise bestimmten Spannungswerte 1'-4' sind in allen Teilabbildungen durch vertikale Linien markiert. In Teilabbildung (a1) sind die gemäß der oben erläuterten aus der Lage der Extrema bestimmten charakteristischen Punkte 1 - 5 zusätzlich durch unausgefüllte Punkte gekennzeichnet. Es zeigt sich, dass die Spannungen 1'-4' in guter Näherung mit den Spannungswerten dieser charakteristischen Punkte 1 - 4 übereinstimmen. Daher wurden an den Proben der unterdotierten PCCO-Probe, die keine ausgeprägten Kohärenzmaxima zeigen, charakteristische Punkte nach dieser modifizierten Auswertungsmethode bestimmt und in Teilabbildung (a2) exemplarisch ebenfalls durch unausgefüllte Punkte gekennzeichnet. Eine Peakhöhe gemäß (8.2) zu bestimmen, erscheint für Spektren wie in Abbildung (a2) jedoch nicht sinnvoll, da sich hierfür negative Werte ergeben würden.

Die auf die oben beschriebene Weise bestimmten Kenngrößen für die Proben der LCCO- und PCCO-Serie, also die Größe  $V_{\Delta}$  bzw.  $V_{\Delta}/4$ , die Modulationstiefe  $MT$ , die Peakhöhe  $PH$  und die normierte Hintergrundsteigung  $m/C$  sind in Tabelle 8.1

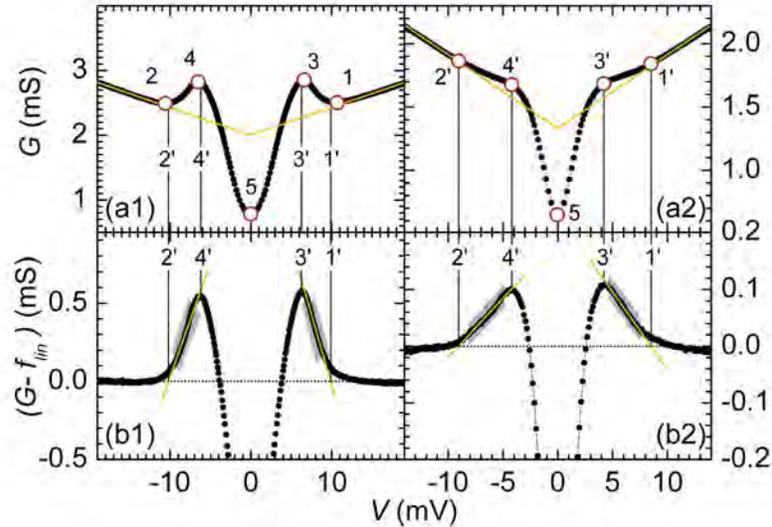


Abbildung 8.8: Schematische Darstellung der Ermittlung der charakteristischen Punkte 1-5 in Spektren ohne ausgeprägte Kohärenzmaxima

Probe	Anzahl der Spektren	$V_{\Delta}/4(= \Delta/e)$ (mV)	$m/c$ (1/V)	$MT$ (%)	$PH$ (%)	$2\Delta/k_B T_c$
L1	5(2)	$4.6 \pm 0.2$	$59 \pm 28$	$85.8 \pm 2.6$	$6 \pm 3$	$3.8 \pm 0.2$
L2	5	$4.5 \pm 0.1$	$50 \pm 9$	$86.9 \pm 0.8$	$8 \pm 4$	$3.6 \pm 0.1$
L3	5	$2.5 \pm 0.1$	$14 \pm 1$	$48.7 \pm 2.8$	$5 \pm 2$	$2.7 \pm 0.1$
P1	5	$2.3 \pm 0.5$	$42 \pm 14$	$63.7 \pm 5.3$	—	$3 \pm 0.6$
P2	3	$3.2 \pm 0.03$	$22 \pm 1$	$76 \pm 0.6$	$15 \pm 1$	$3.2 \pm 0.03$
P3	4(2)	$2.7 \pm 0.1$	$12 \pm 2$	$61.8 \pm 0.2$	$13 \pm 3$	$3.1 \pm 0.1$

Tabelle 8.1: Aus den Spektren in den Abbildungen 8.1 und 8.2 bestimmte Kenngrößen. Nähere Erläuterungen befinden sich im Text.

zusammengefasst. Bei den angegebenen Größen handelt es sich immer um die Mittelwerte über die verschiedenen Kontakte einer Probe. Da für eine Berechnung sinnvoller statistischer Größen etwas zu wenig Daten vorliegen, ist nicht die Standardabweichung sondern die maximale Abweichung vom Mittelwert als Fehler angegeben. Die Anzahl der dabei verwendeten Spektren an verschiedenen Kontakten einer Probe ist dabei in der zweiten Spalte vermerkt. Für die Proben L1 und P3 wurden, wie zuvor erläutert, einige Spektren bei Temperaturen etwas oberhalb von 1.4 K aufgezeichnet. Da, wie in Abschnitt 8.1.3 gezeigt wird, der Abstand der Kohärenzmaxima und die Hintergrundsteigung im Temperaturbereich unterhalb von 10 K nur sehr schwach von der Temperatur abhängen, Peakhöhe und Modulationstiefe jedoch mit

zunehmender Temperatur deutlich abnehmen, wurden für die Bestimmung von  $V_\Delta$  und  $m/c$  jeweils alle Spektren in die Berechnung mit einbezogen, für *PH* und *MT* nur die bei 1.4 K aufgenommenen Spektren, deren Anzahl in der zweiten Spalte von Tabelle 8.1 in Klammern angegeben ist.

Ein Vergleich der maximalen relativen Abweichungen vom Mittelwert der verschiedenen Kenngrößen zeigt, dass der Abstand der Kohärenzmaxima  $V_\Delta$  und die Modulationstiefe von Spektren verschiedener Kontakten einer Probe bei allen Proben eine besonders kleine Streuung aufweisen, die Peakhöhe eine besonders große Streuung. Die Peakhöhe scheint also stärker von lokalen Eigenschaften der Probe beeinflusst zu werden, während die Modulationstiefe und der Abstand der Kohärenzmaxima Informationen über Eigenschaften liefern, die charakteristisch für die gesamte jeweils betrachtete Probe sind.

Geht man von dem für einen klassischen *s*-Wellen Supraleiter gültigen Zusammenhang zwischen der Energielücke  $\Delta$  und dem Abstand der Kohärenzpeaks  $V_\Delta$  aus, also von  $eV_\Delta = 4\Delta$ , so ergeben sich für die Proben der LCCO-Serie Energielücken von 2.5 meV bis 4.6 meV, für die Proben der PCCO-Serie von 2.3 meV bis 3.2 meV, was gut mit den Ergebnissen früherer Messungen an ähnlichen Korngrenzenkontakten aus PCCO und NCCO übereinstimmt [Kleefisch00]. Die resultierenden Werte für das BCS-Verhältnis  $2\Delta/k_B T_c$  liegen bei den LCCO-Spektren zwischen 2.6 und 3.9, bei den PCCO-Spektren zwischen 2.6 und 3.6, also zum Teil etwas unter dem theoretischen Wert von 3.5 für *s*-Wellen-Symmetrie und deutlich unterhalb des Wertes von 4.3, der für *d*-Wellen-Symmetrie berechnet wird. [Combescot98].

Im folgenden Abschnitt soll der Zusammenhang zwischen den Kenngrößen und den Dotierungen der Proben untersucht werden. Dabei ist natürlich zu beachten, dass nur drei Dotierungen pro Probenserie vorliegen und aus drei Punkten natürlich kein funktionaler Zusammenhang zwischen den Größen abgeleitet werden kann. Eventuell lässt sich jedoch ein Trend erkennen und mit der Dotierungsabhängigkeit anderer Größen wie der kritischen Temperatur vergleichen. Daher ist in Abbildung 8.9 sowohl der Abstand  $V_\Delta$  der Kohärenzpeaks als auch die kritische Temperatur als Funktion der Dotierung für die LCCO- (a) und die PCCO-Serie (b) aufgetragen. Dabei bezieht sich die linke vertikale Skala auf  $V_\Delta$ , die rechte auf  $T_c$ , wobei sich die beiden Skalen nur um einen konstanten Faktor unterscheiden. Die horizontale Skala ist für beide Größen identisch. Die  $T_c$ -Werte wurden durch eine gestrichelte Trendlinie verbunden. Abbildung 8.9 zeigt, dass die Entwicklung des Abstandes der Kohärenzmaxima mit zunehmender Dotierung qualitativ der Entwicklung der kritischen Temperatur sehr ähnlich ist. Für die PCCO-Serie lassen sich die  $V_\Delta(x)$  und die  $T_c(x)$ -Kurven sogar innerhalb ihrer Fehlergrenzen recht gut aufeinander skalieren, während diese Skalierung für die LCCO-Serie etwas weniger gut gelingt. Abbildung 8.10 zeigt analog zu Abbildung 8.9 die Modulationstiefe *MT* zusammen mit der kritischen Temperatur als Funktion der Dotierung. Obwohl auch hier eine deutliche qualitative Ähnlichkeit vorliegt, gelingt eine Skalierung der  $MT(x)$ -Kurve auf die  $T_c(x)$ -Kurve nicht gut.

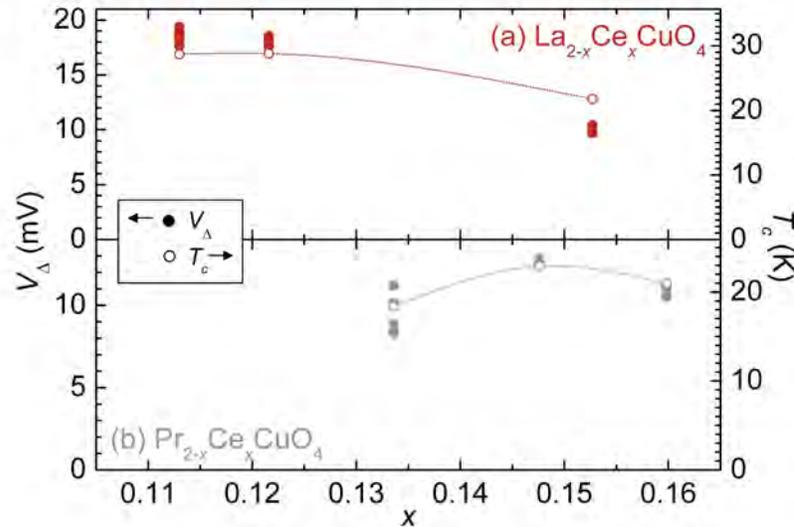


Abbildung 8.9: Abstand der Kohärenzpeaks sowie kritische Temperatur als Funktion der Dotierung für die Spektren der LCCO - (a) und PCCO -Serie (b) aus den Abbildungen 8.1 und 8.2

Aufgrund der großen Streuung der Werte für die Peakhöhe und der Tatsache, dass sich diese Größe für P1 nicht sinnvoll bestimmen lässt, wurde auf eine graphische Darstellung der  $PH$ -Werte als Funktion der Dotierung verzichtet.

Für die normierte Hintergrundsteigung  $m/C$  schließlich wurde eine andere Darstellung gewählt. Da für Kontakte aus verschiedenen supraleitenden Bismuth-Blei-Oxiden über einen Temperaturbereich von unter 1 K bis zu 30 K eine direkte Proportionalität zwischen  $m/C$  und der kritischen Temperatur  $T_c$  des untersuchten Supraleiters beobachtet wurde, sind auch hier für alle Proben der LCCO- und PCCO-Serie die Quotienten  $m/C$  gegen die jeweiligen kritischen Temperaturen in Teilabbildung 8.11 (a) aufgetragen. Besonders bemerkenswert an Abbildung 8.11 ist, dass tatsächlich alle Punkte relativ gut auf einer Gerade liegen - mit Ausnahme aller an der unterdotierten PCCO-Probe (P1) bestimmten Werte für  $m/c$  und einem einzigen weiteren Punkt, der wohl als Ausreißer gewertet werden kann. Zieht man weiterhin die Tatsache in Betracht, dass gerade die an P1 gemessenen Spektren sich durch die stark unterdrückten Kohärenzpeaks auch qualitativ von den Spektren anderer Proben unterscheiden, so kann dies eventuell als Hinweis darauf gewertet werden, dass die Hintergrundleitfähigkeit bei der unterdotierten PCCO-Probe durch andere Effekte beeinflusst wird, als bei den übrigen PCCO und LCCO-Proben. Dagegen spricht jedoch, dass für alle untersuchten Proben die normierte Hintergrundsteigung als Funktion der Dotierung  $x$  monoton abnimmt, wie Teilabbildung 8.11 (b)

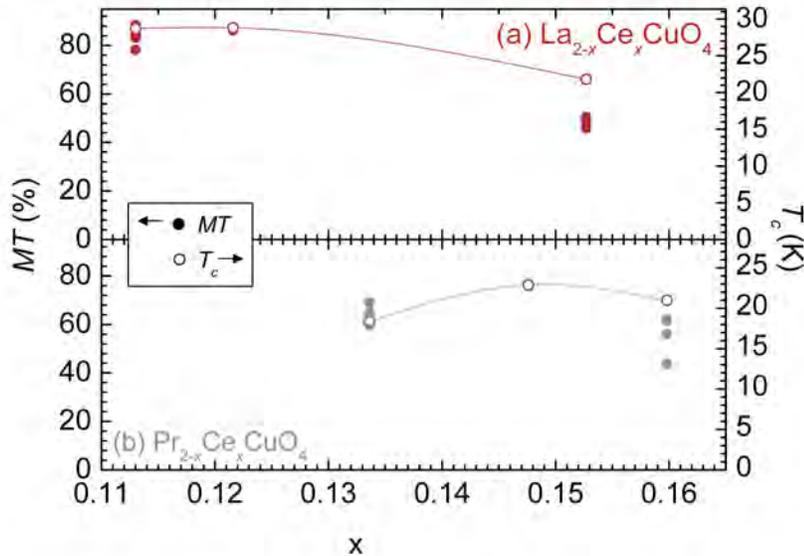


Abbildung 8.10: Modulationstiefe gemäß Gleichung (8.3) als Funktion der Dotierung für die Spektren der LCCO - und PCCO -Serie aus den Abbildungen 8.1 und 8.2

zeigt. Der Zusammenhang kann hier für alle Proben relativ gut durch eine lineare Funktion beschrieben werden, auch wenn die Streuung der Werte für verschiedene Kontakte einer Probe keine eindeutigen Schlussfolgerungen über den funktionalen Zusammenhang zulässt.

### Entfaltung

In Abschnitt 4.1 wurde erläutert, wie im Rahmen des Modells eines eindimensionalen symmetrischen SIS-Tunnelkontaktes mit konstanter Tunnelwahrscheinlichkeit bei  $T = 0$  aus einem Tunnelspektrum  $G(V)$  die zugrundeliegende Zustandsdichte  $N(E)$  gemäß (4.9) und (4.11) rekonstruiert werden kann. Natürlich ist es fraglich, inwieweit sich die bei tiefen Temperaturen aufgenommenen Tunnelspektren tatsächlich durch dieses sehr einfache Modell beschreiben lassen. Insbesondere wird vorausgesetzt, dass auch die Hintergrundleitfähigkeit auf die Zustandsdichte der Elektroden zurückzuführen ist. Daher müssen die Ergebnisse einer solchen Analyse mit einem gewissen Vorbehalt betrachtet werden; dennoch ist es interessant, sie anzusehen.

Alle in den Abbildungen 8.1 und 8.2 dargestellten Spektren wurden numerisch integriert und aus den resultierenden  $I(V)$ -Kennlinien sowie den Leitwerten bei  $V = 0$  wurden nach (4.9) und (4.11) die Zustandsdichten  $N(E)$  berechnet. Bei allen  $N(E)$ -Kurven wurde überprüft, dass sich durch Faltung und Ableitung wieder die ur-

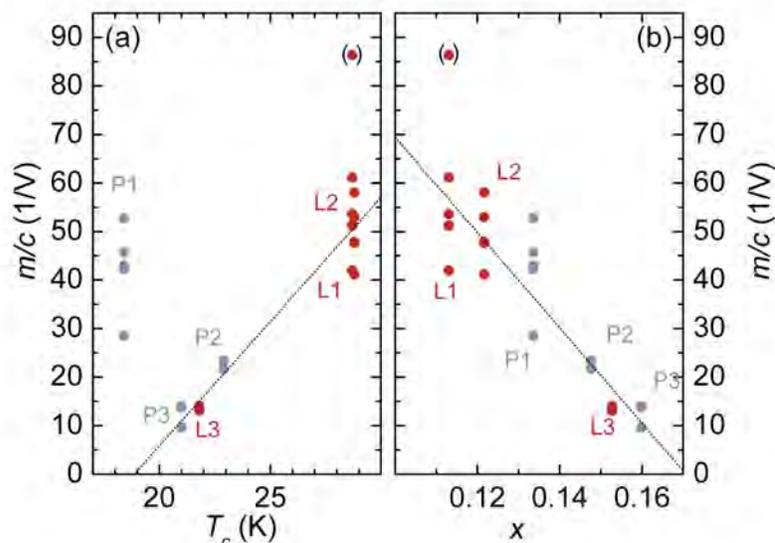


Abbildung 8.11: Quotient aus Steigung und zu  $V = 0$  extrapoliertem Wert der Hintergrundleitfähigkeit für die Spektren der LCCO- und PCCO-Serie aus den Abbildungen 8.1 und 8.2 als Funktion der kritischen Temperatur (a) bzw. der Dotierung (b).

sprüngliche  $G(V)$ -Kurve ergibt. Da sich die für verschiedene Kontakte einer Probe erhaltenen  $N(E)$ -Kurven sehr ähnlich sind, wurde für jede Probe je ein Kontakt herausgegriffen, für die die  $G(V)$  und die entsprechende  $N(E)$ -Kurve jeweils in einer Teilabbildung von 8.12 zusammengefasst dargestellt sind. Die Beschriftungen der vertikalen Achsen auf der linken Seite beziehen sich auf den Leitwert, auf der rechten Seite auf die Zustandsdichte, wobei die Größen jeweils auf ihren Wert bei  $V = 0$  bzw.  $E = 0$  normiert sind. Die Skalierung der horizontalen Achsen ist für die  $G(V)$ - und die zugehörigen  $N(E)$ -Kurven identisch, wobei die Spannungen in mV, die Energien in meV angegeben sind.

Zwei Beobachtungen sind festzuhalten. Zum einen zeigen die  $N(E)$ -Kurven erwartungsgemäß ein ausgeprägtes Minimum bei  $V = 0$  also eine Art von Energielücke. Die Energien, bei denen diese Energielücke begrenzenden Strukturen liegen, entsprechen für alle Proben etwa den Spannungen, bei denen sich die als Kohärenzmaxima bezeichneten Strukturen der zugehörigen  $G(V)$ -Kennlinien befinden. Wie in Abschnitt 3.4 gezeigt wurde, liegen für einen klassischen SIS-Tunnelkontakt die Kohärenzpeaks jedoch bei Spannungen, die der doppelten Energielücke entsprechen. Dieser Unterschied ist darauf zurückzuführen, dass bei den experimentellen  $G(V)$ -Kurven auch für tiefe Temperaturen der Leitwert und somit gemäß (4.11) auch die Zustandsdichte bei  $V = 0$  relativ gross sind, während für einen klassischen  $s$ -Wellen-

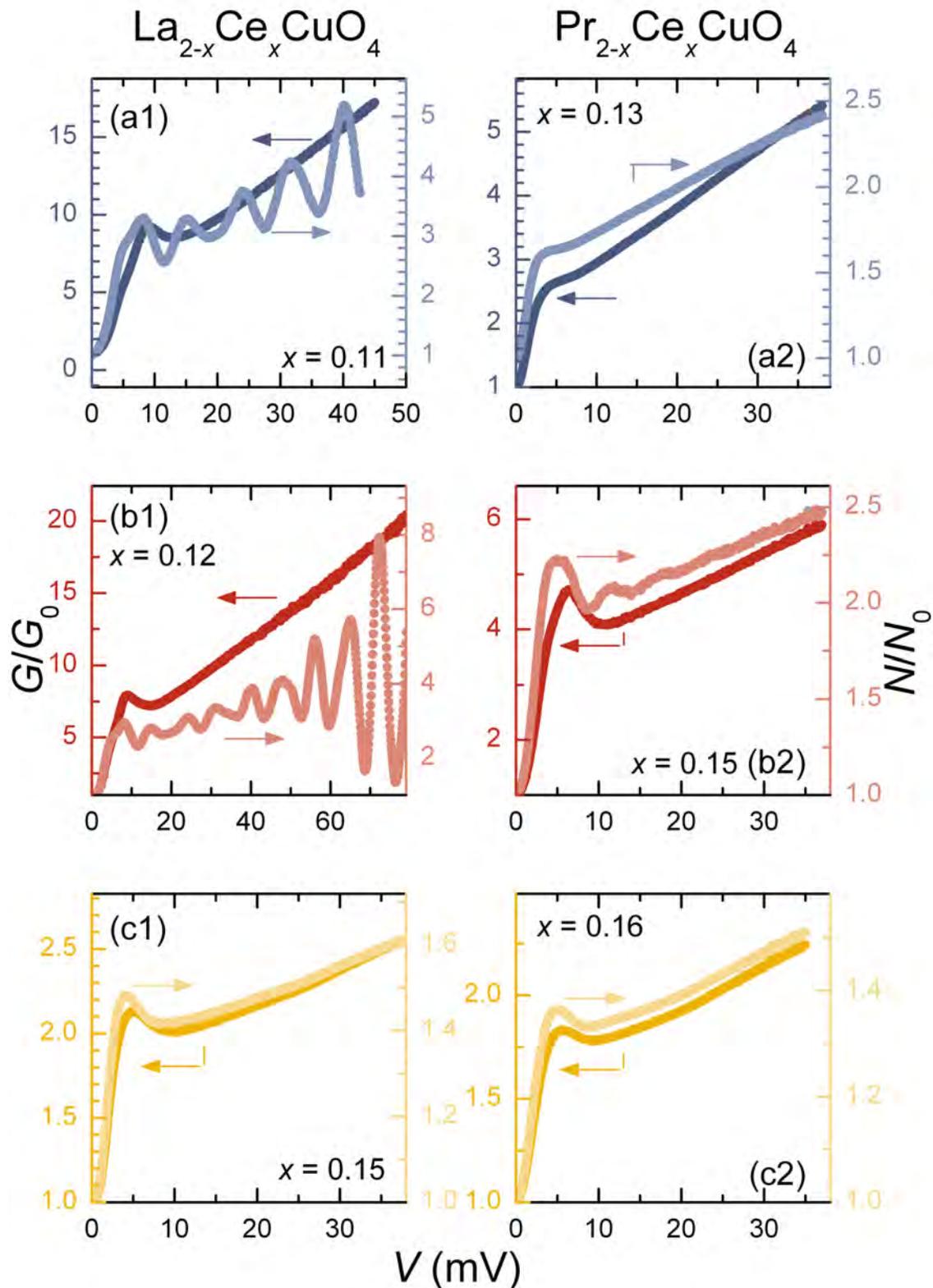


Abbildung 8.12: Leitwert und daraus nach (4.9) und (4.11) berechnete Zustandsdichte, exemplarisch für je einen Kontakt jeder Probe der LCCO- ((a1)-(c1)) und PCCO-Serie ((a2)-(c2))

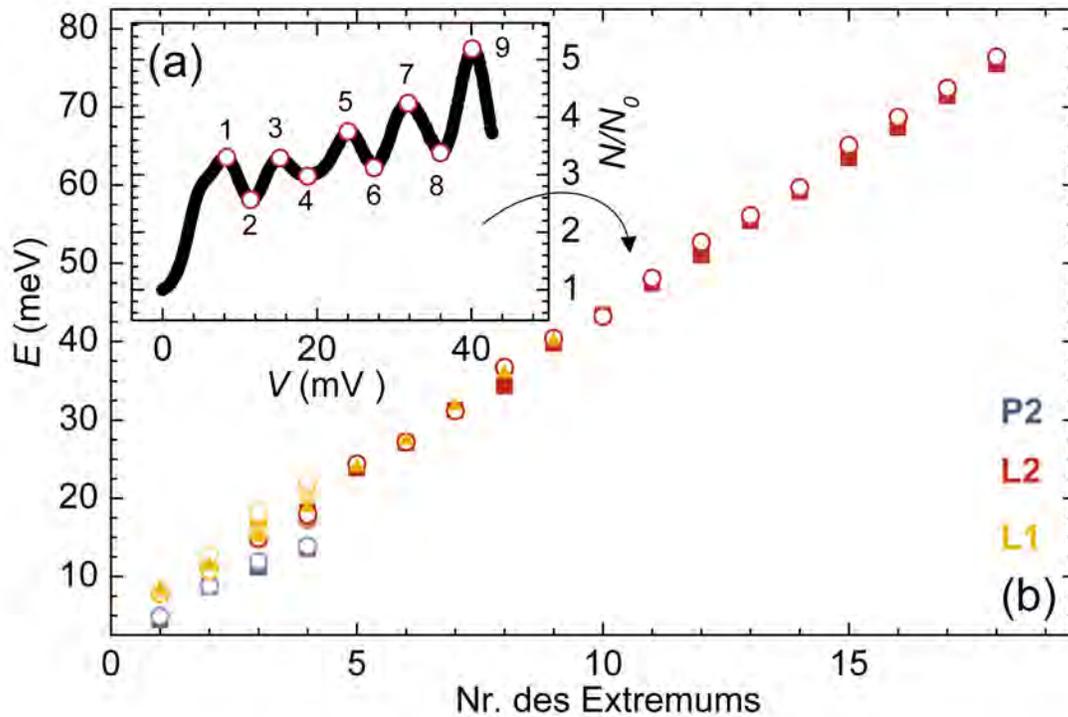


Abbildung 8.13: Illustration zur Bestimmung der Extrema in den  $N(E)$ -Kurven (a) sowie Position der Extrema als Funktion der Nummer (b)

Supraleiter die Zustandsdichte für  $E < \Delta$  bei  $T = 0$  identisch verschwindet.

Zum anderen fällt sofort ins Auge, dass es zwei unterschiedliche Typen von Zustandsdichten gibt. Die aus den Tunnelspektren der überdotierten LCCO und PCCO-Probe sowie der unterdotierten PCCO-Probe (L3,P1,P3) berechneten  $N(E)$ -Kurven verlaufen für Energien oberhalb der Energielücke nahezu linear, während bei den  $N(E)$ -Kurven für die übrigen Proben (L1,L2,P2) dem annähernd linearen Anstieg in diesem Energiebereich deutliche Oszillationen überlagert sind. Die aus den Leitwertsspektren verschiedener Kontakte der gleichen Probe berechneten Zustandsdichten lassen sich jeweils alle dem gleichen Typ zuordnen, zeigen also alle die gerade beschriebenen Oszillationen oder alle den einfachen linearen Verlauf. Dies deutet darauf hin, dass sich dieser Effekt auf eine charakteristische Eigenschaft der Probe zurückführen lässt. Für die  $N(E)$ -Kurven mit Oszillationen wurden die Extrema mit steigender Spannung durchnummeriert und ihre Positionen bestimmt, wie in Teilabbildung 8.13 (a) illustriert ist. Diese Positionen wurden in Teilabbildung 8.13 (b) jeweils gegen die Nummern der Extrema aufgetragen. Die Resultate für verschiedene Brücken einer Probe sind in unterschiedlichen Symbolen und jeweils einer Farbe dargestellt. Wie die Abbildung zeigt, verlaufen die resultierenden Kurven in sehr guter Näherung linear und darüberhinaus nahezu parallel zueinander. Die Extrema

sind also äquidistant und der Abstand benachbarter Extrema stimmt für alle Proben innerhalb der Fehlergrenzen überein. Diese Gleichheit sowie die Betrachtungen in Abschnitt 4.1.2, die sich mit der Auswirkung einer fehlerhaften Bestimmung von  $N(E = 0)$  und Rauschen in den Messdaten auf die Entfaltung beschäftigen, deuten jedoch darauf hin, dass sich die experimentellen  $G(V)$ -Kurven eben nicht nur durch die einfache Faltung der Zustandsdichten ergeben, und dass diese Tatsache in Kombination mit einer noch zu bestimmenden Eigenschaft einiger Proben, letztendlich die Oszillationen in der Entfaltung hervorruft. Einer der einfachsten Erklärungsansätze ist die Vermutung, dass sich die experimentellen  $G(V)$ -Kurven additiv aus zwei Bestandteilen zusammensetzen, dem Beitrag  $G_N(V)$ , der sich tatsächlich ausschließlich aus den Zustandsdichten der Elektroden ergibt und einem konstanten Beitrag  $G_{add}$ , der auf einen Stromtransport parallel zum Tunnelkontakt zurückzuführen ist. Denkbar wäre zum Beispiel eine Restleitfähigkeit des Substrates bei tiefen Temperaturen. Aufgrund des identischen Substratmaterials würde sich für alle Proben eine ähnliche zusätzliche Leitfähigkeit  $G_{add}$  ergeben, was möglicherweise die Ähnlichkeit der Oszillationen erklären könnte. Weiterhin zeigt ein Vergleich der Abbildungen 8.12 und der Tabelle 8.1, dass gerade die Spektren, deren Entfaltung Oszillationen zeigen, besonders große Modulationstiefen aufweisen. Dies legt die Vermutung nahe, dass die Tiefe der Energielücke Auswirkungen auf mögliche Oszillationen in der Entfaltung hat. Um diese beiden naheliegenden Vermutungen näher zu überprüfen, wurden gemäß (2.22) und (2.24) die Zustandsdichten eines  $s$ -Wellen Supraleiters für verschiedene Werte des Dynes-Parameters  $\Gamma$  im Energiebereich  $|E| \leq 6\Delta$  berechnet und daraus durch Faltung nach (4.8) und Ableitung die Leitwertsspektren bestimmt. Die Leitwertsspektren wurden durch Addition verschiedener Werte für  $G_{add}$  modifiziert und anschließend wieder integriert und entfaltet. Abbildung 8.14 zeigt die modifizierten Leitwerte sowie die daraus berechneten Zustandsdichten für Dynes-Parameter von  $\Gamma = 0.4\Delta$  (a),  $\Gamma = 0.5\Delta$  (b) und  $\Gamma = 0.6\Delta$  (c). Tatsächlich zeigt sich, dass für kleine Werte des Dynes-Parameters (also ausgeprägte Modulationstiefen) und Addition eines konstanten Leitwertes, Oszillationen in der durch Entfaltung des modifizierten Leitwertes berechneten Zustandsdichte entstehen, deren Wellenlängen vom addierten Leitwert abhängen. Für  $\Gamma \geq 0.6\Delta$  sind dagegen in der Entfaltung keine Oszillationen mehr zu erkennen. Es ist also theoretisch möglich, Oszillationen in den berechneten Zustandsdichten auf einen konstanten Widerstand parallel zum Tunnelkontakt zurückzuführen und darüberhinaus zu erklären, warum nur bei Proben, deren Spektren eine ausgeprägte Modulationstiefe aufweisen, diese Oszillationen zu beobachten sind. Leider stellt sich jedoch heraus, dass sich die gemessenen Leitwertsspektren nicht einfach durch Subtraktion eines konstanten Leitwertes so modifizieren lassen, dass die Oszillationen in der Entfaltung verschwinden. Exemplarisch sind in Abbildung 8.15 die aus dem Leitwertsspektrum eines Kontaktes der unterdotierten LCCO-Probe berechnete Zustandsdichte zusammen mit den aus modifizierten Leitwertsspektren berechneten Zustandsdichten dargestellt. Dabei wurde der Leitwert um Werte von  $G_{add}$  im Bereich bis zu 25% des Wertes  $G(V = 0)$  korrigiert. Dabei sind die aus dem Original-Spektrum sowie aus dem Spektrum mit dem größten Wert

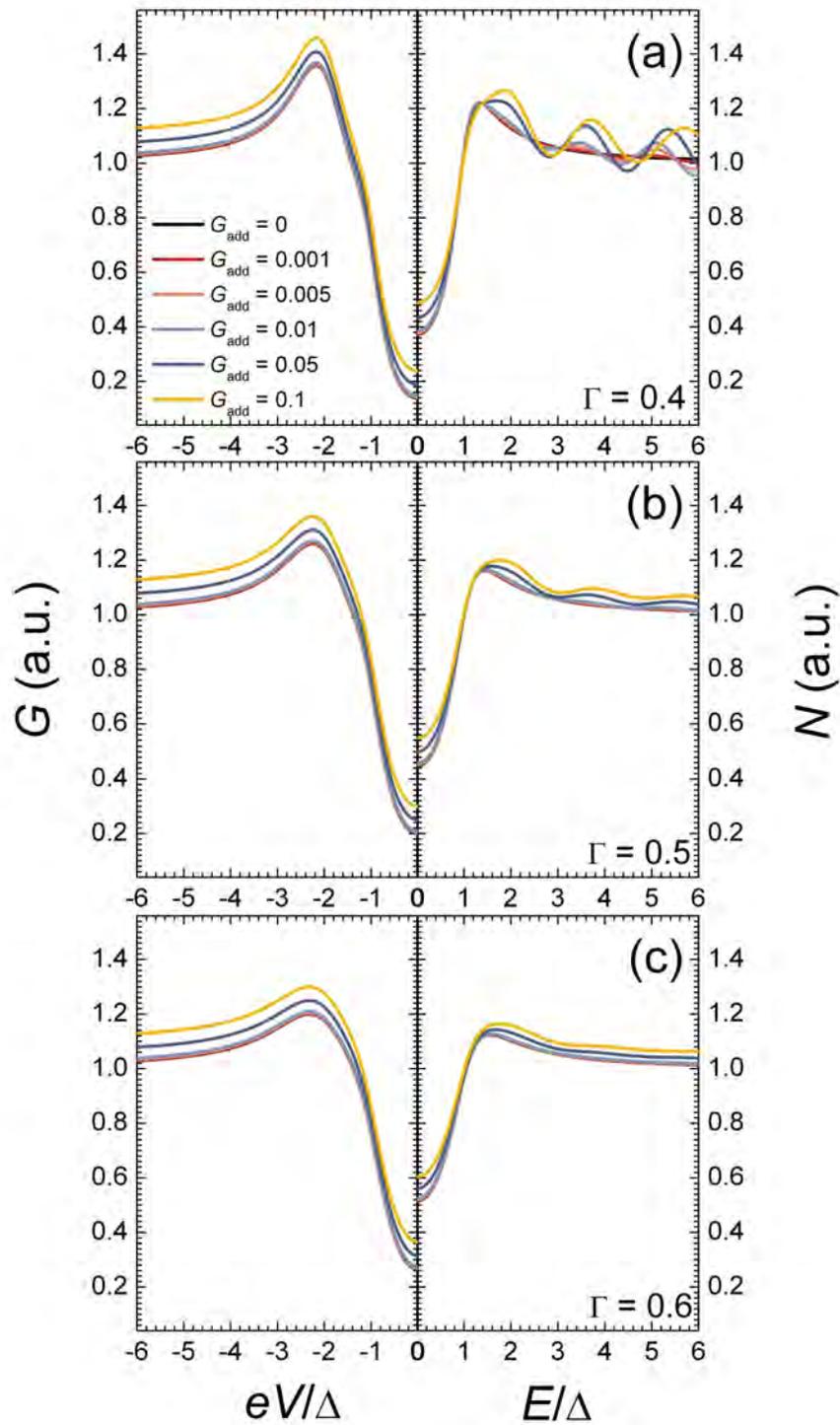


Abbildung 8.14: durch Addition eines konstanten Leitwertes modifizierte Leitwertspektren eines einfachen 1dimensionalen SIS-Tunnelkontaktes für einen  $s$ -Wellen-Supraleiter mit verschiedenen Dynes-Parametern sowie daraus durch Entfaltung berechnete Zustandsdichten

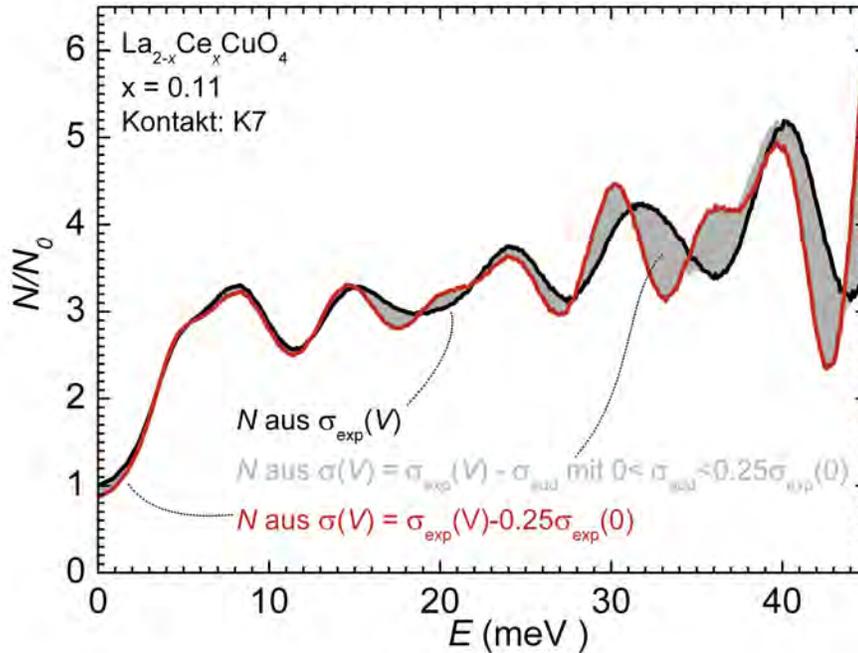


Abbildung 8.15: Durch Entfaltung berechnete Zustandsdichten auf Grundlage eines experimentellen Spektrums sowie auf Grundlage von durch Subtraktion konstanter Leitwerte modifizierten Spektren.

von  $G_{add}$  als Linien dargestellt, der von den übrigen Kurven eingenommene Bereich der  $N - E$ -Ebene ist hellgrau hinterlegt. Alle  $N(E)$ -Kurven weisen deutliche Oszillationen auf. Für größere Korrektur-Terme wird die Amplitude der Oszillationen nur noch größer, weswegen auf eine Darstellung verzichtet wurde. Insgesamt weisen die Ergebnisse darauf hin, dass die Oszillationen in der Entfaltung letztendlich mit hoher Wahrscheinlichkeit darauf zurückzuführen sind, dass das einfache eindimensionale Modell für einen SIS-Kontakt mit konstanter Tunnelwahrscheinlichkeit nicht ausreicht, die experimentellen Leitwertsspektren zu beschreiben. Zusätzlich scheint eine ausgeprägte Modulationstiefe die Oszillationen zu begünstigen, so dass diese Strukturen nur mittelbar auf eine Eigenschaft der Proben zurückzuführen sind.

### Vergleich mit dem Trapezbarrieren-Modell

Eines der einfachsten Modelle, das den Einfluss der Barriere auf den Tunnelstrom berücksichtigt, ist das in Kapitel 4.2.3 eingeführte Modell einer trapezförmigen Tunnelbarriere für einen planaren oder eindimensionalen Tunnelkontakt. Insbesondere kann die lineare Hintergrundleitfähigkeit, die in vielen Tunnelspektren an Hochtem-

peratur Supraleitern beobachtet wird in [Kirtley90a] auf relativ niedrige Barrierenhöhen zurückgeführt werden.

Daher wird im folgenden Abschnitt untersucht, ob es gelingt auch die in dieser Arbeit vermessenen Kontakte im Rahmen dieses Modell ist zu beschreiben.

Im Anhang A.3 wird näher erläutert, wie sich die Tunnelleitfähigkeiten für dieses Modell berechnen und in eine Programmiersprache implementieren lassen. Geht man von einem symmetrischen Tunnelkontakt sowie von Zustandsdichten gemäß (2.22) bzw (2.23) unter Berücksichtigung einer Dynes-Verrundung (2.24) für einen *s*- bzw *d*-Wellen Supraleiter aus, so hängt die Tunnelleitfähigkeit für einen planaren Kontakt nach diesem Modell von 6 Parametern ab, von der Fläche  $F$  des Tunnelkontaktes, der Fermi-Energie  $E_F$ , der Höhe  $\phi$  und Dicke  $d$  der Tunnelbarriere sowie der Energielücke  $\Delta$  und dem Dynes-Parameter  $\Gamma$ , also

$$G_{pl}(V) = G_{pl}(V, F, E_F, \phi, d, \Delta, \Gamma). \quad (8.4)$$

Die Fläche  $F$  des Tunnelkontaktes ist bekannt, und in Abschnitt 4.2.3 wurde erläutert, dass die Tunnelleitfähigkeit für  $E_F \geq 150$  meV nur sehr schwach vom Wert der Fermienergie abhängt. Damit bleiben 4 Parameter, um die bei tiefen Temperaturen aufgenommenen Tunnelspektren zu beschreiben.

Für einen eindimensionalen Kontakt gilt

$$G_{1d}(V) = G_{1d}(V, G_0, \phi, d, \Delta, \Gamma). \quad (8.5)$$

Dabei ist  $G_0$  der Leitwert des Kontaktes für  $t = \phi = 0$ . Im ballistischen Limit entspricht dies dem Sharvin-Widerstand. Es ist allerdings fraglich, inwieweit dieser Begriff auf die untersuchten Kontakte angewendet werden kann, da die mittlere freie Weglänge zum Beispiel für NCCO auf etwa 2 nm abgeschätzt wird, während die Abmessungen der vermessenen Kontakte im  $\mu\text{m}$ -Bereich liegen. Daher wird hier  $G_0$  nur als phänomenologischer Parameter verwendet. Insgesamt sind für einen eindimensionalen Kontakt also 5 Parameter zur Beschreibung der Tunnelspektren notwendig. Die Resultate einer Kurvenanpassung mit 4 bis 5 Parametern sind natürlich nur bedingt aussagekräftig. Allerdings lassen sich die Parameter in zwei Gruppen einteilen. Die Barrierenparameter  $\phi$  und  $t$  sowie gegebenenfalls  $G_0$  bestimmen primär die Größenordnung, in der die Leitwerte liegen und die Form der Hintergrundleitfähigkeit, während Energielücke  $\Delta$  und Dynes-Parameter  $\Gamma$  für das Aussehen der Lücke und der Kohärenzmaxima in den Leitwertsspektren verantwortlich sind. Startparameter für Barrierenhöhe und Dicke bei planaren Kontakten lassen sich durch Anpassung einer Parabel an den Außenbereich der Spektren bestimmen.

Abbildung 8.16 zeigt eines der  $G(V)$ -Spektren, für die die Anpassung der Gleichungen aus den Abschnitt A.3.2 bzw. A.3.3 an die Messdaten relativ gut gelungen ist. Dabei werden die Resultate für einen planaren und einen eindimensionalen Kontakt mit *s*-Wellen-Symmetrie sowie für einen planaren Kontakt mit *d*-Wellen Symmetrie gezeigt. Die Qualität der Übereinstimmung zwischen Modell und Messdaten ist für alle Modelle sehr ähnlich.

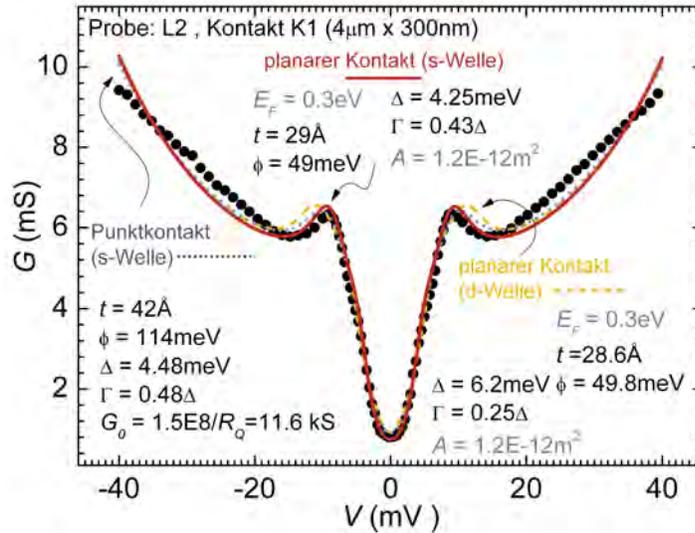


Abbildung 8.16: Resultate einer Kurvenanpassung nach dem Modell der Trapezbarriere für einen planaren bzw. eindimensionalen Kontakt

Im Bereich der Energielücke, also für  $|V| \lesssim V_\Delta$  stimmen die Fitkurven recht gut mit den experimentellen Daten überein, der Abstand der Kohärenzmaxima, die Modulationstiefe und die Form der Energielücke lassen sich gut wiedergeben. Die lineare Hintergrundleitfähigkeit jedoch lässt sich nicht für den gesamten Spannungsbereich in zufriedenstellender Weise reproduzieren. Bei einigen gemessenen Spektren kann zwar eine Übereinstimmung bis  $|V| \lesssim 25\text{ mV}$  erreicht werden, aber für höhere Spannungen weichen die berechneten Kurven stets nach oben von den Messdaten ab. Der bis zu 80 mV beobachtete lineare Verlauf der gemessenen  $G(V)$ -Kurven kann trotz zahlreicher Fit-Versuche mit unterschiedlichen Startparametern nicht wiedergegeben werden.

Eine genauere Betrachtung der in [Kirtley90a] veröffentlichten Ergebnisse zeigt allerdings, dass die Übereinstimmung zwischen Messkurven und Fitkurven dort auch nicht signifikant besser ist, als zum Beispiel bei den in Abbildung 8.16 dargestellten Kurven. Die Barrierenparameter, die sich durch diese Kurvenanpassungen für planare Kontakte ergeben, liegen ebenfalls in dem Bereich, der in [Kirtley90a] angegeben ist. Die Barrierendicke variiert zwischen 20 und 30  $\text{\AA}$ , die Barrierenhöhe zwischen 40 und 140 meV. Die Energielücke stimmt für alle Kontakte gut mit den anhand der Kenngrößen abgeschätzten Werte überein; der Dynes-Parameter liegt zwischen dem 0.25fachen und dem 1.2fachen der Energielücke.

Für Punktkontakte ergeben sich etwas größere Werte für die Barrierenhöhe. Da, wie in Abschnitt 4.2.3 gezeigt wurde, in Spektren von Punktkontakten deutliche

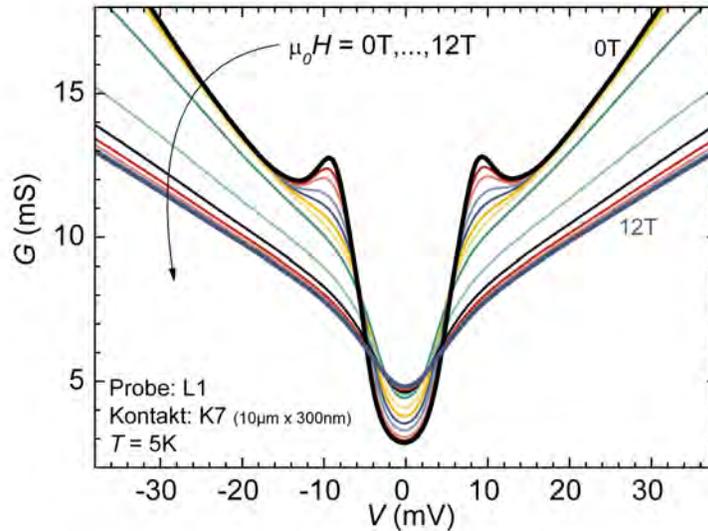


Abbildung 8.17: Spektren an einer Brücke der unterdotierten LCCO-Probe für Magnetfelder zwischen 0T und 12T

Strukturen bei  $V = \phi/e$  auftreten, kann insbesondere ausgeschlossen werden, dass die Barrierenhöhen unterhalb von 80 mV liegt.

Anhand der Messdaten lässt sich nicht entscheiden, ob Zustandsdichten mit  $s$ - oder  $d$ -Wellen Symmetrie zu einer besseren Übereinstimmung zwischen experimentellen und theoretischen Kurven führen. Kurvenanpassungen für Zustandsdichten mit  $d$ -Wellen Symmetrie liefern sehr ähnliche Ergebnisse für Barrierenparameter und Energielücken wie im Fall der  $s$ -Wellen Symmetrie, allerdings ergeben sich deutlich kleinere Werte für den Dynes-Parameter, da, wie in Abschnitt 2.2 gezeigt wurde, der gleiche Dynes-Parameter bei  $d$ -Wellen Symmetrie zu deutlich größeren Verrundungen in den Zustandsdichten führt, als bei  $s$ -Wellen Symmetrie.

### 8.1.2 Einfluss eines äußeren Magnetfelds

Die relativ geringen kritischen Felder der elektronendotierten Kuprate erlauben es, auch das Verhalten der Tunnelspektren an solchen Materialien im Magnetfeldbereich sowohl unterhalb als auch oberhalb des kritischen Wertes zu studieren. Dazu wurden Serien von Messungen an Tunnelkontakten aller Proben in verschiedenen Magnetfeldern aufgezeichnet. Abbildung 8.17 zeigt exemplarisch für alle untersuchten Proben bis auf die überdotierte LCCO-Probe L3 die Resultate einer solchen Mess-Serie für eine Brücke der unterdotierten LCCO-Probe L1 in Feldern zwischen 0 T und 12 T. Das abweichende Verhalten von Probe L3 wird in Kapitel 8.3 näher

beschrieben und diskutiert.

Mit zunehmendem Magnetfeld steigt der Leitwert im Bereich der Energielücke an, während die Kohärenzmaxima unterdrückt werden. Dabei ändert sich die Form der  $G(V)$ -Kurven nahe  $V = 0$  nur sehr wenig; die Kohärenzmaxima werden mit zunehmendem Feld etwas breiter. Ein Schließen der Energielücke in dem Sinne, dass die Kohärenzmaxima mit steigendem Feld näher zusammenrücken, lässt sich nicht beobachten. Stattdessen kann die Veränderung der  $G(V)$ -Kurven mit steigendem Feld anschaulich vielmehr als ein Auffüllen der Energielücke beschrieben werden. Für Felder oberhalb von 5 T sind keine Kohärenzmaxima mehr zu erkennen. Bis zum maximalen Feld von 12 T lässt sich jedoch im Bereich der supraleitenden Energielücke deutlich die Unterdrückung des Leitwertes im Vergleich zur linearen Hintergrundleitfähigkeit beobachten. Diese Struktur entwickelt sich mit steigendem Feld ohne erkennbaren Übergang aus der supraleitenden Energielücke. Wie in Kapitel 2.3 erläutert, ähnelt dies dem Effekt, der in Tunnelspektren an BSCCO bei Temperaturen oberhalb der kritischen Temperatur beobachtet wird. In Analogie dazu wird die hier beobachtete Struktur im folgenden ebenfalls kurz als *Pseudolücke* ( $\Delta^*$ ) bezeichnet. Die Untersuchung dieser Pseudolücke als Funktion von Dotierung, Temperatur und Magnetfeld ist einer der Schwerpunkte der vorliegenden Arbeit und wird in Abschnitt 8.2 behandelt.

Die Hintergrundleitfähigkeit hängt für Felder unterhalb von 6 T bzw. oberhalb von 9 T praktisch nicht vom Feld ab, für Felder zwischen 6 T und 9 T nimmt die Steigung der Hintergrundleitfähigkeit mit zunehmendem Feld ab.

Die veränderte Hintergrundleitfähigkeit für Felder ab 6 T ist mit hoher Wahrscheinlichkeit zumindest zu einem großen Teil darauf zurückzuführen, dass bei supraleitenden Elektroden, die an den Kontakt angelegte Spannung ausschließlich an der Korngrenze abfällt; sobald der Widerstand der Elektroden nicht mehr verschwindet, wird jedoch der (ohmsche) Widerstand der Zuleitungen zwischen den Spannungsabgriffen  $R_Z$  in Serie zu dem Korngrenzenwiderstand  $R_{KG}$  geschaltet und geht gemäß

$$R_{exp}(V) = R_{KG}(V) + R_Z \quad (8.6)$$

in den gemessenen Widerstand  $R_{exp}(V)$  ein. Der Leitwert der Korngrenze  $G_{KG}(V)$  ergibt sich demnach zu

$$G_{KG}(V) = (1/G_{exp}(V) - R_Z)^{-1} \quad (8.7)$$

Es bleibt also, den Zuleitungswiderstand  $R_Z$  zu bestimmen. Da sich in der vorliegenden Brückengeometrie der Zuleitungswiderstand nicht direkt messen lässt, muss ein geeignetes Korrekturverfahren angewendet werden. Im folgenden wird der mit einem solchen Verfahren bestimmte Korrekturwiderstand mit  $R_\alpha$  bezeichnet, wobei der Index  $\alpha$  das jeweilige Korrekturverfahren kennzeichnet. Entsprechend wird der gemäß

$$G_{R\alpha}(V) = (1/G_{exp}(V) - R_\alpha)^{-1} \quad (8.8)$$

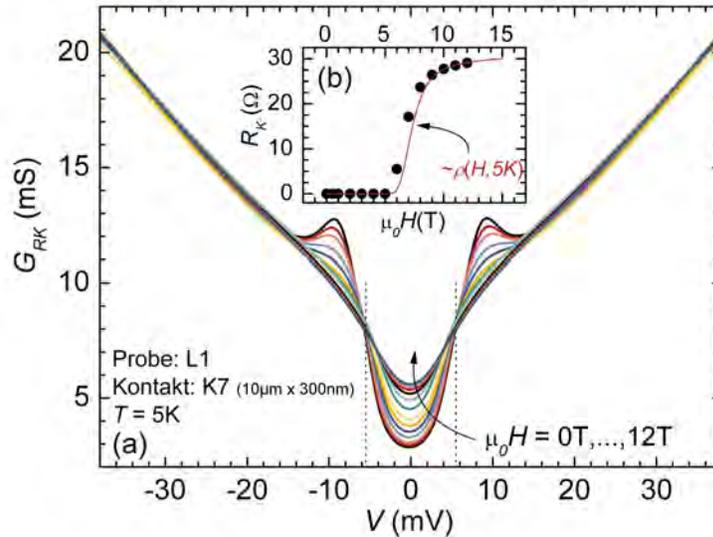


Abbildung 8.18: Spektren aus Abbildung 8.17 nach der Korrektur gemäß 8.8 (a) sowie die im Rahmen dieser Korrektur bestimmten Zuleitungswiderstände, aufgetragen gegen das äußere Magnetfeld (b) zusammen mit einer an einer Filmbrücke der gleichen Probe bei 5K aufgezeichneten  $\rho(H)$ -Kurve (multipliziert mit einem geeigneten Faktor)

mit  $R_\alpha$  korrigierte Leitwert als  $G_{R_\alpha}$  bezeichnet.

Die vorliegenden Messungen zeigen, dass die Kehrwerte der bei 0 T und in Feldern oberhalb von 5 T aufgenommenen  $G(V)$ -Kurven sich im Außenbereich ( $|V| \geq V_a \approx 20$  meV) in guter Näherung jeweils nur um einen konstanten Widerstand unterscheiden. Daher wird das folgende Korrekturverfahren vorgeschlagen. Mit Hilfe einer Leitwertkurve im supraleitenden Zustand, für die also  $R_Z = 0$  angenommen werden kann, wird der Korrekturwiderstand  $R_K$  gemäß

$$R_K = \langle 1/G_{exp}(V) - 1/G_{sl}(V) \rangle_{|V| \geq V_a} \quad (8.9)$$

aus dem experimentellen Spektrum  $G_{exp}(V)$  berechnet. Dabei bezeichnet das Symbol  $\langle \dots \rangle_{|V| \geq V_a}$  den Mittelwert über alle Spannungen im angegebenen Bereich. Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben beginnt der Bereich der Hintergrundleitfähigkeit stets etwa bei  $V_a \approx 20$  mV.

$R_K$  ist eine gute Näherung für den Zuleitungswiderstand  $R_Z$ , solange davon ausgegangen werden kann, dass der Unterschied zwischen der Hintergrundleitfähigkeit im resistiven<sup>5</sup> Zustand und der Hintergrundleitfähigkeit des Kontaktes im supralei-

<sup>5</sup>Es wird hier der Ausdruck resistiv anstatt normalleitend benutzt, weil der Effekt des Zulei-

tenden Zustand ausschließlich auf den Widerstand der Zuleitungen zurückzuführen ist.

Die gemäß (8.8) um diesen Effekt korrigierten Leitwertsspektren  $G_{RK}(V)$  werden in Teilabbildung 8.18(a) zusammengefasst, die dabei berechneten Zuleitungswiderstände sind in Teilabbildung (b) als Punkte gegen die jeweiligen äußeren Magnetfelder aufgetragen. Zum Vergleich ist die ebenfalls bei einer Temperatur von 5 K an einer Filmbrücke der gleichen Probe aufgenommene  $\rho(H)$ -Kurve aus Abbildung A.3 mit einem geeigneten Faktor multipliziert und ebenfalls in Teilabbildung (b) eingetragen worden. Die im Rahmen der Korrektur berechneten Zuleitungswiderstände geben sehr gut den Verlauf der gemessenen  $\rho(H)$ -Kurve wieder, was dafür spricht, dass das gerade eingeführte Korrekturverfahren sinnvoll ist. Ein genauerer Vergleich der Zuleitungswiderstände  $R_K$  der Korngrenzenkontakte und der entsprechenden Filmwiderstände für die verschiedenen Proben wird in Abschnitt 8.2.2 angestellt.

Teilabbildung 8.18(a) zeigt weiterhin, dass sich die in verschiedenen Feldern aufgenommenen  $G_{RK}(V)$ -Kurven im Bereich der Energielücke für positive und negative Spannungen jeweils in einem sehr schmalen Spannungsbereich schneiden, der in der Abbildung jeweils mit einer vertikalen Linie markiert ist. Außerdem ändert sich der Verlauf der  $G_{RK}(V)$ -Kurven für Felder oberhalb von etwa 8 T nur noch relativ wenig und im Bereich sehr nahe an  $V = 0$ . Die Magnetfeldabhängigkeit der Spektren im normalleitenden Bereich wird genauer in Unterabschnitt 8.2.3 diskutiert.

Um den Einfluss des Magnetfeldes auf die Tunnelspektren zu erklären, müssen mehrere Effekte berücksichtigt werden. Zunächst kommt es aufgrund der Wechselwirkung zwischen dem Magnetfeld der Flussdichte  $B = \mu_0 H$  und den Spins der Anregungen zu einer Zeeman-Aufspaltung in der Zustandsdichte gemäß

$$n(E, B) = \frac{1}{2}n_{\uparrow}(E) + \frac{1}{2}n_{\downarrow}(E) \quad , \quad (8.10)$$

wobei die Zustandsdichten der Anregungen mit Spin parallel bzw. antiparallel zum Feld durch

$$n_{\uparrow\downarrow}(E) = n(E \pm g\mu_B B) \quad (8.11)$$

gegeben sind.  $n(E)$  ist die Zustandsdichte im Nullfeld. Für SIN-Kontakte führt dies zu einer Aufspaltung der beiden Kohärenzmaxima in je zwei Maxima mit Abstand  $2g\mu_B B/e$ . Für SIS-Kontakte hängt die Form des Leitwertsspektrums davon ab, ob der Spin der Elektronen beim Tunneln erhalten bleibt. Bei Spinerhaltung setzt sich der gesamte Leitwert additiv aus den Beiträgen der beiden Spinkanäle zusammen. Da für jeden Spinkanal die Zustandsdichte zu beiden Seiten der Tunnelbarriere um den gleichen Beitrag verschoben wird, ändert sich die Form der resultierenden  $G(V)$ -Spektren nicht. Andernfalls wird jedoch eine Aufspaltung der

---

tungswiderstandes auftritt, sobald der Widerstand der Elektroden nicht mehr verschwindet, also auch insbesondere im Magnetfeld, sobald es zur Bewegung von Vortices kommt, auch wenn noch Cooper-Paare vorhanden sind.

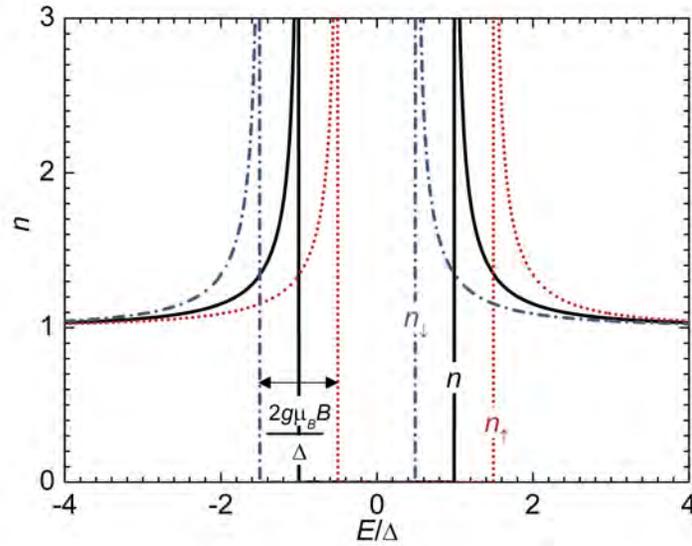


Abbildung 8.19: Aufspaltung der Zustandsdichte für einen  $s$ -Wellen Supraleiter im Magnetfeld nach (8.10)

beiden Kohärenzmaxima in je drei Maxima erwartet, ein großes Maximum an der Stelle des im Nullfeld beobachteten Maximums sowie zwei Satellitenstrukturen bei  $|V| = 2\Delta/e \pm 2g\mu_B B/e$  [Meservey75]. Bei den im Rahmen dieser Arbeit aufgezzeichneten Spektren wurde allerdings nie eine Aufspaltung der Kohärenzmaxima im Magnetfeld beobachtet, was darauf schließen lässt, dass für die untersuchten Proben der Spin beim Tunneln erhalten bleibt. Daher kann bei den folgenden Betrachtungen zu den Tunnelspektren im Magnetfeld die Aufspaltung der Zustandsdichte vernachlässigt werden.

Ein weiterer Effekt ist auf die Abschirmströme zurückzuführen, die im Magnetfeld im Bereich der Eindringtiefe entlang den Oberflächen des Supraleiters fließen, insbesondere also entlang der Korngrenze. Diese Abschirmströme brechen die Zeitumkehrsymmetrie und begrenzen damit die Lebensdauer der Cooper-Paare [Tinkham96, Kapitel 10.2]. Diese Paarbrechung lässt sich durch einen Parameter  $\alpha$  charakterisieren, der vom Magnetfeld abhängt und für einen  $s$ -Wellen Supraleiter gemäß

$$n_s(E) = \Re \left( \frac{u(E, \Delta, \alpha)}{\sqrt{u^2(E, \Delta, \alpha) - 1}} \right) \quad (8.12)$$

in die Zustandsdichte eingeht, wobei die Größe  $u(E, \Delta, \alpha)$  implizit durch

$$E/\Delta = u \left( 1 - \frac{\alpha}{\sqrt{u^2 - 1}} \right) \quad (8.13)$$

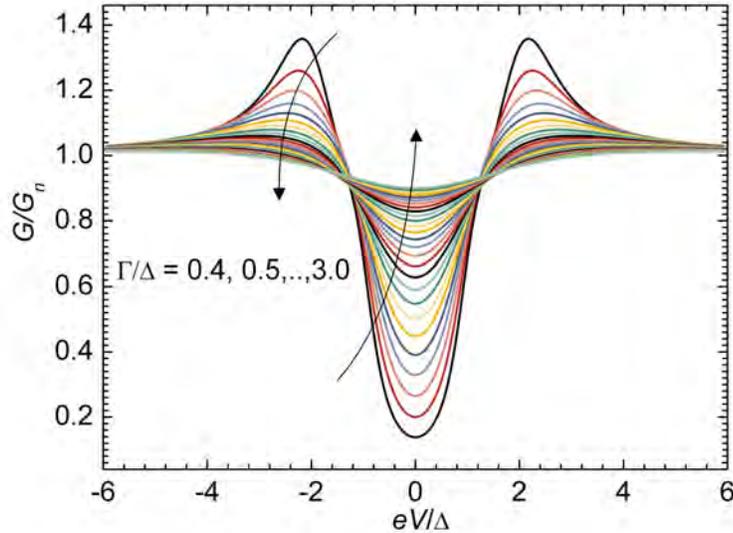


Abbildung 8.20: Durch Faltung gemäß (4.2) berechneter Leitwert für einen symmetrischen SIS-Kontakt aus einem  $s$ -Wellen Supraleiter mit verschiedenen Dynes-Parametern

gegeben ist [Maki64]. Numerische Berechnungen zeigen, dass kleine Paarbrechungsparameter zu Verrundungen in den entsprechenden Tunnelspektren führen [Meserve75].

In Kapitel 6 wurde gezeigt, dass für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben der Widerstand im Magnetfeld wesentlich sowohl von Vortizes als auch von Fluktuationen des Ordnungsparameters beeinflusst wird. Daher ist davon auszugehen, dass diese Effekte auch für die Tunnelspektren im Magnetfeld eine nicht unerhebliche Rolle spielen.

Im Inneren der Vortizes wird der supraleitende Ordnungsparameter unterdrückt. Daher entstehen in der Vortexphase Anregungen im Bereich der Energielücke, was zu einer erhöhten Leitfähigkeit nahe  $V = 0$  und einer Verrundung der Kohärenzmaxima führt. Die meisten Publikationen zu diesem Thema behandeln allerdings den Fall, dass das Magnetfeld parallel zur Richtung des Transportstroms verläuft, so dass eine Bewegung der Vortizes aufgrund der Lorentzkraft nicht berücksichtigt werden muss [Maggio-Aprile95, z.B.].

Fluktuationen des Ordnungsparameters könnten schließlich in einem sehr einfachen Modell dadurch berücksichtigt werden, dass bei der Berechnung des Tunnelstromes über eine Verteilung von Werten für die Energielücke gemittelt wird. Auch dies sollte zu einer Verrundung der resultierenden Leitwertkurve führen. In der Literatur ein Modell zu finden, das den Einfluss dieser verschiedenen Effekte und gegebenenfalls

ihrer Wechselwirkung auf die Tunnelspektren für den hier vorliegenden Messaufbau<sup>6</sup> mathematisch beschreibt, ist sehr schwierig. Allerdings fällt auf, dass drei verschiedene Effekte im Magnetfeld, Paarbrechung, Unterdrückung des Ordnungsparameters in Vortizes und Fluktuationen, alle effektiv zu Verrundungen in den  $G(V)$ -Kennlinien führen.

Wie in Abschnitt 2.2 erläutert wird, lassen sich die Verrundungen, die an Tunnelspektren im Nullfeld beobachtet werden, durch eine endliche Lebensdauer der Quasiteilchen erklären. Mathematisch wird diese endliche Lebensdauer berücksichtigt, indem die Energie  $E$  der Quasiteilchen in der Formel 2.22 für die Zustandsdichte um einen imaginären Anteil  $i\Gamma$  erweitert wird. Es stellt sich also die Frage, ob die Einführung eines solchen Dynes-Parameters  $\Gamma$  ausreicht, um den Einfluss des Magnetfeldes auf die Leitwertsspektren zu beschreiben.

Abbildung 8.20 zeigt Leitwertkurven, die nach dem sehr einfachen eindimensionalen Modell aus Abschnitt 3.1 für  $T = 0$  auf Grundlage von Zustandsdichten eines  $s$ -Wellen Supraleiters gemäß (2.22) und (2.24) für verschiedene Werte des Dynes-Parameters zwischen  $0.4\Delta$  und  $3\Delta$  berechnet wurden. Es zeigt sich, dass die Entwicklung der berechneten Leitwertkurven mit steigendem Dynes-Parameter in drei wesentlichen Punkten Ähnlichkeit mit der Entwicklung der gemessenen Tunnelspektren bei wachsendem Magnetfeld aufweist. So steigt der Leitwert im Bereich der Energielücke, ohne dass sich die Form der Spektren in dieser Region wesentlich ändert. Der Leitwert im Bereich der Kohärenzmaxima sinkt, wobei die Maxima etwas breiter werden. Schließlich schneiden sich auch die für verschieden Werte von  $\Gamma$  berechneten Spektren im Bereich der Energielücke bei positiven bzw. negativen Spannungen in einem relativ schmalen Spannungsbereich. Der Einfluss der Hintergrundleitfähigkeit wird in diesem einfachen Modell nicht berücksichtigt, lässt sich jedoch zum Beispiel im Rahmen des Modells der Trapezbarriere berechnen. Auf eine numerisch recht aufwändige Anpassung dieses Modells an die Serien von bei verschiedenen Feldern aufgenommenen Spektren der untersuchten Proben durch Variation des Parameters  $\Gamma$  wird hier jedoch verzichtet, zumal dieser Parameter sich hier nicht aus einem physikalischen Modell ergibt sondern lediglich eingeführt wurde, um die gemessenen Spektren phänomenologisch zu beschreiben.

### 8.1.3 Einfluss der Temperatur

An den untersuchten Korngrenzenkontakten aller Proben wurden Tunnelspektren im Nullfeld für verschiedene Temperaturen bis deutlich über die jeweilige kritische Temperatur hinaus aufgenommen. Exemplarisch ist in Abbildung 8.21 eine solche Serie von Spektren für eine Brücke der optimal dotierten LCCO-Probe dargestellt. Nach einer kurzen qualitativen Beschreibung wird im Folgenden zunächst das Verhalten der Spektren im Bereich  $|V| < 20$  mV und  $|T| < T_c$  näher betrachtet, der anschließende Abschnitt beschäftigt sich mit dem äußeren Bereich der Spektren, also

<sup>6</sup>Das Magnetfeld steht senkrecht sowohl zum Transportstrom als auch zur Filmoberfläche.

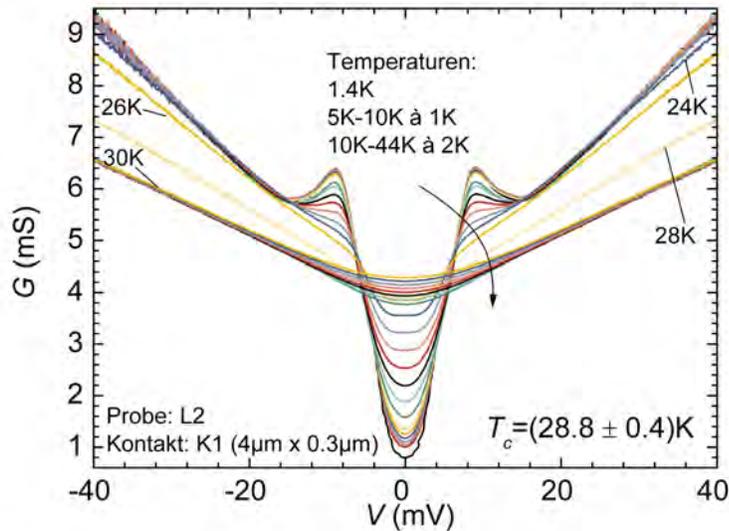


Abbildung 8.21: Tunnelspektren an der optimal dotierten LCCO-Probe im Nullfeld bei verschiedenen Temperaturen

der Hintergrundleitfähigkeit.

Vergleicht man die Abbildung 8.21 mit Abbildung 8.17, also die Entwicklung der Tunnelspektren für zunehmende Temperatur im Nullfeld und die Entwicklung mit zunehmendem Magnetfeld bei kleinen Temperaturen so fallen zunächst einige Ähnlichkeiten ins Auge:

So nimmt der Leitwert im Bereich der Kohärenzmaxima mit zunehmendem Feld ab, im Bereich der Energielücke nahe  $V = 0$  jedoch zu, wobei sich die Entwicklung als ein Auffüllen der Energielücke beschreiben lässt. Auch die Hintergrundleitfähigkeit ist für Temperaturen deutlich unterhalb von  $T_c$  und deutlich oberhalb von  $T_c$  jeweils in guter Näherung linear und nur schwach temperaturabhängig, oberhalb der kritischen Temperatur ist die Steigung der Hintergrundleitfähigkeit deutlich geringer als im supraleitenden Bereich. Es lassen sich jedoch auch drei wesentliche Unterschiede ausmachen: Zunächst verschwinden sowohl die Kohärenzmaxima als auch die Energielücke bei oder knapp unterhalb der kritischen Temperatur. Insbesondere lässt sich kein Anzeichen einer Pseudolücke oberhalb der kritischen Temperatur im Nullfeld erkennen. Weiterhin kommt es für Temperaturen oberhalb von etwa 20 K bis zur kritischen Temperatur zu einer deutlichen Abflachung der Leitwertsspektren nahe  $V = 0$ . Schließlich zeigen einige Spektren im Bereich des Übergangs zwischen Supraleitung und Normalleitung keine wirklich lineare Hintergrundleitfähigkeit, sondern die Steigung der  $G(V)$ -Kurven nimmt im Außenbereich mit zunehmendem Betrag der am Kontakt abfallenden Spannung etwas ab. In Abbildung 8.21 ist dieses Ver-

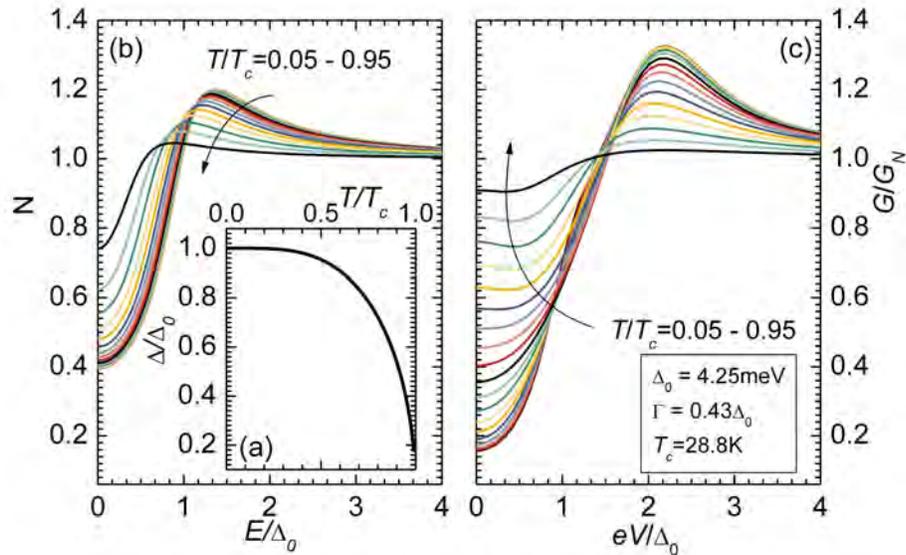


Abbildung 8.22: Energielücke als Funktion der Temperatur für einen  $s$ -Wellen-Supraleiter, berechnet nach [Einzel03] (a), Zustandsdichten gemäß (2.22) und (2.24) mit  $\Delta(T)$  aus (a) sowie aus diesen Zustandsdichten nach (3.45) durch Faltung berechnete Leitwertsspektren (c) jeweils mit den in (c) angegebenen Parametern

halten besonders deutlich an der 24 K-Kurve zu beobachten. Bei anderen Kontakten der gleichen Probe ist dieses Verhalten noch wesentlich ausgeprägter. Ein Beispiel dafür ist aus Platzgründen im Anhang in Abbildung A.12 dargestellt.

Einer der großen Erfolge der Tunnelspektroskopie auf dem Gebiet der klassischen Supraleiter war die Bestimmung der Temperaturabhängigkeit der Energielücke [Giaever61].

Für einen symmetrischen SIS-Kontakt aus einem klassischen  $s$ -Wellen-Supraleiter ohne Dynes-Verbreiterung ergeben sich nach dem einfachen Modell aus Abschnitt 3.4 Singularitäten im Leitwert bei  $V = 2\Delta/e$ , die sich mit zunehmender Temperatur zu kleineren Spannungswerten verschieben. Eine nach diesem Modell berechnete Temperaturserie befindet sich in Abbildung 3.5. Aus der Position dieser Singularitäten kann  $\Delta = \Delta(T)$  rekonstruiert werden. Für endliche Werte des Dynes-Parameters  $\Gamma$  ergeben sich anstelle der Singularitäten endliche Maxima. Solange diese hinreichend ausgeprägt sind, lässt sich auch in diesem Fall die Temperaturabhängigkeit der Energielücke aus der Verschiebung der Maxima bestimmen.

Bei den hier gemessenen Spektren ist dieses Verfahren jedoch problematisch, wie Abbildung 8.21 zeigt. So verschieben sich die Kohärenzmaxima mit zunehmender Temperatur nur wenig, werden aber gleichzeitig so stark verbreitert, dass eine Be-

stimmung der Energielücke aus den resultierenden Strukturen fragwürdig erscheint. Es ist zu vermuten, dass in erster Linie die großen Werte des Dynes-Parameters dafür verantwortlich sind, die benötigt werden, um die Spektren bei tiefen Temperaturen zu beschreiben.

Anhand des Kontaktes, an dem die in Abbildung 8.21 dargestellten Spektren gemessen wurden, wurde im letzten Abschnitt die Übereinstimmung mit dem Modell der Trapezbarriere für  $T = 0$  diskutiert. Abbildung 8.16 zeigt die Resultate einer Kurvenanpassung für dieses Modell. Die resultierenden Parameter  $\Delta$  und  $\Gamma$  für einen planaren Kontakt wurden benutzt, um die Zustandsdichten nach (2.22) und (2.24) sowie gemäß (3.45) die Leitwertsspektren für verschiedene Temperaturen im Bereich  $0 < T < T_c$  zu berechnen. Die Resultate sind in den Abbildungen 8.22 (b) und (c) dargestellt. Dabei wurde eine BCS-Abhängigkeit der Energielücke für einen  $s$ -Wellen-Supraleiter zugrunde gelegt, die nach der Näherungsformel nach [Einzel03] berechnet wurde und ebenfalls in Teilabbildung 8.22 dargestellt ist. Die Kohärenzmaxima in den Spektren aus Teilabbildung (c) zeigen tatsächlich keine deutliche Verschiebung, jedoch eine starke Verbreiterung mit zunehmender Temperatur, ganz ähnlich wie die experimentellen Spektren aus Abbildung 8.21. Ein weiterer Effekt, der in den berechneten Spektren für einen Supraleiter ohne Dynes-Verbreiterung aus Abbildung 3.5 in Abschnitt 3.4 auftritt, im Experiment jedoch nicht beobachtet wird, ist die Entstehung eines Maximums bei  $V = 0$  und hohen Temperaturen, das auf das Tunneln thermisch angeregter Ladungsträger  $E > \Delta$  zurückzuführen ist (vgl. S. 31). Auch in diesem Fall zeigen die für die Parameter  $\Delta$  und  $\Gamma$  berechneten Spektren in Abbildung 8.22 (c) nur noch einen ganz schwachen Ansatz für ein solches Maximum, stattdessen jedoch einen sehr flachen Verlauf der  $G(V)$ -Kurven nahe  $V = 0$  für hohe Temperaturen, der auch in den experimentellen Spektren zu beobachten ist. Einige Abweichungen der experimentellen Spektren von dem theoretisch erwarteten Verlauf lassen sich also durch verhältnismäßig große Werte des Dynes-Parameters  $\Gamma$ , also eine geringe Lebensdauer der Quasiteilchen, erklären.

Um einen groben Überblick zu geben, inwieweit die Temperaturabhängigkeit der Spektren im Nullfeld charakteristisch für die jeweils untersuchte Probe bzw. das gesamte Materialsystem ist, wurde in einem nächsten Schritt die Variation des Leitwertes bei  $V = 0$  als Funktion der Temperatur untersucht und für die Spektren der Temperaturserien im Nullfeld an der Proben der LCCO- (a) und PCCO-Serie (b) in Abbildung 8.23 dargestellt. Dabei wurde die Temperatur auf die jeweilige kritische Temperatur der untersuchten Probe, der Leitwert  $G(V = 0, T)$  auf den Wert bei  $T = T_c$  normiert, um die Kurven verschiedener Proben besser vergleichen zu können. Verschiedene Kurven der gleichen Farbe beziehen sich stets auf unterschiedliche Kontakte der gleichen Probe. Wie die Abbildung 8.23 zeigt, folgt der Leitwert der Tunnelspektren im tiefsten Punkt der Energielücke als Funktion der Temperatur für alle Proben einem sehr ähnlichen Verlauf. Die Steigung der  $G(V = 0, T)/G(V = 0, T = T_c)$ -Kurve nimmt zunächst zu, erreicht ein Maximum

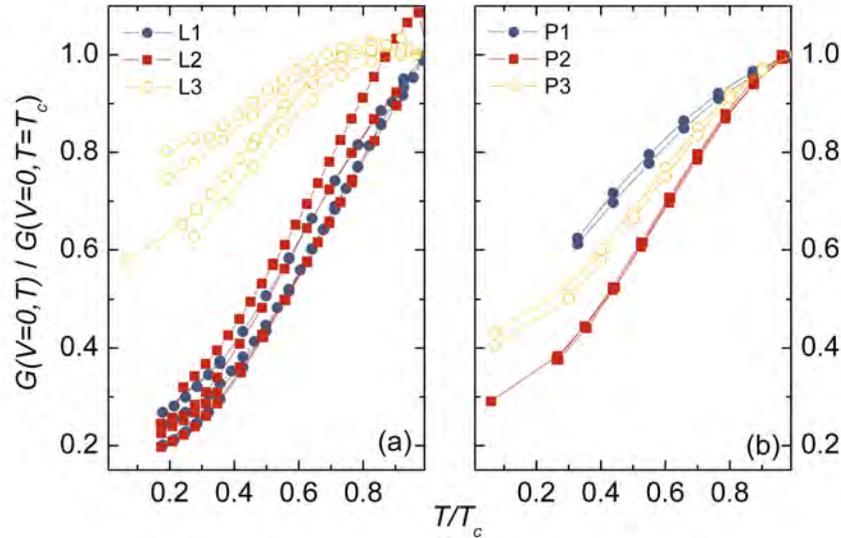


Abbildung 8.23: Leitwert bei  $V = 0$ , normiert auf den Wert bei  $T_c$ , als Funktion der reduzierten Temperatur  $T/T_c$  für die Spektren der Temperaturserien im Nullfeld an den Proben der LCCO (a) und PCCO-Serie (b)

etwa bei  $T/T_c = 0.5$  und nimmt für  $T/T_c \rightarrow 1$  wieder ab. Die Kurven für verschiedene Kontakte einer Probe stimmen für fast alle Proben recht gut überein. Die überdotierte LCCO-Probe nimmt dabei eine Sonderstellung ein, da die Kurven im Vergleich zu den Kurven anderer Proben bei deutlich höheren Werten liegen. Dies ist auf die schon in Abschnitt 8.1.1 festgestellte, vergleichsweise geringe Modulationstiefe der Spektren der überdotierten LCCO-Probe zurückzuführen (vgl. Tabelle 8.1).

Schließlich soll die Abhängigkeit der Tunnelspektren im Nullfeld von der Temperatur noch quantitativ etwas genauer untersucht und mit der Temperaturabhängigkeit verglichen werden, die sich aus dem Modell der Trapezbarriere ergibt. Exemplarisch wird dazu eine weitere Serie von Tunnelspektren an der überdotierten LCCO-Probe verwendet, die in Abbildung 8.24 (b) dargestellt ist. Teilabbildung (a) zeigt noch einmal das bei 1.4 K aufgenommene Spektrum, zusammen mit einer gemäß (4.36) berechneten Kurve für die Parameter  $E_F = 0.3 \text{ eV}$ ,  $\phi = 80 \text{ mV}$ ,  $t = 23.6 \text{ \AA}$ ,  $\Delta = 2.0 \text{ meV}$ ,  $\Gamma = 1.1\Delta$  und  $A = 310^{-12} \text{ m}^2$ , welche den Verlauf der Messkurve, insbesondere im Bereich der Energielücke, recht gut wiedergibt. Ausgehend von diesen Parametern, sowie dem in Abschnitt 7.1 bestimmten Wert von  $T_c = 21.8 \text{ K}$  und unter der Annahme  $\Delta(1.4 \text{ K}) \approx \Delta(0 \text{ K})$  wurden im Anschluss Spektren gemäß den im Anhang hergeleiteten Formeln (A.26)-(A.30) für die Temperaturen berechnet, für die in Abbildung 8.24 (b) Messdaten vorliegen. Dabei wurde wieder ei-

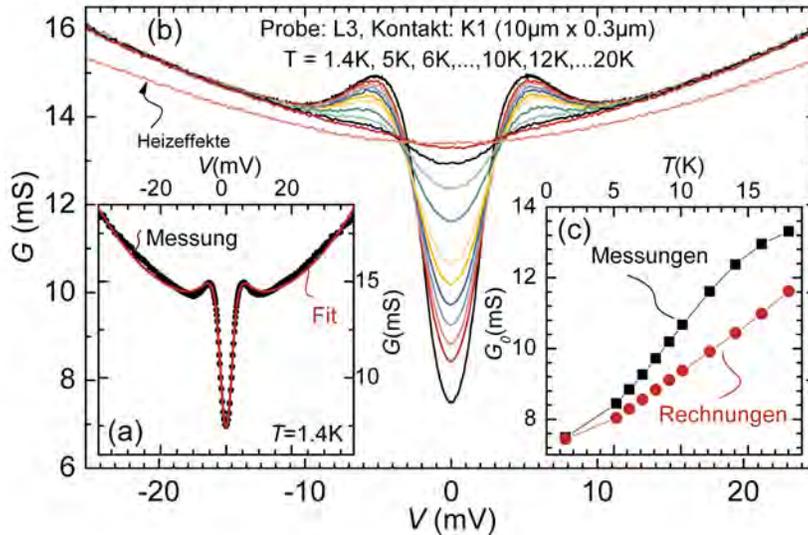


Abbildung 8.24: Spektren an einem Kontakt der überdotierten LCCO-Probe für  $T = 1.4$  K und  $H = 0$  zusammen mit einer an die Daten angepassten Kurve nach dem Modell der Trapezbarriere (a), experimentelle Spektren für verschiedene Temperaturen im Nullfeld (b) sowie der Leitwert bei  $V = 0$  als Funktion der Temperatur für die experimentellen Spektren und für die anhand der Fitparameter aus Teilabbildung (a) unter Berücksichtigung einer BCS-Temperaturabhängigkeit der Energielücke berechneten Spektren (c).

ne BCS-Temperaturabhängigkeit der Energielücke sowie zunächst ein temperaturunabhängiger Wert für den Dynes-Parameter vorausgesetzt. Es zeigt sich, dass die Temperaturabhängigkeit der Spektren auf diese Weise nicht beschrieben werden kann. Um dies zu verdeutlichen, ist in Teilabbildung 8.24 (c) der Leitwert bei  $V = 0$  für die experimentellen Spektren aus Teilabbildung (b) und für die auf diese Weise berechneten Spektren jeweils als Funktion der Temperatur in einem Graphen dargestellt. Der Leitwert im tiefsten Punkt der Energielücke steigt für die experimentellen Kurven mit zunehmender Temperatur deutlich stärker, als für die berechneten Kurven. Es ist jedoch plausibel, diesen Unterschied auf eine Temperaturabhängigkeit des Dynes-Parameters  $\Gamma$  zurückzuführen.  $\Gamma$  ist umgekehrt proportional zur Lebensdauer der Quasiteilchen. Da diese Lebensdauer durch Streuprozesse beschränkt wird, ist es wahrscheinlich, dass die Lebensdauer mit zunehmender Temperatur ab-, der Dynes-Parameter entsprechend zunimmt. Der funktionale Zusammenhang hängt dabei vom dominierenden Streuprozess ab. Für die Streuung an Phononen bei klassischen Supraleitern ergibt sich eine Abhängigkeit gemäß

$\Gamma \sim \sqrt{(k_B T / \Delta)} \exp(-\Delta / k_B T)$  [Dynes78], für Hochtemperatur-Supraleiter wird eine  $\Gamma \sim T^3$ -Abhängigkeit vorgeschlagen [Coffey90, Coffey93] und in Materialien wie  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  und  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  auch beobachtet [Takada89, Wolf91]. Um die Temperaturabhängigkeit von  $\Gamma$  näher zu untersuchen, wurde für jedes Spektrum aus Abbildung 8.24 (b) eine Kurvenanpassung, gemäß (A.26)-(A.30) durchgeführt, wobei nur der Dynes Parameter  $\Gamma$  als variabler Parameter verwendet wurde; die übrigen für 1.4 K ermittelten Parameter, die Temperatur bei der das betrachtete Spektrum aufgenommen wurde sowie die kritische Temperatur von 21.8 K werden festgehalten. Abbildung 8.25 stellt die experimentellen Daten und die Ergebnisse dieser Kurvenanpassungen in den Teilabbildungen (a) und (b) einander gegenüber. Es wird deutlich, dass sich die Temperaturabhängigkeit der Spektren auf diese Weise sehr gut reproduzieren lässt, sowohl im Bereich nahe  $V = 0$  also auch im Bereich der Kohärenzmaxima. In Teilabbildung 8.25 (c) schließlich ist die Differenz des auf diese Weise bestimmten Wertes für  $\Gamma(T)$  und des für tiefe Temperaturen ermittelten Wertes  $\Gamma_0 = \Gamma(T = 0)$  gegen die zugehörige Temperatur aufgetragen. Die Temperaturabhängigkeit des Dynes-Parameters lässt sich in diesem Fall sehr schön durch ein  $T^3$ -Gesetz beschreiben, wie die an die Daten angepasste Kurve belegt. Eine Wiederholung dieser Auswertung für einige der Temperaturserien, die Abbildung 8.23 zugrunde liegen, zeigt jedoch, dass sich auf diese Weise für verschiedene Proben und sogar verschiedene Kontakte der gleichen Probe kein eindeutiger funktionaler Zusammenhang zwischen  $\Gamma$  und  $T$  ermitteln lässt. Dabei ist zu vermuten, dass es eine Rolle spielt, wie gut die Übereinstimmung zwischen experimentellen und berechneten Spektren schon bei der kleinsten Temperatur gelingt. Allen Temperaturserien an den Proben der LCCO- und PCCO-Serie ist jedoch gemeinsam, dass ein mit der Temperatur anwachsender Dynes-Parameter notwendig ist, um das Verhalten der Spektren zu reproduzieren.

Abschließend soll die Temperaturabhängigkeit der Hintergrundleitfähigkeit etwas genauer untersucht werden. Die Tatsache, dass die Tunnelspektren für  $T > T_c$  im Außenbereich deutlich unterhalb der Spektren für  $T < T_c$  verlaufen, ist wiederum wenigstens zu einem großen Teil auf den im normalleitenden Zustand mitgemessenen Widerstand  $R_K$  der Zuleitungen zurückzuführen, wie in Abschnitt 8.1.2 erläutert wird. In diesem Zusammenhang ist auch die Abweichung vom linearen Verhalten in der Hintergrundleitfähigkeit für einige Spektren im Übergangsbereich als Heizeffekt zu erklären. Aufgrund des aufgeprägten Stromes über den Kontakt kommt es zu einer Dissipation von Wärme an der Korngrenze. Mit zunehmender Spannung wird der Kontakt also lokal immer mehr aufgeheizt. Da der Filmwiderstand im Übergangsbereich besonders stark von der Temperatur abhängt, kann der Zuleitungswiderstand  $R_K$  für ein Spektrum nicht mehr als konstant angenommen werden, sondern ändert sich mit wachsender Spannung. Wächst der Widerstand mit zunehmender Temperatur, so nimmt daher die Steigung der  $G(V)$ -Kurve mit wachsendem Betrag der Spannung ab, wie es besonders deutlich bei der 28 K-Kurve in Abbildung A.12 zu beobachten ist. Für solche Kurven ist eine Korrektur gemäß (8.8) natürlich nicht möglich.

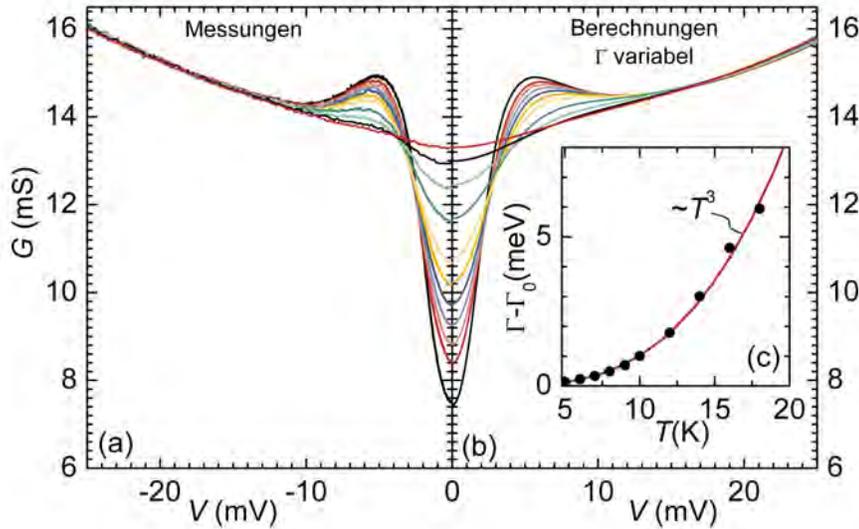


Abbildung 8.25: experimentelle Spektren aus Abbildung 8.24 (a), an diese Spektren angepasste Kurven nach (A.26)-(A.30) mit  $\Gamma$  als Fitparameter (b), sowie der auf diese Weise bestimmte Dynes-Parameter als Funktion der Temperatur zusammen mit einem an diese Daten angepassten  $T^3$ -Gesetz (c)

Insgesamt zeigt die Hintergrundleitfähigkeit der vermessenen Spektren nur eine relativ schwache Temperaturabhängigkeit. Dies ist insofern interessant, als es die Auswahl der Modelle einschränkt, die zur Erklärung der Hintergrundleitfähigkeit eingesetzt werden können. Insbesondere beim inelastischen Tunneln über Zwischenzustände wird erwartet, dass die Steigung der Hintergrundleitfähigkeit als Funktion der Spannung mit zunehmender Temperatur größer wird, da für höhere Temperaturen Kanäle mit einer größeren Anzahl von Zwischenzuständen relevant werden (vgl. Abschnitt 4.2.3). Beim inelastischen direkten Tunneln hängt eine Temperaturabhängigkeit der Spektren im Außenbereich gemäß (4.43) von der Temperaturabhängigkeit des Produktes  $F(\omega)n(\omega)$  aus der spektralen Verteilung der Anregungsmoden in der Barriere und der Bose-Funktion ab. Für elastische Prozesse, bei denen zusätzlich die Tunnelwahrscheinlichkeit nicht von der Temperatur abhängt, ist dagegen nur eine schwache Abhängigkeit der Spektren von der Temperatur zu erwarten. Dies zeigen auch die für das Modell der Trapezbarriere berechneten Spektren in Abbildung 8.25(b).

## 8.2 Tunnelspektroskopie an normalleitenden Kontakten

In den folgenden Abschnitten werden die Ergebnisse der Tunnelspektroskopie an Kontakten zusammengefasst, bei denen die Supraleitung durch ein hinreichend großes Magnetfeld unterdrückt wird. Dabei liegt ein besonderer Schwerpunkt auf der Beschreibung der Pseudolücke.

Grundsätzlich gibt es zwei verschiedene Betrachtungsweisen dieser Struktur, die einander in Abschnitt 8.2.1 gegenübergestellt werden. So könnten Pseudolücke und Hintergrundleitfähigkeit auf unterschiedliche Effekte zurückzuführen sein, die sich überlagern, oder sie könnten durch den gleichen Effekt verursacht werden und somit untrennbar zusammengehören. Entsprechend werden die beiden Ansätze im folgenden kurz als multikausaler bzw. monokausaler Ansatz bezeichnet.

Vor einer genaueren Beschreibung der Pseudolücke im Rahmen dieser beiden Ansätze werden jedoch zunächst einige wesentliche experimentelle Ergebnisse festgehalten, die den Einfluss der Zuleitungswiderstände sowie den Einfluss von Magnetfeldern und von der Temperatur auf die Form der Leitwertsspektren für normalleitende Kontakte bei  $H > H_{c2}(T)$  betreffen. Insbesondere wird gezeigt, dass die Spektren für  $H > H_{c2}(T)$  nur sehr schwach vom Magnetfeld abhängen, so dass für alle Proben Spektren bei einem Feld von z. B. 15 T verwendet werden können, um eine vergleichende Charakterisierung vorzunehmen.

Solche Charakterisierungen im Rahmen der beiden in Abschnitt 8.2.1 vorgestellten Ansätze sowohl für tiefe Temperaturen als auch im Hinblick auf die Entwicklung der Spektren mit zunehmender Temperatur werden in den Abschnitten 8.2.6 und 8.2.8 vorgestellt.

Eine besonders wichtige Kenngröße im Rahmen des multikausalen Ansatzes ist die Temperatur  $T^*$ , bei der die Pseudolücke verschwindet. Da der Verlauf der  $T^*(x)$ -Kurve im Phasendiagramm, wie in der Einleitung erläutert, wichtige Rückschlüsse auf den Ursprung der Pseudolücke erlaubt, und dieser Punkt derzeit in der Literatur kontrovers diskutiert wird, wurde besondere Mühe darauf verwendet, Temperaturserien von Tunnelspektren bei 15 T jeweils für verschiedene Kontakte der einzelnen Proben im Hinblick auf die Bestimmung von  $T^*$  zu analysieren. Dabei stellt sich heraus, dass für den multikausalen Ansatz sowohl die Kenngrößen der Spektren bei tiefen Temperaturen wie auch die Werte von  $T^*$  sich erstens für verschiedene Kontakte einer Probe erheblich unterscheiden können und zweitens deutlich von der Extrapolation der Hintergrundleitfähigkeit für  $V \rightarrow 0$  beeinflusst werden. Insofern ist es sehr problematisch, den Experimenten eine eindeutige Dotierungsabhängigkeit der Kenngrößen zu entnehmen.

Eine Möglichkeit, die zahlreichen Schwierigkeiten bei der Bestimmung von Kenngrößen im Rahmen des multikausalen Ansatzes zu erklären, könnte darin bestehen, dass Pseudolücke und Hintergrundleitfähigkeit eben nicht getrennt voneinander be-

trachtet werden können. Daher werden in Abschnitt 8.2.8 der Verlauf der Leitwertspektren für  $\mu_0 H = 15 \text{ T}$  und tiefe Temperaturen sowie die Entwicklung dieser Spektren mit zunehmender Temperatur im Rahmen eines monokausalen Ansatzes analysiert. Dabei konzentriert sich die Behandlung auf ein Korrelationsmodell, bei dem die Form der Leitwertsspektren auf Wechselwirkungen zwischen den Elektronen zurückgeführt wird.

### 8.2.1 Ansätze zur Beschreibung der Pseudolücke

Bei dem Versuch, die in Tunnelspektren an elektronendotierten Hochtemperatursupraleitern für kleine Temperaturen und hohe Magnetfelder beobachteten Pseudolücke näher zu charakterisieren, tritt ein grundlegendes Problem auf, das in Abbildung 8.26 illustriert wird. Die Pseudolücke wurde in Abschnitt 8.1.2 als Unterdrückung des Leitwertes im Vergleich zur Hintergrundleitfähigkeit nahe  $V = 0$  eingeführt. Dieser Vorstellung liegt die Idee zugrunde, dass Pseudolücke und Hintergrundleitfähigkeit auf verschiedene Effekte zurückgehen, die sich überlagern. Insofern lassen sich die Eigenschaften der Pseudolücke nur im Verhältnis zur Hintergrundleitfähigkeit definieren, und

folglich gehen in Eigenschaften der Pseudolücke immer auch Annahmen bezüglich der Hintergrundleitfähigkeit ein. In Teilabbildung (a) sind zwei mögliche Hintergrundfunktionen eingetragen und mit den Ziffern 1 und 2 gekennzeichnet. Es ist offensichtlich, dass Kenngrößen wie die Tiefe der Pseudolücke, also der Differenz zwischen der Hintergrundleitfähigkeit und der experimentellen Leitfähigkeit bei  $V = 0$  wesentlich von der Wahl der Hintergrundfunktion abhängen werden. Dieser Ansatz zur Beschreibung der Pseudolücke wird im folgenden als **multikausaler Ansatz** oder auch als **Überlagerungsmodell** bezeichnet. Auf der anderen Seite besteht die Möglichkeit, dass Pseudolücke und Hintergrundleitfähigkeit durch den gleichen Effekt verursacht werden, also nicht voneinander zu trennen sind. In diesem Fall wird also der Verlauf der  $G(V)$ -Kurve im gesamten Spannungsbereich durch einen funktionalen Zusammenhang beschrieben, wie in Teilabbildung (b) angedeutet ist. Entsprechend wird dieser Ansatz in den folgenden Abschnitten als **monokausaler Ansatz** bezeichnet.

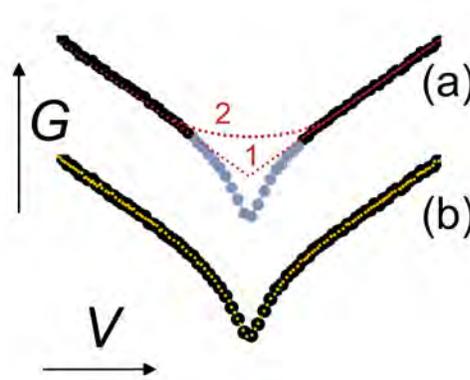


Abbildung 8.26: Illustration zu Betrachtungsweisen der Pseudolücke

	$\rho_K$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )	$\rho_{\text{Film}}(T \rightarrow 0, 15\text{T})$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )		$\rho_K$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )	$\rho_{\text{Film}}(T \rightarrow 0, 15\text{T})$ ( $\mu\Omega\text{cm}$ )
L1	100 – 200	70	P1	80 – 300	45
L2	200 – 400	105	P2	20 – 50	15
L3	25 – 40	15	P3	10 – 15	

Tabelle 8.2: Vergleich der aus der Korrektur der Tunnelspektren im Magnetfeld bestimmten Zuleitungswiderstände und der Filmwiderstände bei 15 K und  $T \rightarrow 0$  aus Abbildung 7.1 für die Proben der LCCO- und PCCO-Serie

## 8.2.2 Zuleitungswiderstände

In Abbildung 8.27 sind beispielhaft zwei Leitwertkurven dargestellt, die an einem Kontakt der unterdotierten LCCO-Probe L1 bei 1.4 K und 0 T bzw. 15 T aufgenommen wurden. Geht man davon aus, dass die unterschiedlichen Hintergrundleitfähigkeiten dieser beiden Kurven ausschließlich auf den in Abschnitt 8.1.2 erläuterten Effekt der Zuleitungswiderstände zurückzuführen sind, so lässt sich aus der Nullfeldkurve und der bei 15 T aufgenommenen Kurve gemäß (8.9) der Korrekturwiderstand  $R_K$  bestimmen. Unter Berücksichtigung der jeweiligen Kontaktgeometrie (vgl. Abschnitt 6.1) kann anschließend aus  $R_K$  der spezifische Zuleitungswiderstand  $\rho_K$  berechnet werden. In Tabelle 8.2.2 werden diese spezifischen Zuleitungswiderstände für die untersuchten Kontakte der LCCO- und PCCO-Serie zusammengefasst und mit zu  $T = 0$  extrapolierten Werten der  $\rho(T, 15\text{T})$  Kurven aus Messungen an Filmwiderständen gemäß Abbildung 7.1 verglichen. Zum einen zeigt sich, dass die spezifischen Zuleitungswiderstände verschiedener Kontakte einer Probe sich um einen Faktor 2 bis 3 unterscheiden können. Außerdem liegen die Werte deutlich über den Werten der entsprechenden Filmwiderstände. Beide Effekte sind mit hoher Wahrscheinlichkeit darauf zurückzuführen, dass der Film im Bereich der Zuleitungen aufgrund der Nähe der Korngrenze eine höhere Defektdichte aufweisen könnte. Allerdings ist festzuhalten, dass die Dotierungsabhängigkeit des spezifischen Zuleitungswiderstands qualitativ mit der Dotierungsabhängigkeit des Filmwiderstands übereinstimmt: Proben mit besonders kleinem Filmwiderstand zeigen auch besonders kleine Zuleitungswiderstände, Proben mit besonders großem Filmwiderstand zeigen entsprechend besonders große Zuleitungswiderstände. Insbesondere die optimal dotierte LCCO-Probe weist sowohl einen ungewöhnlich großen Filmwiderstand als auch die im Vergleich größten Zuleitungswiderstände auf.

Die mit diesem Zuleitungswiderstand gemäß (8.8) korrigierte Leitwertkurve  $G_{RK}(V, 15T)$  ist ebenfalls in Abbildung 8.27 eingetragen. Weiterhin wurden an den Außenbereich ( $|V| > 20\text{ mV}$ ) sowohl der experimentellen  $G(V)$ -Kurve als auch der korrigierten  $G_{RK}(V)$ -Kurve jeweils für positive und negative Spannungen lineare Funktionen der Form (4.23) angepasst. Die resultierenden  $G_{lin}(V)$  und  $G_{RKlin}(V)$  Kurven wurden ebenfalls in die Abbildung 8.27 aufgenommen. Betrachtet man die Messdaten

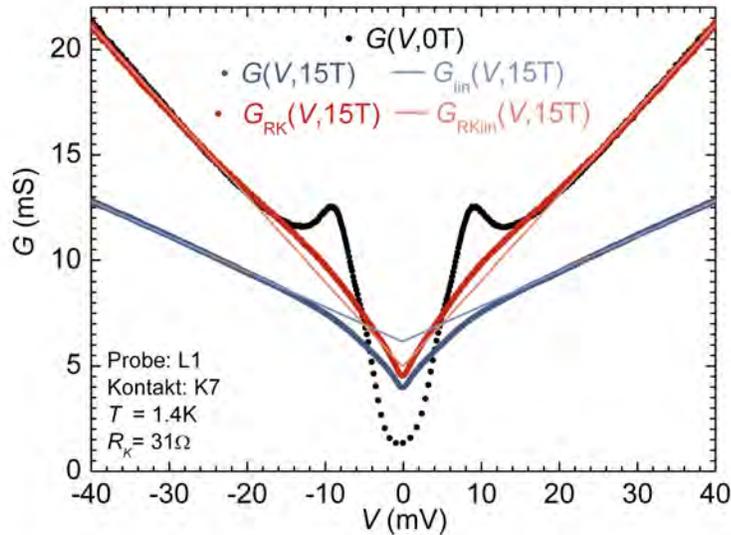


Abbildung 8.27: Bei 1.4 aufgezeichnete Tunnelspektren an einem Kontakt der unterdotierten LCCO-Probe bei 0 T bzw. 15 T, sowie gemäß (8.8) korrigierte 15 T-Kurve

bzw. die korrigierten Messdaten im Vergleich mit den jeweiligen linearen Funktionen, so fällt ein wesentlicher Unterschied ins Auge: Bei den unkorrigierten Messdaten weicht die  $G(V)$ -Kurve im gesamten Bereich der Pseudolücke nach unten von der linearen Hintergrundleitfähigkeit ab. Bei den korrigierten Daten dahingegen, weicht die  $G_{RK}(V)$  Kurve zunächst nach oben von der linearen Hintergrundleitfähigkeit ab, bei kleineren Spannungen nimmt die Steigung der  $G_{RK}(V)$  Kurve jedoch wieder deutlich ab, so dass man insgesamt durchaus von einer Pseudolücke sprechen kann. Dieses Verhalten wird an den meisten Kontakten der LCCO-Proben beobachtet, während bei den PCCO-Proben die korrigierten 15T-Kurven ein ähnliches Verhalten aufweisen, wie die unkorrigierten Daten.

Lassen sich Pseudolücke und Hintergrundleitfähigkeit auf unterschiedliche Effekte zurückführen (multikausaler Ansatz), so stellt sich nun die Frage, ob die gerade beschriebene positive Abweichung der dargestellten  $G_{RK}(V)$ -Kurve vom linearen Verlauf bei höheren Spannungen eine Eigenschaft der Pseudolücke ist oder selbst zur Hintergrundleitfähigkeit gehört, die in diesem Fall durch eine andere Funktion beschrieben werden müsste, zum Beispiel durch eine Funktion der Form (4.24). Schließlich ist auch nicht mit Sicherheit auszuschließen, dass das beschriebene Korrekturverfahren für diese Proben nicht anwendbar ist, zum Beispiel aufgrund von Heizeffekten, die durch die höheren Zuleitungswiderstände begünstigt werden. Dagegen spricht allerdings, dass wie in Abschnitt 8.1.2 beschrieben, auch für die LCCO-

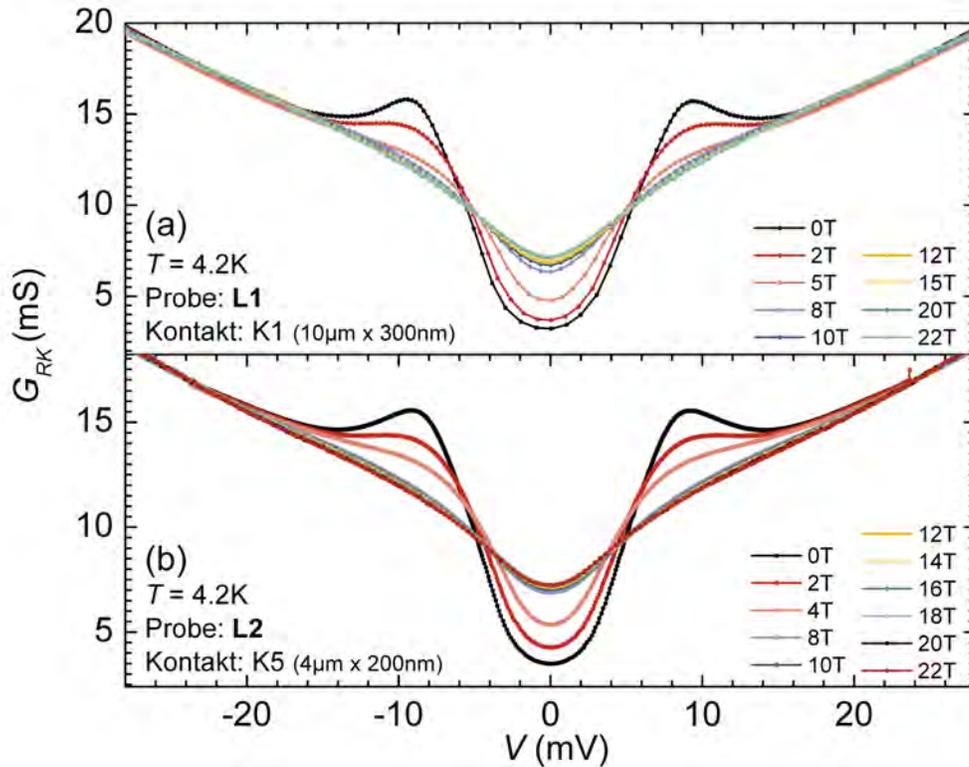


Abbildung 8.28: Gemäß (8.8) und (8.9) korrigierte Spektren an den Proben L1 und L2 der LCCO-Serie in Magnetfeldern bis zu 22 T, gemessen am GHMFL in Grenoble

Proben die Abhängigkeit der Korrekturwiderstände vom Magnetfeld qualitativ sehr gut die Magnetfeldabhängigkeit des Filmwiderstands widerspiegelt. Diese Problematik der LCCO-Serie wird auch Auswirkungen auf die für diese Proben bestimmten Kenngrößen haben (vgl. Abschnitt 8.2.6).

### 8.2.3 Einfluss von Magnetfeldern jenseits des kritischen Feldes

Erste Tunnelmessungen an Korngrenzenkontakten aus optimal dotiertem NCCO und PCCO im Rahmen einer früheren Dissertation legen nahe, dass sich die Pseudolücke bei Heliumtemperatur (4.2 K) durch ein Magnetfeld in der Größenordnung von 20 T unterdrücken lässt ([Kleefisch00], vgl. auch Abbildung 8.40 (a)). Daher wurde am GHMFL<sup>7</sup> in Grenoble Messzeit für diesen Feldbereich beantragt und erhalten. Auf diese Weise war es möglich, das Verhalten der LCCO-Proben in Feldern bis 22 T zu untersuchen; für die PCCO-Proben standen maximale Felder von 25 T,

<sup>7</sup>Grenoble High Magnetic Field Laboratory

	$\Delta$ (meV)	$B_p$ ( <i>s</i> -Welle) (T)	$B_p$ ( <i>d</i> -Welle) (T)	$\mu_0 H_{max}$ (T)
L1	4.6	56	42	22
L2	4.5	55	41	22
L3	2.5	31	23	22
P1	2.4	29	21	25
P2	3.2	39	29	25
P3	2.7	33	24	27

Tabelle 8.3: Werte für die Energielücke (aus Tabelle 8.1), für das paramagnetische Limit nach (8.15) und für das maximal bei Tunnelmessungen erreichte äußere Magnetfeld

für die überdotierte PCCO-Probe sogar 27 T zur Verfügung. In den Abbildungen 8.28 und 8.29 werden die Resultate dieser Mess-Serien für verschiedene Felder bei 4.2 K für die Proben der LCCO-Serie bzw. bei 6 K für die Proben der PCCO-Serie dargestellt. Im Gegensatz zu den ursprünglichen Vermutungen zeigen diese Messungen, dass ein Magnetfeld in der Größenordnung von 20 T die Pseudolücke für alle untersuchten Kontakte nicht unterdrückt. Stattdessen hängt die Pseudolücke im Magnetfeldbereich oberhalb von etwa 10 T nur sehr schwach vom Wert des Magnetfeldes ab.

Unter der Voraussetzung, dass die Pseudolücke Kennzeichen eines Vorläufers der supraleitenden Phase ist, in dem Sinn, dass Cooper-Paare existieren, aber noch keine Phasenkohärenz vorliegt, sollte ein Magnetfeld in der Größe des paramagnetischen Grenzwertes die Pseudolücke unterdrücken. Vereinfacht lässt sich der paramagnetische Grenzwert abschätzen als Magnetfeld, bei dem der Energiegewinn durch Bildung eines (Singlett) Cooper-Paares gerade durch den Energieverlust des Elektrons mit Spin antiparallel zum äußeren Feld kompensiert wird, wenn also

$$2\Delta_0 = g\mu_B B \quad (8.14)$$

gilt. Genauere Berechnungen liefern je nach Symmetrie des Ordnungsparameters noch verschiedene Vorfaktoren [Clogston62, Yang98], so dass insgesamt die magnetische Induktion im paramagnetischen Grenzfall  $B_p$  durch

$$B_p \approx \begin{cases} 12 \text{ T } \frac{\Delta_0}{\text{meV}} & \text{für } s\text{-Wellen Supraleitung} \\ 9 \text{ T } \frac{\Delta_0}{\text{meV}} & \text{für } d\text{-Wellen Supraleitung} \end{cases} \quad (8.15)$$

gegeben ist.

In Tabelle 8.3 werden für die Proben der LCCO- und der PCCO-Serie die Werte der Energielücke aus Tabelle 8.1 und die daraus gemäß (8.15) berechneten Werte für das paramagnetische Limit bei *s*- und *d*-Wellen Supraleitung zusammengefasst und dem maximalen äußeren Magnetfeld gegenübergestellt, bei dem die jeweilige Probe

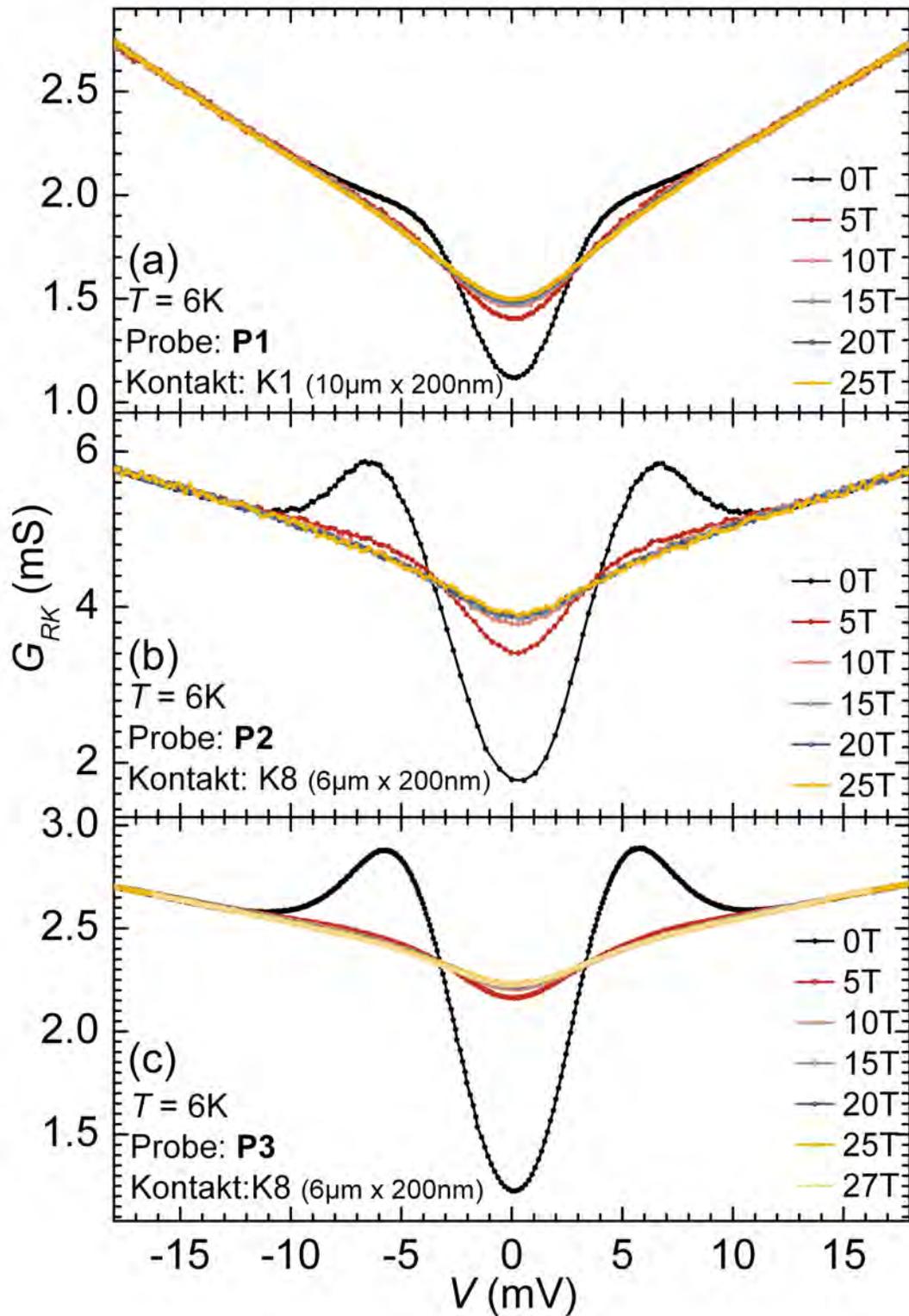


Abbildung 8.29: Gemäß (8.8) und (8.9) korrigierte Spektren an den Proben der PCCO-Serie in Magnetfeldern bis zu 27 T, gemessen am GHMFL in Grenoble

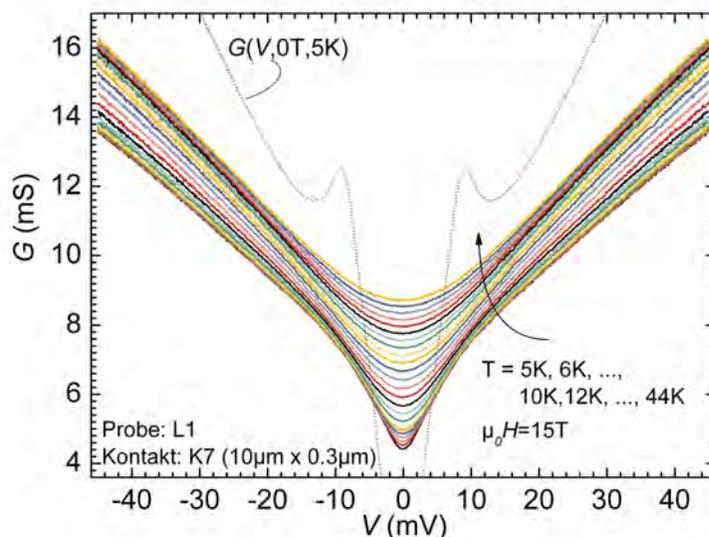


Abbildung 8.30: Serie von in einem Magnetfeld von 15 T bei verschiedenen Temperaturen zwischen 5 und 44 K aufgenommenen Tunnelspektren an einem Kontakt der unterdotierten LCCO-Probe (ohne Korrektur um die Effekte von Zuleitungswiderständen) sowie ein bei 5 K im Nullfeld aufgezeichnetes Spektrum für den gleichen Kontakt.

untersucht werden konnte. Insbesondere konnte also für die überdotierte und die unterdotierte PCCO-Probe der Bereich des paramagnetischen Grenzfalles (zumindest für  $d$ -Wellen-Supraleitung), erreicht werden, ohne dass die Pseudolücke in den Spektren merklich unterdrückt wird. Dies kann als Hinweis gegen eine Interpretation der Pseudolücke als Kennzeichen eines Zustandes mit Cooper-Paaren ohne Phasenkohärenz gewertet werden. Für eine weitergehende Aussage sollten jedoch entweder an den vorliegenden Proben Messungen in Feldern der Größenordnung von 50 T oder aber Messungen an Proben gemacht werden, deren Dotierung noch weiter vom optimalen Wert entfernt ist, so dass die Energielücke und damit das paramagnetische Limit kleinere Werte annehmen.

### 8.2.4 Einfluss der Temperatur

In den folgenden Abschnitten wird die Temperaturentwicklung der Tunnelspektren in hohen Magnetfeldern vorgestellt. Exemplarisch für das Verhalten aller untersuchten Proben (mit Ausnahme von Probe L3, deren Verhalten in Abschnitt 8.3 diskutiert wird) zeigt Abbildung 8.30 eine Serie von Tunnelspektren an einem Kontakt der unterdotierten LCCO-Probe L1 in einem Magnetfeld von 15 T für Tempera-

turen zwischen 5 K und 44 K sowie ein Spektrum bei 5 K im Nullfeld. Dargestellt sind die Original-Messwerte, es wurde also zunächst keine Korrektur um Effekte der Zuleitungswiderstände vorgenommen. Zum Vergleich ist weiterhin ein bei 5 K im Nullfeld aufgenommenes Spektrum des gleichen Kontaktes dargestellt. Wie die Abbildung zeigt, nimmt der Leitwert im gesamten Spannungsbereich mit zunehmender Temperatur zu während die Ausprägung der bei 5 K deutlich zu erkennenden Pseudolücke abnimmt. Die Abbildung illustriert ein wesentliches Problem, welches die Bestimmung von  $T^*$  erschweren wird. Die Änderung in der Form der Spektren mit zunehmender Temperatur erfolgt in einer kontinuierlichen Weise. Insbesondere ist keine Sprungtemperatur auszumachen, also eine ausgezeichnete Temperatur unterhalb und oberhalb derer sich die Form der Spektren qualitativ deutlich unterscheidet. Die Pseudolücke in Tunnelmessungen an lochdotierten Verbindungen zeigt eine sehr ähnliche Temperatur-Abhängigkeit [Renner98a]. Hier liegt mit hoher Wahrscheinlichkeit der Grund, warum in der Literatur veröffentlichte  $T^*(x)$ -Kurven in den meisten Fällen nicht auf Tunneldaten sondern auf den Ergebnissen anderer Experimente beruhen [Fischer07].

Vor einer näheren Behandlung des Problems der  $T^*$ -Bestimmung beschäftigen sich die folgenden beiden Abschnitte jedoch zunächst mit der Rolle von Zuleitungswiderständen und von thermischen Verrundungen für die gemessenen Spektren.

### **Problematik der Zuleitungswiderstände bei Temperatur-Serien**

In Abschnitt 8.1.2 wurde gezeigt, dass sich die unterschiedlichen Hintergrundleitfähigkeiten bei Tunnelspektren in verschiedenen Magnetfeldern bei kleinen (konstanten) Temperaturen in guter Näherung durch den Effekt von Zuleitungswiderständen beschreiben lassen. Abbildung 8.30 ist weiterhin zu entnehmen, dass für den untersuchten Kontakt der Probe L1 der gemessene Leitwert in einem Feld von 15 T auch im Bereich der Hintergrundleitfähigkeit zwischen 5 K und 44 K mit zunehmender Temperatur ansteigt. Genau in diesem Bereich der  $(T, H)$ -Ebene zeigen die Filmbrücken dieser Probe isolierendes, Verhalten, d. h. der Filmwiderstand sinkt mit zunehmender Temperatur, wie in Kapitel 7.2 diskutiert wird (vgl. Abbildung 7.1). Daher bleibt vor einer weiteren Auswertung zu klären, inwieweit auch für die Temperaturserien bei hohen Magnetfeldern die Veränderungen in der Hintergrundleitfähigkeit durch Effekte der Zuleitungswiderstände zu erklären sind.

Abbildung 8.31 (a) zeigt die Resultate einer entsprechenden Korrektur gemäß (8.8) für die in Abbildung 8.30 dargestellten Daten, wobei als Referenzkurve im supraleitenden Zustand die am gleichen Kontakt bei einer Temperatur von 5 K und einem Feld von 0 T aufgenommene  $G(V)$ -Kurve verwendet wurde. In Teilabbildung 8.31 (b) werden die dabei gemäß (8.9) bestimmten Werte für  $R_K$  gegen die jeweilige Temperatur aufgetragen und mit einer an einer Filmbrücke der gleichen Probe bei 15 T aufgezeichneten  $\rho(T)$ -Kurve verglichen. Die Skalierung der horizontalen Achse ist dabei für beide Kurven gleich. Die Beschriftung der linken vertikalen Achse bezieht sich auf die berechneten Zuleitungswiderstände, die Beschriftung der rechten

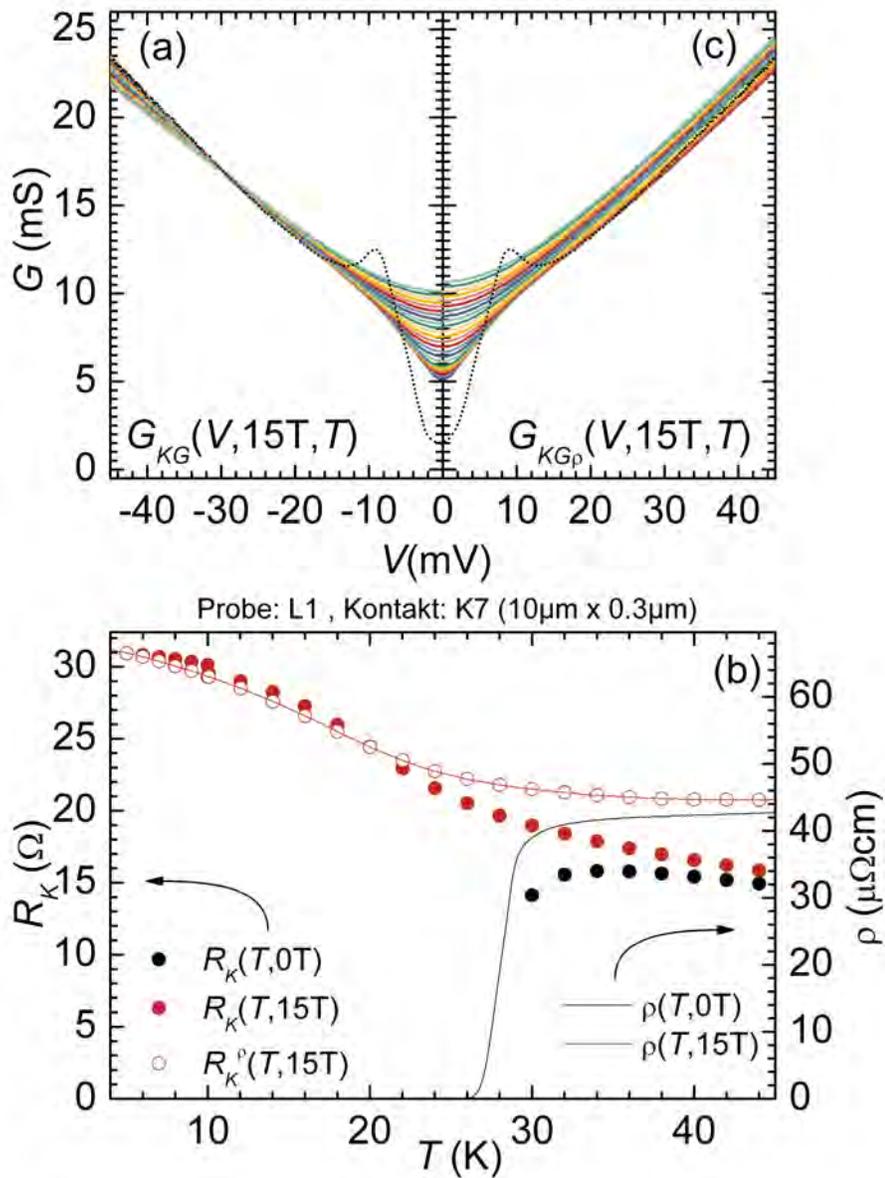


Abbildung 8.31: Daten aus Abbildung 8.30 nach der Korrektur um Zuleitungswiderstände gemäß (8.8) mit Hilfe der bei  $5\text{ K}$  und  $0\text{ T}$  aufgezeichneten  $G(V)$ -Kurve (a), der dabei berechnete Zuleitungswiderstand  $R_K$  als Funktion der Temperatur im Vergleich zur  $\rho(T, 15\text{ T})$ -Kurve an einer Filmbrücke der gleichen Probe (b), sowie die nach dem modifizierten Korrekturverfahren mit  $R_K^p$  korrigierten Leitwertsspektren aus Abbildung 8.30 (c).

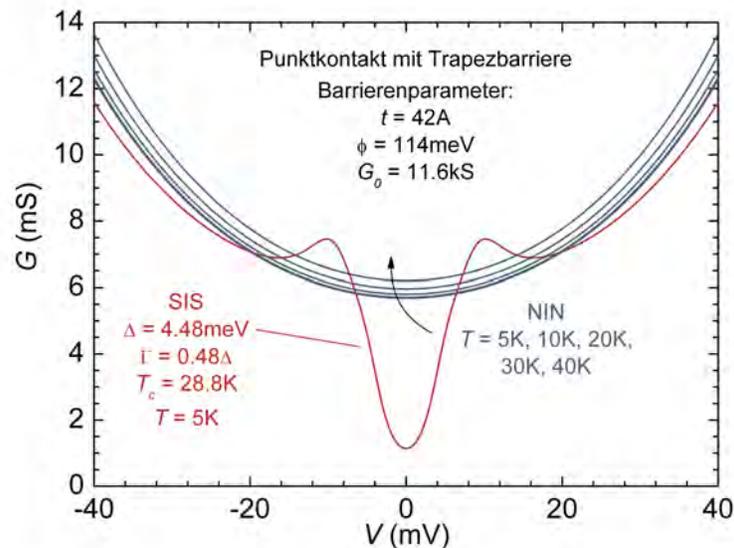


Abbildung 8.32: Nach dem Modell der Trapezbarriere für einen planaren Kontakt berechnete Spektren für einen NIN-Kontakt bei Temperaturen zwischen 5 K und 40 K, sowie für einen SIS-Kontakt mit den gleichen Barrierenparametern bei 5 K. Die verwendeten Parameter entsprechen den in Abbildung 8.16 zur Beschreibung eines Kontaktes an L2 verwendeten Parametern.

vertikalen Achse auf den gemessenen Filmwiderstand. Beide vertikalen Achsen unterscheiden sich lediglich um einen geeigneten Faktor, der so gewählt wurde, dass die beiden Kurven bei 5 K übereinander liegen.

In Abbildung 8.31 (a) zeigt sich, dass die bisher beschriebene Korrektur für höhere Temperaturen nicht besonders gut gelingt: im Außenbereich weisen die Kurven deutliche Unterschiede auf. Auch nehmen die berechneten  $R_K(T)$ -Werte in Teilabbildung 8.31 (b) mit zunehmender Temperatur für Temperaturen oberhalb von etwa 18 K deutlich stärker ab, als die entsprechenden  $\rho(T)$ -Werte. Diese Abweichungen treten für einige Kontakte insbesondere bei den Proben der LCCO-Serie auf.

Das in Abschnitt 8.1.2 beschriebene Verfahren zur Berechnung von  $R_K$  setzt voraus, dass sich die  $G(V)$ -Kurven eines normalleitenden Kontaktes nur durch den Effekt des Zuleitungswiderstands von den  $G(V)$ -Kurven des gleichen Kontaktes im supraleitenden Zustand unterscheiden. Liegen die nach diesem Verfahren korrigierten  $G_{RK}(V)$ -Kurven im Bereich der Hintergrundleitfähigkeit nun nicht übereinander, so lässt dies umgekehrt darauf schließen, dass ein weiterer Effekt die Hintergrundleitfähigkeit im normalleitenden Zustand beeinflusst.

Es ist davon auszugehen, dass auch für die vorliegenden Mess-Serien bei 15 T und verschiedenen Temperaturen die Zuleitungswiderstände eine Rolle spielen, das Problem liegt jedoch hier in der korrekten Bestimmung von  $R_K$ , wenn der Zuleitungswiderstand nicht der einzige Effekt ist, der die Hintergrundleitfähigkeit beeinflusst. Eine veränderte Brückengeometrie, die es ermöglicht, außer der Tunnelleitfähigkeit auch die Widerstände der Zuleitungen direkt zu messen, kam für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten (und vor dem Auftreten dieses Problems bereits strukturierten) Proben nicht mehr in Frage. Daher wird das folgende modifizierte Verfahren vorgeschlagen. Bei der bei 5 K und 15 T aufgenommenen  $G(V)$ -Kurve gelingt die Korrektur durch die Berechnung von  $R_K$  gemäß (8.9) anhand des bei der gleichen Temperatur im Nullfeld aufgezeichneten Tunnelspektrums für alle Proben recht gut. Daher wird der Faktor berechnet, um den sich  $R_K(5\text{ K})$  und  $\rho(5\text{ K})$  unterscheiden und die  $\rho(T)$ -Kurve wird mit diesem Faktor multipliziert. Die Werte der resultierenden Kurve bei den Temperaturen, für die Tunnelspektren bei 15 T vorliegen, im folgenden als  $R_{K\rho}(T)$  bezeichnet, werden nun für eine erneute Korrektur gemäß (8.8) verwendet. In Teilabbildung 8.31 (b) sind die auf diese Weise berechneten  $R_{K\rho}(T)$ -Werte als unausgefüllte Kreise eingetragen, die Resultate der erneuten Korrektur werden in Teilabbildung 8.31 (c) dargestellt. Wie diese Abbildung zeigt, werden die mit den  $R_{K\rho}(T)$ -Werten korrigierten  $G_{K\rho}(V)$ -Kurven bei hohen Temperaturen auch im Außenbereich etwas zu höheren Leitwerten hin verschoben. Dass ein solcher Effekt sich auch im Rahmen der bisher vorgestellten Modelle zumindest prinzipiell erklären lässt, zeigt Abbildung 8.32. Hier wird eine Serie von nach dem Modell der Trapezbarriere für einen eindimensionalen NIN-Kontakt berechneten Spektren bei Temperaturen zwischen 5 K und 40 K sowie das für einen SIS-Kontakt mit den gleichen Barrierenparametern bei 5 K berechnete Spektrum dargestellt. Die dabei verwendeten Parameter entsprechen den in Abbildung 8.16 zur Beschreibung eines Kontaktes an L2 verwendeten Werten. Die berechneten NIN-Spektren für Temperaturen oberhalb von etwa 20 K werden mit zunehmender Temperatur im gesamten Spannungsbereich etwas nach oben verschoben, was durchaus dem Verhalten der Spektren in Abbildung 8.31 (c) ähnelt. Für das Modell der Trapezbarriere ist diese Verschiebung mit hoher Wahrscheinlichkeit auf die konkrete Form der Tunnelwahrscheinlichkeit  $P(E, V)$  zurückzuführen.

### Thermische Verrundungen

Es bleibt noch zu untersuchen, inwieweit die Entwicklung der Pseudolücke mit zunehmender Temperatur durch thermische Verrundungen beeinflusst wird, also durch die Veränderung der Besetzungswahrscheinlichkeit mit zunehmender Temperatur. Insbesondere ist natürlich zu klären, ob die Veränderung der Spektren mit steigender Temperatur ausschließlich auf thermische Verrundungen zurückzuführen ist, oder ob die Pseudolücke eine *eigene* Temperaturabhängigkeit besitzt.

Kann man davon ausgehen, dass sich die Leitwertsspektren im Rahmen eines eindimensionalen Modells durch die Zustandsdichten  $N(E)$  der Elektroden und die

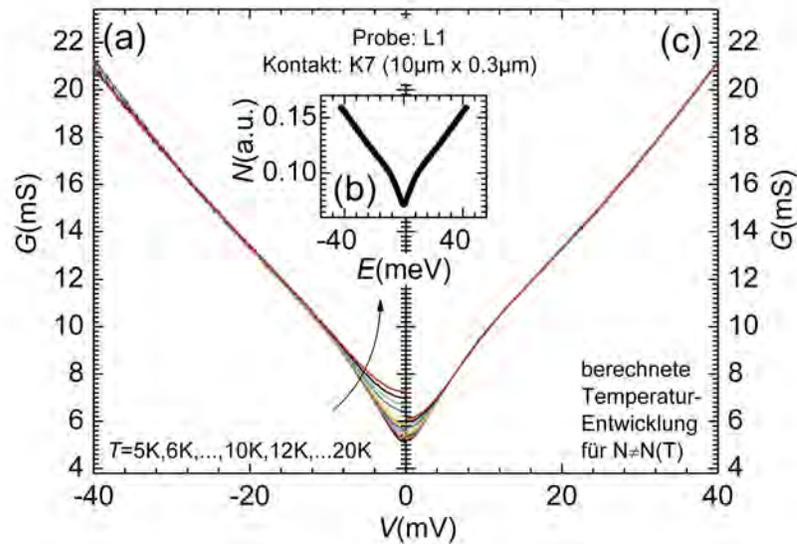


Abbildung 8.33: Temperatur-Serie bei 15 T aus Abbildung 8.31 (a), anhand der 5 K-Kurve unter der Annahme  $P(E, V) = 1$  berechnete Zustandsdichte  $N(E)$  (b) sowie die aus  $N(E)$  berechneten Leitwertsspektren für die gleichen Temperaturen wie in Teilabbildung (a), wobei eine temperaturunabhängige Zustandsdichte vorausgesetzt wird.

Tunnelwahrscheinlichkeit  $P(E, V)$  beschreiben lassen, so bietet es sich an, zunächst anhand des bei der kleinsten Temperatur aufgezeichneten Spektrums einer Serie durch Entfaltung nach (4.9) oder (4.17) die Zustandsdichte  $N(E)$  zu berechnen.

Unter der Annahme, dass die so ermittelte Zustandsdichte nicht von der Temperatur abhängt, lassen sich gemäß (3.6) aus der so bestimmten Zustandsdichte  $N(E)$ , der Fermifunktion und gegebenenfalls  $P(E)$  wieder Spektren für höhere Temperaturen berechnen, die dann mit den entsprechenden experimentellen Spektren verglichen werden können.

Abbildung 8.33 zeigt die Resultate einer solchen Berechnung. Dabei zeigt Teilabbildung (a) die experimentellen Daten für Temperaturen zwischen 5 K und 20 K, Teilabbildung (b) die aus der 5 K-Kurve unter der Annahme  $P(E) \equiv 1$  entfaltete Zustandsdichte und Teilabbildung (c) die aus dieser Zustandsdichte für die entsprechenden Temperaturen berechneten Leitwertsspektren, wobei vorausgesetzt wird, dass die Zustandsdichte nicht von der Temperatur abhängt.

Die Abbildung zeigt, dass für die experimentellen Kurven der Leitwert im Bereich der Pseudolücke mit steigender Temperatur deutlich stärker zunimmt, als bei den berechneten Kurven. Dabei wird der Abstand zwischen den experimentellen und

den entsprechenden berechneten Kurven nahe  $V = 0$  mit zunehmender Temperatur sogar größer.

In den Erläuterungen ab S. 199 wird gezeigt, dass das Ergebnis einer Entfaltung gemäß (4.17) wesentlich davon abhängt, welche Form für  $P(E)$  und damit welche Form der Hintergrundleitfähigkeit den Berechnungen zugrunde gelegt wird (vgl. Abbildung 8.39). Es zeigt sich jedoch, dass die Form von  $P(E)$  für die Leitwertspektren bei höheren Temperaturen, die aus den resultierenden Zustandsdichten berechnet werden, praktisch keine Rolle spielt. Exemplarisch ist dies für die Spektren aus Abbildung 8.33 (a) und Tunnelwahrscheinlichkeiten  $P(E) = f(V = E/e)$  für Funktionen  $f$  der Form (8.19) bzw. (8.20) in Abbildung A.14 dargestellt, die aus Platzgründen in den Anhang A.4 verschoben wurden.

Dies ist insofern nicht erstaunlich, als dass für verschiedene Funktionen  $P_1(E)$  und  $P_2(E)$  durch die Entfaltung Zustandsdichten  $N_1(E)$  und  $N_2(E)$  gerade so bestimmt werden, dass

$$\int_0^{eV} \underbrace{P_1(E)N_1(E)N_1(E - eV)}_{\psi_1(E,V)} dE = \int_0^{eV} \underbrace{P_2(E)N_2(E)N_2(E - eV)}_{\psi_2(E,V)} dE \quad (8.16)$$

gilt. Unter Berücksichtigung der Eigenschaften der Fermifunktion ist also wahrscheinlich, dass für nicht zu hohe Temperaturen auch

$$\int_{-\infty}^{+\infty} \psi_1(E, V)[f(E - eV) - f(E)]dE \approx \int_{-\infty}^{+\infty} \psi_2(E, V)[f(E - eV) - f(E)]dE \quad (8.17)$$

zutrifft.

Insgesamt kann die Temperaturabhängigkeit der Spektren bei 15 T also nicht allein auf thermische Verrundungen zurückzuführen sein, jedenfalls sofern sich die Spektren durch ein eindimensionales Modell beschreiben lassen, bei dem die Tunnelwahrscheinlichkeit nicht explizit von der Spannung abhängt. In diesem Fall lässt sich also schlussfolgern, dass die Pseudolücke eine eigene Temperaturabhängigkeit besitzt.

Dies stimmt mit den Ergebnissen einer ähnlichen Auswertung von Leitwertspektren an SIN-Kontakten aus  $\text{Pr}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_4$  in verschiedenen Dotierungen [Biswas01] überein. Dabei ist die Auswertung von SIN-Spektren deutlich einfacher, da in diesem Fall für tiefe Temperaturen unter der Annahme  $P(E, V) = 1$  der gemessene Leitwert direkt proportional zur Zustandsdichte ist. Eine Berechnung der thermischen Verrundungseffekte für SIS-Kontakte wird dagegen erst durch eine Technik zur Entfaltung der Tunnelspektren ermöglicht.

### 8.2.5 Spektren bei tiefen Temperaturen und $\mu_0 H = 15 \text{ T}$

In Kapitel 7 wurde anhand von Widerstandsmessungen an Filmbrücken demonstriert, dass ein Feld von 10 T - 15 T ausreicht, um bei den im Rahmen dieser Arbeit

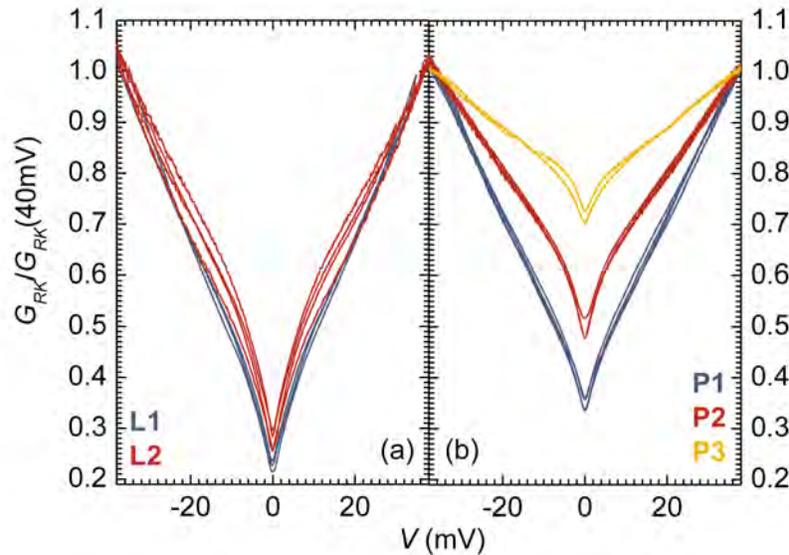


Abbildung 8.34: Bei 14T-15T und 1.4K-5K aufgenommene Spektren an den Proben der LCCO- bzw. PCCO-Serie ((a) bzw. (b)), jeweils skaliert auf den Leitwert bei  $V = 40$  mV.

untersuchten Proben die Supraleitung zu unterdrücken, auch für Temperaturen bis hinunter zu der unter den gegebenen Laborbedingungen minimalen erreichbaren Temperatur von etwa 1.4 K. Weiterhin wurde in Abschnitt 8.2.3 gezeigt, dass die Form der Spektren aller untersuchten Proben nach Erreichen des kritischen Feldes  $H_{c2}(T)$  zwar noch vom Magnetfeld abhängt, jedoch nur sehr schwach. Schließlich legt eine vergleichende Auswertungen von Spektren bei tiefen Temperaturen im Nullfeld und bei 15 T im Hinblick auf die Zustandserhaltung (vgl. Abschnitt 8.2.7 ebenfalls nahe, dass die Form der Spektren bei 15 T die Zustandsdichte im (experimentell nicht erreichbaren) Normalzustand bei tiefen Temperaturen im Nullfeld wiedergibt. Daher können bei Feldern von 14 T - 15 T und für Temperaturen unterhalb von 5 K aufgenommene Tunnelspektren verwendet werden, um eine vergleichende Charakterisierung der verschiedenen Proben durchzuführen.

Abbildung 8.34 gibt einen Überblick über die bei hohen Feldern (14 T-15 T) und kleinen Temperaturen (1.4 K - 5 K) aufgenommenen Spektren der LCCO- und PCCO-Serie. Zur besseren Vergleichbarkeit wurden alle  $G(V)$ -Kurven zunächst um die Effekte von Zuleitungswiderständen korrigiert und dann auf ihren Wert bei 40 mV normiert. Alle Proben zeigen qualitativ einen recht ähnlichen Verlauf, wie er bereits in Abschnitt 8.1.2 beschrieben wurde: Die Spektren sind symmetrisch zur  $G$ -Achse, verlaufen für Spannungen  $|V| > 20$  mV annähernd linear und im Bereich weniger meV, etwa auf der Energieskala der Energielücke im supraleitenden Zu-

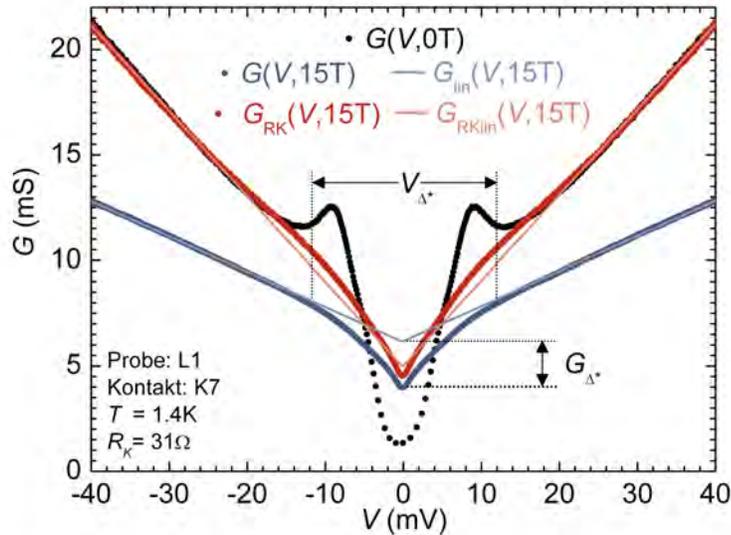


Abbildung 8.35: Spektren aus Abbildung 8.27 mit den Kenngrößen  $V_{\Delta^*}$  und  $G_{\Delta^*}$

stand, ist eine deutliche Unterdrückung des Leitwertes im Vergleich zur linearen Hintergrundleitfähigkeit zu beobachten. Abbildung 8.34 scheint zunächst nahezu legen, dass Breite und Ausprägung der Pseudolücke mit zunehmender Dotierung abnehmen. Allerdings bleibt in den nächsten Abschnitten zu untersuchen, inwieweit dieser Eindruck durch die Abhängigkeit der Hintergrundleitfähigkeit von der Dotierung beeinflusst wird (vgl. Abschnitt 8.2.6). Zunächst soll die Pseudolücke im Rahmen eines multikausalen Ansatzes quantitativ näher beschrieben werden.

## 8.2.6 Charakterisierung der Pseudolücke nach dem multikausalen Ansatz

### Kenngrößen bei tiefen Temperaturen

Um die Pseudolücke analog zu den Überlegungen in Abschnitt 8.1.1 durch geeignete Kenngrößen näher zu charakterisieren, bieten sich die Breite und Tiefe dieser Struktur an, die im folgenden als  $V_{\Delta^*}$  bzw.  $G_{\Delta^*}$  bezeichnet werden. Zur Illustration sind in Abbildung 8.35 noch einmal die Spektren aus Abbildung 8.27 dargestellt, wobei die Größen  $V_{\Delta^*}$  und  $G_{\Delta^*}$  für die unkorrigierte  $G(V)$ -Kurve bei 15 T im Vergleich zu einer linearen Hintergrundfunktion eingetragen sind. Die Größe  $G_{\Delta^*}$ , also die Differenz zwischen dem Wert  $G_{lin}(V = 0)$ , der sich durch Extrapolation der an den Außenbereich der Spektren angepassten Geraden zu  $V = 0$  ergibt, und dem Leitwert

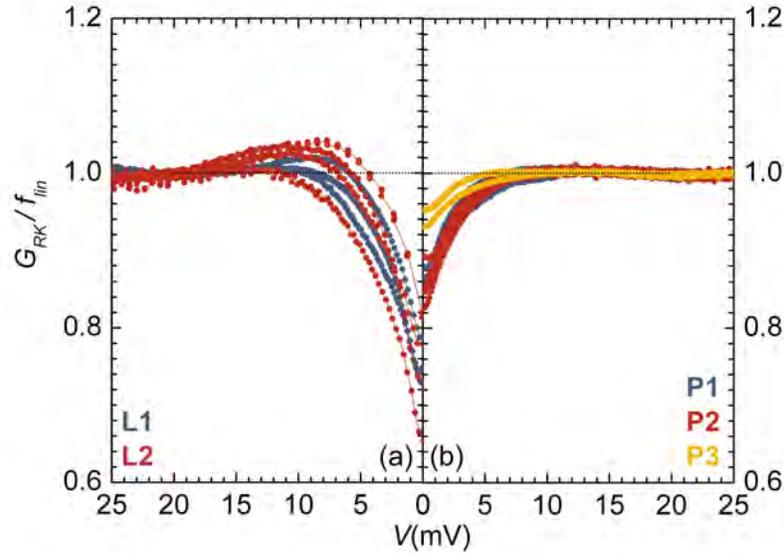


Abbildung 8.36: Bei 14 T-15 T und 1.4 K-5 K aufgenommene Spektren an den Proben der LCCO- bzw. PCCO-Serie ((a) bzw. (b)), jeweils geteilt durch eine an den Außenbereich angepasste lineare Funktion

$G(V = 0)$  lässt sich zur besseren Vergleichbarkeit noch auf den Wert  $G_{lin}(V = 0)$  normieren, so dass sich die relative Tiefe der Pseudolücke zu

$$g_{\Delta^*} = \frac{G_{\Delta^*}}{G_{lin}(V = 0)} = 1 - \frac{G(V = 0)}{G_{lin}(V = 0)} \quad (8.18)$$

ergibt.  $V_{\Delta^*}$  wird bestimmt als der Abstand der Punkte, für die mit abnehmendem Betrag der Spannung die Abweichung zwischen dem gemessenen Leitwert und dem Wert von  $G_{lin}(V)$  an dieser Stelle zum ersten Mal das zehnfache der Standardabweichung überschreitet, die sich aus der Geradenanpassung an den Außenbereich ergibt.

Diese Kenngrößen sind in Abbildung 8.27 zwar aus Gründen der Übersichtlichkeit für die unkorrigierte  $G(V)$ -Kurve eingetragen, da hier jedoch noch die Zuleitungswiderstände in die gemessenen Leitwerte eingehen, erscheint ein Vergleich der verschiedenen Brücken und verschiedenen Proben anhand der für die korrigierten Kurven bestimmten Kenngrößen sinnvoller. Bei diesen Kurven ergibt sich allerdings für die LCCO-Proben das im letzten Abschnitt angesprochene Problem, wie die Hintergrundleitfähigkeit richtig zu beschreiben ist. Um dennoch einen ersten Vergleich zu ermöglichen, sind in Abbildung 8.36 die Quotienten aus den  $G_{RK}(V)$ -Kurven und den an diese Kurven angepassten  $f_{lin}(V)$ -Funktionen gegen die Spannung für die Proben der LCCO- und PCCO- Serie in den Teilabbildungen (a) und (b) aufge-

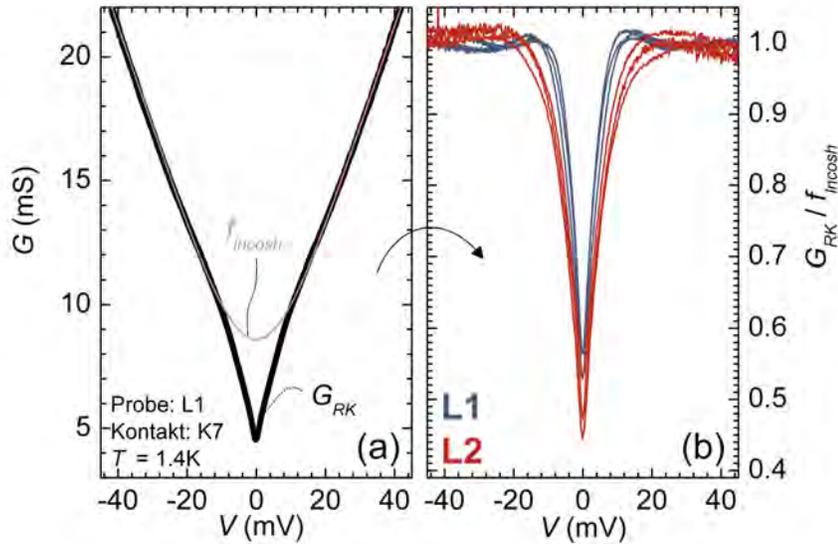


Abbildung 8.37: korrigiertes Leitwertsspektrum aus Abbildung 8.27 zusammen mit einem Vorschlag für eine Hintergrundfunktion der Form (4.24)(a), sowie bei 14 T-15 T und 1.4 K-5 K aufgenommene Spektren an den Proben der LCCO-Serie, jeweils geteilt durch eine an den Außenbereich angepasste Funktion der Form (4.24)

tragen. Verschiedene Kurven der gleichen Farbe gehen auf Messungen an unterschiedlichen Kontakten der gleichen Probe zurück. Die Größe  $g_{\Delta^*}$  lässt sich aus dem Wert der auf diese Weise normierten Kurven bei  $V = 0$  gemäß (8.18) bestimmen; außerdem erlaubt die Darstellung einen direkten Vergleich der Breiten  $V_{\Delta^*}$ .

Abbildung 8.36 lassen sich im Wesentlichen drei Beobachtungen entnehmen: zum unterscheidet sich das Verhalten der jeweils unterdotierten und optimal dotierten Proben nicht erkennbar, während für die überdotierte PCCO-Probe Breite und Tiefe der Pseudolücke deutlich geringer sind als bei den geringer dotierten Proben und die überdotierte LCCO-Probe ein gänzlich anderes Verhalten aufweist. Zum anderen ist bei den LCCO-Proben der Unterschied zwischen den so normierten Leitwertkurven an verschiedenen Kontakten einer Brücke deutlich größer als bei den PCCO-Proben. Außerdem zeigt der Anstieg fast aller Kurven in Teilabbildung (a) auf Werte deutlich über 1 die im letzten Abschnitt angesprochene positive Abweichung der korrigierten Spektren von den jeweiligen linearen Hintergrundfunktion für die Kontakte der LCCO-Serie. Die letzten beiden Beobachtungen sprechen dafür, dass eine einfache lineare Funktion nicht geeignet ist, die Hintergrundleitfähigkeit der (korrigierten) LCCO-Spektren hinreichend gut zu beschreiben. Daher wurden an die korrigierten LCCO-Spektren im Bereich jenseits der Energielücke Hintergrundfunktionen  $f_{Incosh}$

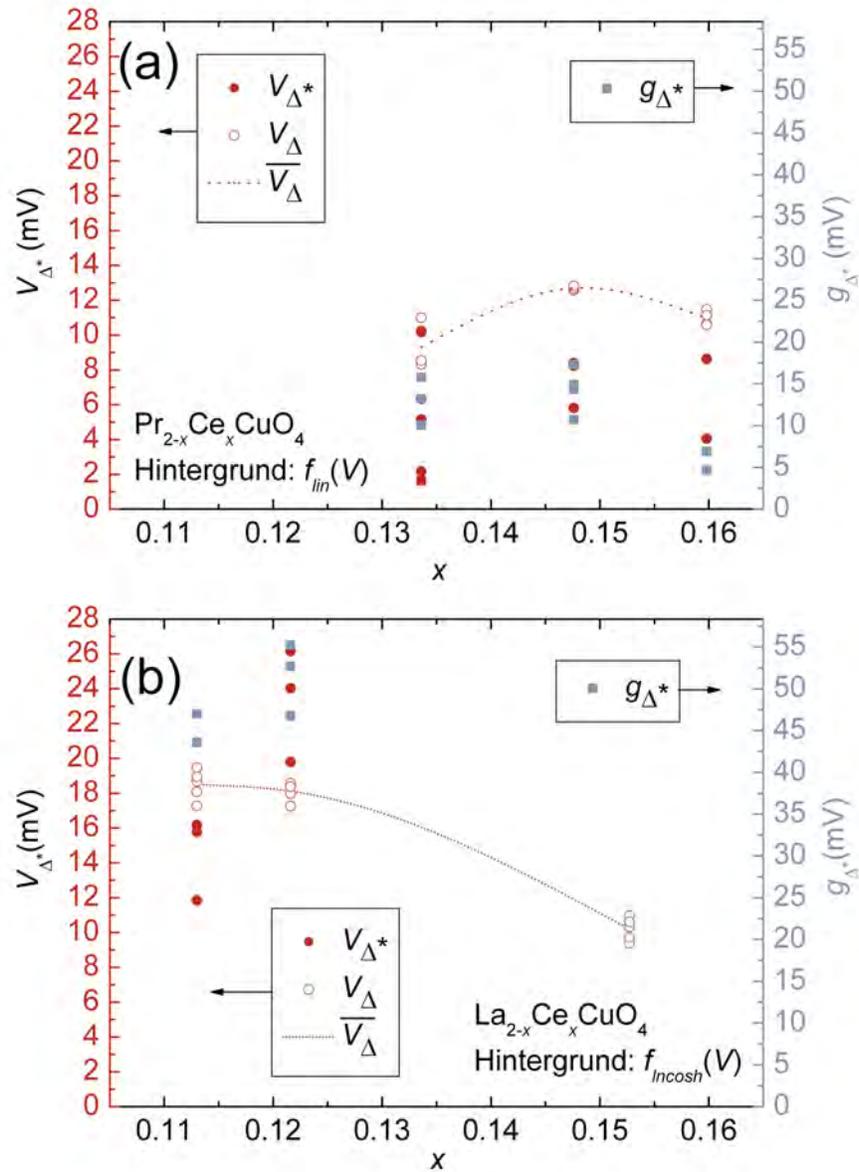


Abbildung 8.38: Kenngrößen für korrigierten Spektren der Proben der PCCO-Serie (a) und der LCCO-Serie (b) bei hohen Feldern und kleinen Temperaturen. Zum Vergleich ist der Abstand der Kohärenzmaxima  $V_{\Delta}$  aus Spektren der entsprechenden Proben im Nullfeld (vgl. Abb. 8.9) eingetragen.

der Form (4.24) angepasst, indem, wie in Abschnitt 4.2.1 genauer beschrieben, nur der Parameter  $P$  variiert wird, während die übrigen Parameter durch die zuvor durchgeführten Geradenanpassungen an den Außenbereich der Spektren festgelegt sind. Exemplarisch ist das  $G_{RK}(V)$ -Spektrum für Probe L1 aus Abbildung 8.27 in Teilabbildung 8.37 (a) noch einmal mit einer solchen Hintergrundfunktion  $f_{incosh}$  dargestellt. Es ist deutlich, dass diese Hintergrundfunktion die  $G_{RK}(V)$ -Kurve besser beschreibt, als eine einfache lineare Funktion. Die beschriebene Kurvenanpassung wurde für alle LCCO-Spektren durchgeführt und die  $G_{RK}(V)$ -Spektren mit den zugehörigen Hintergrundfunktionen  $f_{incosh}(V)$  normiert. Die normierten Kurven sind in Teilabbildung 8.37 (b) dargestellt. Es zeigt sich, dass diese Methode zu deutlich geringeren Unterschieden zwischen den normierten Spektren an verschiedenen Kontakten einer Probe führt. Außerdem sind die Breite und Ausprägung der Pseudolücke in dieser Normierung für die unterdotierte Probe etwas kleiner als für die optimal dotierte Probe, völlig anders, als es in Abbildung 8.34 nahegelegt wird. Hintergrundfunktionen  $f_{incosh}(V)$  scheinen also für die LCCO-Proben auch geeigneter für die Bestimmung von Kenngrößen zu sein, als lineare Hintergrundfunktionen. Für die PCCO-Proben ist die Anpassung von Funktionen der Form (4.24) jedoch problematisch, da es hier auch für die korrigierten Spektren nicht zu positiven Abweichungen vom linearen Verlauf kommt. Daher hängt das Resultat einer solchen Kurvenanpassung stark vom ausgewählten Fitbereich ab. Ein Beispiel, das dieses Problem illustriert, findet sich im Anhang in Abbildung A.13 (a). Aus diesem Grund wurde die Bestimmung der Kenngrößen für die PCCO-Proben auf Grundlage von Hintergrundfunktionen  $f_{lin}$ , für die LCCO-Proben auf Grundlage von Hintergrundfunktionen  $f_{incosh}(V)$  durchgeführt. Ein direkter Vergleich der Kenngrößen für die LCCO und PCCO-Proben ist daher nur unter Vorbehalt möglich.

Die Ergebnisse werden in den Abbildungen 8.38 (a) und (b) zusammengefasst. Dabei sind  $V_{\Delta}^*$  und  $g_{\Delta}^*$  zusammen in einem Diagramm dargestellt, wobei sich die linke vertikale Achse auf die Breite, die rechte vertikale Achse auf die Tiefe der Pseudolücke bezieht. Zum Vergleich wurden außerdem die Abstände der Kohärenzmaxima  $V_{\Delta}$  eingetragen, die im Rahmen der Charakterisierung im Nullfeld für die entsprechenden Proben bestimmt wurden. Die Mittelwerte der  $V_{\Delta}$ -Werte für verschiedene Kontakte einer Probe werden durch eine Trendlinie verbunden. Abbildung 8.38 können drei Beobachtungen entnommen werden: Zum einen weisen die Kenngrößen der Spektren im Magnetfeld für verschiedene Kontakte einer Probe deutlich größere Unterschiede auf, als der Abstand der Kohärenzpeaks im Nullfeld (also als die Energielücke). Dies könnte zum Teil auf die Unsicherheiten in der Bestimmung zurückzuführen sein, beispielsweise bei der Anpassung der Hintergrundfunktionen. Andererseits könnte es darauf hindeuten, dass Breite und Tiefe der Pseudolücke durch lokale Eigenschaften der Probe (wie zum Beispiel Defekte in der Barriere) beeinflusst werden. Zum anderen weisen Breite und Tiefe der Pseudolücke qualitativ eine ähnliche Dotierungsabhängigkeit auf. Aufgrund der angesprochenen Unterschiede zwischen verschiedenen Kontakten einer Probe ist es allerdings nicht möglich, die Form der Dotierungsabhängigkeit eindeutig festzustellen. Schließlich lassen sich zumindest kei-

ne deutlichen Unterschiede zwischen der Dotierungsabhängigkeit des Abstands der Kohärenzmaxima und dem Verhalten der Kenngrößen  $V_{\Delta^*}$  und  $g_{\Delta^*}$  feststellen.

### Entfaltung

Es stellt sich noch die Frage, inwieweit aus den Spektren bei 15 T Rückschlüsse auf die Zustandsdichten der Elektroden gezogen werden können. Dabei spielt natürlich ebenfalls eine große Rolle, wie die Hintergrundleitfähigkeit behandelt wird.

Nimmt man an, dass die Leitwertsspektren ausschließlich durch die Zustandsdichten verursacht werden ( $P(E, V) = 1$ ), so lassen sich die  $G(V)$ -Kurven bei kleinen Temperaturen gemäß (4.9) direkt entfalten. Die Ergebnisse solcher Entfaltungen werden in Abschnitt 8.2.8 genauer diskutiert, da es sich dabei um Auswertungen im Rahmen eines monokausalen Ansatzes handelt.

Geht man dagegen davon aus, dass die (lineare) Hintergrundleitfähigkeit auf die Tunnelwahrscheinlichkeit zurückzuführen ist, während die Pseudolücke durch die Zustandsdichte der Elektroden verursacht wird, so bietet es sich an, an den Außenbereich der Spektren eine geeignete Funktion  $f(V)$  anzupassen. Möglichkeiten für eine solche Hintergrundfunktion werden in Abschnitt 4.2.1 vorgestellt.

Wie in Abschnitt 4.2.3 erläutert, liefert die  $G(V)$ -Kurve eines Kontaktes mit konstanten Zustandsdichten direkt die Tunnelwahrscheinlichkeit, sofern die Tunnelwahrscheinlichkeit  $P(E, V) = P(E)$  nicht von der Spannung abhängt. Daher lässt sich die an den Außenbereich der Spektren angepasste Funktion  $f(V)$  als Tunnelwahrscheinlichkeit  $P(E) = f(V = E/e)$  bei einer Entfaltung der gemessene Spektren gemäß (4.17) benutzen.

Um dieses Verfahren zu illustrieren, ist in Abbildung 8.39 das korrigierte Leitwertspektrum bei 1.4 K und 15 T aus Abbildung 8.27 noch einmal dargestellt, zusammen mit zwei Kurven, die als Kandidaten für die Tunnelwahrscheinlichkeit in Frage kommen, zum einen eine Funktion der Form (4.23), also

$$f_{lin}(V, C, m) = C + m \cdot |V|, \quad (8.19)$$

zum anderen eine Funktion der Form (4.24), also

$$f_{incosh}(V, C, m, P) = C + P \cdot \ln \left( 2 \cosh \left( \frac{m}{P} V \right) \right) . \quad (8.20)$$

Dabei wurde  $f_{lin}(V)$  durch Variation der Parameter  $m$  und  $C$  an die experimentelle Kurve im Bereich  $|V| > 20$  mV angepasst,  $f_{incosh}(V)$  wurde durch Variation von  $P$  an die experimentelle Kurve im Bereich  $|V| > 10$  mV angepasst, wobei die Parameter  $m$  und  $C$  mit den Parametern aus  $P_{lin}(E = eV)$  übereinstimmen.

Anschließend wurde die experimentelle Leitwertkurve numerisch integriert und aus der resultierenden  $I(V)$ -Kurve zum einen durch direkte Entfaltung ( $P(E, V) = 1$ ) nach (4.9) die Zustandsdichte berechnet. Zum anderen wurden die Zustandsdichten berechnet, die sich gemäß (4.17) ergeben, wenn die Tunnelwahrscheinlichkeit

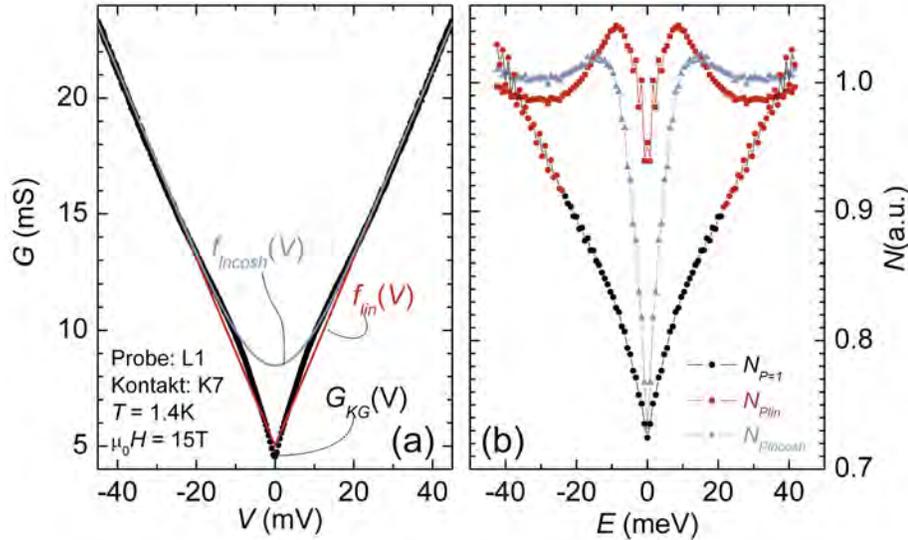


Abbildung 8.39: Korrigiertes Leitwertsspektrum bei 1.4K und 15T aus Abbildung 8.27, zusammen mit zwei an den Außenbereich dieser Kurve angepassten Funktionen (a), sowie die daraus gemäß (4.9) bzw. (4.17) entfalteten Zustandsdichten.

durch  $P_{lin}(E) = f_{lin}(V = E/e, C, m)$  bzw.  $P_{incosh}(E) = f_{incosh}(V = E/e, C, m, P)$  gegeben sind. Die Ergebnisse werden in Teilabbildung 8.39 (b) zusammengefasst. Die verschiedenen entfalteten Kurven in Teilabbildung (b) geben einen Eindruck davon wieder, wie stark die Annahmen über die Tunnelwahrscheinlichkeit die berechneten Zustandsdichten beeinflussen. Die deutlichen Sprünge oder Oszillationen, die bei der unter der Annahme  $P(E) = f_{lin}(E/e)$  berechneten Zustandsdichte auftreten, sind mit hoher Wahrscheinlichkeit darauf zurückzuführen, dass  $f_{lin}(V)$  bei  $V = 0$  zwar stetig ist, links- und rechtsseitige Grenzwerte für  $V \rightarrow 0$  jedoch nicht übereinstimmen. Ein weiteres Beispiel befindet sich aus Platzgründen im Anhang. Abbildung A.13 (b) zeigt, wie allein die Auswahl des Fitbereiches für die Anpassung einer Funktion  $f_{incosh}(V)$  der Form (4.24) als Tunnelwahrscheinlichkeit die resultierende Fitkurve und die daraus per Entfaltung berechnete Zustandsdichte für eine Probe der unterdotierten PCCO-Probe verändern kann. Ohne ein physikalisches Modell, das die lineare Hintergrundleitfähigkeit für hohe Spannungen quantitativ beschreibt und auch den Verlauf der Hintergrundfunktion für Spannungen nahe  $V = 0$  vorhersagt, erscheint eine genauere Analyse der Spektren durch Entfaltung gemäß (4.17) daher nicht sehr aussagekräftig.

Nach der Charakterisierung der Pseudolücke anhand von Spektren bei tiefen Temperaturen und 15 T bleibt noch die Temperatur  $T^*$  zu bestimmen, oberhalb der

dieser Effekt in den Spektren verschwindet. Da, wie in Abschnitt 8.2.4 erläutert, die Entwicklung der Pseudolücke mit zunehmender Temperatur nicht ausschließlich durch thermische Verrundungseffekte erklärt werden kann, lässt sich vermuten, dass  $T^*$  tatsächlich Informationen über Eigenschaften der Pseudolücke liefert. Besonders interessant ist dabei die Dotierungsabhängigkeit  $T^*(x)$ .

Bei elektronendotierten Hochtemperatur-Supraleitern, bei denen im Gegensatz zu den lochdotierten Materialien die Pseudolücke nicht im Nullfeld für  $T > T_c$  sondern nur in Magnetfeldern  $H > H_{c2}(T)$  beobachtet wird, stellt sich allerdings zunächst die grundsätzliche Frage, ob es sich bei der Pseudolücke in den elektronendotierten Materialien um einen reinen Effekt des Magnetfeldes handelt, oder ob hier tatsächlich eine Eigenschaft der normalleitenden Phase bei kleinen Temperaturen zutage tritt, das Magnetfeld also lediglich die Supraleitung unterdrückt. Es ist also zunächst zu entscheiden, ob und inwieweit  $T^*(x)$  vom Magnetfeld abhängt.

### Hängt $T^*$ vom Magnetfeld ab?

In der Literatur werden zwei gegensätzliche Sichtweisen vertreten. Die ersten Untersuchungen der Pseudolücke an NCCO und PCCO ergeben, dass bei Temperaturen oberhalb von 5 K die Pseudolücke durch Anlegen eines Feldes unterdrückt werden kann, das mit zunehmender Temperatur abnimmt [Kleefisch01]. Auf diese Weise ergibt sich eine  $H^*(T)$ -Kurve<sup>8</sup>, die in Abbildung 8.40 dargestellt ist, bzw. als Umkehrfunktion eine  $T^*(H)$ -Kurve.

Eine genauere Betrachtung der zugrundeliegenden Daten [Kleefisch00] lässt allerdings vermuten, dass diese Werte aus Spektren gewonnen wurden, die nicht um den Effekt der Zuleitungswiderstände korrigiert wurden, was das Ergebnis verfälscht haben könnte. Um den Unterschied zwischen den Ergebnissen in Teilabbildung 8.40 (a) und den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen zu verdeutlichen, sind in Teilabbildung 8.40 (b) drei nach der oben beschriebenen Methode korrigierten  $G_{RK}(V)$ -Spektren dargestellt, die an einer Brücke der optimal dotierten PCCO-Probe jeweils bei einer Temperatur von 15 K und in Magnetfeldern von 0 T, 5 T und 15 T aufgezeichnet wurden. Bei einer Temperatur von 15 K sollte nach [Kleefisch00] die Pseudolücke für Felder oberhalb von 5 T bei optimal dotierten PCCO oder NCCO Proben verschwinden. Wie Teilabbildung (b) zeigt, ist für die hier untersuchte optimal dotierte PCCO-Probe jedoch noch bis zum maximal erreichbaren Feld von 15 T eine deutliche Pseudolücke bei einer Temperatur von 15 K zu erkennen. Bei 15 T wiederum würde nach [Kleefisch00] eine charakteristische Temperatur von unter 8 K erwartet, bei der die Pseudolücke verschwinden sollte.

Die Tatsache, dass für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben (mit Ausnahme von Probe L3) bei Temperaturen unterhalb von 5 K auch bei Feldern bis zu 27 T noch eine Pseudolücke beobachtet wird, die sich nicht stark von der bei 15 T auftretenden Struktur unterscheidet, hat dagegen zu der Vermutung geführt, dass

<sup>8</sup> $H^*(T)$  wird in Abbildung 8.40 als  $B_{c2}^{pg}(T)$  bezeichnet

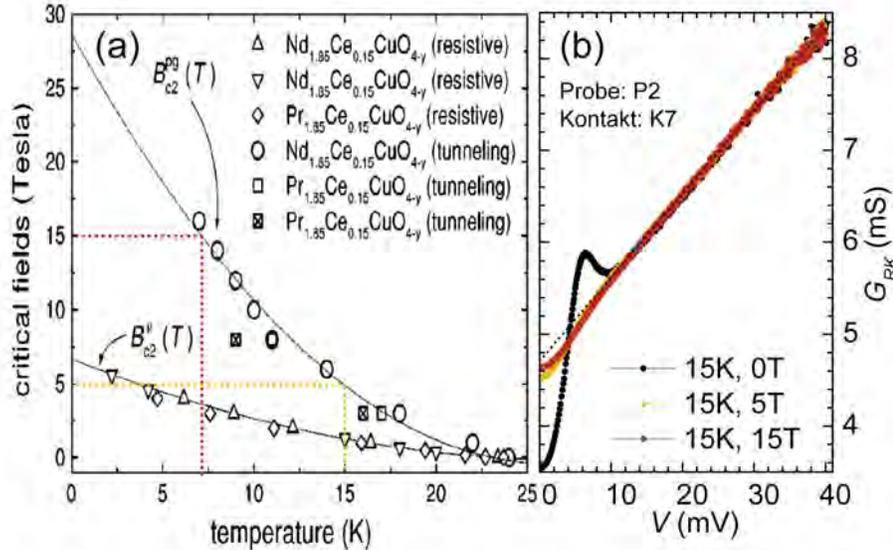


Abbildung 8.40: kritisches Feld aus  $\rho(T)$ -Messungen und Feld, bei dem die Pseudolücke in Tunnelmessungen für optimal dotierte NCCO und PCCO-Korngrenzenkontakte verschwindet aus [Kleefisch01] (a), sowie im Rahmen der vorliegenden Arbeit an einem Kontakt der optimal dotierten PCCO-Probe aufgezeichnete  $G_{RK}(V)$ -Spektren bei 15 K und 0, 5 und 15 T (b).

die Temperatur  $T^*$  näherungsweise magnetfeldunabhängig ist.

Insbesondere geht in diese Vermutung die Annahme ein, dass die Spektren bei einer bestimmten Temperatur  $T < T_c$  und einem beliebigen Feld  $H > H_{c2}(T)$  tatsächlich die Eigenschaften des normalleitenden Zustands bei der Temperatur  $T$  im Nullfeld widerspiegeln. Für diese Annahme gibt es im wesentlichen zwei Argumente. Zunächst zeigen Tunnelspektren an elektronendotierten Materialien, die aufgrund ihrer Dotierung nicht supraleitend werden, auch im Nullfeld ein Pseudolücken-Verhalten, welches dem Verlauf der hier bei hohen Magnetfeldern und tiefen Temperaturen aufgezeichneten Spektren sehr ähnelt [Dagan05b]. Ein weiteres Argument ergibt sich aus der Untersuchung der Verteilung des spektralen Gewichts unter den Tunnelspektren im supraleitenden und normalleitenden Zustand im Hinblick auf die in Flächen- bzw. Zustandserhaltung, wie in Abschnitt 8.2.7 näher ausgeführt wird.

In Abbildung 8.40 würde die  $H^*(T)$ -Kurve unter dieser Annahme auf eine vertikale Linie reduziert. Damit lässt sich  $T^*$  zum Beispiel aus einer Serie von Tunnelmessungen bei verschiedenen Temperaturen in einem Magnetfeld von 15 T bestimmen.

Um die Temperaturabhängigkeit der Pseudolücke, insbesondere im Hinblick auf  $T^*$ , zu untersuchen, wurden also an jeweils mehreren Kontakten aller PCCO und LC-

CO Proben Serien von Tunnelspektren in einem Feld von 15 T bei Temperaturen zwischen 6 K und 44 K aufgenommen. Ein Beispiel einer solchen Temperatur-Serie für eine Brücke der unterdotierten LCCO-Probe ist in der bereits in Abschnitt 8.2.4 beschriebenen Abbildung 8.30 dargestellt.

Bei der Bestimmung von  $T^*$  aus solchen Temperatur-Serien treten jedoch eine Reihe von Problemen auf:

Wie bereits zuvor erwähnt, besteht ein grundlegendes Problem darin, dass die Änderung der Spektren mit zunehmender Temperatur kontinuierlich erfolgt. Insbesondere ist keine Sprungtemperatur auszumachen, also eine ausgezeichnete Temperatur unterhalb und oberhalb derer sich die Form der Spektren qualitativ deutlich unterscheidet.

Weiterhin besteht das Problem der korrekten Bestimmung der Zuleitungswiderstände, das in Abschnitt 8.2.4 diskutiert wurde.

Bei den LCCO-Proben führt die Korrektur der Effekte durch Zuleitungswiderstände zudem schon für 5 K zu einer leichten qualitativen Veränderung der Spektren, die mit abnehmender Spannung zuerst etwas nach oben von dem linearen Hintergrund abweichen und erst für kleinere Spannungen wieder nach unten abknicken (vgl. Abbildung 8.27).

Zwar wurde im letzten Abschnitt gezeigt, dass thermische Verrundungseffekte nicht ausreichen, die Temperaturabhängigkeit der Spektren zu erklären, aber sie werden dennoch einen Einfluss auf die Form der Spektren bei endlichen Temperaturen haben. Insofern ist ein aus Temperatur-Serien bestimmter Wert immer eine untere Abschätzung für  $T^*$ .

Schließlich kann es in Bereichen der (T,H)-Ebene, in dem sich der Widerstand der Materialien stark mit der Temperatur verändert, außerdem zu Heizeffekten kommen, die die Form der Hintergrundleitfähigkeit beeinflussen und so indirekt die Bestimmung von  $T^*$  verfälschen.

### **Bestimmung von $T^*$**

Um zunächst einen Überblick darüber zu geben, wie das verwendete Korrekturverfahren die Bestimmung von  $T^*$  beeinflusst, wurde sowohl anhand der Messdaten, als auch anhand der nach den beiden in Abschnitt 8.2.4 vorgestellten Verfahren korrigierten Messdaten eine erste Abschätzung von  $T^*$  unternommen. Aufgrund der kontinuierlichen Entwicklung der Spektren mit zunehmender Temperatur für alle vorgestellten Korrekturmethode ist eine solche Abschätzung natürlich in gewissem Maße subjektiv und mit einem großen Fehler behaftet. Insbesondere besteht die Gefahr, mit einer bestimmten Theorie über die Lage von  $T^*$  an solche Daten heranzugehen<sup>9</sup>.

---

<sup>9</sup>*It is a capital mistake to theorise before one has data. Insensibly, one begins to twist facts to suit theories, instead of theories to suit facts* [Doyle92].

Die Abschätzungen für die jeweiligen Mess-Serien nach den verschiedenen Korrekturverfahren wurden auf die folgende Weise durchgeführt: An den Außenbereich jedes Spektrums wird eine Funktion  $f_{lin}(V)$  der Form (4.23) angepasst um die Abweichung des Spektrums von der Hintergrundleitfähigkeit besser erkennen zu können. Dann werden die Spektren zusammen mit den jeweiligen Funktionen einzeln betrachtet. Zum einen wird, ausgehend von der kleinsten Temperatur, die Temperatur bestimmt, bei der zum ersten Mal keine deutliche Pseudolücke mehr zu erkennen ist. Zum anderen wird, ausgehend von der größten Temperatur, die Temperatur bestimmt, bei der zum ersten Mal Anzeichen einer Pseudolücke auftreten. Auf diese Weise werden eine obere und eine untere Abschätzung für  $T^*$  gewonnen. In den Abbildungen 8.41 und 8.42 werden die Ergebnisse dieser Abschätzungen für die Proben der LCCO- bzw. der PCCO- Serie jeweils auf Grundlage der unkorrigierten und der nach den beiden vorgestellten Verfahren korrigierten Messdaten zusammengefasst. Dabei werden für jede Mess-Serie die Werte der oberen und unteren Abschätzung für  $T^*$  gegen die Dotierung aufgetragen und jeweils durch einen Balken verbunden. Die Position und Länge eines solchen Balkens gibt also den Temperaturbereich an, in dem  $T^*$  vermutet wird. Zum Vergleich sind in den Abbildungen 8.41 und 8.42 auch die kritischen Temperaturen der jeweiligen Proben gemäß Tabelle 7.1 eingetragen und mit einer Trendlinie verbunden. Folgende Ergebnisse sind festzuhalten:

Der Temperaturbereich, in dem  $T^*$  aufgrund der vorgenommenen Abschätzungen für eine Mess-Serie vermutet wird, kann sich auf bis zu 5 K erstrecken. Weiterhin können sich die Ergebnisse für verschiedene Kontakte einer Probe um bis zu 10 K unterscheiden.

Insbesondere bei den Proben der LCCO-Serie werden aus den korrigierten Spektren kleinere Werte für  $T^*$  abgeschätzt, als aus den Originaldaten. Außerdem sind die Unterschiede zwischen den  $T^*$ -Werten für verschiedene Kontakte einer Probe auf Grundlage der korrigierten Spektren kleiner als auf Grundlage der unkorrigierten Messdaten. Zwischen den Ergebnissen für die beiden verschiedenen Korrekturverfahren lassen sich keine deutlichen Unterschiede feststellen.

Die Werte für  $T^*$  liegen für beide Proben-Serien in der Größenordnung der jeweiligen kritischen Temperaturen. In Anbetracht der Unsicherheiten und der Unterschiede zwischen verschiedenen Kontakten einer Probe lassen sich weitergehende Aussagen bezüglich einer Abhängigkeit der charakteristischen Temperatur von der Dotierung oder dem Größenverhältnis zwischen  $T^*$  und  $T_c$  jedoch nicht treffen.

In der Literatur wird noch eine weitere Methode vorgeschlagen, um  $T^*$  zu bestimmen [Dagan05b]. Diese Methode soll im folgenden kurz vorgestellt und ihre Anwendbarkeit auf die vorliegenden Spektren diskutiert werden.

Ausgangspunkt ist wieder eine Serie von Spektren bei verschiedenen Temperaturen, wobei die Supraleitung durch ein hinreichend großes Magnetfeld unterdrückt wird. An den Außenbereich des bei der kleinsten Temperatur  $T = T_{min}$  aufgenommenen Spektrums wird eine Funktion  $f_{lin}(V)$  der Form (4.23) angepasst. Die wesentliche Annahme, die dieser Auswertungsmethode zugrunde liegt, besteht darin, dass diese

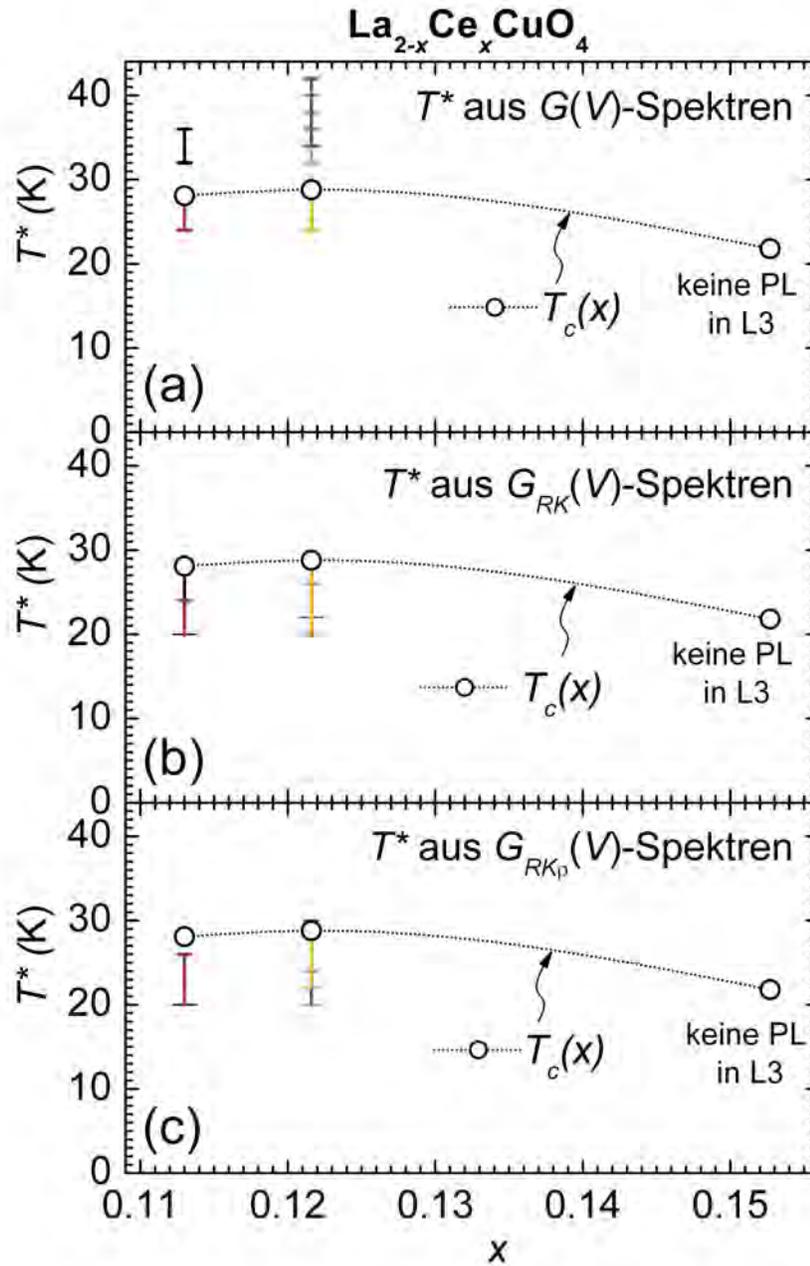


Abbildung 8.41: Abschätzungen von  $T^*$  aus Temperaturserien bei 15 T an den Proben der LCCO-Serie, aus den Originaldaten (a), den mit  $R_K$  korrigierten Daten (b) und den mit  $R_K^p$  korrigierten Daten (c), verschiedene Balken beziehen sich auf verschiedene Kontakte

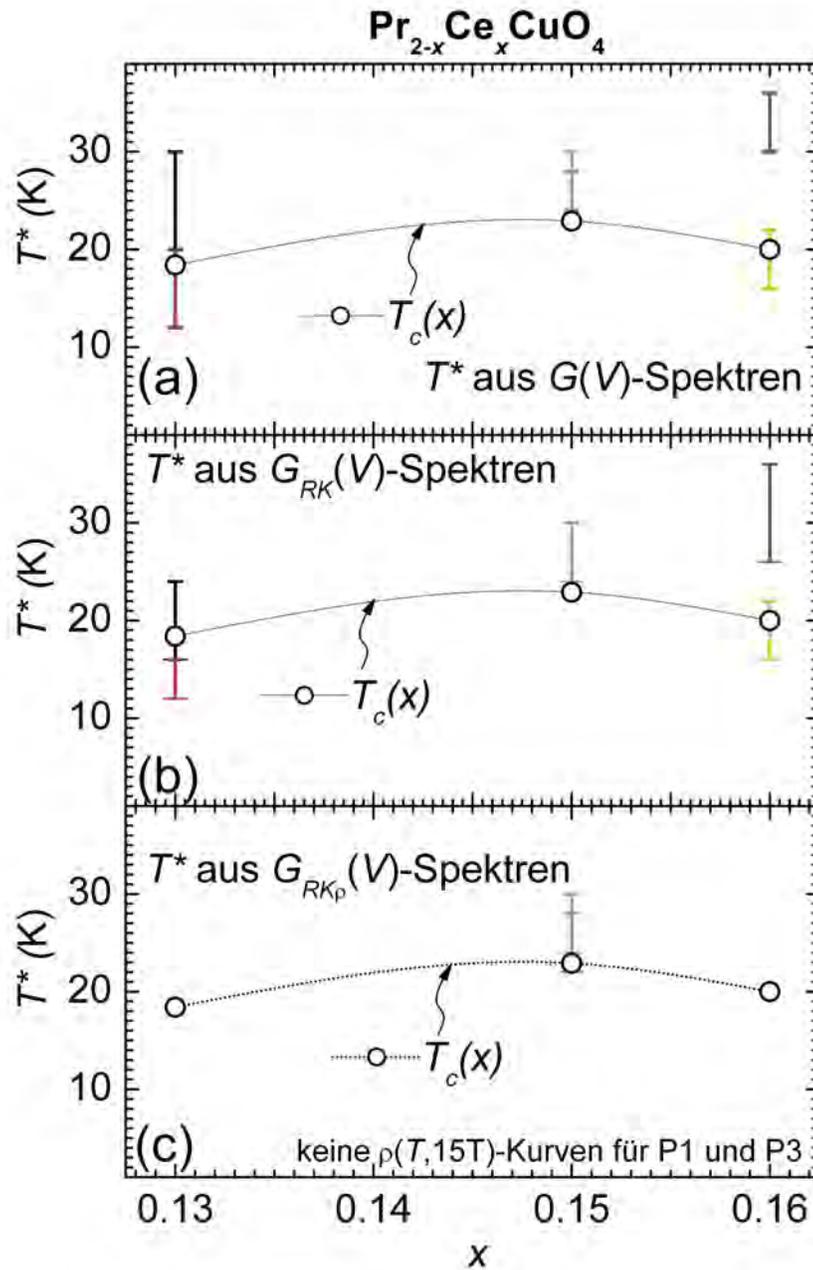


Abbildung 8.42: Abschätzungen von  $T^*$  aus Temperaturserien bei 15 T an den Proben der PCCO-Serie, aus den Originaldaten (a), den mit  $R_K$  korrigierten Daten (b) und den mit  $R_K^p$  korrigierten Daten (c), verschiedene Balken beziehen sich auf verschiedene Kontakte

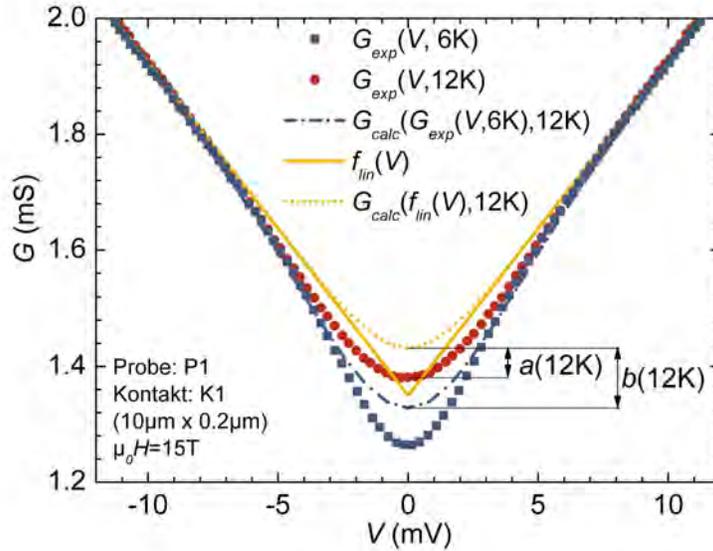


Abbildung 8.43: Illustration zur Abschätzung von  $T^*$  nach [Dagan05b]

Funktion  $f_{lin}(V)$  den Verlauf des Spektrums wiedergibt, der erwartet wird, wenn es die Pseudolücke nicht geben würde.

Nun wird für jede Temperatur  $T$ , für die ein experimentelles Spektrum vorliegt, zum einen auf Grundlage dieser Funktion, zum anderen auf Grundlage des experimentellen Spektrums bei  $T_{min}$  nach dem oben beschriebenen Verfahren jeweils das Spektrum berechnet, das sich nur durch thermische Verrundungseffekte ergibt, und diese beiden Spektren werden mit dem experimentellen Spektrum verglichen. Dieses Verfahren wird in Abbildung 8.43 am Beispiel von Leitwertsspektren an einem Kontakt der unterdotierten PCCO-Probe illustriert. Dargestellt, ist das Spektrum bei der kleinsten Temperatur  $T_{min} = 6\text{ K}$ , ein Spektrum bei  $12\text{ K}$ , die an den Hintergrund angepasste Funktion  $f_{lin}(V)$  sowie die aus dem  $6\text{ K}$  Spektrum bzw. aus  $f_{lin}(V)$  für  $T = 12\text{ K}$  berechneten Spektren.

Die Differenz zwischen der experimentellen Kurve bei einer Temperatur  $T$  und der aus  $f_{lin}(V)$  für  $T$  berechneten Kurve bei  $V = 0$  sowie die Differenz zwischen der aus  $f_{lin}(V)$  und aus der auf Grundlage des experimentellen Spektrums bei  $T_{min}$  berechneten Kurven bei  $V = 0$  werden in [Dagan05b] als neue Kenngrößen  $a(T)$  bzw.  $b(T)$  definiert. Die Autoren bestimmen dann  $T^*$  als die Temperatur  $T^*_{lin}$ , bei der der Quotient  $a(T)/b(T)$  verschwindet.

Da die Werte für  $b$  jedoch nicht divergieren, bedeutet das, dass  $T^*$  in diesem Verfahren als die Temperatur bestimmt wird, bei der das experimentelle Spektrum mit dem für die gleiche Temperatur aus der  $f_{lin}(V)$ -Kurve berechneten Spektrum bei

$V = 0$  übereinstimmt. Auf diese Weise wird in [Dagan05b] eine  $T^*(x)$ -Kurve bestimmt, die im unterdotierten Bereich oberhalb der  $T_c(x)$ -Kurve verläuft und für höhere Dotierungen ungefähr mit der  $T_c(x)$ -Kurve übereinstimmt.

Wie schon in Abschnitt 8.2.2 erläutert, ist es insbesondere bei den Proben der LCCO-Serie fraglich, ob eine einfache Funktion  $f_{lin}(V)$  der Form (4.23) die Hintergrundleitfähigkeit der Spektren nach einer Korrektur um die Zuleitungswiderstände hinreichend genau beschreibt. Gerade bei den LCCO-Proben werden auf diese Weise sehr kleine Werte für  $T^*$  abgeschätzt. Auf der anderen Seite ist eine entsprechende Analyse auch möglich, wenn von einer Hintergrundfunktion der Form (4.24) ausgegangen wird. Das Resultat einer Kurvenanpassung dieser Funktion ist jedoch wiederum bei den PCCO-Proben hochgradig von der Auswahl des Fitbereiches abhängig, so dass ein direkter Vergleich der auf diese Weise abgeschätzten charakteristischen Temperaturen für die LCCO- und PCCO-Proben anhand beider Arten von Hintergrundfunktionen nur bedingt sinnvoll erscheint. Die Ergebnisse einer solchen Analyse für beide Hintergrundfunktionen, im folgenden als  $T^*_{lin}$  und  $T^*_{lncosh}$  bezeichnet, werden in Tabelle 8.4 zusammengefasst. Dabei sind die Ergebnisse, bei denen die Hintergrundfunktion die  $G_{RK}(V)$ -Kurven im Außenbereich weniger gut beschreiben, jeweils in Klammern dargestellt. Verschiedene Einträge in einem Feld beziehen sich auf verschiedene Kontakte einer Probe. Weiterhin sind zum Vergleich zusätzlich die kritischen Temperaturen  $T_C$  der entsprechenden Proben eingetragen. Die Tabelle zeigt zunächst, dass sich die Ergebnisse für verschiedene Kontakte einer Probe zum Teil dramatisch unterscheiden können. Eine Ausnahme bietet die optimal dotierte LCCO-Probe, bei der die Ergebnisse für verschiedene Kontakte einer Probe recht gut übereinstimmen. Gerade bei dieser Probe zeigt sich, wie stark das Ergebnis der Bestimmung von  $T^*$  von der gewählten Hintergrundfunktion abhängt. Insgesamt liefert also auch diese Auswertungsmethode keine eindeutigen Ergebnisse im Hinblick auf die Bestimmung der charakteristischen Temperatur  $T^*$  und ihrer Dotierungsabhängigkeit.

## 8.2.7 Flächenerhaltung

In den vorhergehenden Abschnitten wurde gezeigt, dass die Bestimmung von  $T^*$  sehr problematisch ist. Insbesondere ist anhand der vorliegenden Daten nicht mit Sicherheit zu entscheiden, ob die charakteristische Temperatur  $T^*$  kleiner oder größer ist als die kritische Temperatur im Nullfeld  $T_c$ .

Daher stellt sich die Frage, ob sich in den gemessenen Spektren andere Anzeichen dafür oder dagegen finden lassen, dass es Bereiche des Phasendiagramms gibt, in der die supraleitende Energielücke und die Pseudolücke gemeinsam existieren.

Eine Möglichkeit besteht darin, die Verteilung des spektralen Gewichts unter den Tunnelspektren im supraleitenden und normalleitenden Zustand im Hinblick auf die in Abschnitt 4.3 diskutierte Flächen- bzw. Zustandserhaltung zu untersuchen.

So stellen A. K. Gupta und K.-W. Ng bei SIS-Tunnelspektren an unterdotiertem

Probe	L1	L2	P1	P2	P3
$T_c$	28.1	28.8	18.4	22.9	20
$T^*_{lin}$	(<5)	(12)	17	24	38
	(13)	(14)	9	18	17
		(13)			
		(13)			
$T^*_{incosh}$	36	33	(18)	(34)	(>44)
	28	35	(17)	(42)	(>44)
		36			
		36			

Tabelle 8.4: Charakteristische Temperaturen gemäß [Dagan05b] jeweils für Hintergrundfunktionen der Form (4.23) und (4.24)

$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  sowohl bei Temperaturen unterhalb als auch oberhalb von  $T_c$  einen Verlust spektralen Gewichts nahe  $V = 0$  fest, der jedoch verschwindet, wenn man die experimentellen Spektren mittels Division durch ein bei  $T > T_c$  aufgenommenes Spektrum normiert [Gupta02]. Daraus schlussfolgern sie, dass die bei diesem Material für  $T > T_c$  beobachtete Pseudolücke sich nicht erst beim Erreichen der kritischen Temperatur aus der supraleitenden Energielücke entwickelt, sondern dass die beiden Phänomene schon unterhalb von  $T_c$  koexistieren.

Erste entsprechende Auswertungen der im Rahmen dieser Arbeit aufgenommenen Tunnelspektren an der unterdotierten PCCO-Probe deuten in eine ähnliche Richtung [Welter03].

Die physikalische Bedeutung einer solchen Normierung durch Division ist allerdings nicht ganz klar, sofern es sich bei der Normierungs-Kurve nicht lediglich um eine Konstante handelt (vgl. Abschnitt 4.2.1).

Daher wird vorgeschlagen, die zwischen einem Tunnelspektrum bei supraleitenden Elektroden  $G_{sl}(V)$  und dem entsprechenden Spektrum bei normalleitenden Elektroden  $G_{nl}(V)$  eingeschlossene Fläche näher zu untersuchen.

Nun stellt sich die Frage, wie für ein experimentelles Leitwertsspektrum bei supraleitenden Elektroden das entsprechende Spektrum im normalleitenden Zustand zu bestimmen ist, da der normalleitende Zustand nur durch Veränderung der äußeren Bedingungen (Erhöhen der Temperatur oder des Magnetfeldes) erreicht werden kann. Zwei Möglichkeiten bieten sich an.

Zum einen lässt sich vermuten, dass durch Anlegen eines Magnetfeldes  $H > H_{c2}(T)$  lediglich die Supraleitung unterdrückt wird und so das Verhalten der normalleitenden Phase unter ansonsten gleichen Bedingungen untersucht werden kann.

Zum anderen kann aus dem Verhalten des Spektrums bei hohen Spannungen der Verlauf des Spektrums im normalleitenden Zustand extrapoliert werden, wenn zusätzliche

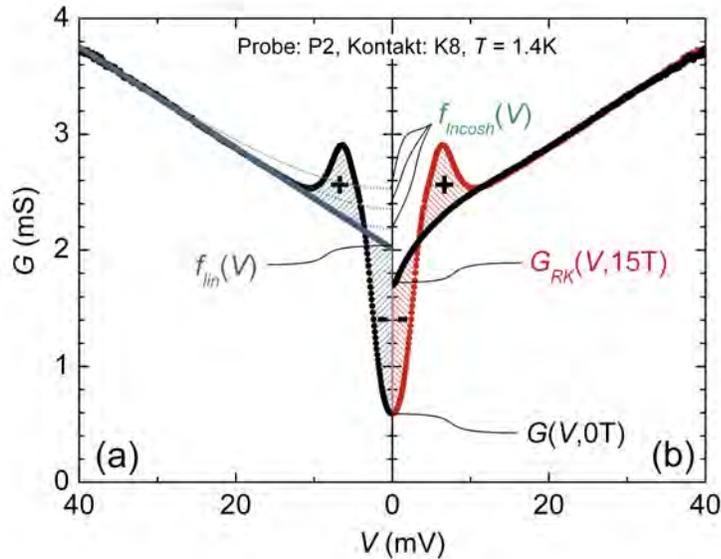


Abbildung 8.44: Illustration zur Flächenerhaltung

Annahmen über die funktionelle Form von  $G_{nl}(V)$  gemacht werden. Dies entspricht der Wahl einer phänomenologischen Hintergrundleitfähigkeit.

Zur Illustration ist in Abbildung 8.44 eine bei 1.4 K im Nullfeld aufgenommene Tunnelkurve für einen Kontakt der optimal dotierten PCCO-Probe dargestellt. In Teilabbildung (a) sind zusätzlich eine an den Hintergrund dieser Leitwertkurve angepasste Funktion  $f_{lin}(V, C, m)$  der Form (4.23) sowie einige Funktionen  $f_{incosh}(V, C, m, P)$  der Form (4.24) für verschiedene Werte des Parameters  $P$  eingetragen, wobei die Parameter  $C$  und  $m$  mit den Parametern der linearen Funktion übereinstimmen. In Teilabbildung (b) ist zusätzlich eine am gleichen Kontakt bei der gleichen Temperatur aber in einem Feld von 15 T aufgenommene Leitwertkurve dargestellt, wobei diese Kurve um den Effekt der Zuleitungswiderstände korrigiert wurde, wie in Kapitel 8.1.2 beschrieben ist.

Die verschiedenen Funktionen der Form  $f_{incosh}(V, C, m, P)$  verdeutlichen ein Problem, das ebenfalls bereits in Abschnitt 4.2.1 angesprochen wurde. Aus dem Außenbereich der Spektren, der für die Anpassung der Hintergrundfunktion verwendet werden kann, lassen sich nur sehr schlechte Informationen über den Parameter  $P$  gewinnen, da  $f_{incosh}(V, C, m, P)$  für hohe Spannungen nur sehr schwach von  $P$  abhängt. In dem Bereich nahe  $V = 0$  wiederum, der für die Auswertungen zur Zustandserhaltung besonders interessant ist, hängt  $f_{incosh}(V, C, m, P)$  entscheidend von  $P$  ab. Allerdings lässt sich folgendes festhalten. Durch die Wahl eines hinreichend großen Parameters  $P = P_1$  lässt sich stets eine Funktion  $f_{incosh}(V, C, m, P_1)$  finden, die im

gesamten Spannungsbereich oberhalb der experimentellen  $G_{sl}(V)$ -Kurve verläuft, so dass die von  $G_{sl}(V)$  und  $f_{lncosh}(V, C, m, P_1)$  eingeschlossene Fläche negativ ist. Für kleinere Werte von  $P$  wird der Betrag der eingeschlossenen (negativen) Fläche kleiner; gleichzeitig nähert sich der Verlauf der Funktion einem rein linearen Verhalten  $\lim_{P \rightarrow 0} f_{lncosh}(V, C, m, P) = f_{lin}(V, C, m)$ . Daher gibt es genau dann einen Parameter  $P_0$  für den die zwischen  $G_{sl}(V)$  und  $f_{lncosh}(V, C, m, P_0)$  eingeschlossene Fläche exakt verschwindet, wenn die von  $G_{sl}(V)$  und  $f_{lin}(V, C, m)$  eingeschlossene Fläche positiv ist. Ist diese Fläche jedoch negativ, so kann dies als Hinweis darauf gewertet werden, dass Zustandserhaltung nur möglich ist, wenn  $G_{nl}(V)$  nahe  $V = 0$  etwas nach unten vom linearen Verhalten abweicht, also eine Pseudolücke aufweist.

Aus diesem Grund sollen im folgenden  $f_{lin}(V, C, m)$  und die  $G(V, \mu_0 H = 15 \text{ T})$ -Kurve im Hinblick auf die jeweiligen mit der  $G(V, \mu_0 H = 0 \text{ T})$ -Kurve eingeschlossenen Flächen verglichen werden. In Abbildung 8.44 sind diese Flächen für  $0 < V < V_m = 40 \text{ mV}$  schraffiert eingetragen. Es ergeben sich jeweils zwei Teilflächen, die sich im Idealfall genau kompensieren sollten.

Abbildung 8.44 zeigt ein Verhalten, dass für viele Kontakte beobachtet wird. Die (negative) Teilfläche nahe  $V = 0$  in Teilabbildung (a) wirkt etwas größer als die (positive) Teilfläche im Bereich des Kohärenzmaximums, während die beiden Teilflächen in Teilabbildung (b) eher gleich groß erscheinen.

Dies wird in der Literatur als Verlust von spektralem Gewicht nahe  $V = 0$  bezeichnet und als Hinweis auf eine Koexistenz von supraleitender Energielücke und Pseudolücke gewertet. Auf jeden Fall kann es als Argument dafür verstanden werden, dass die Spektren bei tiefen Temperaturen und hohen Magnetfeldern tatsächlich die Eigenschaften des normalleitenden Zustands im Nullfeld widerspiegeln, der experimentell ja nicht zugänglich ist.

Um verschiedene Kontakte bzw. verschiedene Proben in dieser Hinsicht vergleichen zu können, wurden auf Grundlage von bei kleinen Temperaturen aufgenommenen Spektren an mindestens zwei Kontakten jeder untersuchten Probe die in Abschnitt 4.3 für die Flächenerhaltung eingeführten Kennzahlen

$$D\{G(V, 1.4 \text{ K}), 0 \text{ T}), f_{lin}(V), 40 \text{ mV}\} \equiv D_{lin} \quad (8.21)$$

sowie

$$D\{G(V, 1.4 \text{ K}), 0 \text{ T}), G_{RK}(V, 15 \text{ T}), 40 \text{ mV}\} \equiv D_{15 \text{ T}} \quad (8.22)$$

gemäß (4.59) berechnet, die im folgenden kurz als  $D_{lin}$  und  $D_{15 \text{ T}}$  bezeichnet werden. In Tabelle 8.5 werden die resultierenden Werte von  $D_{lin}$  und  $D_{15 \text{ T}}$  für die untersuchten Kontakte einander gegenübergestellt. Auf den ersten Blick wirken die Ergebnisse in Tabelle 8.5 unübersichtlich. Dennoch lassen sich die folgenden Informationen entnehmen:

Die PCCO und LCCO-Proben verhalten sich etwas unterschiedlich. Die zwischen den Spektren im Nullfeld und der linearen Hintergrundfunktion eingeschlossene Fläche

Probe	Kontakt	$D_{lin}$ [%]	$D_{15T}$ [%]
L1	K7*	2.82	0.39
L1	K9	0.08	0.77
L1	K9n*	3.33	0.6
L2	K1*	1.63	0.68
L2	K2	-0.47	0.69
L2	K3*	1.23	-0.03
P1	K1	-0.75	-0.25
P1	K4	-0.8	-0.13
P1	K2*	0.48	-0.18
P2	K7	-0.74	-0.28
P2	K8	-0.7	-0.31
P2	K3	-0.56	-0.2
P2	K7n	-0.02	-0.36
P3	K2	-0.49	-0.39
P3	K7*	0.24	-0.52

Tabelle 8.5: Kennzahlen  $D$  gemäß (8.21), (8.22) und (4.59)

(und somit  $D_{lin}$ ) ist für sieben von neun PCCO-Spektren aber nur bei einem von sechs LCCO-Spektren negativ. Entsprechend ist  $D_{lin}$  bei fünf von sechs LCCO-Spektren, aber nur bei zwei von neun PCCO-Spektren positiv, das heißt, die positiven Teilflächen wie in Abbildung 8.44 (a) sind etwas größer, als die negativen Teilflächen. Die überwiegend positiven  $D_{lin}$ -Werte bei LCCO sind wahrscheinlich auf die bei vielen LCCO-Spektren beobachtete positive Abweichung der korrigierten 15 T-Spektren vom linearen Hintergrund zurückzuführen, die in Abschnitt ?? (auf Seite 182 ff.) beschrieben ist. Die Kontakte, bei denen eine deutliche Abweichung dieser Art beobachtet wird, sind in Tabelle 8.5 mit einem \* gekennzeichnet. Es zeigt sich, dass genau bei diesen Kontakten  $D_{lin}$  positiv ist. Es stellt sich die Frage, ob bei diesen Kontakten eine Funktion der Form  $f_{lin}(V)$  überhaupt geeignet ist, die Hintergrundleitfähigkeit zu beschreiben.

Für PCCO-Kontakte dagegen ist  $D_{lin}$  überwiegend negativ. Wie oben ausgeführt bedeutet dies, dass eine Zustandserhaltung mit einer Hintergrundfunktion der Form  $f_{lncosh}(V)$  prinzipiell nicht möglich ist. Bei diesen Kontakten, ist  $D_{15T}$  zwar immer noch negativ, betragsmäßig jedoch deutlich kleiner als  $D_{lin}$ . Die Zustandserhaltung ist also besser erfüllt.

Insgesamt ist für elf der fünfzehn untersuchten Spektren der Betrag von  $D_{15T}$  kleiner als der Betrag von  $D_{lin}$ . Dabei unterschieden sich die Werte von  $D_{15T}$  und  $D_{lin}$  (bis auf eine Ausnahme) um einen Faktor zwischen etwa 1.5 und 7.5.

Angesichts der großen Unterschiede zwischen verschiedenen Kontakten einer Probe

bei der unterdotierten LCCO- und der überdotierten PCCO-Probe lassen sich jedoch keine Aussagen über eine eventuelle Dotierungsabhängigkeit treffen.

Auch liegen die Werte sowohl von  $D_{lin}$  als auch von  $D_{15T}$  bei allen Kontakten unterhalb von 3.5%, bei den PCCO-Spektren sogar unterhalb von 1%, also für beide Arten von  $G_{nl}(V)$ -Kurven in der Größenordnung, die auch in Abschnitt 4.3 für Leitwertspektren auf der Grundlage von berechneten Zustandsdichten ermittelt wurde. Insgesamt lassen die gerade dargestellten Ergebnisse eine Tendenz erkennen, dass die Spektren im Magnetfeld, also Spektren mit Pseudolücke die Flächenerhaltung etwas besser erfüllen als die phänomenologischen Spektren ohne Pseudolücke.

Unter der Voraussetzung, dass die Hintergrundleitfähigkeit, die bei den hier untersuchten Spektren immer beobachtet wird, die Flächenerhaltung nicht wesentlich beeinflusst, kann dies nach der Argumentation in [Gupta02] als Hinweis auf eine mögliche Koexistenz von Pseudolücke und supraleitender Energielücke gewertet werden.

### 8.2.8 Charakterisierung der Pseudolücke nach dem monokausalen Ansatz

Werden Pseudolücke und Hintergrundleitfähigkeit durch den gleichen Effekt verursacht, so erscheint eine Bestimmung von Kenngrößen wie in den letzten Abschnitten, insbesondere eine Bestimmung von  $T^*$ , nicht als sinnvoll, da die beiden Strukturen nicht voneinander getrennt betrachtet werden können. Im Rahmen eines monokausalen Ansatzes stellt sich vielmehr die Frage nach einem Modell, das den Verlauf der  $G(V)$ -Spektren bei tiefen Temperaturen und hohen Magnetfeldern im gesamten Spannungsbereich durch einen geschlossenen Ausdruck beschreibt. Die folgenden Überlegungen beschränken sich dabei auf ein Modell, das die Form der Spektren auf Wechselwirkungen zwischen den Elektronen zurückführt.

#### Korrelationsmodell

Die im Rahmen dieser Arbeit aufgezeichneten Tunnelspektren bei hohen Magnetfeldern und kleinen Temperaturen, wie sie in Abbildung 8.45 noch einmal beispielhaft für die Proben der PCCO-Serie dargestellt sind, ähneln sowohl in der Form als auch in der Dotierungsabhängigkeit in auffallender Weise Spektren, die an Kontakten aus einigen nicht-supraleitenden Oxidverbindungen mit Perowskitstruktur gemessen werden [Raychaudhuri95], zum Beispiel der Verbindung  $\text{LaNi}_x\text{Co}_{1-x}\text{O}_3$ . Auch für dieses Materialsystem wird mit abnehmender Ni-Dotierung ein Übergang von metallischem zu isolierendem Verhalten beobachtet, wobei die kritische Dotierung für den Übergang bei etwa  $x = 0.35$  liegt. Bei einem direkten Vergleich unserer Messdaten mit den in [Raychaudhuri95] veröffentlichten Spektren ist allerdings noch zu beachten, dass für die hier untersuchten Korngrenzenkontakte beide Elektroden aus dem gleichen Material bestehen, während die Gegenelektroden der

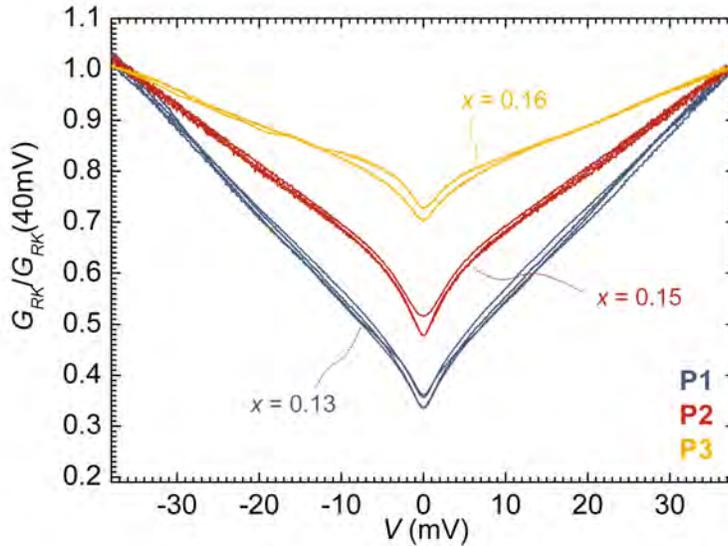


Abbildung 8.45: Auf ihren Wert bei 40mV skalierte, um den Effekt von Zuleitungswiderständen korrigierte Spektren für die Kontakte der PCCO-Serie.

Kontakte in [Raychaudhuri95] aus einem einfachen Metall gefertigt sind. Die Form dieser  $\text{LaNi}_x\text{Co}_{1-x}\text{O}_3$ -Spektren lässt sich durch ein Potenzgesetz der Form

$$G(V) = G_0 \left[ 1 + \left( \frac{|V|}{V^*} \right)^p \right] \quad (8.23)$$

beschreiben, wobei der Exponent  $p$  mit fallender Dotierung also bei der Annäherung an den Metall-Isolator Übergang von 0.5 auf 1 ansteigt, während der Parameter  $V^*$  etwa konstant bleibt. Unter der Annahme, dass es sich bei der Zustandsdichte der Gegenelektrode um eine Konstante handelt, führen die Autoren dieses Verhalten auf ein entsprechende Zustandsdichte

$$N_p(E) = N_0 \left[ 1 + \left( \frac{|E|}{E^*} \right)^p \right] \quad (8.24)$$

zurück. Insbesondere für  $p = 0.5$  lässt sich diese Form der Zustandsdichte als Folge einer Kombination von Wechselwirkungseffekten zwischen den Leitungselektronen und Streuprozessen an Verunreinigungen verstehen. Im Rahmen der Störungstheorie lassen sich entsprechende Korrekturen zur Zustandsdichte berechnen, die dann für ein dreidimensionales System durch

$$N_{ww3d}(E) = N_0 \left[ 1 + \left( \frac{|E|}{E^*} \right)^{0.5} \right] \quad (8.25)$$

beschrieben wird [Lee85, und Referenzen darin]. Für zweidimensionale Systeme ergeben sich noch deutlich stärkere, logarithmische Korrekturen zur Zustandsdichte gemäß

$$N_{ww2d}(E) = N_0 \left[ 1 + A \ln \left( \frac{|E|}{E^*} \right) \right] \quad (8.26)$$

[Altshuler80a]. Nun stellt sich die Frage, ob sich auch die Form der hier gemessenen Spektren an elektronendotierten Kupraten für hohe Magnetfelder und tiefe Temperaturen auf eine Zustandsdichte gemäß einer der Gleichungen (8.24)-(8.26) zurückführen lässt. Für einige PCCO Punktkontakte (mit Gold als Gegenelektrode) wird ein logarithmischer Zusammenhang zwischen Spannung und Leitwert beobachtet und als Hinweis auf Wechselwirkungen in zwei Dimensionen interpretiert [Biswas01], allerdings gilt dieser logarithmische Zusammenhang nur in einem relativ kleinen Spannungsbereich (etwa zwischen 2 und 10 mV).

Bei der Analyse der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Spektren an Korngrenzenkontakten ist natürlich zu beachten, dass hier beide Elektroden aus dem gleichen Material bestehen und die einfache Proportionalität zwischen Leitwert und Zustandsdichte nicht mehr gilt. Die in Abschnitt 4.1.1 vorgestellte Technik zur numerischen Entfaltung ermöglicht es nun jedoch, aus den bei tiefen Temperaturen und hohen Feldern gemessenen Leitwertsspektren die Zustandsdichten zu rekonstruieren und diese Zustandsdichten mit den gerade vorgestellten Modellen zu vergleichen. Exemplarisch ist in Abbildung 8.46 die auf diese Weise aus einem Spektrum der unterdotierten LCCO-Probe berechnete Zustandsdichte als Funktion der Energie aufgetragen. Genauer gesagt handelt es sich bei dem der Entfaltung zugrundeliegenden Spektrum um die in Abbildung 8.27 dargestellte 15 T-Kurve nach der Korrektur um Zuleitungswiderstände. An die resultierende  $N(E)$ -Kurve wurden nun Kurvenanpassungen gemäß (8.26), (8.25) und (8.24) durchgeführt, deren Ergebnisse ebenfalls in Abbildung 8.46 dargestellt sind. Es ist deutlich zu erkennen, dass die logarithmische Korrektur für zweidimensionale Systeme die aus den Messungen bestimmte Zustandsdichte nur sehr unzureichend beschreiben kann. Weder die Tiefe der Lücke noch die Krümmung der Kurve im äußeren Bereich stimmen annähernd mit den Eigenschaften der Messkurve überein. Die Übereinstimmung mit dem Modell für dreidimensionale Systeme, also dem Potenzgesetz mit einem festen Exponenten  $p = 0.5$  ist etwas besser, dennoch sind deutliche Unterschiede zwischen der Modell- und der Messkurve festzustellen. Am besten werden die experimentellen Daten durch ein Potenzgesetz gemäß (8.24) beschrieben. Die Fitparameter für dieses Modell sind ebenfalls in der Abbildung 8.46 eingetragen. Insbesondere ergibt sich ein Wert von 0.75 für den Parameter  $p$ . Die Übereinstimmung zwischen Modell und Messdaten ist im gesamten Spannungsbereich  $|E| \leq 40$  meV sehr gut, nur in unmittelbarer Nähe von  $E = 0$  sind kleine Unterschiede festzustellen, da in die Gleichung (8.24) nur der Betrag von  $E$  eingeht und die Fitkurve daher bei  $E = 0$  eine Spitze aufweist, während die aus der Messkurve berechnete Zustandsdichte ein etwas verrundetes Minimum zeigt. Dieser Unterschied könnte darauf zurückzuführen sein, dass das

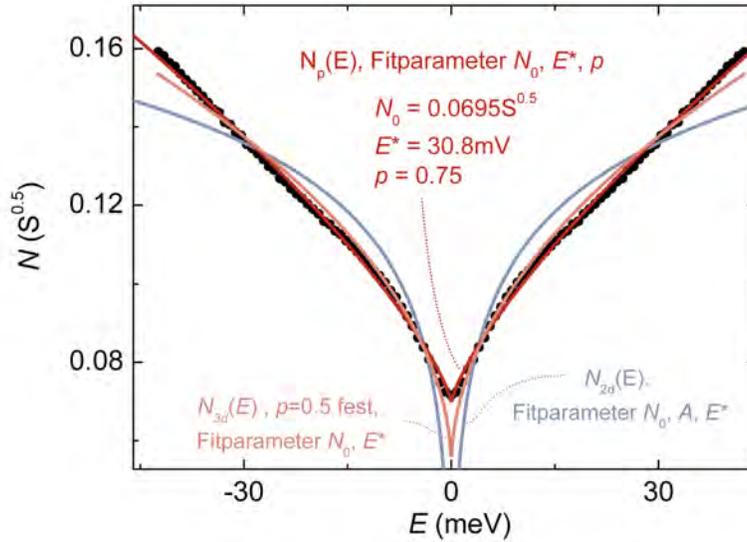


Abbildung 8.46: Durch Entfaltung aus dem korrigierten 15 T-Spektrum in Abbildung 8.27 berechnete Zustandsdichte und daran angepasste Kurven nach (8.25), (8.26) und (8.24).

ursprüngliche Leitwertsspektrum, aus dem die Zustandsdichte per Entfaltung berechnet wird, natürlich bei einer endlichen Temperatur aufgenommen wurde, und dass die Spektren mit zunehmender Temperatur entsprechende Verrundungen bei  $V = 0$  zeigen. Dafür spricht, dass auch die Spektren der  $\text{LaNi}_x\text{Co}_{1-x}\text{O}_3$ -Kontakte eine starke Temperaturabhängigkeit nahe  $V = 0$  zeigen, die sich nicht allein durch thermische Verrundungseffekte erklären lässt [Raychaudhuri95]. Eine entsprechende Auswertung der  $G_{RK}(V)$ -Spektren bei  $T \leq 5$  K und  $\mu_0 H = 15$  T für die Proben der PCCO-Serie und der unterdotierten und optimal dotierten LCCO Probe zeigt, dass auch für alle anderen untersuchten Kontakte die Form der entfalteten Zustandsdichten im gesamten Energiebereich am besten durch ein Potenzgesetz der Form (8.24) beschrieben werden kann. Es bleibt noch zu klären, in welcher Weise die im Rahmen der Kurvenanpassungen bestimmten Fitparameter  $N_0$ ,  $p$  und  $E^*$  mit Eigenschaften der untersuchten Probe wie etwa der Dotierung  $x$  zusammenhängen. Dabei ist vor allem das Verhalten der Parameter  $p$  und  $E^*$  interessant. Abbildung 8.47 illustriert, dass sowohl durch Verkleinern des Wertes von  $p$  als auch durch Vergrößern des Wertes von  $E^*$  die Form der  $N_p(E)$ -Funktionen, skaliert auf ihren jeweiligen Wert bei einer festen Energie  $E_{max}$ , in einer Art verändert wird, die der in Abbildung 8.45 dargestellten Entwicklung der Tunnelspektren mit zunehmender Dotierung ähnelt. In Abbildung 8.48 werden die Werte der Fitparameter  $p$  und  $E^*$ , die sich bei den Kurvenanpassungen ergeben, gegen die Dotierung der jeweiligen untersuchten Pro-

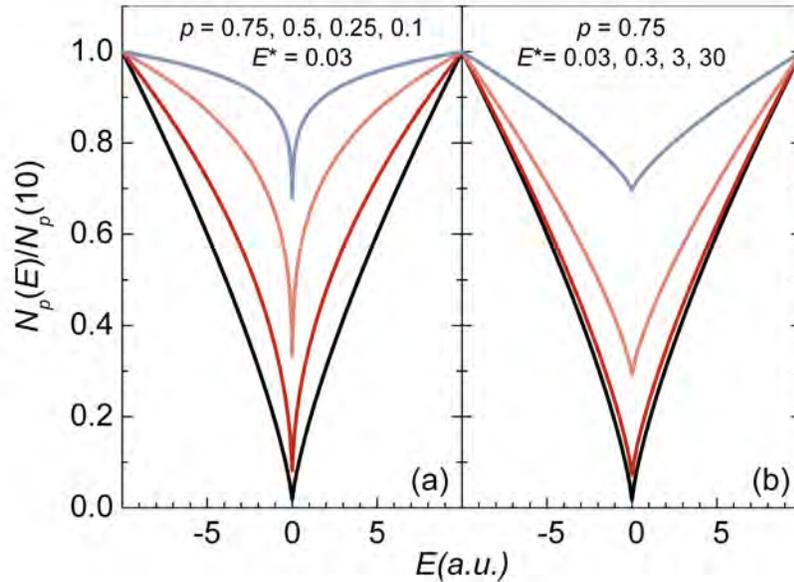


Abbildung 8.47: Für verschiedene Werte der Parameter  $p$  bzw.  $E^*$  nach (8.24) berechnete Zustandsdichten.

be aufgetragen. Im Gegensatz zu den in [Raychaudhuri95] veröffentlichten Ergebnissen, zeigt der Parameter  $p$  keine signifikante Abhängigkeit von der Dotierung, während die Werte für  $E^*$  deutlich mit der Dotierung zunehmen. Der Mittelwert aller  $p$ -Werte ist in Teilabbildung (a) durch eine horizontale Linie gekennzeichnet, die hellgrau hinterlegte Fläche entspricht dem Bereich der Standardabweichung. Bei der Darstellung der Werte für  $E^*$  in Teilabbildung (b) ist besonders bemerkenswert, dass der Unterschied zwischen den Werten für verschiedene Kontakte einer Probe wesentlich kleiner ist, als der Unterschied zwischen den Werten für verschiedene Proben. Der Zusammenhang zwischen  $E^*$  und  $x$  lässt sich in guter Näherung durch ein Exponentialgesetz beschreiben.

Ein Vergleich des genauen Ausdrucks für die Korrektur zur Zustandsdichte in dreidimensionalen Systemen aus [Altshuler79, Altshuler85] mit der Notation in (8.25) zeigt, dass  $E^* \sim \lambda^{-2}$ , wobei  $\lambda$  die effektive Konstante für die Wechselwirkung zwischen den Elektronen ist. Daher bedeutet ein mit der Dotierung ansteigender Wert, dass die Wechselwirkung zwischen den Elektronen mit zunehmender Dotierung abnimmt.<sup>10</sup> Dies passt zur der in Abschnitt 7.2 dargestellten Beobachtung, dass für die einzelnen Proben-Serien mit wachsender Dotierung ein Übergang von isolie-

<sup>10</sup>Dies gilt genau genommen natürlich nur für  $p = 0.5$ . Die physikalische Bedeutung eines von 0.5 abweichenden Exponenten bleibt zu klären.

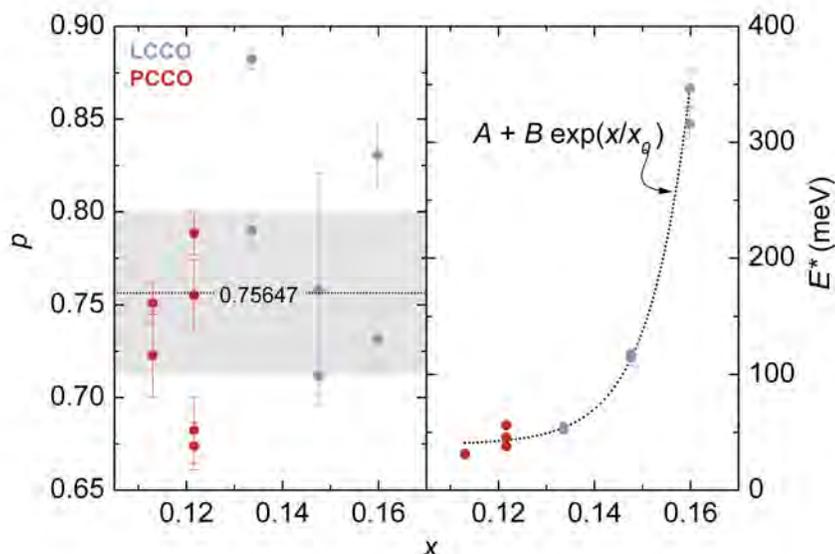


Abbildung 8.48: Durch Anpassung der Gleichung (8.24) an die korrigierten Leitwertsspektren aus Abbildung 8.45 (b) bestimmte Parameter  $p$  und  $E^*$  als Funktion der Dotierung der jeweils untersuchten Probe.

rendem zu metallischem Verhalten in den Transporteigenschaften von Filmbrücken bei kleinen Temperaturen und hohen Magnetfeldern auftritt. Bei der Interpretation der Widerstandsmessungen wurden ebenfalls Korrelationen zwischen Elektronen nach dem Modell von Altshuler als möglicher Grund für die Form der  $\rho(T)$ -Kurven im Bereich kleiner Temperaturen vorgeschlagen. Im Hinblick auf das Verhalten der überdotierten LCCO-Probe (L3) im Magnetfeld ist es interessant, dass die Probe L3 einerseits aufgrund ihrer Dotierung ( $x=0.15$ ) und ihren metallischen Transporteigenschaften im Normalzustand bei tiefen Temperaturen nicht zu der Interpretation des in Abbildung 8.48 (b) dargestellten Verhaltens als Übergang von isolierendem zu metallischem Verhalten mit wachsender Dotierung passt. So haben L3 und P2 ähnliche Dotierungen, zeigen aber unterschiedliche Transporteigenschaften. Andererseits lässt sich aus den Spektren an L3 jedoch auch kein Wert für  $E^*$  ermitteln, da L3 in hohen Magnetfeldern ein völlig anderes Verhalten zeigt, das im folgenden Abschnitt behandelt wird. Bevor jedoch das Verhalten von L3 an einer anderen Probe reproduziert wird, lässt sich nur spekulieren, ob es sich dabei um einen Zufall oder einen physikalischen Effekt handelt.

Die Berechnung von Leitwertsspektren bei endlichen Temperaturen nach dem Korrelationsmodell gestaltet sich deutlich schwieriger. So werden in [Altshuler85] die

folgenden Näherungslösungen für die Zustandsdichte bei  $T > 0$  abgeleitet:

$$N_{ww3d}(E, T) = \begin{cases} N_0 \left\{ 1 + \left( \frac{E}{E^*} \right)^{0.5} [1 + O\left( \frac{k_B T}{E} \right)^2] \right\} & \text{für } \frac{E}{k_B T} \gg 1 \\ N_0 \left\{ 1 + \left( \frac{k_B T}{E^*} \right)^{0.5} [\alpha + O\left( \frac{E}{k_B T} \right)^2] \right\} & \text{für } \frac{E}{k_B T} \ll 1 \end{cases} \quad (8.27)$$

Dabei ist  $\alpha$  eine numerische Konstante, die in der Größenordnung von 1 liegt [Altshuler79]. Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Serien von Tunnelmessungen in einem Feld von 15 T wird die Temperatur typischerweise zwischen 5 K und 40 K variiert, was Energien zwischen 0.4 meV und 3.4 meV entspricht. Gerade im Bereich der Pseudolücke nahe  $E = 0$  gilt also  $E \approx k_B T$ , so dass sich keine der beiden Formeln aus (8.27) in guter Näherung anwenden lässt. Daher wird auf eine Berechnung der Leitwertsspektren nach dem Korrelationsmodell verzichtet. Allerdings ist es möglich, die Entwicklung des Leitwertes bei  $V = 0$  mit zunehmender Temperatur näher zu betrachten und mit den Vorhersagen des Korrelationsmodells zu vergleichen. Danach ergibt sich die Abhängigkeit der Zustandsdichte bei  $E = 0$  von der Temperatur gemäß (8.27) zu

$$N_{ww3d}(E = 0, T) \approx N_0 \left[ 1 + \left( \frac{k_B T}{E^*} \right)^{0.5} \right], \quad (8.28)$$

wobei der Parameter  $\alpha$  aus (8.27) in den Parameter  $E^*$  mit einbezogen wurde. Das bedeutet, für  $E = 0$  folgt die Temperaturabhängigkeit der Zustandsdichte einem ähnlichen Potenzgesetz wie es die Energieabhängigkeit der Zustandsdichte bei  $T = 0$  beschreibt.

Andererseits ergibt sich  $G(V = 0)$  für  $P(E, V) = 1$  und einen eindimensionalen Kontakt bei endlichen Temperaturen zu

$$G(V = 0, T) = \int_{-\infty}^{+\infty} N(E, T)^2 \partial_E f(E) dE \quad (8.29)$$

Lassen sich die Effekte thermischer Verrundungen im Vergleich zur Temperaturabhängigkeit der Zustandsdichte vernachlässigen, so kann  $\partial_E f(E)$  durch  $\lim_{T \rightarrow 0} \partial_E f(E) = \delta(E)$  ersetzt werden und der Leitwert bei  $V = 0$  ergibt sich zu

$$G(V = 0, T) \approx (N(V = 0, T))^2 \quad (8.30)$$

Daher wird in Abbildung 8.49 die Wurzel der Leitwerte bei  $V = 0$  für die Spektren der Temperaturserie aus Abbildung 8.31 für beide in Abschnitt 8.2.4 vorgestellte Korrekturverfahren gegen die jeweilige Temperatur aufgetragen. Außerdem wird an die Daten jeweils eine Funktion der Form

$$N_p(E = 0, T) \approx N_0 \left[ 1 + \left( \frac{k_B T}{E^*} \right)^p \right], \quad (8.31)$$

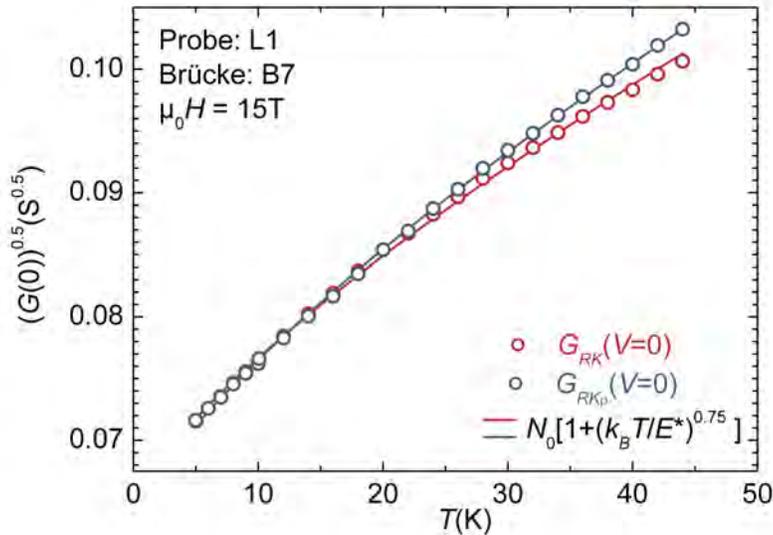


Abbildung 8.49: Quadratwurzel des Leitwerts bei  $V = 0$  als Funktion der Temperatur für die Temperatur-Serie bei 15 T aus Abbildung 8.31 nach den beiden in Abschnitt 8.2.4 dargestellten Korrekturverfahren sowie an die experimentellen Daten angepasste Kurven gemäß (8.31) mit  $p = 0.75$

durch Variation der Parameter  $N_0$  und  $E^*$  angepasst, wobei der gleiche Exponent  $p$  verwendet wird, der sich aus der Kurvenanpassung von (8.24) an die aus dem Leitwertsspektrum bei der kleinsten Temperatur entfalteten  $N(E)$ -Kurve ergibt (vgl. Abb. 8.46). Abbildung 8.49 zeigt, dass sich die  $\sqrt{G(V=0, T)}$ -Daten unabhängig vom Korrekturverfahren recht gut durch ein sehr ähnliches Potenzgesetz beschreiben lassen, wie die entfalteten  $N(E)$ -Daten. Die Parameter  $E^*$  und  $N_0$ , die sich aus den Kurvenanpassungen ergeben, sind allerdings für die  $\sqrt{G(V=0, T)}$ - und die  $N(E)$ -Kurve unterschiedlich. Hinsichtlich der Magnetfeldabhängigkeit wird schließlich im Rahmen der Korrelations-Theorie das Auftauchen zusätzlicher Strukturen in der Zustandsdichte bei  $E = \pm g\mu_B B$  vorhergesagt, die jedoch durch Streuprozesse unterdrückt werden können [Altshuler85].

Insgesamt lässt sich also das Verhalten der Tunnelspektren bei hohen Magnetfeldern und tiefen Temperaturen hinsichtlich der Form, der Dotierungsabhängigkeit und (soweit untersucht) der Temperaturabhängigkeit recht gut im Rahmen eines monokausalen Ansatzes beschreiben, der damit als reizvolle Alternative zum häufig in der Literatur verwendeten multikausalen Ansatz zur Beschreibung des Pseudolücken-Verhaltens erscheint.

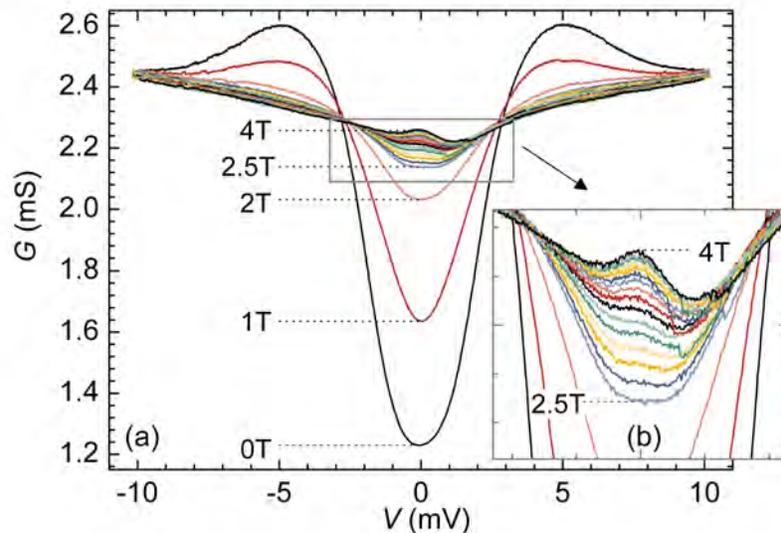


Abbildung 8.50: Tunnelspektren an einem Kontakt der überdotierten LCCO-Probe bei einer Temperatur von 6 K und in Magnetfeldern zwischen 0 T und 5 T

### 8.3 Verhalten der überdotierten LCCO-Probe im Magnetfeld

Das Verhalten der überdotierten LCCO-Probe im Magnetfeld unterscheidet sich grundlegend von dem aller anderen untersuchten Korngrenzenkontakte.

Abbildung 8.50 zeigt beispielhaft Tunnelspektren an einem Kontakt dieser Probe bei einer Temperatur von 6 K und in Magnetfeldern zwischen 0 T und 5 T, wobei der in Teilabbildung (a) durch einen rechteckigen Rahmen markierte Bereich um  $V = 0$  in Teilabbildung (b) noch einmal vergrößert dargestellt ist. Im Gegensatz zu allen anderen Proben tritt hier keine Pseudolücke im Magnetfeld auf. Stattdessen ist schon bei 2.5 T eine deutliche Abflachung der  $G(V)$ -Kurve im Bereich um  $V = 0$  zu beobachten, aus der sich mit zunehmendem Magnetfeld ein deutliches Maximum entwickelt, das auf jeder Seite von einem Minimum eingeschlossen wird.

Dieses zentrale Maximum im Magnetfeld (kurz ZMM) tritt ausnahmslos an allen sieben untersuchten Kontakten der überdotierten LCCO-Probe auf. Um dies zu zeigen sind in Abbildung 8.51 entsprechende Tunnelspektren an allen diesen Kontakten dargestellt. Da die Kontakte teilweise unter sehr unterschiedlichen Laborbedingungen untersucht wurden, liegen nicht für alle Kontakte Spektren bei der gleichen Temperatur und im gleichen Feld vor. Daher wurde für jeden Kontakt ein Spek-

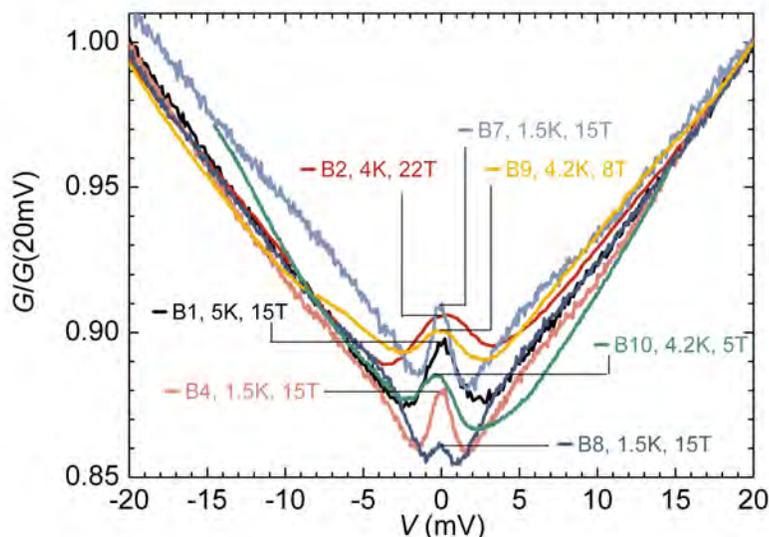


Abbildung 8.51: Tunnelspektren an verschiedenen Kontakten der überdotierten LCCO-Probe in Magnetfeldern oberhalb von 5 T, skaliert auf den Leitwert bei  $V = 20$  mV

trum mit möglichst kleiner Temperatur und gleichzeitig möglichst großem Magnetfeld ausgewählt. Zur besseren Vergleichbarkeit wurden alle Spektren auf ihren Wert bei  $V = 20$  mV normiert. Alle Spektren in Abbildung 8.51 zeigen ein deutliches Maximum bei  $V = 0$ . Daher ist auszuschließen, dass dieser Effekt zum Beispiel auf einzelne Verunreinigungen zurückzuführen ist. Es muss sich also um eine Eigenschaft der Elektroden oder der Korngrenze handeln.

Anhand der Positionen des zentralen Maximums und der beiden das Maximum einschließenden Minima lassen sich Breite  $V_{ZMM}$  und Ausprägung  $G_{ZMM}$  des ZMM definieren, wie in Teilabbildung 8.52 (b) gezeigt wird.

Für die einzelnen Kontakte variiert die Breite  $V_{ZMM}$  im Bereich zwischen 2 mV und 6 mV, die Ausprägung  $G_{ZMM}$  im Bereich zwischen 1% und 3%, bezogen auf den Mittelwert der Leitwerte an den Stellen der beiden Minima.

Weiterhin zeigt Abbildung 8.51, dass einige der Leitwertkurven im Bereich  $|V| \lesssim 15$  mV leichte Asymmetrien aufweisen. Dabei hängt die Asymmetrie damit zusammen, an welche Elektrode eine positive Spannung angelegt wird, das heißt durch Umpolen des Messaufbaus lässt sich eine zur ursprünglichen Messkurve spiegelsymmetrische Kurve erzeugen. (Bei der an B2 aufgenommenen Kurve fließt der Strom daher entgegen der Richtung für die etwa an B10 aufgezeichnete Kurve).

Ähnlich wie die Pseudolücke wird auch das zentrale Maximum im Magnetfeld durch

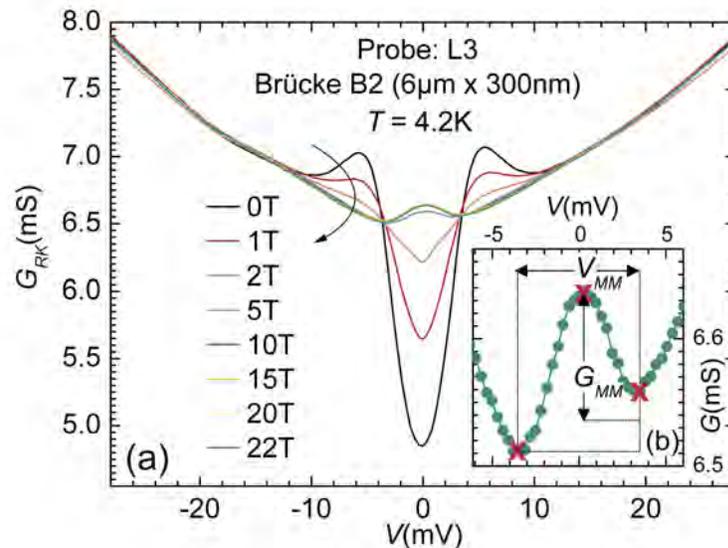


Abbildung 8.52: Tunnelspektren an einem Kontakt der überdotierten LCCO-Probe bei einer Temperatur von 4.2 K und in Magnetfeldern zwischen 0 T und 22 T (a), sowie vergrößerte Darstellung des zentralen Maximums bei der 22 T Kurve zur Illustration der Bestimmung von Breite  $V_{ZMM}$  und Ausprägung  $G_{ZMM}$  (b).

Felder  $H > H_{c2}(T)$  nur schwach beeinflusst, wie Abbildung 8.52 belegt. In dieser Abbildung sind die Resultate einer Mess-Serie dargestellt, in der am GHMFL in Grenoble Tunnelspektren an einem Kontakt dieser Probe in Magnetfeldern bis zu 22 T aufgenommen werden konnten. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich die Kurven in Feldern  $\mu_0 H \geq 10\text{ T}$  (nach der Korrektur um die Effekte der Zuleitungswiderstände) nur sehr wenig voneinander unterscheiden.

Die Temperaturabhängigkeit des zentralen Maximums im Magnetfeld wird schließlich anhand einer Serie von Tunnelspektren in einem Feld von 15 T für Temperaturen zwischen 5 K und 44 K in Abbildung 8.53 dargestellt.

Dabei zeigt Teilabbildung (a) die Spektren bei der kleinsten und größten Temperatur im Spannungsbereich  $|V| \leq 60\text{ mV}$ , Teilabbildung (b) zeigt alle Spektren im Bereich  $|V| \leq 20\text{ mV}$ . In diesem Bereich nimmt für alle Spannungen der Leitwert mit zunehmender Temperatur zu, wobei die Strukturen, also das zentrale Maximum und die Minima zu beiden Seiten des Maximums, immer mehr verrundet werden, so dass etwa bei einer Temperatur von 24 K das zentrale Maximum nicht mehr zu erkennen ist. Um zu untersuchen, inwieweit sich diese Entwicklung allein durch thermische Verrundungen erklären lassen, wurde, wie in Abschnitt 8.2.4 (vgl. Seite 190 ff.), auf

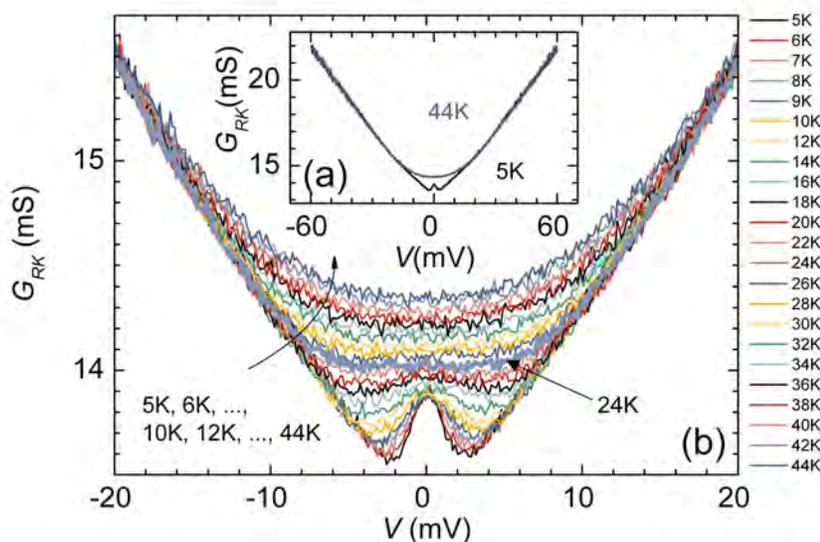


Abbildung 8.53: Tunnelspektren an einem Kontakt der überdotierten LCCO-Probe in einem Magnetfeld von 15 T für Temperaturen zwischen 5 K und 44 K.

Grundlage der experimentellen Kurve bei 5 K durch Entfaltung einer Zustandsdichte berechnet und anhand dieser Zustandsdichte die Leitwertkurve eines symmetrischen, eindimensionalen Kontaktes bei den Temperaturen berechnet, für die auch Messkurven vorliegen. Die Resultate werden in Teilabbildung 8.54 (b) den entsprechenden Messkurven in Teilabbildung (a) für einige Temperaturen gegenübergestellt. Auch in diesem Fall kann die Veränderung der Spektren mit zunehmender Temperatur nicht im Rahmen dieses einfachen eindimensionalen Modells allein durch thermische Verundungen beschrieben werden. Es ist jedoch festzuhalten, dass diese thermischen Verundungen ausreichen, um die bei tiefen Temperaturen beobachtete Struktur für Temperaturen oberhalb von etwa 18 K zu unterdrücken. Dieser Wert liegt relativ nahe bei der Temperatur, bei der auch in den experimentellen Spektren das zentrale Maximum im Feld verschwindet.

Die Frage nach der Ursache dieser ungewöhnlichen Struktur in den Tunnelspektren an der überdotierten LCCO-Probe im Magnetfeld ist nicht einfach zu klären.

Bei vielen Materialsystemen treten in Tunnelspektren unerwartete Strukturen bei  $V = 0$  auf, kurz auch als Nullspannungsanomalien (zero bias anomalies) bezeichnet. Dementsprechend findet sich in der Literatur eine Vielzahl verschiedener Erklärungsansätze. Im folgenden werde ich mich auf zwei naheliegende Möglichkeiten beschränken.

Position und Form des Maximums erinnern zunächst an die bei Spektren an lochdo-

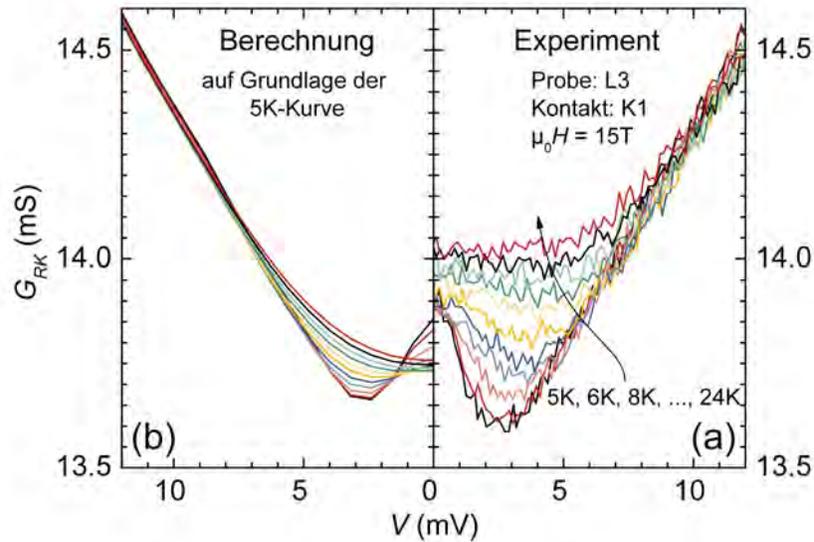


Abbildung 8.54: Spektren der Temperaturserie bei 15 T aus Abbildung 8.53 (a) sowie auf Grundlage der 5 K-Kurve durch Entfaltung und thermische Verrundung für die Temperaturen aus Teilabbildung (a) berechnete Spektren

tierten Materialien beobachtete Nullspannungsanomalien, die auf Andreev-gebundene Zustände zurückgeführt und als Indiz für eine  $d$ -Wellen Symmetrie des supraleitenden Ordnungsparameters gewertet werden (vgl. Kapitel 3.5.4). Diese Möglichkeit kann hier jedoch mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden, da Andreev-gebundene Zustände die Existenz eines supraleitenden Ordnungsparameters voraussetzen, wohingegen das zentrale Maximum an Probe L3 in Magnetfeldern bis zu 22 T beobachtet wird, also weit jenseits des kritischen Feldes.

Ein anderes Modell zur Erklärung eines Leitwertmaximums bei  $V = 0$  beruht auf Streuprozessen höherer Ordnung an einzelnen magnetischen Verunreinigungen in der Tunnelbarriere [Appelbaum66, Anderson66, Appelbaum67]; es handelt sich um die gleichen Streuprozesse, die in Abschnitt 7.2 (Seite 116 ff.) im Rahmen der Erläuterungen zum Kondo-Effekt vorgestellt wurden. Da die Streuung dabei mit einem Flip des Elektronen-Spins verbunden ist, sollte ein Magnetfeld zu einer Aufspaltung des Leitwertmaximums führen. Dies stimmt jedoch nicht mit dem Verhalten des an Probe L3 beobachteten zentralen Maximums überein, welches sich zunächst mit wachsendem Magnetfeld an der Stelle  $V = 0$  entwickelt und oberhalb des kritischen Feldes nur sehr schwach vom Magnetfeld abhängt. Insofern lassen sich auch Streuprozesse nach dem Modell von Anderson und Appelbaum mit hoher Wahrscheinlichkeit als Ursache für das zentrale Maximum im Magnetfeld bei der

überdotierten LCCO-Probe ausschließen.

Die beschriebene Magnetfeldabhängigkeit dieser Struktur legt zwei Möglichkeiten nahe. Zum einen könnte es sich um eine ungewöhnliche Eigenschaft der normalleitenden Phase dieser Verbindung bei tiefen Temperaturen handeln, auf die das Magnetfeld gar keinen Einfluss hat. In diesem Fall dient das Feld nur dazu, die Supraleitung bei tiefen Temperaturen zu unterdrücken. Zum anderen könnte es sich um einen Effekt handeln, der mit der Ausrichtung lokaler magnetischer Momente verbunden ist. Sind alle Momente ausgerichtet, so würde eine weitere Erhöhung des Magnetfeldes keine Änderung des Effektes mehr erzielen.

In jedem Fall stellt sich jedoch die Frage, was die überdotierte LCCO-Probe von den anderen vermessenen Proben unterscheidet und so zu dem ungewöhnlichen Verhalten im Magnetfeld führen könnte. In diesem Zusammenhang ist festzuhalten, dass ähnliche Effekte weder bei der überdotierten PCCO-Probe noch bei der überdotierten NCCO-Probe beobachtet werden. Auch in der Literatur konnte ich keine ähnlichen Ergebnisse finden.

Um also auszuschließen, dass es sich bei dem zentralen Maximum im Magnetfeld um einen rein probenspezifisches Phänomen handelt, sollte vor weitergehenden Spekulationen untersucht werden, ob sich dieser Effekt an anderen LCCO-Proben der gleichen Dotierung reproduzieren lässt.

# Kapitel 9

## Zusammenfassung

Auch zwanzig Jahre nach Entdeckung der Hochtemperatur-Supraleiter gleicht die Untersuchung des Phasendiagramms dieser Verbindungen immer noch dem Zusammensetzen eines sehr großen Puzzles. Die im folgenden zusammengefassten Ergebnisse fügen einen kleinen Stein auf der elektronendotierten Seite des entstehenden Bildes ein.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Tunnelspektroskopie-Messungen an Korngrenzenkontakten sowie Widerstandsmessungen an Filmbrücken aus elektronendotierten Hochtemperatur-Supraleitern durchgeführt, mit dem Ziel die Dotierungsabhängigkeit der Spektren und der Transporteigenschaften unter verschiedenen äußeren Bedingungen zu studieren.

Tunnelspektren an Kontakten aus elektronendotierten Kuprat-Verbindungen im supraleitenden Zustand weisen eine auf den ersten Blick einfache Struktur auf, die im Wesentlichen durch drei Merkmale gekennzeichnet ist: eine annähernd lineare Hintergrundleitfähigkeit, von der sich zwei Kohärenzmaxima symmetrisch um  $V = 0$  abheben und die wiederum ein zentrales Minimum einschließen. Dennoch gibt es in der Literatur bisher kein Modell, welches in der Lage ist, den Verlauf der Spektren einschließlich der Hintergrundleitfähigkeit über einen größeren Spannungsbereich in zufriedenstellender Weise quantitativ zu beschreiben. Daher bestand ein wichtiger Teil dieser Arbeit in der Entwicklung und Zusammenstellung von **Auswertungsmethoden** für die Tunnelspektren. Insbesondere wurde ein numerisches Verfahren zur Entfaltung von Tunnelspektren an symmetrischen SIS-Kontakten entwickelt, welches die direkte Bestimmung der Zustandsdichte aus  $G(V)$ -Spektren bei tiefen Temperaturen erlaubt und neue Analysemethoden wie die Berechnung thermischer Verrundungseffekte ermöglicht.

In einigen Publikationen wird die Hintergrundleitfähigkeit beseitigt, indem die experimentellen Daten durch eine häufig willkürlich gewählte Hintergrundfunktion dividiert werden. In dieser Arbeit wird der Ursprung und die Problematik dieser Methode diskutiert. Als Alternative wird eine systematische Zusammenstellung möglicher Ursachen der Hintergrundleitfähigkeit und ihrer theoretischen Behandlung vorge-

stellt.

Zum Zweck einer ersten Charakterisierung wurde eine ausgedehnte Reihe von **Widerstandsmessungen** an den Filmbrücken der untersuchten Proben als Funktion der Temperatur und eines äußeren, senkrecht zur *ab*-Ebene angelegten Magnetfeldes durchgeführt.

Die aus den Widerstandsmessungen im Nullfeld bestimmten kritischen Temperaturen für die Proben der LCCO-, PCCO- und NCCO-Serie zeigen als Funktion der Ce-Dotierung die erwartete kuppelförmige  $T_c(x)$  Abhängigkeit, wobei die jeweils maximalen kritischen Temperaturen gut mit Literaturwerten für dünne Filme übereinstimmen. Bei den Proben der LCCO-Serie ist dabei die optimale Dotierung, also die Dotierung, für die sich die maximale kritische Temperatur ergibt, im Vergleich zu den anderen beiden Materialsystemen zu kleineren Werten hin verschoben, was ebenfalls Literaturergebnisse bestätigt.

Wird die Supraleitung durch ein hinreichend großes Magnetfeld unterdrückt, so zeigten alle drei Materialsysteme bei tiefen Temperaturen mit zunehmender Dotierung einen Übergang in den Transporteigenschaften von isolierendem zu metallischem Verhalten. Dabei findet der Übergang für alle Materialsysteme etwa bei der optimalen Dotierung statt; er ist also insbesondere bei der LCCO-Serie zu kleineren Dotierungen hin verschoben. Auch diese Beobachtungen decken sich mit in der Literatur publizierten Ergebnissen und weisen auf einen Zusammenhang zwischen den Transporteigenschaften im normalleitenden Zustand und den supraleitenden Eigenschaften hin.

Die Form der aufgezeichneten  $\rho(T, H)$ -Kurven in endlichen Magnetfeldern lässt darauf schließen, dass sowohl Vortizes als auch Fluktuationen eine wesentliche Rolle für die Transporteigenschaften spielen. Daher wurden verschiedene Auswertungsverfahren für eine Abschätzung des kritischen Feldes  $H_{c2}(T)$  angewendet, zum einen eine phänomenologische, geometrische Methode ( $H_{SP2}(T)$ ), zum anderen verschiedene Methoden, die auf den Auswirkungen von Vortex-Bewegungen beruhen. Schließlich wurde  $H_{c2}(0)$  durch eine Fluktuationsanalyse der  $\rho(T, H)$ -Daten bestimmt. Dabei zeigt sich, dass für alle untersuchten Proben die nach der geometrischen Methode abgeschätzte  $H_{c2}(T)$ -Kurve in guter Näherung mit der nach einem der Modelle zu Vortizes bestimmten Kurve übereinstimmt. Die zu  $T = 0$  extrapolierten Werte dieser Kurven stimmen wiederum gut mit den Ergebnissen der Fluktuationsanalyse überein, so dass sich insgesamt ein in sich geschlossenes Bild ergibt.

Im Hinblick auf die Tunnelmessungen ist festzuhalten, dass ein Feld von 15 T für alle untersuchten Proben deutlich oberhalb des jeweiligen  $H_{c2}(0)$ -Wertes liegt, also ausreicht, die Supraleitung zu unterdrücken.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten **tunnelspektroskopischen Messungen** lassen sich einteilen in Messungen an supraleitenden Kontakten und Messungen, bei denen die Supraleitung durch ein hinreichend großes Magnetfeld unterdrückt wurde.

Für die **Tunnelmessungen an supraleitenden Kontakten** ist als erstes wichti-

ges qualitatives Ergebnis festzuhalten, dass bei den im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Kontakten in keinem einzigen Fall eine Nullspannungsanomalie beobachtet wurde, die in Spektren an lochdotierten Verbindungen auftritt und als Auswirkung Andreev-gebundener Zustände in einem  $d$ -Wellen Supraleiter interpretiert wird. Insbesondere ändert sich die Form der hier untersuchten Spektren im Spannungsbereich nahe  $V = 0$  als Funktion der Dotierung qualitativ nicht. Da in einigen Veröffentlichungen ein Zusammenhang zwischen der Barrierentransparenz und der Beobachtung von Anzeichen Andreev-gebundener Zustände vermutet wird, sich bei Korngrenzenkontakten Orientierung und Transparenz der Tunnelbarriere aber nicht unabhängig voneinander einstellen lassen, bietet es sich unter Umständen an, diesen Zusammenhang an Kontakten anderer Art näher zu untersuchen, zum Beispiel an Punktkontakten oder anhand von STM-Messungen.

In einer mehr quantitativen Analyse der Tunnelspektren im Nullfeld bei tiefen Temperaturen für die Proben der LCCO- und PCCO-Serie konnte durch Vergleich verschiedener Kontakte der einzelnen Proben gezeigt werden, dass insbesondere der Abstand der Kohärenzmaxima und die normierte Hintergrundsteigung charakteristisch für die jeweils betrachtete Probe sind. Dabei skaliert der Abstand der Kohärenzmaxima und damit die Energielücke in guter Näherung mit der kritischen Temperatur; die normierte Hintergrundsteigung nimmt als Funktion der Dotierung monoton ab.

Es konnte weiterhin gezeigt werden, dass das in der Literatur häufig verwendete Modell der Trapezbarriere nicht ausreicht, um die experimentellen Spektren in einem typischen Spannungsbereich  $|V| \leq 40$  mV zufriedenstellend zu beschreiben, auch wenn die Form der Spektren im Bereich der Energielücke recht gut reproduziert werden kann. Um den Mechanismus der Hintergrundleitfähigkeit in weiterführenden Messungen näher zu ergründen, sollten Kontakte untersucht werden, bei denen sich die Eigenschaften von Tunnelelektroden und Barriere möglichst unabhängig voneinander präparativ verändern lassen, zum Beispiel Kontakte in Rampengeometrie.

Der Einfluss der Temperatur und eines äußeren Magnetfeldes auf die Form der untersuchten Spektren bei supraleitenden Elektroden lässt sich qualitativ gut durch die Einführung eines mit der Temperatur bzw. dem Magnetfeld anwachsenden phänomenologischen Parameters  $\Gamma$  beschreiben, der über die Heisenbergsche Unschärferelation mit der Lebensdauer der Anregungen verknüpft ist.

Die Untersuchung der **Tunnelspektren im normaleitenden Zustand** bei hohen Magnetfeldern konzentriert sich im Wesentlichen auf das Verhalten der sogenannten Pseudolücke.

Diese Unterdrückung des Leitwertes um  $V = 0$  auf der Energieskala der supraleitenden Energielücke bei tiefen Temperaturen und hohen Magnetfeldern tritt bei allen untersuchten Proben mit Ausnahme der überdotierten LCCO-Probe auf. Dabei zeigen die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen, dass diese Struktur einige gemeinsame Merkmale mit der in Tunnelspektren im Nullfeld für  $T < T_c$  in lochdotierten Verbindungen beobachteten Pseudolücke aufweist. Dazu zählen das

Auftreten der Pseudolücke auch für überdotierte Proben, ihre Entwicklung aus der supraleitenden Energielücke ohne erkennbaren Übergang sowie die Temperaturabhängigkeit der Pseudolücke. Diese Übereinstimmungen lassen einen gemeinsamen Ursprung der Pseudolücken in Tunnelspektren an elektronen- und lochdotierten Verbindungen vermuten.

Im Rahmen dieser Arbeit durchgeführte Hochfeldmessungen in Feldern bis zu 27 T, Auswertungen der Messdaten im Rahmen eines Modells zur Zustandserhaltung, sowie Literaturergebnisse zum Verhalten nicht supraleitender elektronendotierter Proben deuten darauf hin, dass die Pseudolücke insgesamt nicht oder nur sehr schwach vom Magnetfeld abhängt, was in deutlichem Gegensatz zu im Vorfeld dieser Arbeit veröffentlichten Ergebnissen steht [Kleefisch01].

Daraus folgt, dass die Pseudolücke durch Tunnelmessungen zum Beispiel in einem Magnetfeld von 15 T charakterisiert werden kann. Insbesondere lässt sich auch die charakteristische Temperatur  $T^*$ , bei der die Pseudolücke verschwindet, aus Reihen von Tunnelmessungen bei 15 T bei verschiedenen Temperaturen bestimmen. In diesem Zusammenhang konnte durch die Entfaltung der Tunneldaten bei tiefen Temperaturen und die damit ermöglichte Berechnung thermischer Verrundungseffekte gezeigt werden, dass die Temperaturentwicklung der Spektren bei 15 T im Rahmen eines eindimensionalen Modells nicht allein durch thermische Verrundungen erklärt werden kann,  $T^*$  also eine Eigenschaft der Pseudolücke wiedergibt.

Eine quantitative Analyse der Pseudolücke im Rahmen eines **multikausalen Ansatzes**, bei dem Hintergrundleitfähigkeit und Pseudolücke auf verschiedene Effekte zurückgeführt und die Eigenschaften der Pseudolücke im Verhältnis zur Hintergrundleitfähigkeit definiert werden, gestaltet sich jedoch schwierig. Insbesondere ergeben sich bei einer Abschätzung von  $T^*$  einige Probleme. So erfolgt die Änderung der Tunnelspektren mit zunehmender Temperatur in einer kontinuierlichen Weise. Es ist also keine Sprungtemperatur auszumachen, unterhalb und oberhalb derer sich die Spektren qualitativ deutlich unterscheiden. Zum anderen gibt es kein Modell, welches eine konkrete Formel für die Hintergrundleitfähigkeit vorschlägt und die in die Formel eingehenden Parameter auf Eigenschaften der Barriere zurückführt, so dass nur die Wahl einer möglichst einfachen Hintergrundfunktion bleibt. Die um die Effekte der Zuleitungswiderstände korrigierten Leitwertsspektren bei tiefen Temperaturen und 15 T unterscheiden sich zudem für die Proben der LCCO- und der PCCO-Reihe qualitativ, was die Wahl einer solchen Funktion und die Vergleichbarkeit von Ergebnissen an den beiden Materialsystemen zusätzlich erschwert

Es wurden verschiedene Methoden zur Abschätzung von  $T^*$  auf die experimentellen Daten angewendet. Alle Methoden liefern jedoch Ergebnisse, bei denen die Unterschiede zwischen verschiedenen Kontakten einer Probe so groß sind, dass sich weder über die Dotierungsabhängigkeit von  $T^*$  noch über das Größenverhältnis von  $T^*$  und  $T_c$  eindeutige Aussagen machen lassen. Allerdings ist festzuhalten, dass die charakteristische Temperatur  $T^*$  in der gleichen Größenordnung liegt, wie die kritische Temperatur  $T_c$ . Insofern spricht die Abwesenheit der Pseudolücke für  $T > T_c$  im Nullfeld

bei Tunnelspektren an elektronendotierten Hochtemperatur-Supraleitern nicht gegen eine gemeinsame Ursache für die in Tunnelspektren beobachtete Pseudolücke bei elektronen- und lochdotierten Verbindungen.

Alternativ zum multikausalen Ansatz könnten Pseudolücke und Hintergrundleitfähigkeit auch auf einen einzigen Effekt zurückzuführen sein. Als Beispiel für einen **monokausalen Erklärungsansatz** wurden die Tunnelspektren bei hohen Magnetfeldern und tiefen Temperaturen im Rahmen des sogenannten Korrelationsmodells diskutiert, welches ein Potenzgesetz für die Beschreibung der Zustandsdichte  $N(E)$  in einem dreidimensionalen Elektronensystem unter Berücksichtigung von Elektron-Elektron Wechselwirkungen vorschlägt. Dabei geht eine charakteristische Energie  $E^*$  als ein Parameter in dieses Potenzgesetz ein, der mit abnehmender Wechselwirkung zwischen den Elektronen anwächst. Durch Kurvenanpassungen an die aus Tunnelspektren bei tiefen Temperaturen und 15 T direkt entfalteten Zustandsdichten konnte gezeigt werden, dass sich die entfalteten  $N(E)$ -Kurven aller untersuchten Kontakte sehr gut durch ein sehr ähnliches Potenzgesetz beschreiben lassen und dass darüberhinaus die bei der Anpassung bestimmten Parameter für  $E^*$ , für alle Kontakte auf einer Kurve liegen, die in guter Näherung exponentiell mit der Dotierung anwächst. Im Rahmen dieses Modells lässt sich also darauf schließen, dass die Wechselwirkung zwischen den Elektronen mit zunehmender Dotierung abnimmt, was gut zu dem oben erläuterten Übergang in den Transporteigenschaften der Proben im Normalzustand bei tiefen Temperaturen von isolierendem zu metallischen Verhalten mit zunehmender Dotierung passt. Weiterführende Messungen könnten zum Beispiel den Zusammenhang zwischen der Form der Leitwertspektren und den Transporteigenschaften für hohe Magnetfelder und tiefe Temperaturen anhand einer ausgedehnten Dotierungsserie näher untersuchen.

Das ungewöhnliche Verhalten bei hohen Magnetfeldern und tiefen Temperaturen unterscheidet schließlich die überdotierte LCCO-Probe von allen anderen im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben. Anstelle einer Pseudolücke zeigen Tunnelspektren an allen untersuchten Kontakten dieser Probe ein ausgeprägtes zentrales Maximum im Magnetfeld. Der Ursprung dieser Struktur bleibt bisher ungeklärt; durch den Vergleich verschiedener Kontakte konnte jedoch mit hoher Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden, dass es sich um Effekte einzelner Verunreinigungen handelt. Weiterhin spricht die Existenz dieser Struktur in Magnetfeldern über 20 T und ihre weitgehende Magnetfeldunabhängigkeit für  $H > H_{c2}(T)$  sowohl gegen Andreev gebundene Zustände als auch gegen die Streuung an magnetischen Verunreinigungen als Ursache des zentralen Maximums im Magnetfeld. Da vergleichbare Ergebnisse in der Literatur nicht zu finden sind, sollte auf jeden Fall untersucht werden, ob sich dieses ungewöhnliche Verhalten an anderen Tunnelkontakten auf Basis von LCCO-Filmen der gleichen Dotierung reproduzieren lässt.

# Anhang A

## Ergänzende Erläuterungen

### A.1 Literatur über ABS an Grenzflächen von Hochtemperatur-Supraleitern

In Abschnitt 3.5.6 wurde gezeigt, dass Nullspannungsanomalien, wie sie in Tunnelspektren von lochdotierten Hochtemperatur-Supraleitern beobachtet werden, als Auswirkungen Andreev-gebundener Zustände in Supraleitern interpretiert werden können, deren Ordnungsparameter einen Vorzeichenwechsel im reziproken Raum aufweist. Insofern lässt sich das Auftreten von Nullspannungsanomalien in Tunnelspektren als Unterscheidungskriterium zwischen  $d$ - und anisotroper  $s$ -Wellen Symmetrie verwenden.

Bei elektronendotierten Kupraten ergibt sich nun das Problem, dass einerseits einige phasensensitive Experimente auf eine  $d$ -Wellen-Symmetrie hinweisen [Tsuei00b, Chesca03], andererseits die erwarteten Nullspannungsanomalien in Tunnelspektren fast nie beobachtet werden. Insbesondere zeigen vergleichende Messungen, dass die Form der Spektren in elektronendotierten Verbindungen praktisch nicht von der Orientierung der untersuchten Grenzfläche abhängt, während die bei lochdotierten Verbindungen beobachteten Nullspannungsanomalien die erwartete Abhängigkeit von dieser Orientierung zeigen, also eine maximale Ausprägung der Nullspannungsanomalie beim Tunneln durch [110]-Oberfläche und starke bis vollständige Unterdrückung dieses Effektes bei [100]-Oberflächen [Kashiwaya98, Wang99, Shan05].

Zu den Veröffentlichungen über Nullspannungsanomalien in Spektren an elektronendotierten Verbindungen ist zu sagen, dass mir bisher nur eine einzige Publikation bekannt ist, die über reproduzierbare Ergebnisse an wirklichen Tunnel-Kontakten berichtet, also Kontakten niedriger Transparenz [Chesca05]. Weiterhin gibt es einige Veröffentlichungen über Spektren an SIN-Kontakten hoher Transparenz, welche sich im Rahmen der BTK-Theorie (vgl. Kapitel 3.5.3) besser durch eine  $d$ - als eine  $s$ -Wellen Symmetrie beschreiben lassen [Biswas02, Qazilbash03]. Allerdings zeigen die in den gleichen Publikationen dargestellten Spektren für Kontakte niedriger Trans-

parenz auf Basis der gleichen Proben unabhängig von der Dotierung keine Anzeichen einer Nullspannungsanomalie, sehr ähnlich wie die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Experimente. Auch in [Chesca05] wird auf die Bedeutung der Barrierentransparenz bzw. Barrierendicke hingewiesen, da die Autoren im Hinblick auf die Nullspannungsanomalie auf die ungewöhnlich hohe kritische Stromdichte des untersuchten Korngrenzenkontaktes hinweisen, die als Anzeichen für eine Reduktion von Streuprozessen an der Tunnelbarriere im Vergleich zu ähnlichen Kontakten interpretiert wird. Tatsächlich können Streuprozesse die Interferenz von einem auf die Grenzfläche auftreffendem Elektron und dem Andreev-reflektierten Loch zerstören und so die Bildung Andreev-gebundener Zustände verhindern, wie Experimente an Kontakten aus lochdotierten Materialien zeigen, bei denen die Supraleiter durch Ionen-Beschuss gezielt geschädigt wurden [Aprili98]. Allerdings geht in diesen Untersuchungen die Unterdrückung der Nullspannungsanomalie durch zunehmende Streuung auch mit einer deutlichen Unterdrückung der übrigen Strukturen in den Spektren einher, insbesondere von Kohärenzmaxima und Energielücke, wohingegen die Spektren in elektronendotierten Verbindungen zwar keine Nullspannungsanomalien, aber deutliche Signaturen der Energielücke aufweisen.

Als alternative Erklärung für die Abwesenheit von Anzeichen Andreev-gebundener Zustände wird schließlich die Beimischung eines (subdominanten) Ordnungsparameter anderer Symmetrie vorgeschlagen, etwa der Form  $d+is$  [Qazilbash03]. Grundlage dieser Vorschläge sind Berechnungen der quasiklassischen Theorie, nach denen bei  $d$ -Wellen Symmetrie der Ordnungsparameter an glatten [110]-Oberflächen unterdrückt wird, so dass direkt an der Oberfläche der Beitrag des subdominanten Ordnungsparameters die Form der lokalen Zustandsdichte bestimmen kann [Buchholtz95]. Eine anschauliche Vorstellung dieser Unterdrückung lässt sich vermitteln, wenn man die Entwicklung des Ordnungsparameters längs der Trajektorie einer an einer [110]-Oberfläche reflektierten Anregung betrachtet. Wie in Abschnitt 3.5.5 erläutert, findet bei der Reflexion ein Vorzeichenwechsel im Ordnungsparameter statt, der dann aus Gründen der Stetigkeit genau an der Oberfläche verschwinden muss. Eine Zusammenstellung der verschiedenartigen Experimente und theoretischen Modelle zu diesem Thema würde allerdings den Rahmen dieses kurzen Literaturüberblicks sprengen, nähere Erläuterungen finden sich beispielsweise in [Tsuei00a, und Referenzen darin], für verschiedene Mischsymmetrien berechnete Tunnelspektren werden in [Rainer98] vorgestellt.

Unter den gerade zusammengestellten Gesichtspunkten ist es für weiterführende Messungen sicherlich interessant, den Zusammenhang zwischen der Barrierentransparenz und dem Einfluss Andreev-gebundener Zustände zu untersuchen, vorzugsweise im Rahmen eines Vergleiches zwischen loch- und elektronendotierten Materialien. Dabei ergibt sich allerdings das Problem, dass zumindest bei Korngrenzenkontakten Orientierung und Transparenz der untersuchten Grenzfläche nicht unabhängig voneinander gewählt werden können, da die Transparenz von Korngrenzenkontakten mit Vergrößerung des Korngrenzenwinkels abnimmt. Andererseits wird durch die Orien-

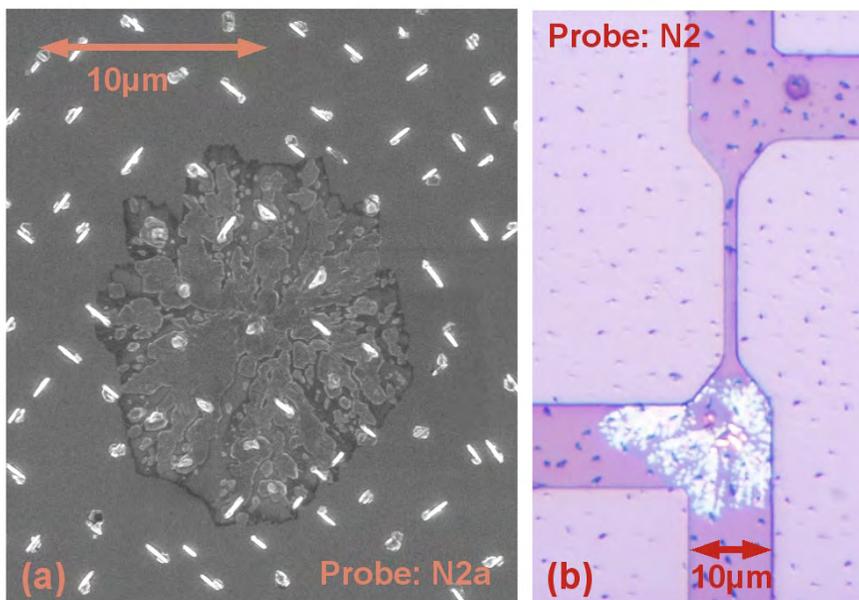


Abbildung A.1: SEM-Aufnahme einer unstrukturierten Probe (a) und Foto unter dem Lichtmikroskop (b) von einer strukturierten Probe der NCCO-Serie (b)

tierung der Grenzflächen entscheidend die Bildung Andreev-gebundener Zustände beeinflusst. Daher sind tunnelspektroskopische Messungen an Punkt-Kontakte oder STM-Messungen unter Umständen besser geeignet für eine derartige Untersuchung.

## A.2 Die Proben der NCCO-Serie

Bei der Untersuchung der Proben der NCCO-Serie traten aufgrund der Probenqualität eine Reihe von Schwierigkeiten auf, die schließlich dazu geführt haben, dass zwar die Resultate der  $\rho(T, H)$ -Messungen an Filmbrücken, nicht aber der Tunnelspektroskopie-Messungen an Korngrenzenkontakten in die systematische Auswertung einbezogen werden konnten, die in den Kapiteln 7 und 8 dargestellt ist. Diese Schwierigkeiten sollen im folgenden kurz erläutert werden.

Schon für die unstrukturierten Proben fällt beim Betrachten unter dem optischen Mikroskop auf, dass die Probenoberflächen mit ungewöhnlichen Flecken oder Ausscheidungen mit einem Durchmesser von 10 bis 15  $\mu\text{m}$  übersät erscheinen. Abbildung A.1 zeigt beispielhaft Ausschnitte der Probenoberfläche, Teilabbildung (a) anhand einer SEM-Aufnahme einer unstrukturierten Probe, Teilabbildung (b) anhand einer Fotografie einer strukturierten NCCO-Probe unter dem optischen Mikroskop.

In Teilabbildung (a) sind zwei Arten von Strukturen zu erkennen: Zum einen eine

Vielzahl von etwa etwa  $1\ \mu\text{m}$  langen, stabförmigen Strukturen, die relativ regelmäßig über die Probenoberfläche verteilt sind und dabei längs zweier, senkrecht zueinander stehender Achsen ausgerichtet erscheinen. Zum anderen eine annähernd runde Struktur mit einem Durchmesser von etwa  $10\ \mu\text{m}$ , die unregelmäßig geformte Ränder und ebenfalls unregelmäßig geformte innere Strukturen aufweist.

Bei den stabförmigen Strukturen handelt es sich mit hoher Wahrscheinlichkeit um  $\text{CuO}_x$ -Ausscheidungen, die herstellungsbedingt häufig auf der Oberfläche von dünnen Filmen elektronendotierter Hochtemperatur-Supraleiter auftreten, die Probenqualität jedoch nicht signifikant beeinflussen [Hepp00]. Diese Ausscheidungen ordnen sich vorzugsweise längs der Kristallachsen an, wie in Abbildung A.1 (a) gut zu erkennen ist. Daher lässt sich anhand der  $\text{CuO}_x$ -Ausscheidungen auch die ungefähre Position der Korngrenze bestimmen, die Genauigkeit reicht jedoch leider nicht aus, um beim Strukturieren die Brücken mit der Länge von wenigen  $\mu\text{m}$  genau über der Korngrenze zu positionieren (vgl. Kapitel 6.1). Für die Messungen spielen diese Ausscheidungen jedoch keine große Rolle.

Als großes Problem erweisen sich jedoch die großen, unregelmäßig geformten Strukturen. Erste EDX-Messungen ergeben keinen wesentlichen Unterschied in der Zusammensetzung des Materials innerhalb und außerhalb dieser Strukturen [Erb04]. Teilabbildung (a) legt jedoch nahe, dass zumindest die Morphologie der Probe innerhalb dieser Bereiche empfindlich gestört ist. Die Anzahl und Verteilung der Strukturen auf der Probe führt beim Strukturieren unweigerlich dazu, dass bei vielen Kontakten eine oder mehrere Zuleitungen genau auf einer solchen Struktur positioniert werden, wie es in Teilabbildung A.1 (b) dargestellt ist. Erschwert wird dieses Problem noch dadurch, dass es aufgrund der mangelnden Sichtbarkeit der Korngrenze unter dem optischen Mikroskop notwendig war, die Position aller Brücken gleichzeitig durch Belichtung mit einem Mask-Aligner festzulegen, wie in Kapitel 6.1 näher ausgeführt wird.

Bei den Messungen an diesen Brücken stellt sich leider heraus, dass die gerade beschriebenen großen Strukturen isolierend sind. Brücken wie in Abbildung A.1 (b) sind damit unbrauchbar, an anderen Brücken konnten nur Zwei- oder Dreipunkt-Messungen durchgeführt werden. Bei vielen Brücken wird auch der stromführende Bereich aufgrund dieser Strukturen so verkleinert, dass diese Brücken wegen des resultierenden hohen Widerstandes besonders empfindlich gegenüber elektrischen Entladungen werden und deswegen zum Beispiel beim Einbau in den Probenstab trotz großer Vorsicht zerstört werden können. Die wenigen Brücken, die gemessen werden konnten verändern sich zudem teilweise mit der Zeit, wie Abbildung A.2 zeigt, in der zwei an zwei aufeinander folgenden Tagen aufgenommen Spektren dargestellt sind. In dem am ersten Tag aufgenommenen Spektrum sind mehrere deutliche Leitwertsprünge zu erkennen, die sogar während der Messung auftreten. Unter diesen Voraussetzungen erscheint es nicht als sinnvoll, die Tunnelspektren an den NCCO-Proben in die systematische quantitative Auswertung in Kapitel 8 mit einzubeziehen, etwa bei der Bestimmung von Kenngrößen. Drei qualitative Ergebnisse lassen sich jedoch

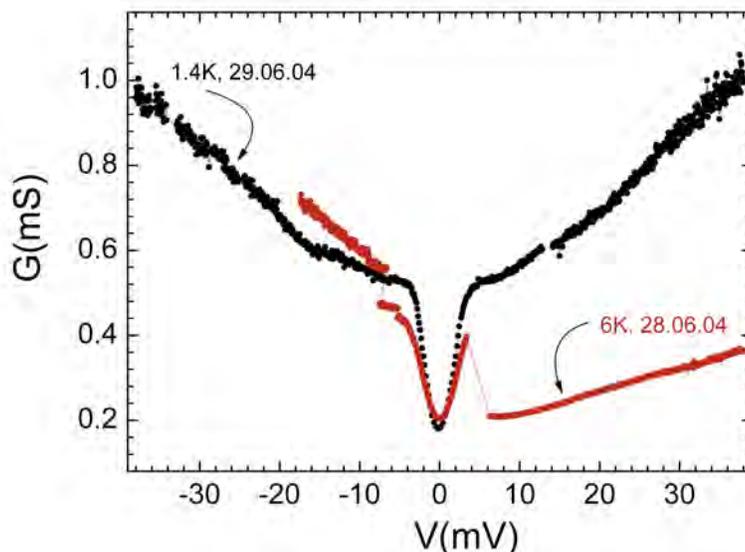


Abbildung A.2: Spektren an einem Kontakt einer Probe der NCCO-Serie

festhalten. Zum einen wurde in keinem der vermessenen Kontakte im supraleitenden Zustand eine Nullspannungs-Anomalie beobachtet, wie sie in lochdotierten Systemen auftritt und als Hinweis auf eine  $d$ -Wellen Symmetrie des Ordnungsparameters gewertet wird. Zum anderen zeigen alle vermessenen Proben in hohen Magnetfeldern und bei tiefen Temperaturen ein ähnliches Pseudolücken-Verhalten, wie alle Proben der PCCO und LCCO-Serien, mit Ausnahme der überdotierten LCCO-Probe. Schließlich zeigt insbesondere die überdotierte NCCO-Probe N4 kein zentrales Maximum im Magnetfeld, wie es bei der überdotierten LCCO-Probe L3 beobachtet wird.

Weiterhin konnten an drei NCCO-Proben Messungen an Filmbrücken mit reproduzierbaren Ergebnissen durchgeführt werden, die in die Auswertung in Kapitel 7 mit einbezogen werden.

### A.3 Berechnungen zum Tunnelstrom für ein trapezförmiges Barrierenpotential

In den folgenden Abschnitten werden die Formeln näher betrachtet, die für die Berechnung von Tunnelspektren nach dem Modell der Trapezbarriere aus Kapitel 4.2.3 für planare und punktförmige Kontakte benötigt werden. Dementsprechend enthalten diese Abschnitte hauptsächlich mathematische Umformungen sowie aufgrund

einiger Fallunterscheidungen relativ lange Formeln und wenden sich vornehmlich an Leser, die sich für die konkreten, zur Berechnung von Tunnelspektren nach diesem Modell verwendeten Ausdrücke interessieren.

### A.3.1 Berechnung der Tunnelwahrscheinlichkeit

Bei der Berechnung der Tunnelwahrscheinlichkeit nach (4.31) und (4.32) muss für die einzelnen Werte für  $V$  und  $E$  noch der Bereich bestimmt werden, über den in (4.31) integriert wird. Eine genauere Betrachtung von Abbildung 4.9 liefert:

1.  $\underline{eV > \phi_2 - \phi_1}$

(a)  $E - E_F < \phi_2 - eV \Rightarrow x_1 = 0, x_2 = t$

(b)  $\phi_2 - eV < E - E_F < \phi_1 \Rightarrow x_1 = 0, x_2 = x$

(c)  $\phi_1 < E - E_F \Rightarrow P(E, V) \equiv 1$

2.  $\underline{eV < \phi_2 - \phi_1}$

(a)  $E - E_F < \phi_1 \Rightarrow x_1 = 0, x_2 = t$

(b)  $\phi_1 < E - E_F < \phi_2 - eV \Rightarrow x_1 = x, x_2 = t$

(c)  $\phi_2 - eV < E - E_F \Rightarrow P(E, V) \equiv 1$

3.  $\underline{eV = \phi_2 - \phi_1}$

(a)  $E - E_F < \phi_2 - eV = \phi_1 \Rightarrow x_1 = 0, x_2 = t$

(b)  $\phi_1 < E - E_F \Rightarrow P(E, V) \equiv 1$

mit

$$x = \frac{E - E_F - \phi_1}{\phi_2 - \phi_1 - eV} \cdot t \quad . \quad (\text{A.1})$$

Für eine symmetrische Barriere, also  $\phi_1 = \phi_2 = \phi$ , gilt  $(x_1, x_2) = (0, t)$  für alle Werte von  $E$ , über die bei der Berechnung der Tunnelleitfähigkeit integriert wird, wenn  $|eV| < \phi$  [Ando95].

Für das Integral in Gleichung 4.31 mit (4.32) lässt sich gemäß

$$\int_{x_1}^{x_2} \sqrt{B + Cx} dx = \frac{2}{3} \frac{(B + Cx)^{3/2}}{C} \Big|_{x_1}^{x_2} \quad (\text{A.2})$$

ein geschlossener Ausdruck angeben; im Grenzfall  $eV = \phi_2 - \phi_1$  ergibt sich

$$P(E, V = (\phi_2 - \phi_1)/e) = \begin{cases} 1 & \text{für } E - E_F \geq \phi_1 \\ \exp(-At\sqrt{\phi_1 - (E - E_F)}) & \text{für } E - E_F < \phi_1 \end{cases} \quad (\text{A.3})$$

### A.3.2 Tunnelleitfähigkeit für einen planaren Kontakt

Im Folgenden wird der in Abschnitt 4.2.3 hergeleitete Ausdruck (4.36) für den Tunnelstrom in einem planaren Tunnelkontakt mit einer trapezförmigen Barriere näher betrachtet und in eine Form gebracht, die sich für die Implementierung in eine Programmiersprache eignet.

Ausgehend von 4.36 führen die Substitutionen

$$E_{\parallel} \rightarrow \tilde{E} = E_{\parallel} + E_x - E_F + eV = E - E_F + eV \quad (\text{A.4})$$

$$E_x \rightarrow \tilde{E}_x = E_x - E_F + eV \quad (\text{A.5})$$

zu folgender, besser für numerische Berechnungen geeigneten Form der Stromdichte

$$j(V) = \frac{4\pi me}{h^3} \int_{-E_F+eV}^{\infty} d\tilde{E}_x \left\{ \tilde{P}(\tilde{E}_x, V) \int_{\tilde{E}_x}^{\infty} d\tilde{E} \tilde{N}_1(\tilde{E} - eV) \tilde{N}_2(\tilde{E}) \left[ f(\tilde{E} - eV) - f(\tilde{E}) \right] \right\}. \quad (\text{A.6})$$

wobei

$$f_T(E, E_F) = f(E - E_F) \quad (\text{A.7})$$

$$P(E_x, V) = \tilde{P}(\tilde{E}_x, V) \quad (\text{A.8})$$

und

$$N(E) = \tilde{N}(E - E_F) = \tilde{N}(\tilde{E} - eV) \quad (\text{A.9})$$

$\tilde{N}$  ist also die Zustandsdichte als Funktion der Energie relativ zur Fermienergie der linken Elektrode. Die modifizierte Tunnelwahrscheinlichkeit ist somit gegeben durch

$$\tilde{P}(\tilde{E}_x, V) = \exp \left( -A \int_{x_1}^{x_2} dx \sqrt{\phi_1 - \tilde{E}_x + eV + (\phi_2 - \phi_1 - eV)/t \cdot x} \right) \quad . \quad (\text{A.10})$$

Da die Fermienergie  $E_F$  in Gleichung (A.6) nur in die untere Grenze für die Integration über  $\tilde{E}_x$  eingeht und außerdem  $\lim_{\tilde{E}_x \rightarrow -\infty} \tilde{P}(\tilde{E}_x, V) = 0$  gilt, hängt der Ausdruck für den Tunnelstrom nur schwach vom Wert der Fermienergie ab, solange  $E_F$  hinreichend groß ist.

Für eine symmetrische Barriere, also  $\phi_1 = \phi_2 \equiv \phi$  gilt

$$\tilde{P}(\tilde{E}_x, V) = \tilde{P}(\tilde{E}_x - eV, -V) \quad . \quad (\text{A.11})$$

Damit lässt sich zeigen, dass der Tunnelstrom im Spannungsbereich  $|eV| \ll E_F$  eine ungerade Funktion der Spannung  $V$  ist, wenn die Zustandsdichten beider Elektroden identisch sind, also  $N_1(E) = N_2(E)$ .

Im Grenzfall  $T \rightarrow 0$  K gilt

$$[f(E - eV) - f(E)] = \begin{cases} +1 & \text{für } V > 0 \text{ und } 0 < E < eV \\ -1 & \text{für } V < 0 \text{ und } eV < E < 0 \\ 0 & \text{sonst} \end{cases}, \quad (\text{A.12})$$

womit sich die Gleichung (A.6) weiter vereinfachen lässt und sich schließlich die Ausdrücke

$$\begin{aligned} j_0(V) &= \frac{4\pi me}{h^3} \int_{-E_F+eV}^0 d\tilde{E}_x \left\{ \tilde{P}(\tilde{E}_x, V) \int_0^{eV} d\tilde{E} \tilde{N}(\tilde{E}) \tilde{N}(\tilde{E} - eV) \right\} \\ &+ \frac{4\pi me}{h^3} \int_0^{eV} d\tilde{E}_x \left\{ \tilde{P}(\tilde{E}_x, V) \int_{\tilde{E}_x}^{eV} d\tilde{E} \tilde{N}(\tilde{E}) \tilde{N}(\tilde{E} - eV) \right\} \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

für  $V > 0$  und

$$\begin{aligned} j_0(V) &= \frac{4\pi me}{h^3} \int_{-E_F+eV}^{eV} d\tilde{E}_x \left\{ \tilde{P}(\tilde{E}_x, V) \int_0^{eV} d\tilde{E} \tilde{N}(\tilde{E}) \tilde{N}(\tilde{E} - eV) \right\} \\ &+ \frac{4\pi me}{h^3} \int_{eV}^0 d\tilde{E}_x \left\{ \tilde{P}(\tilde{E}_x, V) \int_0^{\tilde{E}_x} d\tilde{E} \tilde{N}(\tilde{E}) \tilde{N}(\tilde{E} - eV) \right\} \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

für  $V < 0$  für die Tunnelstromdichte  $j_0(V)$  bei  $T = 0$  ergeben.

Schließlich ist es wünschenswert, einen Ausdruck für die spezifische Tunnelleitfähigkeit zu erhalten, der direkt an die gemessenen Leitwertsspektren angepasst werden kann. Differentiation der Ausdrücke (A.13) und (A.14) für den Tunnelstrom mit Hilfe der Leibnitz-Regel

$$\begin{aligned} \partial_z \int_{a(z)}^{b(z)} f(x, z) dx &= \int_{a(z)}^{b(z)} \partial_z f(x, z) dx \\ &+ f(x = b(z), z) \cdot \partial_z b(z) - f(x = a(z), z) \cdot \partial_z a(z) \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

führt zu folgendem Ausdruck für die Tunnelleitfähigkeit:

$$\sigma_0(V) = \frac{4\pi me}{h^3} (\sigma_{01}(V) + \sigma_{02}(V) + \sigma_{03}(V) + \sigma_{04}(V)) \quad (\text{A.16})$$

Um die einzelnen Beiträge zur Tunnelleitfähigkeit in kompakter und übersichtlicher Weise darstellen zu können, werden im Folgenden die Akzente über den Symbolen weggelassen, obwohl die gemäß (A.4) - (A.10) modifizierten Werte für die Energien  $E_x$  und  $E$ , die Zustandsdichten und die Tunnelwahrscheinlichkeit gemeint sind. Weiterhin wird für die inneren Integrale in (A.13) und (A.14) die Abkürzung

$$\psi_0(V, E_a, E_b) = \int_{E_a}^{E_b} dE N_1(E - eV) N_2(E) \quad (\text{A.17})$$

verwendet. Die Ableitung nach der Spannung ergibt sich zu

$$\partial_V \psi_0(V, E_a, E_b) = -e \int_{E_a}^{E_b} dE \{ \partial_E N_1(E - eV) N_2(E) \} \quad (\text{A.18})$$

$$+ \partial_V E_b(V) N_1(E_1 - eV) N_2(E_1) \quad (\text{A.19})$$

$$- \partial_V E_a(V) N_1(E_2 - eV) N_2(E_2) \quad (\text{A.20})$$

Damit können die Beiträge zur Tunnelleitfähigkeit wie folgt dargestellt werden

$$\sigma_{01}(V) = \begin{cases} \int_{-E_F+eV}^0 dE_x \{ \partial_V P(E_x, V) \psi_0(V, 0, eV) \\ \quad + P(E_x, V) \partial_V \psi_0(V, 0, eV) \} \text{ für } V > 0 \\ e N_1(0) N_2(0) \int_{-E_F+eV}^0 dE_x P(E_x, V) \text{ für } V = 0 \\ \int_{-E_F}^{eV} dE_x \{ \partial_V P(E_x, V) \psi_0(V, 0, eV) \\ \quad + P(E_x, V) \partial_V \psi_0(V, 0, eV) \} \text{ für } V < 0 \end{cases}, \quad (\text{A.21})$$

$$\sigma_{02}(V) = \begin{cases} -e P(E_x = -E_F + eV, V) \psi_0(V, 0, eV) \text{ für } V > 0 \\ 0 \text{ für } V = 0 \\ +e P(E_x = eV, V) \psi_0(V, 0, eV) \text{ für } V < 0 \end{cases}, \quad (\text{A.22})$$

$$\sigma_{03}(V) = \begin{cases} \int_0^{eV} dE_x \{ \partial_V P(E_x, V) \psi_0(V, E_x, eV) \\ \quad + P(E_x, V) \partial_V \psi_0(V, E_x, eV) \} \text{ für } V > 0 \\ 0 \text{ für } V = 0 \\ \int_{eV}^0 dE_x \{ \partial_V P(E_x, V) \psi_0(V, 0, E_x) \\ \quad + P(E_x, V) \partial_V \psi_0(V, 0, E_x) \} \text{ für } V < 0 \end{cases}, \quad (\text{A.23})$$

$$\sigma_{04}(V) = \begin{cases} 0 \text{ für } V > 0 \\ 0 \text{ für } V = 0 \\ -e P(E_x = eV, V) \psi_0(V, 0, eV) \text{ für } V < 0 \end{cases}. \quad (\text{A.24})$$

Für endliche Temperaturen  $T > 0$  lässt sich (A.6) auch direkt differenzieren. Werden wieder alle Akzente weggelassen und die Abkürzung

$$\psi(V, E_x) = \int_{E_x}^{\infty} dE N_1(E - eV) N_2(E) [f(E - eV) - f(E)] \quad (\text{A.25})$$

verwendet, so ergibt sich die spezifische Tunnelleitfähigkeit zu

$$\sigma(V) = \frac{4\pi m e}{h^3} (\sigma_1(V) + \sigma_2(V) + \sigma_3(V)) \quad (\text{A.26})$$

mit

$$\sigma_1(V) = \int_{-E_F+eV}^{\infty} dE_x \partial_V P(E_x, V) \psi(V, E_x), \quad (\text{A.27})$$

$$\sigma_2(V) = \int_{-E_F+eV}^{\infty} dE_x P(E_x, V) \partial_V \psi(V, E_x) \quad (\text{A.28})$$

und

$$\sigma_3(V) = -eP(E_x = -E_F + eV, V) \psi(V, E_x = -E_F + eV) \quad . \quad (\text{A.29})$$

Die Ableitung von (A.25) nach  $V$  ist durch

$$\partial_V \psi(V, E_x) = -e \int_{E_x}^{\infty} dE \{ \partial_E N_1(E - eV) N_2(E) [f(E - eV) - f(E)] \quad (\text{A.30})$$

$$+ N_1(E - eV) N_2(E) \partial_E f(E - eV) \} \quad (\text{A.31})$$

### A.3.3 Tunnelleitfähigkeit für einen Punktkontakt

Bei einem Punktkontakt sind die Formeln für den Tunnelstrom bei einer trapezförmigen Barriere etwas einfacher als bei einem planaren Kontakt, da nur eine Integration berücksichtigt werden muss. Nach einer Substitution analog zu (A.4)

$$E \rightarrow \tilde{E} = E - E_F + eV \quad (\text{A.32})$$

und unter Auslassung sämtlicher Akzente ergibt sich die Tunnelleitfähigkeit aus (4.33) zu

$$\begin{aligned} G(V) &= G_0/e \int_{-\infty}^{+\infty} dE \partial_V P(E, V) N_1(E - eV) N_2(E) [f(E - eV) - f(E)] \\ &\quad - G_0 \int_{-\infty}^{+\infty} dE P(E, V) \partial_E N_1(E - eV) N_2(E) [f(E - eV) - f(E)] \\ &\quad - G_0 \int_{-\infty}^{+\infty} dE P(E, V) N_1(E - eV) N_2(E) \partial_E f(E - eV) \quad (\text{A.33}) \end{aligned}$$

### A.3.4 Bemerkungen zur Implementierung

Um aus vorgegebenen Zustandsdichten und Barrierenparametern Tunnelspektren gemäß den in den letzten beiden Abschnitten entwickelten Formeln numerisch zu berechnen, müssen die dort auftretenden Integrale diskretisiert, also in Summen umgewandelt werden. Dabei wurde als Schrittweite eine Energie gewählt, die dem mittleren Spannungs-Abstand benachbarter Punkte in den gemessenen  $G(V)$ -Spektren entspricht

Insbesondere für planare Kontakte hat es sich aufgrund der ineinandergeschachtelten Integrale (vgl. z. B. (A.27)-(A.29)) als notwendig herausgestellt, eine vorkompilierte Programmiersprache wie C++ für die Implementierung zu verwenden, um akzeptable Rechenzeiten zu erzielen. Dies ist besonders wichtig, wenn mit Hilfe des entsprechenden Programmes Kurvenanpassungen an experimentelle Leitwertsspektren vorgenommen werden sollen.

Außerdem ist es ratsam, weitere Eigenschaften der Integranden auszunutzen, um so Rechenschritte einzusparen, die das Endergebnis im Rahmen der erreichbaren Genauigkeit nicht verändern.

So wird für  $T = 0$  die äußere Summe (über  $E_x$ ) bei der oberen Integrationsgrenze begonnen und ein geeignetes Abbruchkriterium benutzt, da  $\lim_{E_x \rightarrow -\infty} P(E_x, V) =$

$$\lim_{E_x \rightarrow -\infty} \partial_v P(E_x, V) = 0 \text{ gilt.}$$

Weiterhin bietet es sich an, das innere Integral (über  $E$ ) rekursiv zu berechnen, also auszunutzen, dass

$$\begin{aligned} \int_{E_x - E_{step}}^{\infty} dE \varphi(E) &= \int_{E_x}^{\infty} dE \varphi(E) + \int_{E_x - E_{step}}^{E_x} dE \varphi(E) \\ &\approx \int_{E_x}^{\infty} dE \varphi(E) + 0.5 E_{step} (\varphi(E_x - E_{step}) + \varphi(E_x)) \end{aligned} \quad (\text{A.34})$$

Für  $T > 0$  wird schließlich, die Summe, die dem inneren Integral entspricht, bei  $E = eV$  bzw.  $E = 0.5eV$  gestartet und ebenfalls ein geeignetes Abbruchkriterium verwendet, je nachdem ob der Integrand die Ableitung der Fermifunktion oder die Fermifunktion selbst enthält.

### A.3.5 Bestimmung der Barrierenparameter

In Abschnitt A.3.1 wird gezeigt, dass bei einer symmetrischen Barriere für alle zur Berechnung des Tunnelstromes benötigten Energien  $E_x$  (bzw. über  $E$  für einen eindimensionalen Kontakt) bei der Bestimmung der Tunnelwahrscheinlichkeit über das gesamte Intervall  $(0, t)$  integriert werden muss, sofern die maximale Spannung kleiner ist, als die Barrierenhöhe  $\phi$ . Die folgende Behandlung beschränkt sich auf diesen Fall, in dem für ein trapezförmiges Potential das mittlere Barrierenpotential durch

$$\langle \phi(x, V) \rangle_x = E_F + \frac{1}{2}(\phi_1 + \phi_2) - \frac{eV}{2} = E_F + \bar{\phi} - \frac{eV}{2} \quad (\text{A.35})$$

gegeben ist. Mit einem solchen Potential und konstanten Zustandsdichten lassen sich die Integrale in den Formeln für den Tunnelstrom bei  $T = 0$  sowohl für einen planaren als auch einen punktförmigen Kontakt elementar berechnen, also jeweils ein geschlossener Ausdruck für die Stromdichte bzw. den Strom finden.

Berücksichtigt man im Fall des **planaren Kontaktes** darüberhinaus, dass  $E_F \gg \bar{\phi}$  und  $At\sqrt{\bar{\phi}} \gg 1$ , vernachlässigt also Beiträge, die proportional zu  $e^{-At\sqrt{E_F + \bar{\phi}}}$  und

zu  $(At\sqrt{\phi})^{-1}$  sind, so ergibt eine Entwicklung dieses Ausdrucks bis zur dritten Ordnung in  $V$  und anschließende Differenzierung für den Leitwert:

$$\frac{\sigma(V)}{\sigma_0} \approx 1 + \sigma_1 V + \sigma_2 V^2 \quad (\text{A.36})$$

mit

$$\sigma_0 = \sqrt{2m} \left(\frac{e}{h}\right)^2 \frac{\sqrt{\phi}}{t} e^{-At\sqrt{\phi}}, \quad (\text{A.37})$$

$$\sigma_1 = 0 \quad (\text{A.38})$$

und

$$\sigma_2 = \frac{(Ate)^2}{32\phi}. \quad (\text{A.39})$$

Es ergibt sich also eine um  $V = 0$  zentrierte Parabel. Die Gleichungen (A.37) und (A.39) lassen sich durch einfache Umformungen nach

$$t = \frac{1}{A\sqrt{e}} \left(32\frac{\sigma_2}{\sigma_0}\right)^{1/4} \sqrt{\ln\left(\sqrt{2m}(e/h)^2 \frac{Ae}{\sqrt{32\sigma_0\sigma_2}}\right)} \quad (\text{A.40})$$

und

$$\phi = t^2 \frac{(Ae)^2 \sigma_0}{32 \sigma_2} \quad (\text{A.41})$$

auflösen.

Für einen **Punktkontakt** ergibt sich durch elementare Integration und Entwickeln des entstehenden Ausdrucks in Potenzen von  $V$  ebenfalls ein Zusammenhang der Form

$$\frac{G(V)}{G_0} \approx 1 + G_1 V + G_2 V^2 \quad (\text{A.42})$$

, wobei die Entwicklungskoeffizienten in diesem Fall durch

$$G_0 = \frac{4\pi e^2}{h} \exp(-At\sqrt{\phi}), \quad (\text{A.43})$$

$$G_1 = 0 \quad (\text{A.44})$$

und

$$G_2 = \frac{e^2}{32\phi^2} At\sqrt{\phi} \left(1 + At\sqrt{\phi}\right) \quad (\text{A.45})$$

gegeben sind. Entsprechend lassen sich die Barrierenparameter

$$\phi = \left( \frac{e^2}{32G_2} \ln \left( \frac{4\pi e^2}{\hbar G_0} \right) \left[ 1 + \ln \left( \frac{4\pi e^2}{\hbar G_0} \right) \right] \right)^{0.5} \quad (\text{A.46})$$

und

$$t = \frac{1}{A\sqrt{\phi}} \ln \left( \frac{4\pi e^2}{\hbar G_0} \right) \quad (\text{A.47})$$

berechnen.

## A.4 Ergänzende Abbildungen

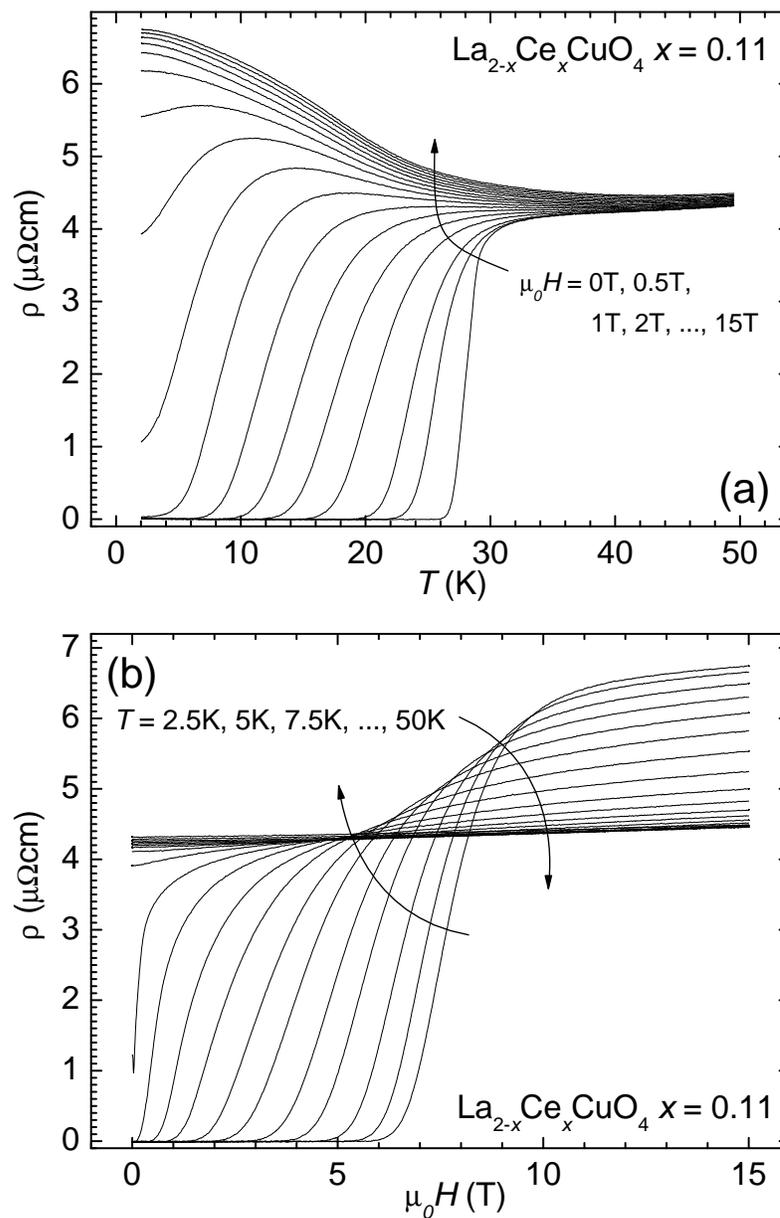


Abbildung A.3: Spezifischer Widerstand der unterdotierten LCCO-Probe als Funktion der Temperatur(a) sowie des Magnetfeldes(b)

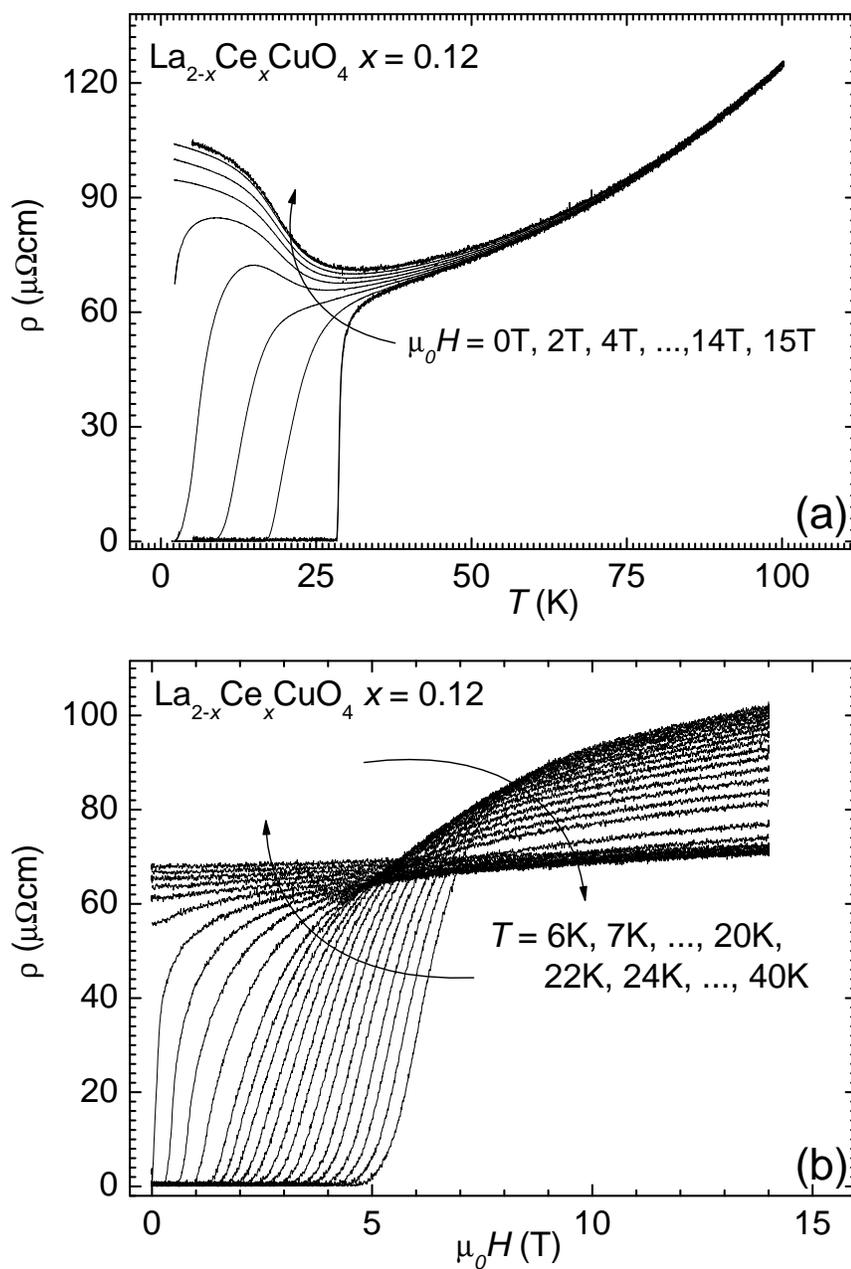


Abbildung A.4: Spezifischer Widerstand der optimal dotierten LCCO-Probe als Funktion der Temperatur(a) sowie des Magnetfeldes(b)

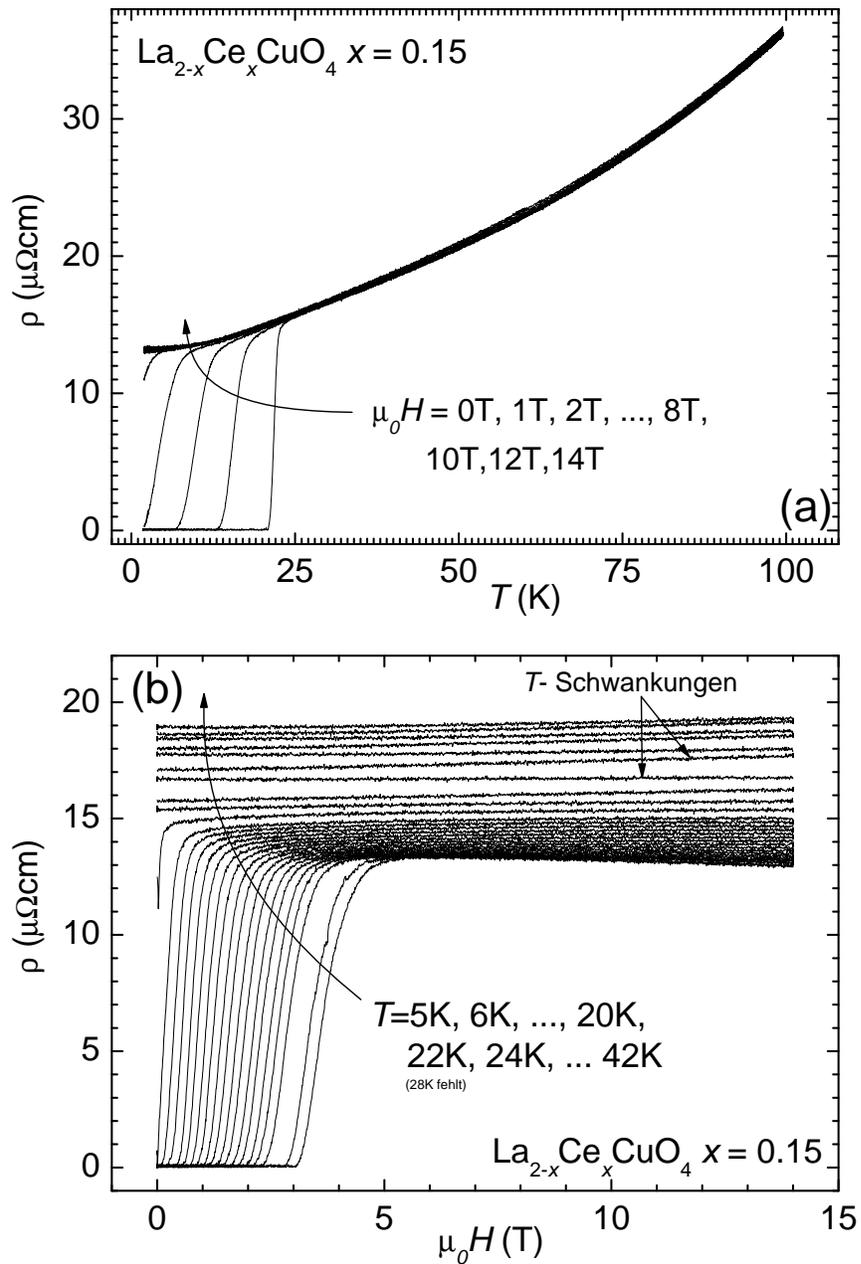


Abbildung A.5: Spezifischer Widerstand der überdotierten LCCO-Probe als Funktion der Temperatur(a) sowie des Magnetfeldes(b)

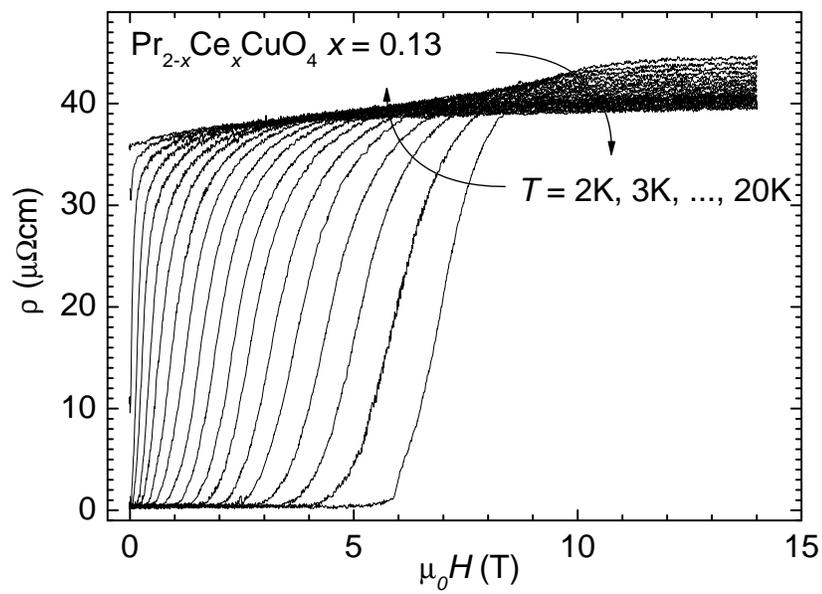


Abbildung A.6: Spezifischer Widerstand der unterdotierten PCCO-Probe als Funktion des Magnetfeldes

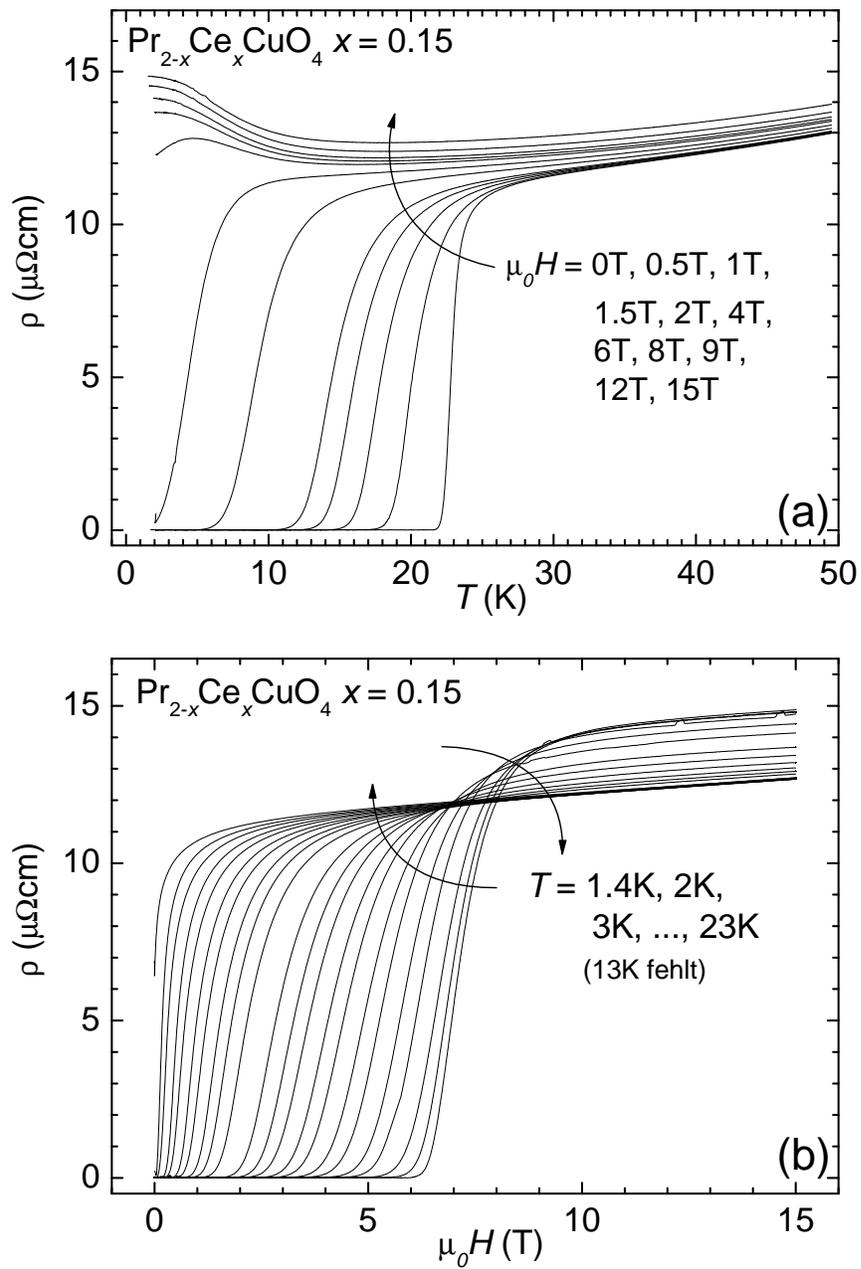


Abbildung A.7: Spezifischer Widerstand der optimal dotierten PCCO-Probe als Funktion der Temperatur(a) sowie des Magnetfeldes(b)

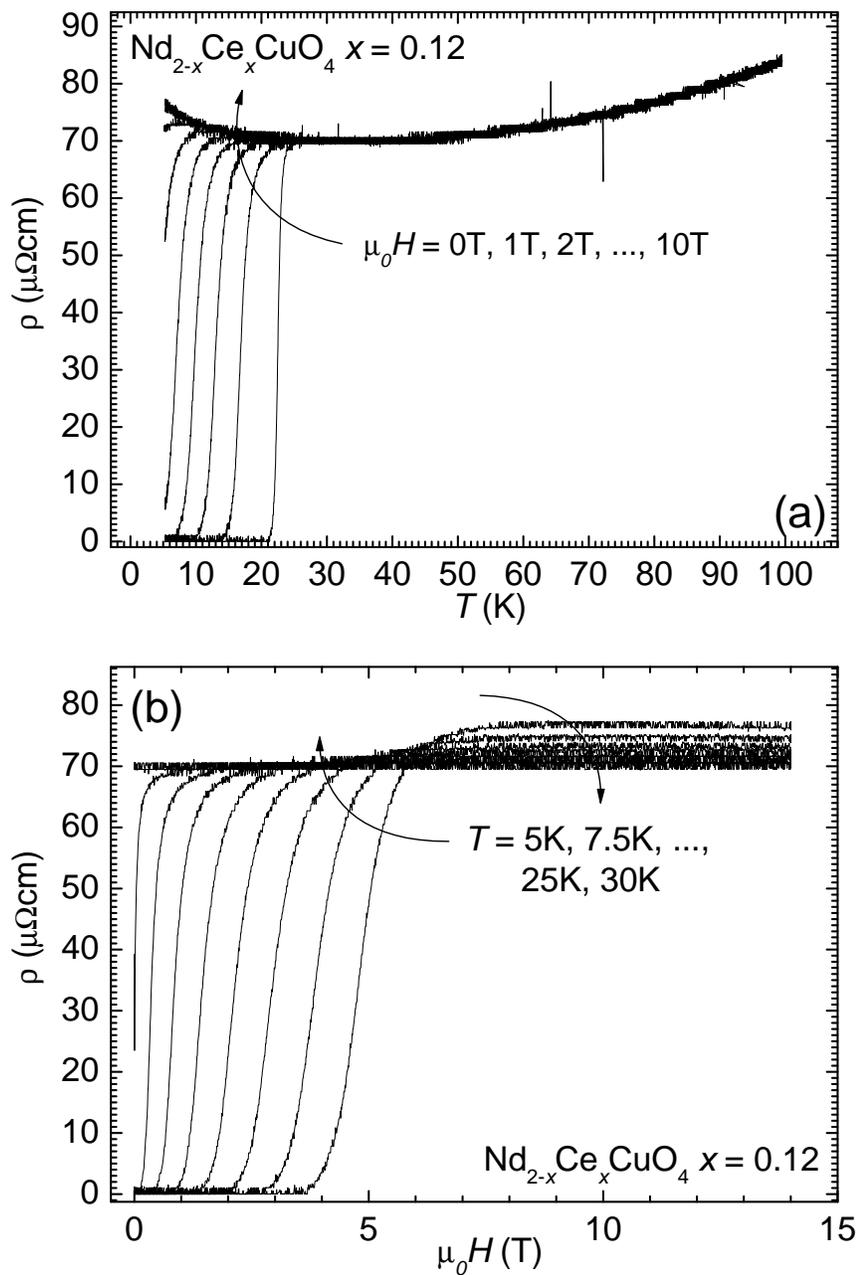


Abbildung A.8: Spezifischer Widerstand der unterdotierten NCCO-Probe als Funktion der Temperatur(a) sowie des Magnetfeldes(b)

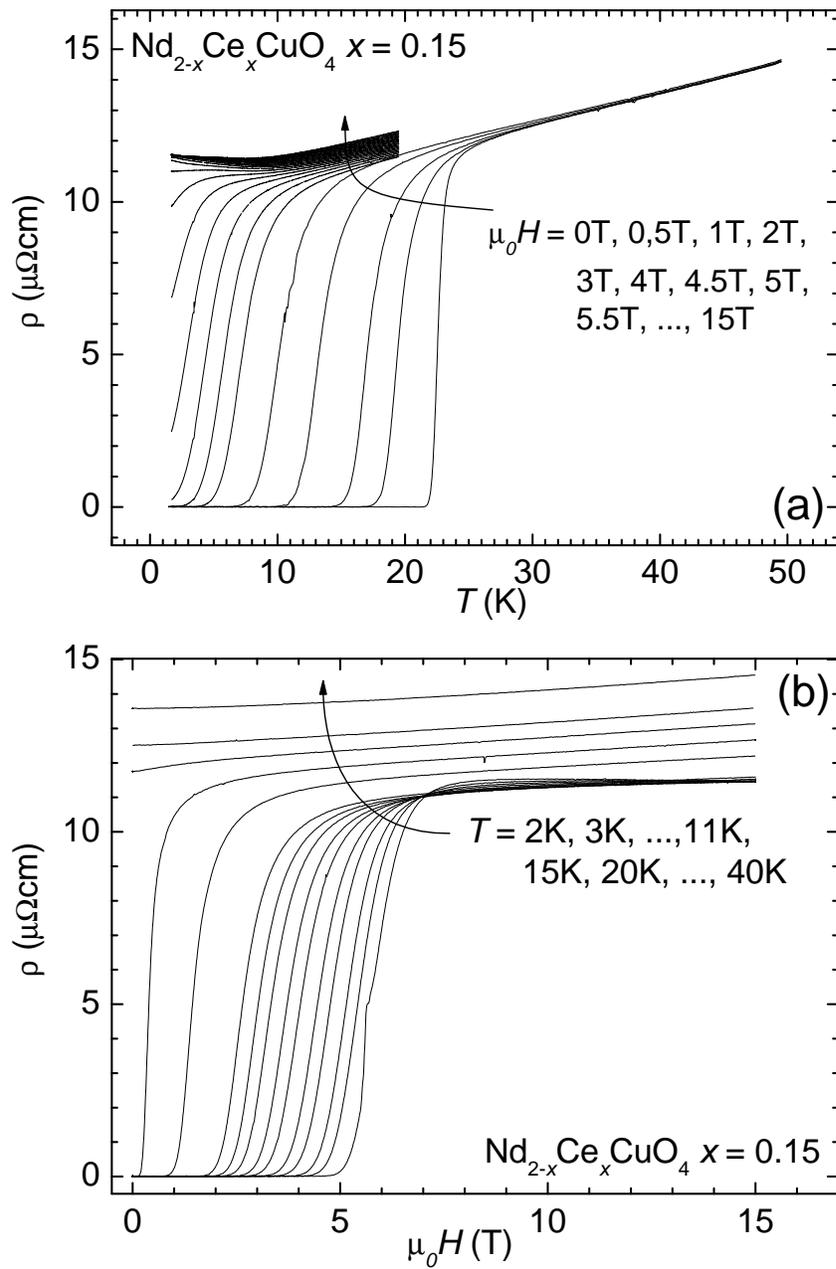


Abbildung A.9: Spezifischer Widerstand der optimal dotierten NCCO-Probe als Funktion der Temperatur(a) sowie des Magnetfeldes(b)

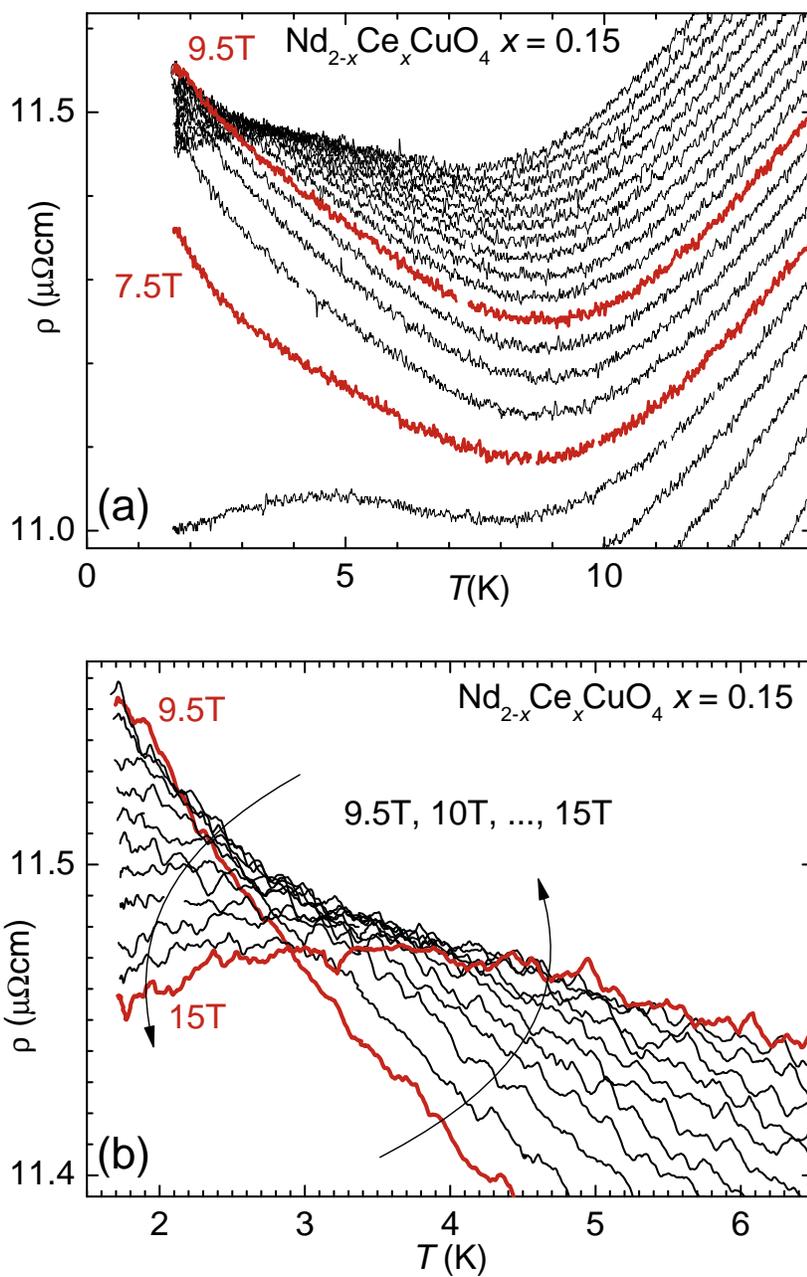


Abbildung A.10: Ausschnittvergrößerungen von Abbildung A.9 (a)

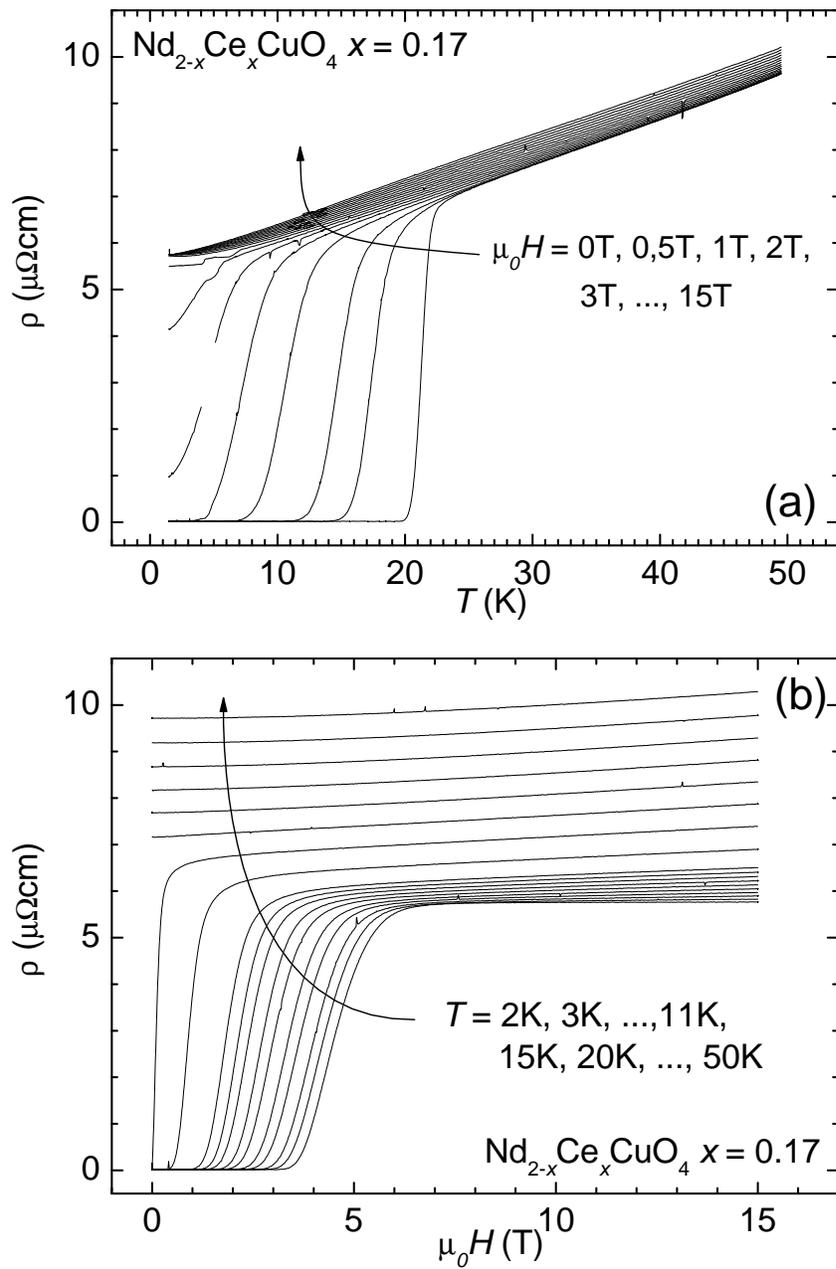


Abbildung A.11: Spezifischer Widerstand der überdotierten NCCO-Probe als Funktion der Temperatur(a) sowie des Magnetfeldes(b)

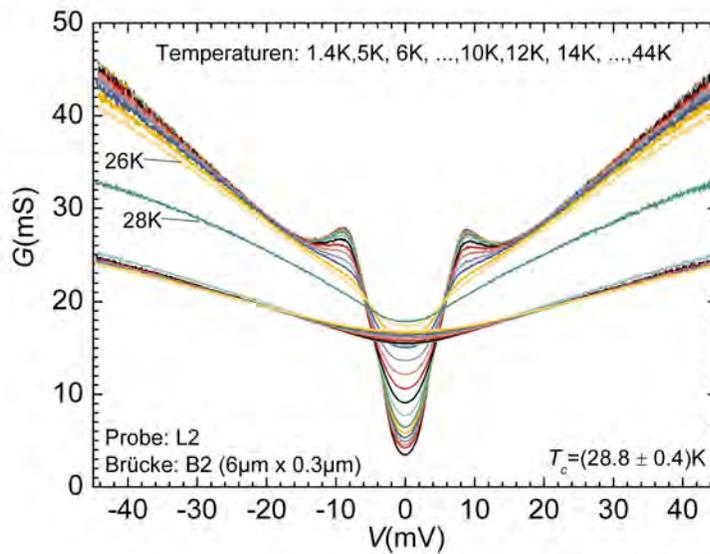


Abbildung A.12: Temperaturserie im Nullfeld, aufgenommen an einem Kontakt der optimal dotierten LCCO-Probe. Zwischen 24 K und 30 K nimmt die Steigung der  $G(V)$ -Kurven im Außenbereich mit zunehmendem Betrag der am Kontakt abfallenden Spannung deutlich ab, was auf Heizeffekte zurückzuführen ist.

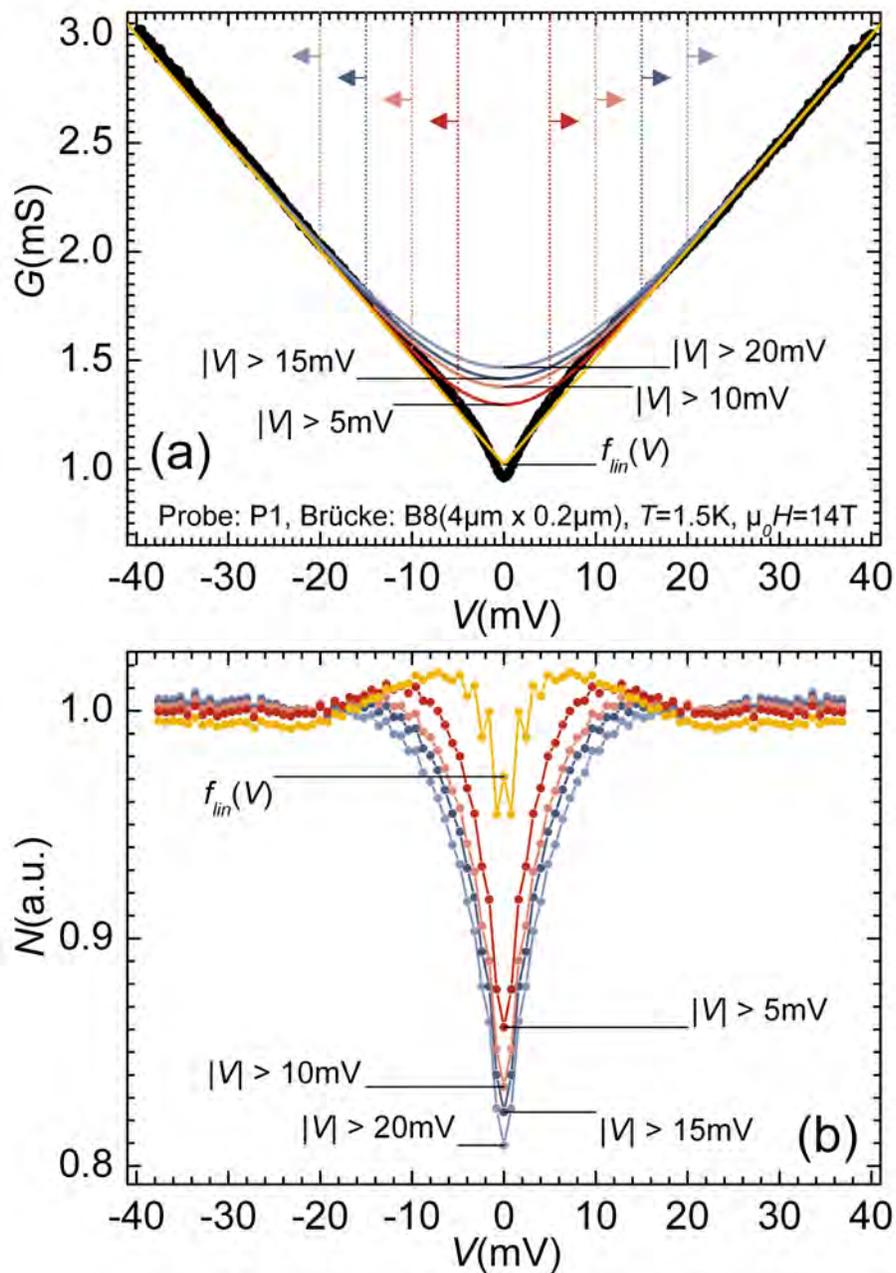


Abbildung A.13: 15 T-Spektrum mit einer an den Außenbereich angepassten Funktion der Form (4.23) und für verschiedene Spannungsbereiche angepassten Funktionen der Form (4.24) (a), sowie aus dem Spektrum und für die verschiedenen Funktionen aus Teilabbildung (a) als Tunnelwahrscheinlichkeit gemäß (4.17) entfaltete Zustandsdichten.

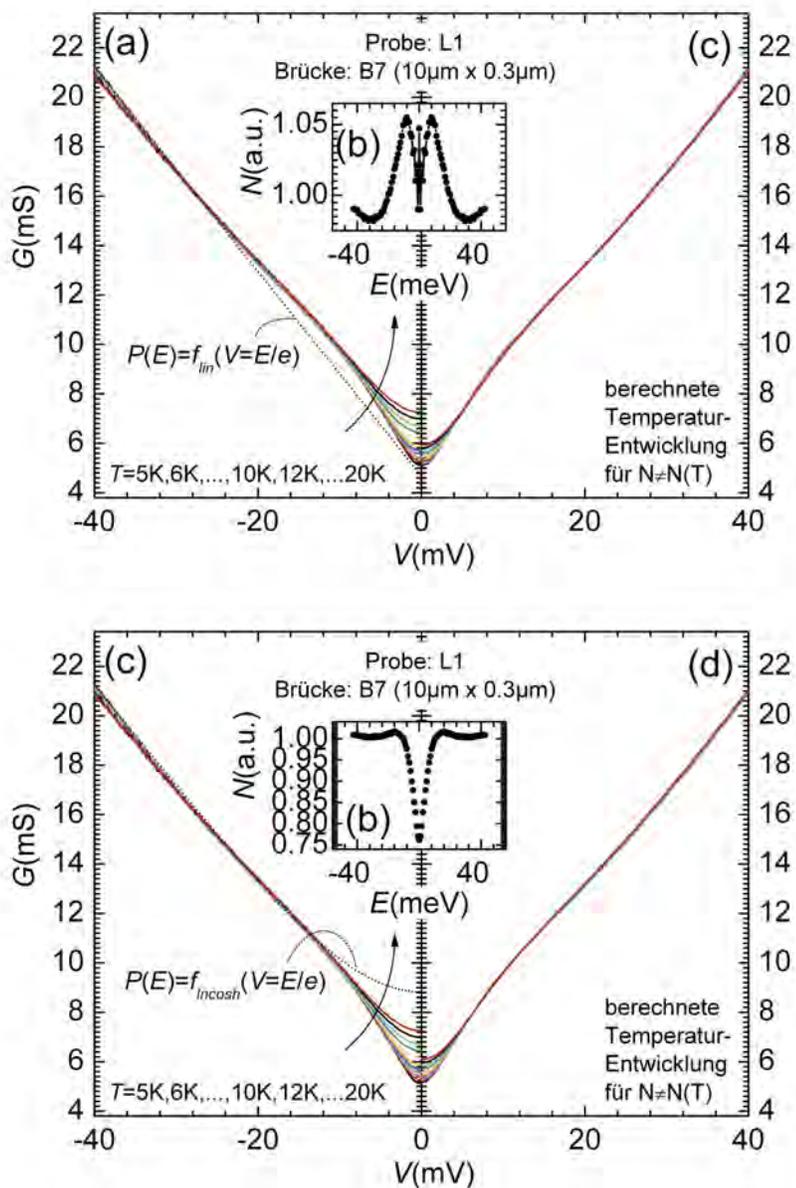


Abbildung A.14: gemessene Temperatur-Serie bei 15 T (a,c), sowie für verschiedene Formen für  $P(E)$  anhand der Entfaltung der 5 K-Kurve berechnete Temperatur-Serien.

# Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all den Menschen meinen Dank aussprechen, die mich im Laufe dieser Arbeit bei zahlreichen Gelegenheiten mit Rat oder Tat (oder beidem) unterstützt haben. Da es sich um eine ausgesprochen lange Liste handelt, entschuldige ich mich bei allen Kollegen und Freunden, die nicht namentlich erwähnt werden. Zunächst möchte ich mich bei Prof. Dr. Rudolf Gross sehr herzlich für die Gelegenheit bedanken, diese Arbeit am Walther-Meißner Institut durchzuführen. Er hat sich einerseits immer Zeit für hilfreiche Diskussionen über physikalische Probleme aller Art genommen, mir auf der anderen Seite jedoch stets große Freiheit in der Gestaltung und Ausrichtung meiner Arbeit gewährt.

Den Umzug und Aufbau eines Forschungsinstitutes mitzuerleben und mitzugestalten war eine herausfordernde und spannende Erfahrung. Meinen Kölner Kollegen danke ich für eine aufregende und (wenn auch in einigen Punkten eher im Rückblick) lustige gemeinsame Zeit. Insbesondere haben Dr. Mitja Schonecke und Dr. Boris Philipp dazu beigetragen, den Schock des Wechsels zwischen Rheinland und Bayern deutlich abzumildern, nicht zuletzt durch den gemeinsamen ersten Besuch des Oktoberfestes, für alle Zugereiste ein unvergessliches Erlebnis.

Aber auch den neuen Kollegen gilt mein besonderer Dank. Allen voran Matthias Opel, der nicht nur als Korrekturleser meiner Arbeit, Bürokollege und Ratgeber in allen möglichen Situationen in Erscheinung getreten ist, sondern der mir auch die Freuden des regelmäßigen Weißwurst-Frühstücks näher gebracht hat.

Die Experimente am Walther-Meißner Institut wurden nicht zuletzt durch die technische und organisatorische Unterstützung der zahlreichen Mitarbeiter in den Bereichen Werkstatt, Helium- Halle, Labor und Verwaltung ermöglicht. Stellvertretend sei Robert Müller, Jan Naundorf, Gabrielle Görblich und Jutta Laaser sehr herzlich gedankt.

In besonders schöner Erinnerung sind mir die beiden Aufenthalte am Hochfeldlabor in Grenoble (GHMFL) geblieben. Dies ist zu einem großen Teil auf die unkomplizierte Hilfsbereitschaft von Dr. Werner Biberacher, Dr. Mark Kartsovnik und Dr. Dieter Andres zurückzuführen, die mir tatkräftig geholfen haben, mich in dieser beeindruckenden Institution zurechtzufinden und damit wesentlich zur Gelingen meiner Experimente beigetragen haben. Finanziell wurden die Experimente am

Hochfeldlabor großzügig von der Europäischen Kommission unterstützt <sup>1</sup>. Ich denke unter anderem mit Freude an improvisierte Abendessen mit französischem Käse und wunderschönen Erdbeerkuchen in der riesigen Mess-Halle zurück.

In theoretischer Hinsicht hat Dr. Dietrich Einzel mich immer besonders unterstützt und sogar angeboten, einige besonders hässliche Formeln nachzurechnen, wofür ich ihm sehr dankbar bin. Dr. Jürgen Halbritter danke ich besonders für seine geduldigen Erklärungen zur Rolle des resonanten Tunnelns und die ausführlichen Diskussionen über meine Mess-Ergebnisse. Dr. Jochen Geerk sei für aufschlussreiche Unterhaltungen über die Probleme beim Entfalten von Tunneldaten gedankt.

Dr. Achim Marx hat sich nicht nur mit bemerkenswerter Gelassenheit durch diese annähernd 300 Seiten gelesen, sondern hat mir auch bei zahlreichen Gelegenheiten etwa beim Aufspüren merkwürdiger Mess-Signale oder dem Kampf mit Formatierungsbefehlen tatkräftig geholfen. Danke.

Einen besonderen Platz nimmt Prof. B. S. Chandra Chandrasekhar ein, bei dem ich mich für seine Freundschaft, seine Hilfe und sein Engagement bei Diskussionen, beim Korrekturlesen und unzähligen anderen Gelegenheiten bedanken möchte. Vielen Dank, Chandra.

Frau Schuler hat mich sehr herzlich und ohne jedes Zögern in die Familie aufgenommen, wofür ich mich ganz besonders bedanken möchte.

Meinen Eltern werde ich immer und aus ganzem Herzen für den Rückhalt und die liebevolle Unterstützung dankbar sein, die nicht nur mein Studium und diese Arbeit ermöglicht haben.

Schließlich kann ich mir nicht vorstellen, wie ich diese Arbeit ohne Jürgens Unterstützung, Verständnis, Geduld und unerschütterliche Zuneigung zu einem Ende gebracht hätte. Danke für Alles!

---

<sup>1</sup>Vertrags-Nr. RITA-CT-2003-505474

# Teilpublikationen

- **Pseudogap and conservation of states in electron doped high-temperature superconductors**  
B. Welter, Y. Krockenberger, M. Naito, L. Alff und R. Gross  
*Physica C* **388**, 299 (2003)
- **A hidden pseudogap under the dome of superconductivity in electron-doped high-temperature superconductors**  
L. Alff, Y. Krockenberger, B. Welter, M. Schonecke, R. Gross, D. Manske und M. Naito  
*Nature* **422**, 698 (2003)
- **Hidden pseudogap and superconductivity in electron-doped high temperature superconductors**  
L. Alff, Y. Krockenberger, B. Welter, R. Gross, D. Manske und M. Naito  
*Adv. Solid State Phys.* **43**, 695 (2003)
- **Pseudogap like tunneling spectra in electron doped high-temperature superconductors**  
L. Alff, S. Kleefisch, B. Welter, A. Marx, R. Gross und M. Naito  
*Physica C* **357**, 134 (2001)
- **Phase sensitive measurements of the superconducting order parameter in hole and electron doped HTS**  
L. Alff, B. Welter, S. Kleefisch, A. Marx und R. Gross  
*Physica C* **357**, 309 (2001)
- **Possible pseudogap behavior of electron-doped high-temperature superconductors**  
S. Kleefisch, B. Welter, A. Marx, L. Alff, R. Gross und M. Naito  
*Phys. Rev. B* **63**, 100507 (2001)

- **Symmetry of the order parameter in hole and electron doped cuprate superconductors**

L. Alff, S. Kleefisch, B. Welter, K. Sengebusch, S. Meyer, U. Schoop, F. Herbstritt, A. Marx, R. Gross, M. Naito und H. Sato

*Physica C* **341**, 1659 (2000)

# Literaturverzeichnis

- [AIST07] AIST, *Superconductivity Papers Database*, Webseite (2007), [http://riodb.ibase.aist.go.jp/sprcnd\\_etl/DB013\\_eng\\_top\\_n.html](http://riodb.ibase.aist.go.jp/sprcnd_etl/DB013_eng_top_n.html).
- [Alexandrov96] A. S. Alexandrov, V. N. Zavaritsky, W. Y. Liang und P. L. Nevsky, *Resistive Upper Critical Field of High- $T_c$  Single Crystals of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$* , Phys. Rev. Lett. **76** (1996), 983.
- [Alff98] L. Alff, A. Beck, R. Gross, A. Marx, S. Kleefisch, T. Bauch, H. Sato, M. Naito und G. Koren, *Observation of Bound Surface States in Grain-Boundary Junctions of High-Temperature Superconductors*, Phys. Rev. B **58** (1998), 11197.
- [Altshuler79] B. L. Altshuler und A. G. Aronov, *Zero Bias Anomaly in Tunnel Resistance and Electron-Electron Interaction*, Solid State Commun. **30** (1979), 115.
- [Altshuler80a] B. L. Altshuler, A. G. Aronov und P. A. Lee, *Interaction Effects in Disordered Fermi Systems in Two Dimensions*, Phys. Rev. Lett. **44** (1980), 1288.
- [Altshuler80b] B. L. Altshuler, D. Khmel'nitzkii, A. I. Larkin und P. A. Lee, *Magnetoresistance and Hall Effect in a Disordered Two-Dimensional Electron Gas*, Phys. Rev. B **22** (1980), 5142.
- [Altshuler85] B. L. Altshuler und A. G. Aronov, *Electron Electron Interactions in Disordered Conductors*, in *Electron Electron Interactions in Disordered Systems* (herausgegeben von A. L. Efros und M. Pollack), 1 (North-Holland, Amsterdam, 1985).
- [Ambegaokar69] V. Ambegaokar und B. I. Halperin, *Voltage Due to Thermal Noise in the dc Josephson Effect*, Phys. Rev. Lett. **22** (1969), 1364.
- [Anderson66] P. W. Anderson, *Localized Magnetic States and Fermi-Surface Anomalies in Tunneling*, Phys. Rev. Lett. **17** (1966), 95.

- [Anderson88] P. W. Anderson und Z. Zou, “Normal“ Tunneling and “Normal“ Transport: Diagnostics for the Resonating-Valence-Bond State, *Phys. Rev. Lett.* **60** (1988), 132.
- [Ando95] Y. Ando, G. S. Boebinger und A. Passner, *Logarithmic Divergence of Both In-Plane and Out-of-Plane Normal-State Resistivities of Superconducting  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  in the Zero-Temperature Limit*, *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995), 4662.
- [Ando99] Y. Ando, G. S. Boebinger, A. Passner, L. F. Schneemeyer, T. Kimura, M. Okuya, S. Watauchi, J. Shimoyama, K. Kishio, K. Tamasaku, N. Ichikawa und S. Uchida, *Resistive Upper Critical Fields and Irreversibility Lines of Optimally Doped High- $T_c$  Cuprates*, *Phys. Rev. B* **60** (1999), 12475.
- [Andreev64] A. F. Andreev, *The Thermal Conductivity of the Intermediate State in Superconductors*, *Sov. Phys. JETP* **19** (1964), 1228.
- [Annett95] J. F. Annett, *Unconventional superconductivity*, *Contemporary Physics* **36** (1995), 423.
- [Annett96] J. Annett, N. Goldenfeld und A. J. Leggett, *Experimental Constraints on the Pairing State of the Cuprate Superconductors: An Emerging Consensus*, in *Physical Properties of High Temperature Superconductors* (herausgegeben von D. M. Ginsberg), Bd. 5 (World Scientific, Singapore, 1996).
- [Appelbaum66] J. Appelbaum, *s – d Exchange Model of Zero-Bias Tunneling Anomalies*, *Phys. Rev. Lett.* **17** (1966), 91.
- [Appelbaum67] J. A. Appelbaum, *Exchange Model of Zero-Bias Tunneling Anomalies*, *Phys. Rev.* **154** (1967), 633.
- [Aprili98] M. Aprili, M. Covington, E. Paraoanu, B. Niedermeier und L. H. Greene, *Tunneling Spectroscopy of the Quasiparticle Andreev Bound State in Ion-Irradiated  $YBa_2C_3UO_{7-\delta}/Pb$  Junctions*, *Phys. Rev. B* **57** (1998), 8139.
- [Ashcroft76] N. W. Ashcroft und N. D. Mermin, *Solid State Physics* (Saunders College Publishing, 1976).
- [Bardeen57a] J. Bardeen, L. N. Cooper und J. R. Schrieffer, *Microscopic Theory of Superconductivity*, *Phys. Rev.* **108** (1957), 1175.
- [Bardeen57b] J. Bardeen, L. N. Cooper und J. R. Schrieffer, *Microscopic Theory of Superconductivity*, *Phys. Rev.* **106** (1957), 162.

- [Bardeen61] J. Bardeen, *Tunneling from a Many-Particle Point of View*, Phys. Rev. Lett. **6** (1961), 57.
- [Bednorz86] J. Bednorz und K. A. Müller, *Possible High  $T_c$  Superconductivity in the Ba-La-Cu-O System*, Z. Phys. B **64** (1986), 189.
- [Beom-Hoan93] O. Beom-Hoan und J. T. Markert, *Normal-State Anisotropic Resistivity of  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$ : Evidence for Scattering by Anisotropic Spin Fluctuations*, Phys. Rev. B **47** (1993), 8373.
- [Bermon64] S. Bermon und D. M. Ginsberg, *Electron Tunneling Into Superconducting Mercury Films*, Phys. Rev. **135** (1964), A307.
- [Biswas01] A. Biswas, P. Fournier, V. N. Smolyaninova, R. C. Budhani, J. S. Higgins und R. L. Greene, *Gapped Tunneling Spectra in the Normal State of  $Pr_{2-x}Ce_xCuO_4$* , Phys. Rev. B **64** (2001), 104519.
- [Biswas02] A. Biswas, P. Fournier, M. M. Qazilbash, V. N. Smolyaninova, H. Balci und 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. Lett. **88** (2002), 207004.
- [Blamire93] M. G. Blamire, *Deconvolution of Tunneling Density of States from Superconductor-Insulator-Superconductor Current versus Voltage Data*, Physica C **211** (1993), 467.
- [Blonder82] G. Blonder, M. Tinkham und T. Klapwijk, *Transition from Metallic to Tunneling Regimes in Superconducting Microconstrictions: Excess Current, Charge Imbalance, and Supercurrent Conversion*, Phys. Rev. B **25** (1982), 4515.
- [Boebinger96] G. S. Boebinger, Y. Ando, A. Passner, T. Kimura, M. Okuya, J. Shimoyama, K. Kishio, K. Tamasaku, N. Ichikawa und S. Uchida, *Insulator-to-Metal Crossover in the Normal State of  $La_{2-x}Sr_xCuO_4$  Near Optimum Doping*, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), 5417.
- [Bogoliubov58] N. N. Bogoliubov, *On a New Method in the Theory of Superconductivity*, Nuovo Cimento **7** (1958), 794.
- [Brinkman70] W. F. Brinkman, R. C. Dynes und J. M. Rowell, *Tunneling Conductance of Asymmetrical Barriers* **41** (1970), 1915.
- [Buchholtz95] L. J. Buchholtz, M. Palumbo, D. Rainer und J. A. Sauls, *Thermodynamics of a d-Wave Superconductor Near a Surface*, J. Low Temp. Phys. **101** (1995), 1079.

- [Burkhardt97] H. Burkhardt, *Grenzflächen, Josephson-Effekte und Stromtransport in Anisotropen Supraleitern*, Dissertation, Universität Bayreuth (1997).
- [Byrd71] P. F. Byrd und M. D. Friedman, *Handbook of Elliptic Integrals for Engineers and Scientists* (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 1971).
- [Caixeiro04] E. S. Caixeiro, J. L. Gonzalez und E. V. L. de Mello, *Upper Critical Field  $H_{c2}$  Calculations for the High Critical Temperature Superconductors Considering Inhomogeneities*, Phys. Rev. B **69** (2004), 024521.
- [Carbotte06] J. P. Carbotte und E. Schachinger, *Optical Sum Rules in Finite Bands*, J. Low Temp. Phys. **144** (2006), 61.
- [Chesca03] B. Chesca, K. Ehrhardt, M. Mößle, R. Straub, D. Koelle, R. Kleiner und A. Tsukada, *Magnetic-Field Dependence of the Maximum Supercurrent of  $La_{2-x}Ce_xCuO_4$  Interferometers: Evidence for a Predominant  $d_{x^2-y^2}$  Superconducting Order Parameter*, Phys. Rev. Lett. **90** (2003), 057004.
- [Chesca05] B. Chesca, M. Seifried, T. Dahm, N. Schopohl, D. Koelle, R. Kleiner und A. Tsukada, *Observation of Andreev Bound States in Bicrystal Grain-Boundary Josephson Junctions of the Electron Doped Superconductor  $La_{2-x}Ce_xCuO_4$* , Phys. Rev. B **71** (2005), 104504.
- [Cho06] A. Cho, *High  $T_c$ : The Mystery That Defies Solution*, Science **314** (2006), 1072.
- [Clogston62] A. M. Clogston, *Upper Limit for the Critical Field in Hard Superconductors*, Phys. Rev. Lett. **9** (1962), 266.
- [Coffey90] L. Coffey, *Comment on Spin Dynamics at Oxygen Sites in  $YBa_2Cu_3O_7$* , Phys. Rev. Lett. **64** (1990), 1071.
- [Coffey93] L. Coffey und D. Coffey, *Quasiparticle Spectral Weight of Cuprate Oxide Superconductors*, Phys. Rev. B **48** (1993), 4184.
- [Cohen62] M. H. Cohen, L. M. Falicov und J. C. Phillips, *Superconductive Tunneling*, Phys. Rev. Lett. **8** (1962), 316.
- [Combescot98] R. Combescot, *The Gap Maximum of Anisotropic Superconductors*, Europ. Phys. Lett. **43** (1998), 701.

- [Cooper56] L. N. Cooper, *Bound Electron Pairs in a Degenerate Fermi Gas*, Phys. Rev. **104** (1956), 1189.
- [Crusellas91] M. A. Crusellas, J. Fontcuberta und S. Pinol, *Temperature Dependence of the Resistivity and its Anisotropy in N-Type  $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_4$ -Single Crystal*, Physica C **180** (1991), 313.
- [Cucolo92] A. M. Cucolo, C. Noce und A. Romano, *Model for Tunneling Experiments on the 90- and 60-K  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  Phases*, Phys. Rev. B **46** (1992), 5864.
- [Cucolo94] A. M. Cucolo, R. D. Leo, A. Nigro, P. Romano und M. Carotenuto, *Different Background Conductances in the Tunneling Characteristics of  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ -Based Junctions*, Phys. Rev. B **49** (1994), 1308.
- [Cucolo96] A. M. Cucolo, R. D. Leo, A. Nigro, P. Romano und F. Bobba, *Linear Normal Conductance in Copper Oxide Tunnel Junctions*, Phys. Rev. B **54** (1996), R9686.
- [Dagan05a] Y. Dagan, M. C. Barr, W. M. Fisher, R. Beck, T. Dhakal, A. Biswas, und R. L. Greene, *Origin of the Anomalous Low Temperature Upturn in the Resistivity of the Electron-Doped Cuprate Superconductors*, Phys. Rev. Lett. **94** (2005), 057005.
- [Dagan05b] Y. Dagan, M. M. Qazilbash und R. L. Greene, *Tunneling Into the Normal State of  $Pr_{2-x}Ce_xCuO_4$* , Phys. Rev. Lett. **94** (2005), 187003.
- [deGennes63] P. G. de Gennes und D. Saint-James, *Elementary Excitations in the Vicinity of a Normal Metal-Superconducting Metal Contact*, Phys. Lett. **4** (1963), 151.
- [deGennes66] P. G. de Gennes, *Superconductivity of Metals and Alloys* (W. A. Benjamin, Inc., New York, 1966).
- [Doyle92] A. C. Doyle, *A Scandal in Bohemia*, in *The Adventures of Sherlock Holmes*, 11 (Collector's Library, London, 2004 (Erstausgabe 1892)).
- [Dynes78] R. C. Dynes, V. Narayanamurti und J. P. Garno, *Direct Measurement of Quasiparticle-Lifetime Broadening in a Strong-Coupled Superconductor*, Phys. Rev. Lett. **41** (1978), 1509.
- [Einzel03] D. Einzel, *Interpolation of BCS Response Functions*, J. Low Temp. Phys. **130** (2003), 493.

- [Erb04] A. Erb, *Private Mitteilung* (2004).
- [Fischer07] O. Fischer, M. Kugler, I. Maggio-Aprile und C. Berthod, *Scanning Tunneling Spectroscopy of High Temperature Superconductors*, Rev. Mod. Phys. **79** (2007), 353.
- [Fournier98] P. Fournier, P. Mohanty, E. Maiser, S. D. A. Venkatesan, C. J. Lobb, G. Czjzek, R. A. Webb und R. L. Greene, *Insulator-Metal Crossover Near Optimal Doping in  $Pr_{2-x}Ce_xCuO_4$ : Anomalous Normal-State Low Temperature Resistivity*, Phys. Rev. Lett. **21** (1998), 4720.
- [Fournier00] P. Fournier, J. Higgins, H. Balci, E. Maiser, C. J. Lobb und R. L. Greene, *Anomalous Saturation of the Phase Coherence Length in Underdoped  $Pr_{2-x}Ce_xCuO_4$  Thin Films*, Phys. Rev. B **62** (2000), R11993.
- [Fournier03] P. Fournier und R. L. Greene, *Doping Dependence of the Upper Critical Field of Electron-Doped  $Pr_{2-x}Ce_xCuO_4$  Thin Films*, Phys. Rev. B **68** (2003), 094507.
- [Fröhlich96] O. M. Fröhlich, *Physik des Ladungstransports in Korngrenzenkontakten aus Hochtemperatur-Supraleitern*, Dissertation, Eberhard-Karls Universität zu Tübingen (1996).
- [Geshkenbein98] V. B. Geshkenbein, L. B. Ioffe und A. J. Millis, *Theory of the Resistive Transition in Overdoped  $Tl_2Ba_2CuO_{6+\delta}$ : Implications for the Vortex Viscosity and the Quasiparticle Scattering Rate in High- $T_c$  Superconductors*, Phys. Rev. Lett. **80** (1998), 5778.
- [Giaever60] I. Giaever, *Energy Gap in Superconductors Measured by Electron Tunneling*, Phys. Rev. Lett. **5** (1960), 147.
- [Giaever61] I. Giaever und K. Megerle, *Study of Superconductors by Electron Tunneling*, Phys. Rev. **122** (1961), 1101.
- [Glazman88] L. I. Glazman und K. A. Matveev, *Inelastic Tunneling Across Thin Amorphous Films*, Sov. Phys. JETP **67** (1988), 1276.
- [Gollnik97] F. Gollnik, *Dotierungsabhängigkeit der Transporteigenschaften Des Elektronendotierten Hochtemperatur-Supraleiters  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$* , Dissertation, Eberhard-Karls-Universität zu Tübingen (1997).
- [Gollnik98] F. Gollnik und M. Naito, *Doping Dependence of Normal- and Superconducting-State Transport Properties of*

- $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4\pm y}$  *Thin Films*, Phys. Rev. B **58** (1998), 11734.
- [Gorkov59] L. P. Gorkov, Sov. Phys. JETP **9** (1959), 1364.
- [Grajcar95] M. Grajcar, A. Plecenik, P. Seidel und A. Pfuch, *Influence of Inelastic Effects on Differential Conductance of a High- $T_c$  Superconductor/Metal Junction*, Phys. Rev. B **51** (1995), 16185.
- [Grajcar97] M. Grajcar, A. Plecenik, P. Seidel, V. Vojtanik und K.-U. Barholz, *Asymmetry an Quasilinear Background of Differential Conductance Characteristics on High- $T_C$ -Superconductor/Metal Tunnel Junctions*, Phys. Rev. B **55** (1997), 11738.
- [Gross91] R. Gross und B. Mayer, *Transport Processes and Noise in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  Grain Boundary Junctions*, Physica C **180** (1991), 235.
- [Gupta02] A. K. Gupta und K. W. Ng, *Non-Conservation of Density of States in  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_y$ : Coexistence of Pseudogap and Superconducting Gap*, cond-mat/0202450 (2002).
- [Gurvitch81] M. Gurvitch, *Ioffe-Regel criterion and resistivity of metals*, Phys. Rev. B **24** (1981), 7404.
- [Gurvitch89] M. Gurvitch, J. M. V. Jr., A. M. Cucolo, R. C. Dynes, J. P. Garno, L. F. Schneemeyer und J. V. Waszczak, *Reproducible Tunneling Data on Chemically Etched Single Crystals of  $YBa_2Cu_3O_7$* , Phys. Rev. Lett. **63** (1989), 1008.
- [Hagen92] S. J. Hagen, X. Q. Xu, W. Jiang, J. L. Peng, Z. Y. Li und R. L. Greene, *Transport and Localization in  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$  Crystals at Low Doping*, Phys. Rev. B **45** (1992), 515.
- [Halbritter85] J. Halbritter, *On Tunneling Through Inhomogeneous Potential Barriers Showing Resonances Exemplified for  $Nb_2O_5$  Barriers*, Surf. Sci. **159** (1985), 509.
- [Halbritter92] J. Halbritter, *Pair Weakening and Tunnel Channels at Cuprate Interfaces*, Phys. Rev. B **46** (1992), 14861.
- [Halbritter93] J. Halbritter, *Extrinsic or Intrinsic Conduction in Cuprates: Anisotropy, Weak, and Strong Links*, Phys. Rev. B **48** (1993), 9735.
- [Halbritter03] J. Halbritter, *A Review of Weak/Strong Links and Junctions in High- $T_c$  Superconductors as a Transition to a Mott Insulator*, Supercond. Sci. Technol. **16** (2003), R47.

- [Han92] S. H. Han, C. C. Almasan, M. C. de Andrade, Y. Dalichaouch und M. B. Maple, *Determination of the Upper Critical Field of the Electron-Doped Superconductor  $Sm_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$  from Resistive Fluctuations*, Phys. Rev. B **46** (1992), 14290.
- [Harlingen95] D. J. V. Harlingen, *Phase Sensitive Tests of the Symmetry of the Pairing State in the High-Temperature Superconductors - Evidence for  $D_{x^2-y^2}$  Symmetry*, Rev. Mod. Phys. **67** (1995), 515.
- [Harrison61] W. A. Harrison, *Tunneling from an Independent Particle Point of View*, Phys. Rev. **123** (1961), 85.
- [Helfand66] E. Helfand und N. R. Werthamer, *Temperature and Purity Dependence of the Superconducting Critical Field,  $H_2$ . II*, Phys. Rev. **147** (1966), 288.
- [Hepp00] M. Hepp, *Growth of Electron Doped Cuprate Thin Films by Molecular Beam Epitaxy*, Diplomarbeit, II. Physikalisches Institut der Universität zu Köln (2000).
- [Herbstritt01] F. N. Herbstritt, *Ladungstransport und Rauschen in Submikrometer-Strukturierten Korngrenzenkontakten aus  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$* , Dissertation, Universität zu Köln (2001).
- [Hidaka91] Y. Hidaka, Y. Tajima, K. Sugiyama, F. Tomiyama, A. Yamagishi, M. Date und M. Hikita, *Two-Dimensional Weak Localization in Electron High-Tc Superconductor  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_y$  under High Magnetic Field*, J. Phys. Soc. Jpn. **60** (1991), 1185.
- [Higgins06] J. S. Higgins, Y. Dagan, M. C. Barr, B. D. Weaver und R. L. Greene, *Role of Oxygen in the Electron-Doped Superconducting Cuprates*, Phys. Rev. B **73** (2006), 104510.
- [Hikita89] M. Hikita, Y. Tajima, H. Fuke, K. Sugiyama, M. Date und A. Yamagishi, *Magnetoresistance Measurements of Single-Crystal  $LnBa_2Cu_3O_y$  ( $Ln = Ho, Dy, Eu, \text{ and } Y$ ) under Pulsed High Magnetic Field*, J. Phys. Soc. Jpn. **58** (1989), 2248.
- [Hilgenkamp02] H. Hilgenkamp und J. Mannhart, *Grain Boundaries in High-Tc Superconductors*, Rev. Mod. Phys. **74** (2002), 485.
- [Hu94] C.-R. Hu, *Midgap Surface States As a Novel Signature for  $d_{x_a^2-x_b^2}$ -Wave Superconductivity*, Phys. Rev. Lett. **72** (1994), 1526.
- [Ioffe60] A. F. Ioffe und A. R. Regel, *Non-Crystalline, Amorphous, and Liquid Electronic Semiconductors*, in *Progress in Semiconductors* (herausgegeben von A. F. Gibson), Bd. 4, 237 (Heywood & Company Ltd., London, 1960).

- [Jansen80] A. G. M. Jansen, A. P. V. Gelder und P. Wyder, *Point-Contact Spectroscopy in Metals*, J. Phys. C **13** (1980), 6073.
- [Jiang93] W. Jiang, J. L. Peng, Z. Y. Li und R. L. Greene, *Transport Properties of  $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4+\delta}$  Crystals Before and After Reduction*, Phys. Rev. B **47** (1993), 8151.
- [Kashiwaya98] S. Kashiwaya, T. Ito, K. Oka, S. Ueno, H. Takashima, M. Koyanagi, Y. Tanaka und K. K., *Tunneling Spectroscopy of Superconducting  $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-\delta}$* , Phys. Rev. B **57** (1998), 8680.
- [Kashiwaya00] S. Kashiwaya und Y. Tanaka, *Tunneling Effects on Surface Bound States in Unconventional Superconductors*, Rep. Prog. Phys. **63** (2000), 1641.
- [Kawasaki94] M. Kawasaki, K. Takahashi, T. Maeda, R. Tsuchiya, M. Shinohara, O. Ishiyama, T. Yonezawa, M. Yoshimoto und H. Koinuma, *Atomic Control of the  $SrTiO_3$  Crystal Surface*, Science **266** (1994), 1540.
- [Kirtley87] J. R. Kirtley, C. C. Tsuei, S. I. Park, C. C. Chi, R. Rozen und M. W. Shafer, *Local Tunneling Measurements of the High- $T_C$  Superconductor  $La_{2-x}Sr_xCuO_{4-y}$* , Phys. Rev. B **35** (1987), 7216.
- [Kirtley90a] J. R. Kirtley, *Tunneling Measurements of the Energy Gap in High- $T_C$  Superconductors*, Int. J. Mod. Phys. B **4** (1990), 201.
- [Kirtley90b] J. R. Kirtley und D. J. Scalapino, *Inelastic-Tunneling Model for the Linear Conductance Background in the High- $T_C$  Superconductors*, Phys. Rev. Lett. **65** (1990), 798.
- [Kirtley92] J. R. Kirtley, S. Washburn und D. J. Scalapino, *Origin of the Linear Tunneling Conductance Background*, Phys. Rev. B **45** (1992), 336.
- [Klapwijk82] T. Klapwijk, G. Blonder und M. Tinkham, *Explanation of Subharmonic Energy Gap Structure in Superconducting Contacts*, Physica C **109/110** (1982), 1657.
- [Kleefisch00] S. Kleefisch, *Symmetrie Des Ordnungsparameters in Loch- und Elektronendotierten Hochtemperatur-Supraleitern*, Dissertation, Universität zu Köln (2000).
- [Kleefisch01] S. Kleefisch, B. Welter, M. Naito, A. Marx, L. Alff und R. Gross, *Possible Pseudogap Behavior of Electron Doped High-Temperature Superconductors*, Phys. Rev. B **63** (2001), 100507.

- [Kotliar96] G. Kotliar und C. M. Varma, *Low-Temperature Upper-Critical-Field Anomalies in Clean Superconductors*, Phys. Rev. Lett. **77** (1996), 2296.
- [Kresin90] V. Z. Kresin und S. A. Wolf, *Major Normal and Superconducting Parameters of High- $T_c$  Oxides*, Phys. Rev. B **41** (1990), 4278.
- [Krockenberger02] Y. Krockenberger, *Tunnelspektroskopie an Elektron-Dotierten Kupratsupraleitern*, Diplomarbeit, Technische Universität München (2002).
- [Kulik70] I. O. Kulik, *Macroscopic Quantization and the Proximity Effect in S-N-S Junctions*, Sov. Phys. JETP **30** (1970), 944.
- [Lee85] P. A. Lee, *Disordered Electric Systems*, Rev. Mod. Phys. **287** (1985), 287.
- [Lippmaa98] M. Lippmaa, K. Takahashi, A. Ohtomo, S. Ohashi, T. Ohnishi, N. Nakagawa, T. Sato, M. Iwatsuki, H. Koinuma und M. Kawasaki, *Atom Technology for Josephson Tunnel Junctions: SrTiO<sub>3</sub> Substrate Surface*, Mater. Sci. Eng. B **56** (1998), 111.
- [Mackenzie93] A. P. Mackenzie, S. R. Julian, G. G. Lonzarich, A. Carrington, S. D. Hughes, R. S. Liu und D. S. Sinclair, *Resistive Upper Critical Field of Tb<sub>2</sub>Ba<sub>2</sub>CuO<sub>6</sub> at Low Temperatures and High Magnetic Fields*, Phys. Rev. Lett. **71** (1993), 1238.
- [Maggio-Aprile95] I. Maggio-Aprile, C. Renner, A. Erb, E. Walker und O. Fischer, *Direct Vortex Lattice Imaging and Tunneling Spectroscopy of Flux Lines on YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$</sub>* , Phys. Rev. Lett. **75** (1995), 2754.
- [Maiser97] E. Maiser, W. Mexner, R. Schäfer, T. Schreiner, P. Adelman und G. Czjzek, *Peculiar Low-Temperature Properties of Metallic Nd<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4</sub> Caused by Interactions Between Nd Moments and Conduction Electrons*, Phys. Rev. B **56** (1997), 12961.
- [Maki64] K. Maki, *The Behavior of Superconducting Thin Films in the Presence of Magnetic Fields and Currents*, prog. theor. phys. **31** (1964), 731.
- [Malozemoff06] A. Malozemoff, J. Mannhart und D. Scalapino, *Hochtemperatur-Supraleiter in der Technik*, Phys. Unserer Zeit **4** (2006), 162.
- [Marti03] O. Marti und A. Plettl, *Vorlesungsskript Physikalische Elektronik und Messtechnik* (Universität Konstanz, 2003).

- [Marx96] A. Marx, *Niederfrequentes 1/f-Rauschen in Josephson-Kontakten Aus Hochtemperatur-Supraleitern*, Dissertation, Eberhard-Karls-Universität zu Tübingen (1996).
- [Matsuda92] M. Matsuda, Y. Endoh, K. Yamada, H. Kojima, I. Tanaka, R. J. Birgeneau, M. A. Kastner und G. Shirane, *Magnetic order, spin correlations, and superconductivity in single-crystal  $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4+\delta}$* , Phys. Rev. B **45** (1992), 12548.
- [Meservey75] R. Meservey, P. M. Tedrow und R. C. Bruno, *Tunneling Measurements of Spin-Paired Superconductors with Spin-Orbit Scattering*, Phys. Rev. B **11** (1975), 4224.
- [Miura02] N. Miura, H. Nakagawa, T. Sekitani, M. Naito, H. Sato und Y. Enomoto, *High-Magnetic-Field Study of High- $T_c$  Cuprates*, Physica B **319** (2002), 310.
- [Motoyama07] E. M. Motoyama, G. Yu, I. M. Vishik, O. P. Vajk, P. K. Mang und M. Greven, *Spin Correlations in the Electron-Doped High-Transition-Temperature Superconductor  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4\pm\delta}$* , Nature **445** (2007), 186.
- [Naito87] M. Naito und M. R. Beasley, *Microscopic Study of Tunneling Processes Via Localized States in Amorphous Si/SiO<sub>x</sub> Tunnel Barriers*, Phys. Rev. B **35** (1987), 2548.
- [Naito00a] M. Naito, private Mitteilung (2000), von M. Naito an L. Alff vom 21.06.2000 und 11.08.2000; eine Kopie liegt den im Rahmen dieser Arbeit geführten Laborbüchern bei.
- [Naito00b] M. Naito und M. Hepp, *Superconducting  $T'$ - $La_{2-x}Ce_xCuO_4$  Films Grown by Molecular Beam Epitaxy*, Jpn. J. Appl. Phys. **39** (2000), 485.
- [Norman05] M. R. Norman, D. Pines und C. Kallin, *The Pseudogap: Friend or Foe of High  $T_c$ ?*, Adv. in Phys. **54** (2005), 715.
- [Oka03] K. Oka, H. Shibata und A. H. E. S. Kashiwaya, *Crystal Growth of  $La_{2-x}Ce_xCuO_4$* , Physica C **388-389** (2003), 389.
- [Onose04] Y. Onose, Y. Taguchi, K. Ishizaka und Y. Tokura, *Charge Dynamics in Underdoped  $Nd_{2-x}Ce_xCuO_4$ : Pseudogap and Related Phenomena*, Phys. Rev. B **69** (2004), 024504.
- [Oppenheimer28] J. R. Oppenheimer, *Three Notes on the Quantum Theory of Aperiodic Effects*, Phys. Rev. **13** (1928), 66.

- [Orenstein00] J. Orenstein und A. J. Millis, *Advances in the Physics of High-Temperature Superconductivity*, Science **288** (2000), 288.
- [Ovchinnikov95] Y. N. Ovchinnikov und V. Z. Kresin, *Critical magnetic field in layered superconductors*, Phys. Rev. B **52** (1995), 3075.
- [Palstra88] T. T. M. Palstra, B. Batlogg, L. F. Schneemeyer und J. V. Waszczak, *Thermally Activated Dissipation in  $Bi_{2.2}Sr_2Ca_{0.8}Cu_2O_{8+\delta}$* , Phys. Rev. Lett. **61** (1988), 1662.
- [Pan87] S. Pan, K. W. Ng, A. L. de Lozanne, J. M. Tarascon und L. H. Greene, *Measurements of the Superconducting Gap of La-Sr-Cu-O with a Scanning-Tunneling Microscope*, Phys. Rev. B **35** (1987), 7220.
- [Phillips90] J. C. Phillips, *States in the Superconductive Energy Gap of High- $T_c$  Cuprates*, Phys. Rev. B **41** (1990), 8968.
- [Plecenik98] A. Plecenik, M. Grajcar, P. Seidel, S. Takacs, A. Matthes, M. Zuzcak und S. Benacka, *Influence of Bias Voltage History on Conductance Properties of YBaCuO/Normal Metal Junctions*, Physica C **301** (1998), 234.
- [Press88] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky und W. T. Vetterling, *Numerical Recipes in C - The Art of Scientific Computing* (Cambridge University Press, 1988).
- [Qazilbash03] M. M. Qazilbash, A. Biswas, Y. Dagan, R. A. Ott und R. L. Greene, *Point-Contact Spectroscopy of the Electron-Doped Cuprate Superconductor  $Pr_{2-x}Ce_xCuO_4$ : The Dependence of Conductance-Voltage Spectra on Cerium Doping, Barrier Strength, and Magnetic Field*, Phys. Rev. B **68** (2003), 024502.
- [Rade97] L. Rade und B. Westergren, *Springers Mathematische Formeln* (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1997).
- [Rainer98] D. Rainer, H. Burkhardt, M. Fogelström und J. A. Sauls, *Andreev Bound States, Surfaces and Subdominant Pairing in High  $T_c$  Superconductors*, J. Phys. Chem. Solids **59** (1998), 2040.
- [Raychaudhuri95] A. K. Raychaudhuri, K. P. Rajeev, H. Srikanth und N. Gayathri, *Metal-Insulator Transition in Perovskite Oxides: Tunneling Experiments*, Phys. Rev. B **51** (1995), 7421.
- [Renner98a] C. Renner, B. Revaz, J.-Y. Genoud, K. Kadowaki und Ø. Fischer, *Pseudogap Precursor of the Superconducting Gap in Under- and Overdoped  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$* , Phys. Rev. Lett. **80** (1998), 151.

- [Renner98b] C. Renner, B. Revaz, K. Kadowaki, I. Maggio-Aprile und O. Fischer, *Observation of the Low Temperature Pseudogap in the Vortex Cores of  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$* , Phys. Rev. Lett. **80** (1998), 3606.
- [Rickayzen69] G. Rickayzen, *The Theory of Bardeen, Cooper, and Schrieffer*, in *Superconductivity* (herausgegeben von R. D. Parks), 51 (Marcel Dekker, Inc., New York, 1969).
- [Rowell69] J. M. Rowell, *Tunneling Density of States*, in *Tunneling Phenomena in Solids* (herausgegeben von S. L. E. Burstein), 273 (Plenum Press, New York, 1969).
- [Sachdev00] S. Sachdev, *Quantum Criticality: Competing Ground States in Low Dimensions*, Science **288** (2000), 475.
- [Sawa02] A. Sawa, M. Kawasaki, H. Takagi und Y. Tokura, *Electron-Doped Superconductor  $La_{2-x}Ce_xCuO_4$ : Preparation of Thin Films and Modified Doping Range for Superconductivity*, Phys. Rev. B **66** (2002), 014531.
- [Schiff68] L. I. Schiff, *Quantum Mechanics* (McGraw-Hill, New York, 1968), 3. Aufl.
- [Schonecke04] M. Schonecke, *Grenzflächeneffekte Zwischen Hochtemperatur-Supraleitern und Normalleitern*, Dissertation, Technische Universität München (2004).
- [Schoop00] U.-D. Schoop, *Heteroepitaxie von Übergangsmetalloxiden in Rampenkontakt-Geometrie*, Dissertation, Universität zu Köln (2000).
- [Seidel97] P. Seidel, A. Plecenic, M. Grajcar, M. Belogolovskii, K.-U. Barholz und A. Matthes, *Peculiarities of 'Tunneling' Characteristics Observed in HTS/Metal Point Contact Junctions*, Physica C **282 - 287** (1997), 1482.
- [Sekitani02] T. Sekitani, M. Naito, N. Miura und K. Uchida, *Kondo Effect in the Normal State of  $T'$ - $Ln_{2-x}Ce_xCuO_4$  ( $Ln=La,Pr,Nd$ )*, J. Phys. Chem. Solids **63** (2002), 1089.
- [Sekitani03] T. Sekitani, M. Naito und N. Miura, *Kondo Effect in Underdoped  $N$ -Type Superconductors*, Phys. Rev. B **67** (2003), 174503.
- [Shan05] L. Shan, Y. Huang, H. Gao, Y. Wang, S. L. Li, P. C. Dai, F. Zhou, J. W. Xiong, W. X. Ti und H. H. Wen, *Distinct Pairing Symmetries in  $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$  and  $La_{1.89}Sr_{0.11}CuO_4$  Single*

- Crystals: Evidence from Comparative Tunneling Measurements*, Phys. Rev. B **72** (2005), 144506.
- [Sharifi91] F. Sharifi, A. Pargellis und R. C. Dynes, *Tunneling Density of States in the Lead-Bismuth-Oxide Superconductors*, Phys. Rev. Lett. **67** (1991), 509.
- [Simmons63a] J. G. Simmons, *Generalized Formula for the Electric Tunnel Effect Between Similar Electrodes Separated by a Thin Insulating Film*, J. Appl. Phys. **34** (1963), 1793.
- [Simmons63b] J. G. Simmons, *Low-Voltage Current-Voltage Relationship of Tunnel Junctions*, J. Appl. Phys. **34** (1963), 238.
- [Skinta02] J. A. Skinta, *Evidence for a Transition in the Pairing Symmetry of the Electron-Doped Cuprates LCCO and PCCO*, Phys. Rev. Lett. **88** (2002), 207005.
- [Sta99] Stanford Research Systems, *Model SR850 DSP Lock-In Amplifier*, revision 1.4 (10/99) Aufl. (1999).
- [Stachel00] M. Stachel, *The Advanced Lab's Lock-In Project*, Webseite (2000), [www.lockin.de](http://www.lockin.de).
- [Sumarlin92] I. W. Sumarlin, S. Skanthakumar, J. W. Lynn, J. L. Peng, Z. Y. Li, W. Jiang und R. L. Greene, *Magnetic Ordering of Sm in Sm<sub>2</sub>CuO<sub>4</sub>* **68** (1992), 2228.
- [Suzuki90] M. Suzuki und M. Hikita, *Anisotropic and thermally activated resistive behavior in Nd<sub>1.85</sub>Ce<sub>0.15</sub>CuO<sub>4-δ</sub>*, Phys. Rev. B **41** (1990), 9566.
- [Takada89] J. Takada, T. Terashima, Y. Bando, H. Mazaki, K. Iijima, K. Yamamoto und K. Hirata, *Quasiparticle Density of States in the Perpendicular Direction to the Cu-O Planes in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> Single-Crystal Thin Films*, Phys. Rev. B **40** (1989), 4478.
- [Takahashi01] T. Takahashi, T. Sato, T. Yokoya, T. Kamiyama, Y. Naitoh, T. Mochiku, K. Yamada, Y. Endoh und K. Kadowaki, *Two Different Types of Pseudogaps in High-T<sub>c</sub> Superconductors*, Journal of Phys. and Chem. of Sol. **62** (2001), 41.
- [Tallon99] J. L. Tallon, J. W. Loram, G. V. M. Williams, J. R. Cooper, I. R. Fisher, J. D. Johnson, M. P. Staines und C. Bernhard, *Critical Doping in Overdoped High T<sub>c</sub> Superconductors: A Quantum Critical Point?*, phys. stat. sol. (b) **215** (1999), 531.

- [Thouless74] D. J. Thouless, *Electrons in Disordered Systems and the Theory of Localization*, Phys. Rep. **13** (1974), 93.
- [Tietze93] U. Tietze und C. Schenk, *Halbleiter-Schaltungstechnik* (Springer-Verlag, Berlin, 1993).
- [Timusk99] T. Timusk und B. Statt, *The pseudogap in high-temperature superconductors: an experimental survey*, Rep. Prog. Phys. **62** (1999), 61.
- [Tinkham88] M. Tinkham, *Resistive Transition of High-Temperature Superconductors*, Phys. Rev. Lett. **61** (1988), 1658.
- [Tinkham96] M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity* (McGraw-Hill, Inc., New York, 1996).
- [Tralshawala91] N. Tralshawala, J. F. Zasadzinski und L. Coffey, *Interpretation of Resistivity of  $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$  Using the Electron-Phonon Spectral Function Determined from Tunneling Data*, Phys. Rev. B **44** (1991), 12102.
- [Tranquada89] J. M. Tranquada, S. M. Heald, A. R. Moodenbaugh, G. Liang und M. Croft, *Nature of the Charge Carriers in Electron-Doped Copper Oxide Superconductors*, Nature **337** (1989), 720.
- [Tsuei89] C. C. Tsuei, A. Gupta und G. Koren, *Quadratic Temperature Dependence of the In-Plane Resistivity in Superconducting  $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_4$  - Evidence for Fermi-Liquid Normal State*, Physica C **161** (1989), 415.
- [Tsuei00a] C. C. Tsuei und J. R. Kirtley, *Pairing Symmetry in Cuprate Superconductors*, Rev. Mod. Phys. **72** (2000), 969.
- [Tsuei00b] C. C. Tsuei und J. R. Kirtley, *Phase Sensitive Evidence for D-Wave Pairing Symmetry in Electron-Doped Cuprate Superconductors*, Phys. Rev. Lett. **85** (2000), 182.
- [Tsukada06] A. Tsukada, H. Yamamoto und M. Naito, *Doping of Ce in  $T-La_2CuO_4$ : Rigorous Test for Electron-Hole Symmetry for High- $T_c$  Superconductivity*, cond-mat/0602303 (2006).
- [Uchida03] S. Uchida, *Critical Points in the Cuprate Phase Diagram*, sol. state commun. **126** (2003), 57.
- [Ullah90] S. Ullah und A. T. Dorsey, *Critical Fluctuations in High-Temperature Superconductors and the Ettingshausen Effect*, Phys. Rev. Lett. **65** (1990), 2066.

- [Ullah91] S. Ullah und A. T. Dorsey, *Effect of Fluctuations on the Transport Properties of Type-II Superconductors in a Magnetic Field*, Phys. Rev. B **44** (1991), 262.
- [Valatin58] J. G. Valatin, *Comments on the Theory of Superconductivity*, Nuovo Cimento **7** (1958), 843.
- [Valles91] J. M. Valles, R. C. Dynes, A. M. Cucolo, M. Gurvitch, L. F. Schneemeyer, J. P. Garno und J. V. Waszczak, *Electron Tunneling Into Single Crystals of  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$* , Phys. Rev. B **44** (1991), 11986.
- [Varshney02] D. Varshney, K. K. Choudhary und R. K. Singh, *Interpretation of Temperature-Dependent Resistivity of Electron-Doped Cuprates*, Supercond. Sci. Technol. **15** (2002), 1119.
- [Vopat76] F. E. Vopat, H. J. Lee und W. J. Tomasch, *Obtaining Densities of States from Tunneling Between Two Superconductors*, J. Appl. Phys. **47** (1976), 329.
- [Wang99] W. Wang, M. Yamazaki, K. Lee und I. Iguchi, *Observation on Quasiparticle Andreev Bound States Using  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  Ramp-Edge Junctions with Different Interface Geometries*, Phys. Rev. B **60** (1999), 4272.
- [Welter00] B. Welter, *Tunnelspektroskopie an  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  Korngrenzenkontakten*, Diplomarbeit, Universität zu Köln (2000).
- [Welter03] B. Welter, Y. Krockenberger, M. Naito, L. Alff und R. Gross, *Pseudogap and Conservation of States in Electron Doped High-Temperature Superconductors*, Physica C **388-389** (2003), 299.
- [Werthamer66] N. R. Werthamer, E. Helfand und P. C. Hohenberg, *Temperature and Purity Dependence of the Superconducting Critical Field,  $H_{c2}$ . III. Electron Spin and Spin-Orbit Effects*, Phys. Rev. **147** (1966), 295.
- [White79] R. M. White und T. H. Geballe, *Long Range Order in Solids* (Academic Press, New York, 1979).
- [Winzer75] K. Winzer, *Giant Kondo Resistivity in  $(La, Ce)B_6$* , Solid State Comm. **16** (1975), 521.
- [Wolf85] E. L. Wolf, *Principles of Electron Tunneling Spectroscopy* (Oxford University Press, 1985).

- [Wolf91] E. L. Wolf, H. J. Tao und B. Susla, *Tunneling Evidence of Strong Cooper-Pair-Breaking Near  $T_c$  in Cuprate Superconductors*, Solid State Commun. **77** (1991), 519.
- [Won94] H. Won und K. Maki, *D-Wave Superconductor as a Model of High- $T_c$  Superconductors*, Phys. Rev. B **49** (1994), 1397.
- [Wu06] H. Wu, L. Zhao, J. Yuan, L. X. Cao, J. P. Zhong, L. J. Gao, B. Xu, P. C. Dai, B. Y. Zhu, X. G. Qiu, und B. R. Zhao, *Transport Properties of Electron-Doped  $La_{2-x}Ce_xCuO_4$  Cuprate Thin Films*, Phys. Rev. B **73** (2006), 104512.
- [Xu90] Y. Xu, A. Matsuda und M. R. Beasley, *Role of Inelastic Effects on Tunneling Via Localized States in Metal-Insulator-Metal Tunnel Junctions*, Phys. Rev. B **42** (1990), 1492.
- [Yamada94] T. Yamada, K. Kinoshita und H. Shibata, *Synthesis of Superconducting  $T'$  -  $(La_{1-x}Ce_x)_2CuO_4$* , Jpn. J. Appl. Phys. **33** (1994), L 168.
- [Yang98] K. Yang und S. L. Sondhi, *Response of a  $d_{x^2-y^2}$  Superconductor to a Zeeman Magnetic Field*, Phys. Rev. B **57** (1998), 8566.
- [Zimmers05] A. Zimmers, J. M. Tomczak, R. P. S. M. Lobo, N. Bontemps, C. P. Hill, M. C. Barr, Y. Dagan, R. L. Greene, J. J. Millis und C. C. Homes, *Infrared Properties of Eletron-Doped Cuprates: Tracking Normal-State Gaps and Quantum Critical Behavior in  $Pr_{2-x}Ce_xCuO_4$* , Europhys. Lett. **70** (2005), 225.