

**Entwicklung kontaktfreier Methoden zur
Untersuchung der komplexen Leitfähigkeit von
Supraleitern und verwandten Materialien**

Vom Fachbereich Physik
der Technischen Hochschule Darmstadt

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

genehmigte
Dissertation

von
ANDREI PIMENOV
aus Kazan/Rußland

Referent: Prof. Dr. A. Loidl
Korreferent: Prof. Dr. F. Steglich

Tag der Einreichung: 12. 5. 1995
Tag der Prüfung: 10. 7. 95

Darmstadt 1995
D 17

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Einleitung	1
1 Das Kontaktproblem bei der konventionellen Impedanzspektroskopie	4
2 Existierende kontaktfreie Methoden	9
2.1 Resonanzmethoden im MHz-Bereich	9
2.2 Messungen in Mikrowellenfrequenzbereich	10
3 Experimenteller Aufbau und Analyse von Resonanzparametern	13
3.1 Resonanzmessung vom kapazitiven Typ	13
3.2 Resonatoren vom induktiven Kopplungstyp	18
3.2.1 Allgemeine Beschreibung. Herleitung der Arbeitsformeln für die Datenberechnungen	18
3.2.2 Resonatorgeometrien zur Messung der Oberflächenimpedanz von Blei	22
3.2.3 Betrachtung zu Experimenten an $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	25
4 Theoretische Grundlagen	30
4.1 Bearbeitung der Daten von supraleitenden Proben	30
4.2 Supraleitendes Blei und Frequenzabhängigkeit der Kohärenzlänge	33
5 Meßergebnisse	40
5.1 Meßergebnisse. La_2CuO_4 , $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$	40
5.1.1 Einleitung	40
5.1.2 La_2CuO_4	42

Inhalt

5.1.3	$(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$	48
5.2	Meßergebnisse. Blei	53
5.2.1	Einleitung	53
5.2.2	Ergebnisse und Diskussion	54
5.3	Meßergebnisse $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-8}$	65
5.3.1	Allgemeines	65
5.3.2	Diskussion und Vergleich der Daten	84
5.3.3	Diskussion der Fluktationseffekten	91
5.3.4	Diskussion des Maximums in der Leitfähigkeit	95
	Zusammenfassung	97
	Literaturverzeichnis	101

Einleitung.

Die Aufklärung der Mechanismen der Hochtemperatursupraleitung ist das Ziel vieler theoretischer und experimenteller Arbeiten. Zum Verständnis des Ladungstransports in supra- sowie normalleitender Phase ist die Kenntnis der Leitfähigkeit eine wichtige Voraussetzung. In dieser Arbeit wird die AC-Leitfähigkeit mit speziell dafür entwickelten Methoden im MHz-Bereich bestimmt. Im elektrischen Wechselfeld der Frequenz ω ist die komplexe Leitfähigkeit $\sigma^* = \sigma' - i\sigma''$ wie folgt definiert:

$$\mathbf{j}_\omega = \sigma^*(\omega) \cdot \mathbf{E}_\omega,$$

wobei \mathbf{E}_ω und \mathbf{j}_ω die entsprechenden Fourier-Komponenten der elektrischen Feldstärke und der Stromdichte in die Probe sind.

Das nach Definition direkte Verfahren zur experimentellen Bestimmung der Leitfähigkeit ist die Messung des elektrischen Feldes in der Probe unter Anregung eines definierten Stromes. Meistens wird der Strom in der Probe mit Hilfe von Kontakten induziert. Der Nachteil dieses Verfahrens besteht darin, daß die Kontakte nichtideale elektrische Eigenschaften besitzen und damit die Ergebnisse stark beeinflussen können. Die Probleme sind am gravierendsten bei Experimenten mit sehr gut leitenden Proben.

Es ist aber auch möglich, kontaktfrei Wechselströme in der Probe anzuregen und so die Leitfähigkeit zu messen. Damit können einige der Probleme, die üblicherweise durch die Kontakte verursacht werden, umgangen werden. Man kann alle kontaktfreien Methoden in zwei Gruppen einteilen, abhängig davon, durch welches Feld der Strom in die Probe induziert wird:

-Kapazitive Methoden (elektrisches Feld)

-Induktive Methoden (magnetisches Feld)

Die beiden Gruppen von Meßverfahren werden im allgemeinen verschiedene Meßgeometrien bedingen und sich auf verschiedene Probentypen und Frequenzbereiche beziehen.

Thema dieser Arbeit ist die Entwicklung eines kontaktfreien Verfahrens im Radiofrequenzbereich ($\nu \sim 1 \text{ MHz} \div 10 \text{ GHz}$) in welchem die temperaturabhängige komplexe Leitfähigkeit von verschiedenen Proben untersucht werden soll.

Die Experimente beziehen sich auf konventionelle Supraleiter (Blei - *bulk*) und Hochtemperatursupraleiter ($(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$ und $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristalle) und damit verwandte Materialien (La_2CuO_4 Einkristall).

Im letzten Fall wurde eine Methode vom kapazitiven Typ ($3 \div 300 \text{ MHz}$) entwickelt, und die Ergebnisse werden verglichen mit Daten, die mit Hilfe von kontaktbehafteten Methoden erhalten wurden.

Die Methode der induktiven Kopplung ($100 \text{ MHz} \div 2 \text{ GHz}$) wurde zur Untersuchung der komplexen Leitfähigkeit der supraleitenden Proben (Blei, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$) benutzt. Hauptgegenstand dieser Messungen war die Untersuchung des Kohärenzpeaks in diesen Substanzen. Der Kohärenzpeak ist eine der wichtigsten Vorhersagen der BCS-Theorie der Supraleitung. Er erscheint als Anstieg in der elektromagnetischen Absorption unterhalb der Übergangstemperatur.

Da Blei als BCS-Supraleiter bekannt ist, sollte das Auftreten des Peaks in MHz-Bereich experimentell überprüft und mit der BCS-Theorie verglichen werden. Eine der Schwierigkeiten, die hier zu lösen ist, ist die Nichtidealität der nichtlokalen Effekte in supraleitendem Blei. Denn das dazugehörige Verhältnis aus Kohärenzlänge und Eindringtiefe (ξ_0/λ) ist nicht hoch genug, um die Formeln des extrem anomalen Grenzfalles noch direkt benutzen zu können.

Im Falle des Hoch- T_C Supraleiters ($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$) kann das Auftreten oder Fehlen des Kohärenzpeaks ein Hinweis für oder gegen die Anwendbarkeit der BCS-Theorie sein. Bis zum heutigen Zeitpunkt ist die Frage noch offen, ob sich die Hochtemperatursupraleitung durch die BCS-Theorie beschreiben läßt, oder ob neue Mechanismen in Betracht gezogen werden müssen.

Die Arbeit ist folgendermaßen gegliedert:

- in Kapitel 1 und 2 werden einige der Schwierigkeiten analysiert, die bei der Kontaktmessung auftreten und es werden die Hauptideen des kontaktfreien Verfahrens dargestellt.

- Kapitel 3 beschreibt die experimentellen Meßgeometrien von beiden kontaktfreien Kopplungstypen und stellt die Methoden zur Berechnung der Probeneigenschaften aus den Resonatorparametern dar.

- In Kapitel 4 werden die Möglichkeiten zur experimentellen Analyse der elektrischen Eigenschaften der Supraleiter dargestellt. Teil 4.2 bezieht sich auf das obengenannte Problem der Berechnung der komplexen Leitfähigkeit von Blei im supraleitenden Zustand aus den experimenteller Daten.

- Kapitel 5 enthält die Meßergebnisse und Diskussionen, wobei die Schwerpunkte und Ziele der Untersuchungen an den verschiedenen Proben in separaten Unterkapiteln (5.1.1 und 5.2.1) benannt werden.

Kapitel 1

Das Kontaktproblem bei der konventionellen Impedanzspektroskopie.

Wenn man die Leitfähigkeit eines Halbleiters oder Metalls messen will, ist eines der Hauptprobleme das sogenannte Kontaktproblem. Als Beispiel ist in Abb.1.1 die Frequenzabhängigkeit der Leitfähigkeit (σ') und der Dielektrizitätskonstante ($\epsilon' = \sigma''/\epsilon_0\omega$) von einkristallinem La_2CuO_4 dargestellt. Man sieht eine etwas verteilte Relaxation, die aber nichts mit der Dispersion der Leitfähigkeit zu tun hat. Die Relaxation ist leicht zu erklären, wenn man die Kontaktstelle an der Probenoberfläche in Betracht zieht. Dieser Bereich ist zwar sehr dünn (etwa $1\ \mu$), aber sein Widerstand ist trotzdem höher als der Probenwiderstand. Bei diesem Beispiel sieht man fast im ganzen Frequenzbereich nur den Kontaktwiderstand und die Kontaktkapazität. Nur bei der letzten Frequenzdekade ist die Leitfähigkeit der Probe zu erkennen. Mit Hilfe des äquivalenten Stromkreises, der in der Abb.H2.2 dargestellt ist, sind die typischen Relaxations-Frequenzen für die Leitfähigkeit ω_σ und für die Dielektrizitätskonstante ω_ϵ wie folgend auszurechnen:

$$\begin{aligned} \text{wenn} \quad & C_{\text{Kontakt}} \gg C_{\text{Probe}}, \quad R_{\text{Kontakt}} \gg R_{\text{Probe}}, \\ \text{dann} \quad & \omega_\sigma \sim 1/R_{\text{Probe}}C_{\text{Kontakt}}, \quad \omega_\epsilon \sim \omega_\sigma (C_{\text{Kontakt}}/C_{\text{Probe}})^{1/2} \end{aligned}$$

Das bedeutet, daß die Meßfrequenz größer als ω_σ sein muß, wenn nur der Realteil der Leitfähigkeit betrachtet wird, und größer als ω_ϵ , wenn Real- und Imaginärteil einbezogen werden.

Der typische Wert für die Kontaktkapazität liegt im Bereich $\sim 1\div 100\ \text{nF/cm}^2$, d.h. man kann für Proben mit der charakteristischen Größe $\sim 1\text{mm}^3$ die typischen Grenzfrequenzen folgendermaßen abschätzen:

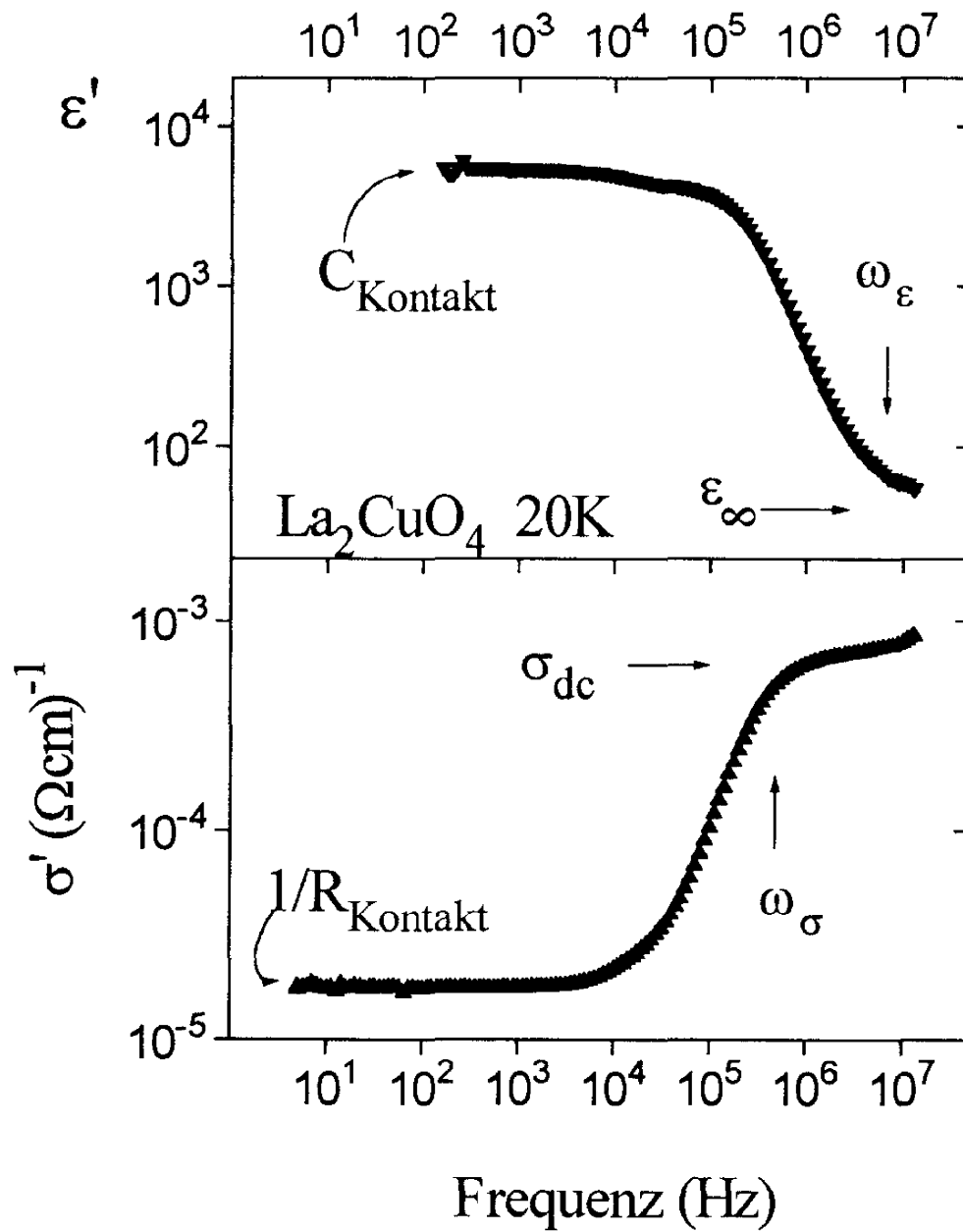


Abbildung 1.1: Frequenzabhängigkeit der Dielektrizitätskonstante ϵ' (oben) und des Realteils σ' der Leitfähigkeit (unten) eines La₂CuO₄ Einkristalle längs der c-Achse bei T=20K. Die Daten wurden mit Hilfe der Zweikontaktmethode gemessen.

$$\omega_\sigma \text{ (MHz)} \sim 10 \sigma_{\text{DC}} \text{ (}\Omega^{-1}\text{cm}^{-1}\text{)}$$

$$\omega_\epsilon \text{ (MHz)} \sim 100 \sigma_{\text{DC}} \text{ (}\Omega^{-1}\text{cm}^{-1}\text{)}$$

Die Kontaktrelaxation ist in Abb.1 relativ leicht zu erkennen, da der gemessene Frequenzbereich groß ist. Die Situation kann aber viel schwieriger sein, wenn entweder der zur Verfügung stehende Frequenzbereich kleiner, oder die Relaxation verteilt ist. In diesem Fall sollte man möglichst viele Daten zusammen in Betracht ziehen, um zuverlässige Ergebnisse zu erhalten.

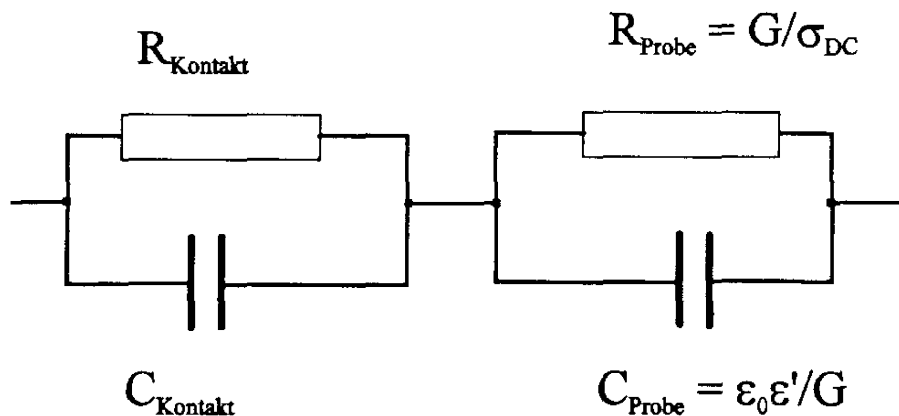


Abbildung H2.2: Vereinfachtes Ersatzschaltbild für die Daten der Abb. H2.1. Alle Parameter werden als frequenzunabhängig angenommen. G ist eine geometrische Konstante der Probe.

Noch eine Schwierigkeit, die für den MHz-Bereich typisch ist, ist die Kalibration. Im realen Experiment ist die Leitung zwischen dem Meßgerät und der Probe relativ weit vom Ideal entfernt. Das verursacht die Ungleichheit zwischen der gemessenen Impedanz Z_m und der Probeimpedanz: $Z_m \neq Z_p$. Allgemein ist in linearer Näherung das Verhältnis zwischen den zwei Impedanzen :

$$Z_p = \frac{A + BZ_m}{Z_m - C},$$

wobei die drei frequenzabhängigen komplexen Werte A,B,C vor der Messung bestimmt werden müssen. Dafür braucht man eine Kalibration, d.h. drei zusätzliche

Messungen von drei bekannten Proben, die oft $Z_1=0\Omega$, $Z_2=\infty\Omega$ und $Z_3=50\Omega$ sind, obwohl diese Werte nicht obligatorisch sind. Wenn die Messungen bei mehreren Temperaturen durchgeführt werden sollen, muß im Grunde auch bei jeder Temperatur neu kalibriert werden. (Das heißt, die drei Kalibrationstandards müssen für jede Temperatur konstruiert werden.) Dies ist relativ kompliziert und wird fast nie gemacht.

Beide beschriebenen Schwierigkeiten existieren nicht mehr, wenn zur Leitfähigkeitsmessung die kontaktfreie Methode benutzt wird. Die Hauptidee des Meßverfahrens ist eine Messung der Resonanzkurve eines Resonators im unbeladenen Zustand ("leer") und mit der Probe. Man kann zwei Hauptfälle in Abhängigkeit von der Kopplung zwischen Probe und Resonator unterscheiden:

1) Kapazitive Kopplung: die Probe ist im elektrischen Feld des Resonators (im Kondensator eines LC Stromkreises).

2) Induktive Kopplung: die Probe ist im magnetischen Feld des Resonators (in der Spule eines LC Stromkreises).

Der obere Grenzwert der Leitfähigkeit (bzw. der untere Wert des spezifischen Widerstands), die man mit Hilfe der kapazitiven Methode messen kann, kann aus der Bedingung abgeschätzt werden, daß die Kopplungskapazität zwischen der Probe und dem Resonanzkreis nicht zu klein im Verhältnis zum Probenwiderstand sein darf. Da als maximaler Kapazitätswert etwa $C_{\text{Kopplung}} \sim \epsilon_0 \frac{l_{\text{cm}}^2}{100\mu} \sim 10\text{pF}$ vernünftig ist [Miy67],

bekommt man die folgende Ungleichung für die typische Probengröße $\sim \text{cm}^3$ und die typische Frequenz $\sim 100\text{MHz}$:

$$\sigma_{\text{max}} < 10^3 \cdot \omega C_{\text{Kopplung}} \sim 1 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$$

Man bekommt eine Abschätzung für den anderen Grenzwert:

$$\sigma \sim 10^{-4} \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$$

aus der Tatsache, daß bei diesen Leitfähigkeitswerten die Kontaktprobleme nicht mehr existieren, weil die Dielektrizitätskonstante ϵ nun die größte Rolle spielt:

$$\sigma'' = \epsilon_0 \epsilon \omega > \sigma'$$

Der zweite (induktive) Typ der Kopplung kann immer benutzt werden, wenn die Eindringtiefe des elektromagnetischen Feldes $\delta=(2/\omega\mu_0\sigma)^{1/2}$ nicht viel größer als der Probenradius ist, d.h. für 10 MHz und die typische Probengröße ($\sim\text{cm}^3$) erhält man die Ungleichung:

$$\sigma_{\text{ind}} > 1 (\Omega\text{cm})^{-1}.$$

Kapitel 2

Existierende kontaktfreie Methoden

2.1. Resonanzmethoden im MHz-Bereich.

In der Literatur findet man verschiedene kontaktfreie Methoden. Trotz unterschiedlicher Messgeometrien können diese Methoden in zwei Hauptgruppen unterteilt werden abhängig davon, welche Typ der Kopplung benutzt wurde:

- Kapazitive Methode: [Bry 65], [McE 80], [Miy 67]
- Induktive Methode: [Zim 61], [Hai 67], [Gua 78], [Müh 91], u.a.

In [McE 80] wird vorgeschlagen, den Ausgangsstrom eines elektrischen Schwingkreises zu messen, der immer im Resonanzzustand ist. Dazu muß ein speziell gebauter Oszillator konstruiert und vor der Messung kalibriert werden. Die Probe ist in der Kapazität des Schwingkreises eingebaut und kann nicht bei verschiedenen Temperaturen gemessen werden, da die Kalibration des Kreises sich ändert. Das Verfahren ist meistens geeignet für Proben mit einem typischen Widerstand zwischen $1\text{k}\Omega$ und $100\text{k}\Omega$ und wird häufig in Photoleitfähigkeitsexperimenten benutzt. Eine andere Möglichkeit der kapazitiven Kopplung ist in der Arbeit von Miyamoto u.a. [Miy 67] angegeben. Das Verfahren dieser Autoren ist etwas einfacher im experimentellen Aufbau und besonders gut geeignet für die Routinemessung mehrerer Proben, da der speziell gebaute Kondensator ein schnelles Auswechseln der Probe ermöglicht. Man braucht vorher zwar keine Kalibration durchzuführen, aber dafür sind die Berechnungen wegen der komplizierten Feldgeometrie aufwendig. Auch hier kann die Temperaturabhängigkeit der Probenleitfähigkeit nicht gemessen werden.

Die beiden beschriebenen Methoden [McE 80] und [Miy 67] benutzen zur Messung nur die Güte Q_0 des Resonators, beziehungsweise die mit der Güte verbundene Spannungsamplitude. Bei Anwendung des in [Müh 91] vorgeschlagenen Verfahrens muß man beide Resonanzparameter (Q_0 und ω_0) in Betracht ziehen. Die Probe ist in diesem Experiment ein Teil der Spule des Resonators, und deswegen ist die Kopplung zwischen der Probe und dem Resonator induktiv. Mit Hilfe dieser Methode wurden die Widerstände verschiedener Metalle gemessen. Wie erwartet, ist dieses induktive Verfahren für gutleitende Materialien geeignet, deren Widerstand etwa 10^6 mal kleiner ist (zwischen 1 und $500 \cdot 10^{-6} \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$) als der Widerstand der Proben bei kapazitiven Methoden [McE 80], [Miy 60].

Es ist zu beachten, daß die in der Literatur dargestellten Methoden nicht die volle Reihe der Widerstandswerte abdecken können. Die kapazitiven Typen liefern zuverlässige Daten im Ωcm - Bereich und die induktiven Typen im $\mu\Omega\text{cm}$ - Bereich. Das heißt, daß es im Widerstandsbereich von $\text{m}\Omega\text{cm}$ keine kontaktfreien Methoden gibt. Man kann vermuten, daß dieses "Loch" einfach ein Zufall ist. Obwohl der Widerstandswert von $1 \Omega\text{cm}$ eine untere Grenze der kapazitiven Methoden zu sein scheint, sollte der $\text{m}\Omega$ Bereich für die induktiven Methoden nicht problematisch werden. Zwar ist die Eindringtiefe in diesem Fall viel größer als der Probenradius, aber die Energieverluste in die Probe sollten noch hoch genug sein, um den Probenwiderstand messen zu können.

2.2 Messungen in Mikrowellenfrequenzbereich

Die gleichen Ideen, die für kontaktfreie Messungen im MHz-Bereich benutzt werden, können auch bei höheren Frequenzen erweitert werden. Man muß nur statt der LC Resonanzkreise des Radiowellenbereiches einen konventionellen Mikrowellenresonator bauen. Es ist möglich, genauso die zwei Kopplungstypen zu definieren abhängig davon, in welchem Feld sich die Probe befindet,. Bei manchen Resonatoren ist es aber nicht mehr möglich, das Feld an der Probe als entweder rein elektrisches oder rein magnetisches Feld zu beschreiben. Deswegen wird für die

Meßverfahren in diesem Frequenzbereich nicht mehr zwischen verschiedenen Kopplungstypen unterschieden.

Es muß noch gesagt werden, daß, obwohl die Messungen im Resonator bei Mikrowellen auf dem gleichen Prinzip beruhen wie die Resonanzmethoden im MHz-Bereich, sie nicht mehr richtig als kontaktfrei bezeichnet werden können: Wegen der zu kurzen Wellenlänge sind die üblicher Kontaktmessungen so geändert, [Bra 63] [Gin 57], daß sie fast immer kontaktfrei sind. Deswegen bleibt nur eine formale Analogie zwischen Resonanzmethoden in verschiedenen Frequenzbereichen.

Eine Methode, die direkt aus den Meßverfahren folgt, die in ESR Experimenten [Gor 53] benutzt werden, ist die sog. "Cavity Perturbation Technique". Dabei werden die Störungen der Resonanzkurve eines üblichen Resonators gemessen, wobei oft ein Zylinderresonator im TE_{011} Mode benutzt wird. Die Probe könnte dann als eine Endplatte des Resonators eingesetzt werden [Kle 94]. Ein Vorteil der Methode ist, daß in diesem Fall die Eigenschaften der Probe direkt mit Hilfe der bekannten Formeln für den zylindrischen Resonator [Riz 88] ausgerechnet werden können. Die Probe muß aber größer als der Durchmesser des Resonators sein. Eine andere Möglichkeit ist die Probe in die Mitte des Resonators zu bringen, d.h. an die Stelle, wo das magnetische Feld maximal ist. [Sri 88]. Die Berechnungen sind nun relativ kompliziert und besitzen eine relativ geringer absolute Genauigkeit.

Eine Methode, die häufig für die Messung der Oberflächenimpedanz von Supraleitern benutzt wurde, besteht in der Verwendung eines dielektrischer Resonators. Da die Feldkonfiguration gut bekannt ist (zylindrischer dielektrischer Resonator [Mou 94], [Tel 94], Paralleler-Platten-Resonator [Tab 90]), können die Probeneigenschaften relativ leicht berechnet werden.

Diese Resonatoren können nur bei Frequenzen $\nu > 10$ GHz benutzt werden. Bei tieferen Frequenzen, bis zu 0.5 GHz, gibt es eine Reihe anderer Resonatortypen:

- Split-Ring Resonator [Bon 91]
- Strip-Line Resonator [Oat 91]
- Koaxial-Line Resonator [Pip 47]
- Helix Resonator [Mey 81]

Die letzten zwei Typen wurden in dieser Arbeit benutzt, um die Eigenschaften von Supraleitern zu messen.

In Kap.3.3; 3.4 wird dargestellt, wie die Impedanz der Proben aus den experimentell bestimmbar Resonator Kenngrößen bestimmt werden können.

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau und Analyse von Resonanzparametern

3.1 Resonanzmessung vom kapazitiven Typ

Es wird nun eine Methode zur Messung der AC - Leitfähigkeit im Radiofrequenzbereich ($1 \text{ MHz} < \nu < 500 \text{ MHz}$) beschrieben, die die Idee der kapazitiven Kopplung der Probe mit einem LC - Schwingkreis benutzt, die ähnlich zum Vorschlag von Miyamoto und Nishigava [Miy 67] ist. Der Unterschied ist jedoch, daß nun unter Verwendung eines einfachen experimentellen Aufbaus die gleichzeitige Messung der Verschiebung der Resonanzfrequenz $\Delta\nu_0$ und der Veränderung der Güte ΔQ des Resonators möglich ist. Das Experiment kann leicht bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt werden, da bei der Messung der beiden Parameter $\Delta\nu_0$ und ΔQ sich die Kalibrationsprozedur vermeiden läßt, die bei der in [Miy 67] und [McE 80] vorgeschlagenen Methoden nötig ist. Diese Methode vom kapazitiven Typ ist geeignet für Proben, für die σ' und $\epsilon_0\epsilon\omega$ die gleiche Größenordnung haben und für die σ' stark temperaturabhängig ist. Das sind z.B. Halbleiter und Ionenleiter, Proben, die durch die Hüpfleitfähigkeit charakterisiert sind und typischerweise ein Temperaturverhalten des spezifischen Widerstands anweisen, das einem Arrheniusverhalten gehorcht.

Die komplexe Leitfähigkeit erhält man bei der Messung der Resonanzfrequenz ν_0 und der Güte Q_0 des LC Kreises im Resonanzzustand mit und ohne Probe. Die schematische Darstellung des Meßaufbaus ist in Abb.3.1a zu sehen. Selbstverständlich erhält man die besten Ergebnisse beim Messen der Proben mit parallelen Oberflächen,

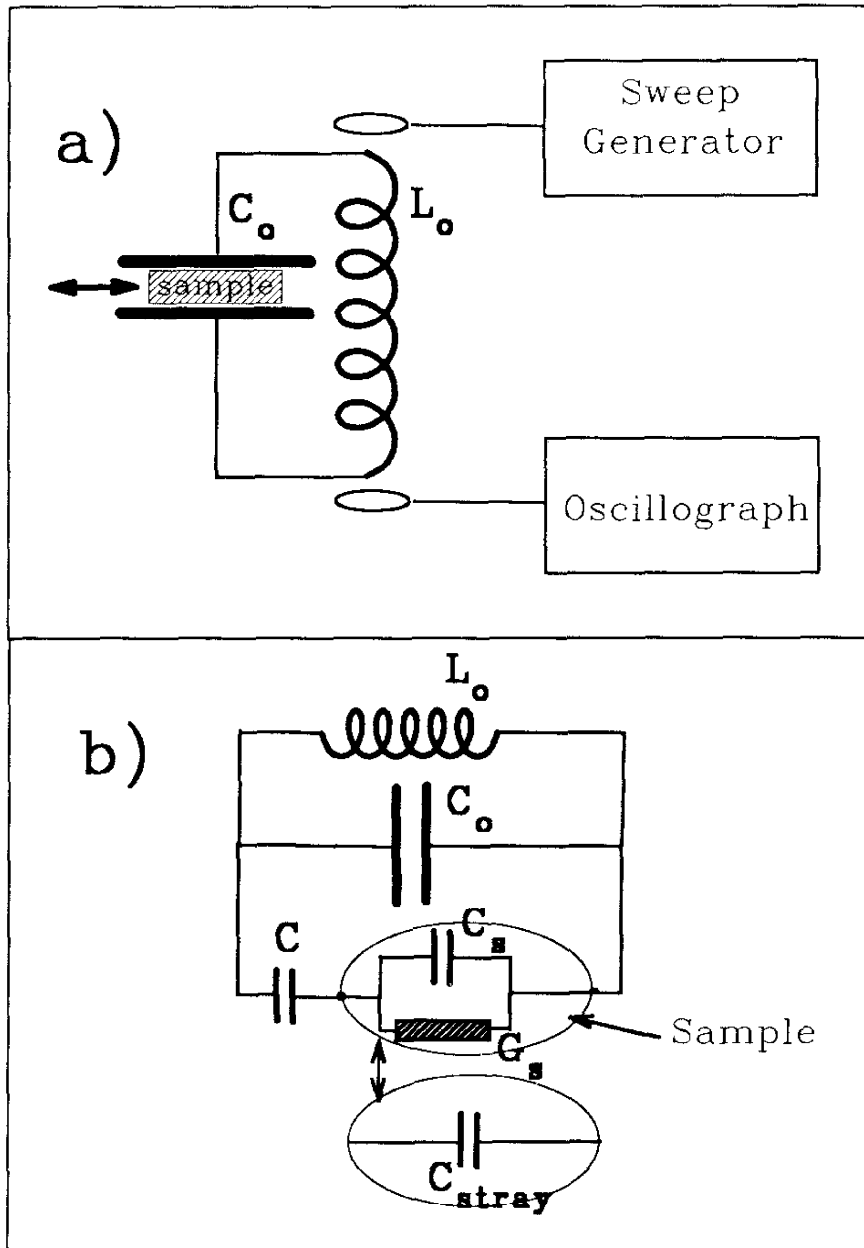


Abbildung 3.1: (a) Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus.

(b) Äquivalenter Stromkreis des Meßgerätes. L_0 und C_0 sind die Induktivität und die Kapazität des Resonanzkreises. C_s und G_s sind die Kapazität und die Konduktivität der Probe. C ist die Kopplungskapazität und C_{stray} ist die leere Kapazität.

aber diese Bedingung ist nicht absolut nötig. Man kann den äquivalenten Stromkreis des Meßgerätes so darstellen, wie es in Abb.3.1b gezeichnet ist. Hier sind L_0 , C_0 und G_0 die Induktivität, die Kapazität und die äquivalente Konduktanz des Resonanzkreises. Die Kopplungskapazität, die mit C bezeichnet ist, hängt von der Geometrie der Probe und der leeren Kapazität ab. Schließlich, bedeutet C_{stray} die "leere" Probe und ist experimentell zu bestimmen. Die Komponenten, wie sie in der Abbildung des äquivalenten Stromkreises eingezeichnet sind, haben folgende typische Absolutwerte:

$$L_0 = 10^{-5} \text{ H}, \quad C_0 = 10 \text{ pF}, \quad C_s = 1 \text{ pF}, \quad 1/G_s = 10 \text{ k}\Omega, \quad C = 0.1 \text{ pF}, \quad \text{und} \\ C_{\text{stray}} = 0.01 \text{ pF}.$$

Nach Näherungen, unter denen der benutzte Äquivalentkreis dargestellt ist, sind die Veränderungen in Resonanzfrequenz $\Delta\omega_0$ und inverser Güte $\Delta(Q^{-1})$ des Resonators wie folgt auszurechnen:

$$\frac{\Delta\omega}{\omega_0} = \frac{C \frac{G_s^2 + \omega^2 C_s (C_s + C)}{G_s^2 + \omega^2 (C_s + C)^2} - C_{\text{stray}}}{2C_0} \quad (1)$$

$$\Delta(Q^{-1}) = \frac{\omega^3 C^2 L_0 G_s}{G_s^2 + \omega^2 (C_s + C)^2} \quad (2)$$

Hier wird die Kreisfrequenz $\omega = 2\pi\nu$ benutzt. Es ist zu beachten, daß die inneren Verluste des Resonanzkreises (G_0) in den Gleichungen 1,2 nicht auftreten.

Es gibt in Gl.1,2 drei unbekannt Variable, und zwar C , C_s und G_s . Unter experimentellen Bedingungen können jedoch die Geometrien der Probe und der Kapazität C_0 leicht so gewählt werden, daß die Kopplungskapazität $C \ll C_s$ wird. Unter diesen Bedingungen hat die Gl.1 nur eine Lösung, nämlich:

$$C = 2C_0 \frac{\Delta\omega}{\omega_0} \quad (3)$$

(Die Näherung ist noch besser, wenn $G_s \gg \omega C_s$). Dieser Wert der Kopplungskapazität kann jetzt benutzt werden, um durch Gl.2 die Leitfähigkeit der Probe auszurechnen,

obwohl diese Gleichung noch die zwei unbekannt Parameter G_s und C_s hat. Dies wird im folgenden gezeigt:

Der Realteil des Probenwiderstandes ist :

$$R_s = \frac{G_s}{G_s^2 + \omega^2 C_s^2} \quad (4)$$

Aus dem Vergleich von (2) und (4) folgt, daß:

$$R_s = \frac{\Delta(Q^{-1})}{\omega^3 L_0 C^2} \quad (5)$$

Die obengenannte Annahme, daß $C \ll C_s$ war, wird hier noch einmal benutzt .

Wenn die Probe gut leitet, d.h. $G_s \gg \omega C_s$, dann folgt aus Gl.4 direkt: $R_s = 1/G_s$. Wenn jedoch die Probenkapazität nur schwach temperaturabhängig ist, dann können die beiden Werte G und C_s aus den Gl.4 gefunden werden, auch unter der Bedingung, daß der kapazitive Teil des Widerstandes vorherrscht. Unter diesen Näherungen in der Temperaturabhängigkeit von R_s gegen G_s und entsprechend gegen T , zeigt sich ein Maximum, wenn $1/R_s = G_s/2 = \omega C_s/2$. (Genauer gesagt, gilt $G_s/2 = \omega(C_s + C)/2$, wobei man für C den Wert aus Gl.3 nimmt). Hieraus können G_s und danach C_s im ganzen Temperaturbereich ausgerechnet werden.

Unten wird gezeigt, daß diese Bedingungen sehr gut in vielen Proben erfüllt sind, die durch Hüpfleitfähigkeit charakterisiert sind. Damit kann die Leitfähigkeit dieser Proben in einem breiten Temperaturbereich gemessen werden. Die Probenkapazität C_s und die Probenkonduktanz G_s sind wie folgt mit den Real- und Imaginärteilen der Leitfähigkeit $\sigma^* = \sigma' - i \sigma''$ verbunden:

$$\begin{aligned} \sigma' &= \epsilon_0 G_s / C_G \\ \sigma'' &= \epsilon_0 \omega C_s / C_G \end{aligned} \quad (6)$$

Hier ist ϵ_0 die Permittivität des Vakuums und C_G eine geometrische Konstante.

Wenn die Probe einen den Hüpfleitfähigkeitsprozeß charakterisiert wird, dann ist die komplexe Leitfähigkeit des Systems gegeben durch [Ell 87]:

$$\begin{aligned}\sigma' &= \sigma_{\text{DC}} + A'\omega^s \\ \sigma'' &= \varepsilon_0\omega\varepsilon_\infty + A''\omega^s\end{aligned}\quad (7)$$

In Halbleitern und Ionenleitern folgt die DC- Leitfähigkeit üblicherweise einem exponentiellen Gesetz. Der Realteil der frequenzabhängigen Leitfähigkeit $A'\omega^s$ hat eine schwache Temperaturabhängigkeit und zeigt über mehrere Dekaden ein Potenzgesetz mit $s < 1$ [Eil 87]. Der Real- und Imaginärteil der Leitfähigkeit sind über die Kramers-Kronig-Integralrelation miteinander verknüpft und zeigen normalerweise gleiche Temperatur und Frequenzabhängigkeiten. ε_∞ ist die Dielektrizitätskonstante des Systems bei hohen Frequenzen und besitzt nur eine schwache Temperaturabhängigkeit.

Bei hohen Temperaturen dominiert σ_{DC} alle anderen Beiträge der Hüpfleitfähigkeit, und damit $\sigma' \gg \sigma''$, d.h. $G_s \gg \omega C_s$ und $R \sim 1/G_s$. Bei niedrigen Temperaturen sind die AC- und DC- Beiträge klein, und dann wird $\varepsilon_0\omega\varepsilon_\infty$ der führende Ausdruck.

Es ist jedoch wichtig zu beachten, daß C_s nur schwach temperaturabhängig sein soll.

Mit Hilfe der obenbeschriebenen Experimentiertechnik wurde die Leitfähigkeit eines La_2CuO_4 - Einkristalles bei verschiedenen Frequenzen im MHz-Bereich und bei Temperaturen zwischen 4K und 300K gemessen. Die Ergebnisse sind im Kap.5.1.2 dargestellt.

3.2 Resonatoren vom induktiven Kopplungstyp

3.2.1 Allgemeine Beschreibung. Herleitung der Arbeitsformeln für die Datenberechnungen

Die in diesem Kapitel beschriebenen Resonanzgeometrien werden als Resonatoren mit induktiver Kopplung bezeichnet, da die Proben sich immer im magnetischen Feld des Resonators befinden. Die realen Resonatoren, wie z.B. der Helixresonator, haben eine relativ komplizierte Feldgeometrie, die nicht immer exakt in Betracht gezogen werden kann. Im weiteren wurde trotzdem immer als Näherung die vereinfachte Geometrie des Feldes ohne Randeffekte für die Berechnungen angenommen.

Betrachten wir zunächst einen üblichen Mikrowellenresonator, dessen Material- und Geometrieparameter eine kleine Änderung erfahren. Man kann drei Hauptmöglichkeiten nennen, in Abhängigkeit davon, welcher Parameter des Resonators geändert wurde:

- 1) das Volumen des Resonators:

$$V_0 \rightarrow V_0 + \delta V$$

- 2) die Oberflächenimpedanz der Wände des Resonators:

$$Z_0 \rightarrow Z_0 + \delta Z$$

- 3) die Eigenschaften des Materials innerhalb des Resonatorvolumens:

$$\epsilon, \mu \rightarrow \epsilon + \delta\epsilon, \mu + \delta\mu$$

Es ist möglich unter den Bedingungen der kleinen Änderungen einen Wechsel der Kennwerte des Resonators (ω_0 , Q) zu berechnen. Die Idee des Verfahrens [Har61], ist eine Energiebilanzgleichung aus dem Maxwell-System für den ungestörten und den gestörten Resonator zu bilden:

$$\begin{cases} -\nabla \times \mathbf{E}_0 = i\omega_0 \mu_0 \mathbf{H}_0 \\ \nabla \times \mathbf{H}_0 = i\omega_0 \epsilon_0 \mathbf{E}_0 \end{cases}, \quad \text{ungestörter Resonator,} \\ \\ \begin{cases} -\nabla \times \mathbf{E} = i\omega \mu \mathbf{H} \\ \nabla \times \mathbf{H} = i\omega \epsilon \mathbf{E} \end{cases}, \quad \text{gestörter Resonator.} \end{cases} \quad (1)$$

Es wird nun die letzte Gleichung mit \mathbf{E}_0^* und die konjugierte erste Gleichung mit \mathbf{H} multipliziert. Die beiden Ergebnisse werden danach addiert und es ergibt sich die Gleichung:

$$\nabla \cdot (\mathbf{H} \times \mathbf{E}_0^*) = -i\omega \epsilon \mathbf{E} \mathbf{E}_0^* + i\omega_0^* \mu_0^* \mathbf{H} \mathbf{H}_0^* \quad (2)$$

Aus den übrigen zwei Gleichungen des Systems (1) erhält man dann mit Hilfe der gleichen Methode die folgende Gleichung:

$$\nabla \cdot (\mathbf{H}_0^* \times \mathbf{E}) = -i\omega_0^* \epsilon_0^* \mathbf{E}_0^* \mathbf{E} + i\omega \mu \mathbf{H} \mathbf{H}_0^* \quad (3)$$

Schließlich, beim Addieren von (2) und (3) und Integrieren über das Resonatorvolumen, bekommt man das folgende Ergebnis:

$$\iiint_V [\nabla \cdot (\mathbf{H} \times \mathbf{E}_0^*) + \nabla \cdot (\mathbf{H}_0^* \times \mathbf{E})] dV = \iiint_V [(i\omega \epsilon - i\omega_0^* \epsilon_0^*) \mathbf{E}_0^* \mathbf{E} + (i\omega \mu - i\omega_0^* \mu_0^*) \mathbf{H}_0^* \mathbf{H}] dV$$

oder:

$$\oint_S [(\mathbf{H} \times \mathbf{E}_0^*) + (\mathbf{H}_0^* \times \mathbf{E})] dS = \iiint_V [(i\omega \epsilon - i\omega_0^* \epsilon_0^*) \mathbf{E}_0^* \mathbf{E} + (i\omega \mu - i\omega_0^* \mu_0^*) \mathbf{H}_0^* \mathbf{H}] dV$$

Von nun an ist es einfach, alle obengenannten Fälle separat zu betrachten. Es wird der rechte Teil des letzten Integrals entsprechend analysiert, und der linke Teil wird in den drei obengenannten Fällen transformiert zu:

$$1) -\oint_{\Delta S} \mathbf{H} \times \mathbf{E}_0^* dS$$

$$2) \oint_S Z \cdot \mathbf{H}_0^* \cdot \mathbf{H}_\tau dS, \quad \text{wobei } \mathbf{H}_\tau \text{ eine tangentielle Komponente des Magnetfeldes}$$

und Z die Oberflächenimpedanz ist.

$$3) \text{ Null.}$$

Schließlich bekommt man unter der Bedingung, daß $\mathbf{E} \approx \mathbf{E}_0$ und $\mathbf{H} \approx \mathbf{H}_0$ die drei Ergebnisse:

$$\frac{\omega - \omega_0}{\omega} \approx \frac{\iiint_V (\mu |H_0|^2 - \epsilon |E_0|^2) dV}{\iiint_V (\mu |H_0|^2 + \epsilon |E_0|^2) dV} \quad (4),$$

$$\omega - \omega_0 \approx \frac{i \iint_S Z |H_0|^2 dS}{\iiint_V (\mu |H_0|^2 + \epsilon |E_0|^2) dV} \quad (5),$$

$$\frac{\omega - \omega_0}{\omega} \approx - \frac{\iiint_V (\Delta\mu |H_0|^2 + \Delta\epsilon |E_0|^2) dV}{\iiint_V (\mu |H_0|^2 + \epsilon |E_0|^2) dV} \quad (6),$$

wobei der Nenner $W = \iiint_V (\mu |H_0|^2 + \epsilon |E_0|^2) dV$ in (4),(5),(6) proportional zu der Energie des elektromagnetischen Feldes im Resonator ist.

Diese Formeln sind für den Fall geschlossener Mikrowellenresonatoren hergeleitet. Sie können trotzdem auch für die Berechnung der Resonatorfrequenz und der Güte von Resonatoren anderer Geometrien benutzt werden. Alle Gleichungen sind sogar exakt, wenn dieser Resonator, z.B. ein Helixresonator, sich in einem relativ großem Gehäuse befindet. In diesem Fall muß man nur die ganzen Integrationen über das volle Volumen des Gehäuses durchführen.

Im weiteren wird Formel (6) nicht benutzt, da sie für Resonanzmessungen an dielektrischen Substanzen geeignet ist, die nicht in dieser Arbeit untersucht wurden.

Nun betrachten wir die Gleichung (5). Da allgemein die Frequenz als eine komplexe Variable $\omega^* = \omega_{Re} + \frac{i\omega_{Re}}{2Q}$ dargestellt werden kann und die Oberflächenimpedanz $Z = R + iX$ ist, kann Formel (5) wie folgt transformiert werden:

$$\omega_{Re} - \omega_0 \approx - \frac{\iint_S X |H_0|^2 dS}{2 \iiint_V \mu |H_0|^2 dV}, \text{ und}$$

$$\frac{\omega_0}{Q} \approx \frac{\iint_S R |H_0|^2 dS}{\iiint_V \mu |H_0|^2 dV},$$

und dann unter der Bedingung, daß die Probe homogen ist:

$$\omega_{Re} - \omega_0 = X/k, \quad \omega_0/2Q = R/k, \quad (7)$$

wobei k eine geometrische Konstante ist, die gleich in beide Formeln eingeht und als:

$$k = \frac{\iint_S |H_0|^2 dS}{\iiint_V \mu |H_0|^2 dV}$$

definiert ist. k wird oft als Resonatorkonstante bezeichnet.

Es ist möglich, daß in einem Resonator mit einer komplizierten Feldgeometrie die Konstante k nicht oder nicht genau berechnet werden kann. Trotzdem kann man in dieser Situation mit Hilfe der Gl.(7) das exakte Verhältnis zwischen R und X bekommen.

3.2.2 Resonatorgeometrien bei Messungen der Oberflächenimpedanz von Blei.

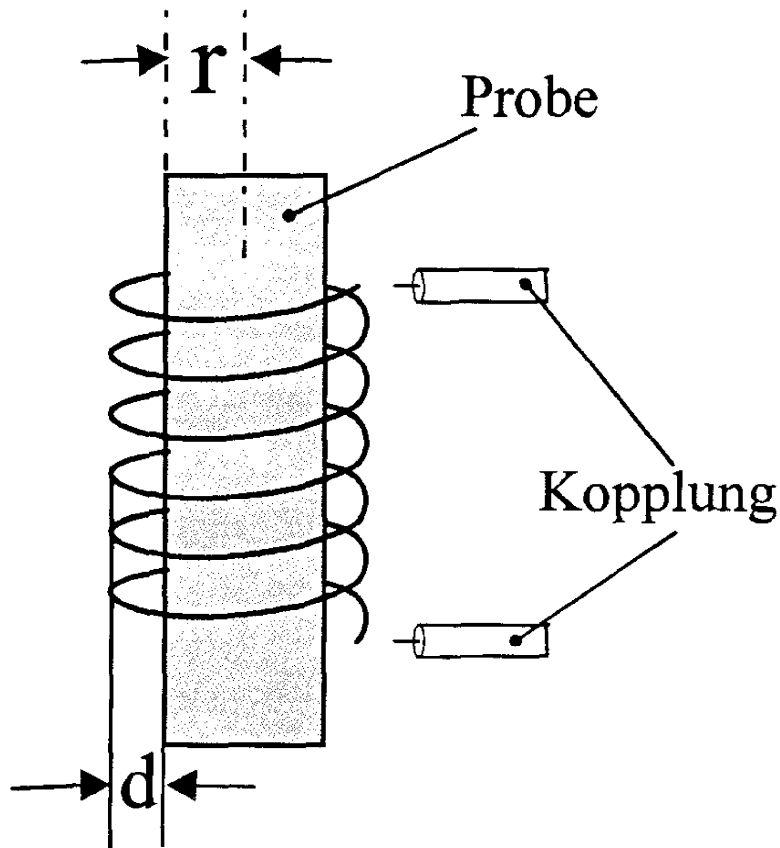


Abbildung 3.1 Schematische Darstellung des Resonatoraufbaus.

Eine Geometrie, die bei $\nu \leq 1\text{GHz}$ benutzt wurde, ist in Abb.3.1 dargestellt. Um das Verhältnis zwischen der Probenimpedanz und den Resonanzparametern zu finden, wurde die Formel (5) benutzt. Als ungestörten Resonator verwendet man in diesem Fall einen Resonator mit einer ideal supraleitenden Probe, das heißt einer Probe, bei der $R = X = 0$. Alle Messungen haben dann als einen Referenzpunkt, die Resonanzparameter dieser Probe.

Das elektromagnetische Feld innerhalb der Spule kann näherungsweise als gleichmäßiges Magnetfeld H_0 beschrieben werden. Dann sind die in Gl.5 vorgenommenen Integrationen einfach und führen zum Ergebnis:

$$Z = \frac{v - v_0}{i} 2\pi\mu_0 d \left(1 + \frac{d}{2r}\right) \quad (8)$$

Die Berechnungen müssen leicht geändert werden, wenn der Abstand d viel kleiner als der Probenradius (r) und der Radius des Kupferdrahtes ist. In diesem Fall kann die Meßgeometrie besser als Strip-Line-Resonator beschrieben werden. Die endgültige Formel aufgrund Gl.5 sieht aber gleich aus:

$$Z = \frac{v - v_0}{i} 2\pi\mu_0 d \quad (d \ll r).$$

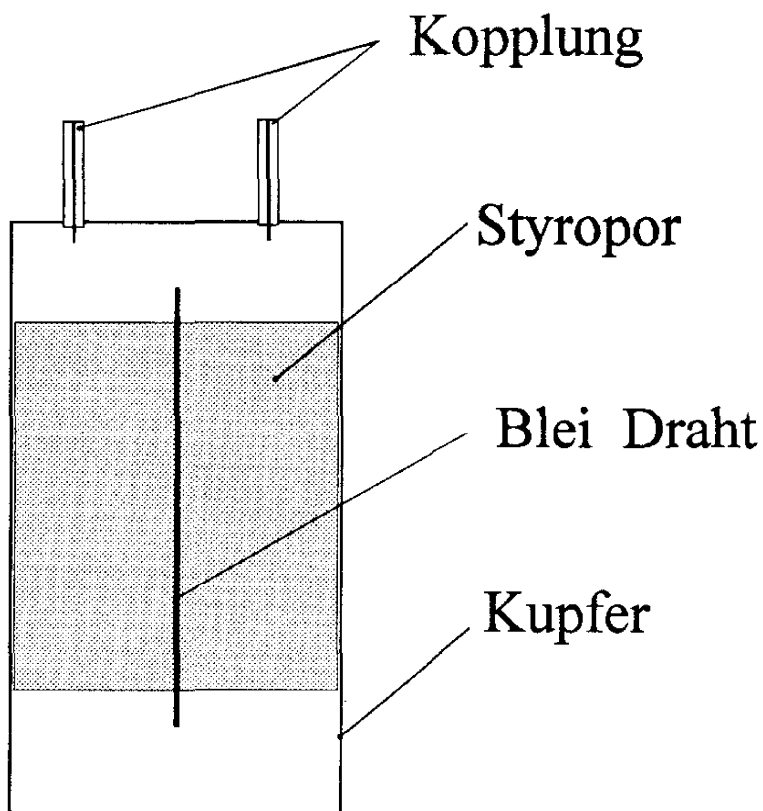


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung des Aufbau beim 2GHz Experiment (Koaxialresonator).

Bei Messungen der Eigenschaften von Blei bei 2 GHz wurde eine andere Resonatorgeometrie gewählt (Abb.3.2). Die Probe ist in diesem Fall ein Stück reinen (99.999%) Bleidrahts und befindet sich in einem Rohr aus Kupfer. Die kapazitive Kopplung (zwischen Resonator und Meßkreislauf !) wird mit Hilfe von zwei Koaxialkabeln erreicht. Die gleiche Geometrie wurde schon 1959 bei Pippard [Pip50] benutzt, um die Oberflächenimpedanz des Zinn zu messen. Damals wurden zur Berechnung der Resonatorkonstante k die DC Leitfähigkeitsdaten und die klassische Skin-Effekt-Theorie verwendet. (siehe auch [Fab55])

Es ist aber möglich, diese Konstante direkt mit Hilfe von Gl.5 auszurechnen: das magnetische Feld hat in dieser Geometrie eine axiale Symmetrie und ist umgekehrt proportional zum Radius: $H \sim 1/r$. Nach allen Integrationen bekommt man:

$$Z = \frac{\nu - \nu_0}{i} 2\pi\mu_0 d \ln\left(\frac{R}{r}\right),$$

wobei R und r die Radien des Kupferrohrs bzw. des Bleidrahts sind.

3.2.3 Betrachtung zu Experimenten an $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.8}$

Der vereinfachte Aufbau für die Resonanzmessungen an $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.8}$ ist in der Abb.3.3 dargestellt. Der Helixresonator ist eine Spule aus Kupferdraht, der auf ein Glasrohr gewickelt ist. Die Kopplung des Resonators und des Meßkreises kann entweder induktiv mit Hilfe einer Schlinge (wie in Abb.5.3) oder kapazitiv bei Benutzung des offenen Endes des Koaxialkabels (Abb.5.1) sein.

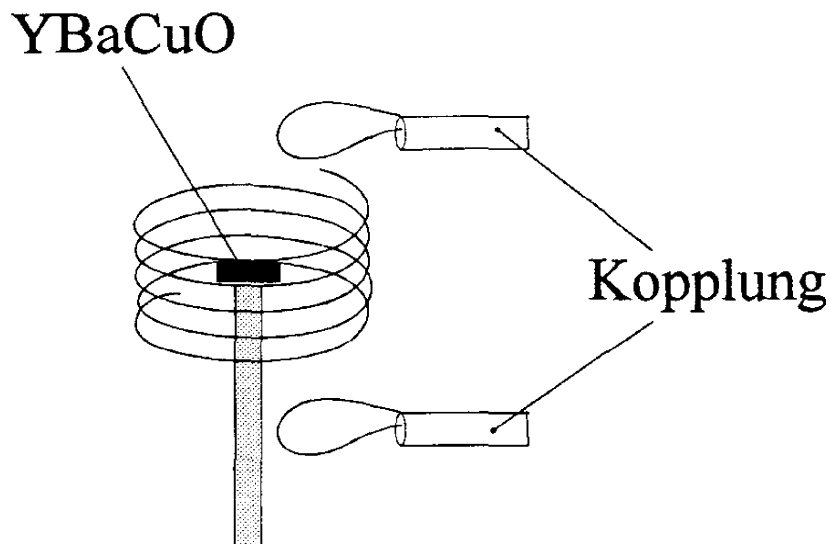


Abbildung 3.3 Aufbau des Helixresonators für YBaCuO Experimente.

Mit Hilfe eines Stabes aus Styropor wird die Probe entweder innerhalb oder außerhalb der Spule angebracht. Das Resonanzverhalten dieses Aufbaus kann durch Gl.4,5 beschrieben werden.

Die wichtigste Unterschied zwischen YBaCuO - und Blei-Resonatorgeometrien ist, im letzten Fall, die komplizierte Feldgeometrie in der Nähe der Probe. Deswegen ist es sehr diffizil, wenn überhaupt möglich, mit Hilfe der Formeln 4 und 5, wie es in Kap.3.2.2 gemacht wurde, das Verhältnis zwischen der

Oberflächenimpedanz und den Resonatorparametern zu finden. Um diese Schwierigkeiten zu übergeben, wurden drei verschiedene Methoden vorgeschlagen:

I. Direkte Methode. Ellipsoidnäherung.

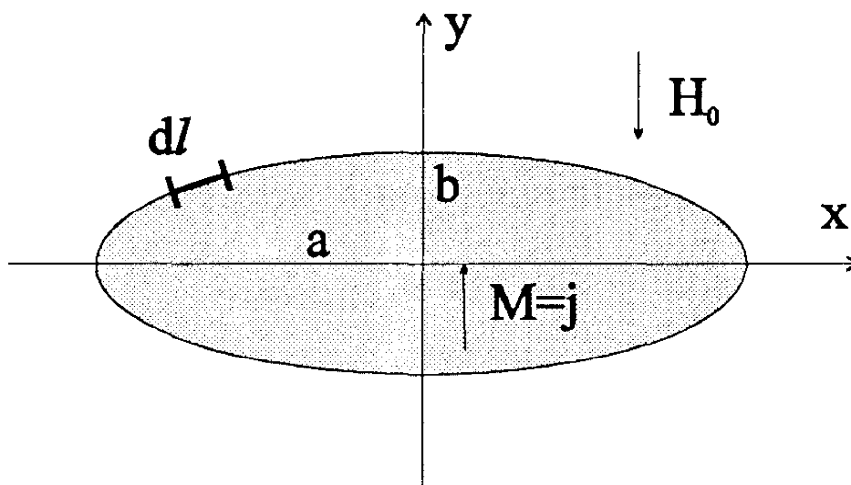
Es wird angenommen, daß das magnetische Feld in der Nähe der Probe homogen ist und die Probe als ein Rotationsellipsoid beschrieben werden kann, wobei die Halbachsen des Ellipsoids a und b als die effektiven Probengrößen r_{eff} , $d/2$ angenommen werden können, wobei d die Dicke der Probe ist und r_{eff} der effektive Probenradius. Damit ergibt sich:

$$r_{\text{eff}} = \sqrt{\frac{\text{Probenoberfläche}}{\pi}}$$

Von nun an ist es möglich, das magnetische Feld ortsabhängig zu beschreiben und die entsprechenden Integrale der Formel (5) auszurechnen. Es ist aber einfacher, in dieser ist Näherung direkt die Energieverluste P des Resonators in Abhängigkeit vom Oberflächenwiderstand R_{\square} zu bestimmen und dann die Güte des Resonators:

$$Q = \frac{2\pi\nu_0 W}{P},$$

wobei W die akkumulierte Energie im Resonator ist. Die Oberflächenreaktanz X_{\square} kann danach mit der Formel (7) gefunden werden.



Die Magnetisierung (M) eines Ellipsoids im homogenen Magnetfeld (H_0) ist ebenfalls homogen, und das resultierende Feld innerhalb des metallischen oder

supraleitenden Ellipsoids verschwindet, solange die Eindringtiefe nicht zu groß im Vergleich zur Probengröße ist. In diesem Fall kann an der Oberfläche fließende Strom wie folgt dargestellt werden:

$$dI(y)|_s = dy \cdot M = dy \cdot \frac{H_0}{2N} \quad ,$$

wobei N der Entmagnetisierungsfaktor eines rotationssymmetrisches Ellipsoids ist [Wes 27]:

$$N = \frac{2\pi}{\text{tg}^2\alpha} \left[\frac{2\alpha}{\sin(2\alpha)} - 1 \right] \quad , \quad \alpha = \arccos(b/a),$$

Für $b \ll a$ kann der letzte Ausdruck vereinfacht werden:

$$N \approx \frac{\pi b}{2a}$$

Dann werden die Energieverluste über die gesamte Oberfläche integriert:

$$\begin{aligned} P &= \iint dP = \iint (dI)^2 \cdot R_0 dS = \int_{-b}^b \left(\frac{H_0}{2N} \right)^2 R_0 \frac{2\pi x}{dl} (dy)^2 = \\ &= \left| \begin{array}{l} dl^2 = dx^2 + dy^2 \\ \frac{x^2}{a^2} + \frac{y^2}{b^2} = 1 \\ b \ll a \end{array} \right| = 4\pi R_0 \left(\frac{H_0}{2N} \right)^2 b^2 \ln\left(\frac{2a}{b\sqrt{e}}\right) \end{aligned}$$

Die im Resonator akkumulierte Energie W kann unter der Bedingung des homogenen H_0 als: $W = \frac{\mu_0 H_0^2 V}{2}$ angesetzt werden. (V ist das gesamte Resonatorvolumen). Nach Berechnung der Güte des Resonators sieht das endgültige Ergebnis wie folgt aus:

$$Z_0 = \frac{\mu_0 V}{r_{\text{eff}}^2} \Delta\nu \frac{\pi^2}{\ln\left(\frac{2r_{\text{eff}}}{b\sqrt{e}}\right)} \quad (I)$$

wobei Formeln (7) benutzt wurden und die Frequenz ν in einer komplexen Form angenommen wurde: $\nu = \nu_{\text{Re}} + \frac{i\nu_{\text{Re}}}{2Q}$. Es sei noch darauf hingewiesen, daß der Referenzpunkt in diesem Fall eine ideale Probe ($R=X=0$) ist.

II. Die Kugelnäherung.

Diese Näherungsformel ist eine Vereinfachung der Ellipsoidnäherung. Man nimmt an, daß die Probe das magnetische Feld innerhalb einer Kugel mit dem Radius r_{eff} aufhebt und außerhalb ungestört läßt. Die Veränderung der Resonanzfrequenz wird dann mit Hilfe von Formel (4) ausgerechnet. Es ist zu beachten, daß die ideale Probe das Feld in der Kugel mit dem Radius r_{eff} aufhebt, während die reale Probe dies innerhalb einer effektive Größe $(r_{\text{eff}} - \delta)$ tut. Hierbei ist δ die Eindringtiefe der Probe, definiert als:

$$\delta = \frac{Z}{i\mu_0\omega} = \frac{1}{\sqrt{i\mu_0\omega\sigma}} .$$

Man kann dann mit Hilfe von Formel (4) die entsprechende Volumenänderung in die Oberflächenimpedanz umwandeln:

$$Z_0 = \frac{\mu_0 V}{r_{\text{eff}}^2} \Delta v \frac{1}{4} \quad (\text{II})$$

Wie erwartet, sehen die beiden Näherungsformeln I und II ähnlich aus, die Absolutwerte unterscheiden sich aber etwa um ein Größenordnung. Dem liegt möglicherweise eine zu stark vereinfachte Feldkonfiguration dem zugrunde.

III. Indirekte Näherung.

Die beiden oben beschriebenen Herleitungen nehmen eine ideale Probe als Referenzpunkt. Die Idee der dritten Herleitung ist, stattdessen einen Resonator ohne Probe zu betrachten und Formel (4) zu benutzen. Eine Annahme, die man machen muß und die viel schwächer ist, als dies in II gemachte, ist daß das gestörte Feldvolumen proportional zu $(r_{\text{eff}})^3$ ist. Mathematisch bedeutet das, daß der Zähler in (4) wie folgt dargestellt werden kann:

$$\frac{\Delta v_0}{v} = \frac{\iiint H_0^2 dV}{\iiint_v H_0^2 dV} = A \cdot r_{\text{eff}}^3 ,$$

wobei A eine Konstante (Einheit - cm^{-3}) ist, die in II als $\frac{4\pi}{3V}$ angenommen wurde und die nun experimentell bestimmt werden muß. Dann bekommt man für die nichtideale Probe eine ähnlicher Gleichung:

$$\frac{\Delta v_0}{v} = A \cdot (r_{\text{eff}} - \delta)^3$$

Ein Vergleich der beiden Ergebnisse ergibt:

$$\frac{\Delta v_1}{\Delta v_0} = \left(1 - \frac{\delta}{r_{\text{eff}}}\right)^3 \approx 1 - \frac{3\delta}{r_{\text{eff}}}$$

und mit $Z_{\square} = 2\pi\mu_0 v \delta$

$$Z_{\square} = \frac{2\pi\mu_0 v_0 r_{\text{eff}}}{3} \frac{\Delta v_0 - \Delta v}{\Delta v_0} \quad (\text{III})$$

Da der Herleitung von Gleichung III viel schwächere Näherungen zugrunde liegen, wurde sie als Arbeitsformel beim Auswerten der YBaCuO Daten verwendet. Wenn man die Formel I benutzen würde, wären die Ergebnisse im wesentlichen gleich. Die Formel II dagegen ergibt zu niedrige Impedanzen.

Kapitel 4

Theoretische Grundlagen

4.1 Bearbeitung der Daten von supraleitenden Proben.

Nach der BCS - Theorie [Bar 57] läßt sich die elektromagnetische Antwort eines Supraleiters durch die folgende Formel ausrechnen [Gin 69]:

$$\mathbf{j}(\mathbf{r}, t) = \frac{e^2 N(0) v_0}{2\pi^2 \hbar c} \exp(i\omega t) \int \frac{\mathbf{R} [\mathbf{R} \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}')] I(\omega, \mathbf{R}, T) \exp(-R / \ell)}{R^4} d\mathbf{r}' \quad (1)$$

wobei $\mathbf{j}(\mathbf{r}, t)$ - Stromdichte

$N(0)$ - Zustandsdichte an der Fermikante

v_0 -Fermi Geschwindigkeit,

ℓ - Freie Weglänge der Elektronen,

$\mathbf{R} = \mathbf{r} - \mathbf{r}'$

und \hbar, c, e die übliche Bedeutung haben.

Die nichtlokalen Effekte sind mit der Funktion $I(\omega, \mathbf{R}, T)$ zu beschreiben. Diese Funktion ersetzt Pippards [Pip 53] empirischen Wert $\exp(-R/\xi_0)$, wobei $\xi_0 = \hbar v_0 / \pi \Delta$ die Kohärenzlänge ist, und hat die gleiche charakteristische Ortsabhängigkeit.

Diese komplexe Integralgleichung läßt sich in zwei wichtigen Fällen relativ einfach ausrechnen, nämlich erstens wenn $\ell \ll \xi_0$ (lokal limit) und zweitens wenn $\lambda \ll \xi_0$ (extrem anomalous limit) ist. In beiden Grenzfällen ändert sich die Funktion $I(\omega, \mathbf{R}, t)$ relativ langsam als Funktion der Ortes und man kann sie durch den Wert

$I(\omega, 0, T)$ ersetzen. Dann sieht das Verhältnis zwischen der supraleitenden und normalen Leitfähigkeit wie folgt aus:

$$\frac{\sigma_s^*}{\sigma_N} = \frac{I(\omega, 0, T)}{-i\pi\theta\omega}$$

Die exakten Integrale wurden von Mattis und Bardeen [Mat 58] ausgerechnet. Mit Hilfe der Resonanzmethoden kann man aber nicht direkt die komplexe Leitfähigkeit messen. Der Wert, der im Experiment gefunden werden kann, ist die komplexe Oberflächenimpedanz: $Z^* = R + iX$. Im lokalen Grenzfall folgt aus den Maxwellgleichungen das Verhältnis zwischen der Impedanz und der Leitfähigkeit:

$$\frac{Z_s}{Z_N} = \left(\frac{\sigma_s^*}{\sigma_N} \right)^{-1/2}$$

In dem extrem anomalen Grenzfall leitet man die folgende Gleichung her:

$$\frac{Z_s}{Z_N} = \left(\frac{\sigma_s^*}{\sigma_N} \right)^{-1/3}$$

Sowohl lokaler als auch extrem anomaler Grenzfall werden bei Auswertung der in dieser Arbeit vorgestellten Messungen benutzt: der lokale Grenzfall ist für die Auswertung der $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ -Daten brauchbar, und der anomale Grenzfall für die Auswertung der Daten von Blei.

Blei, im normalen Zustand bei 10 K, ist ein gutes Beispiel für den anomalen Skineffekt. Für reines Blei ist eine elektronische freie Weglänge von $\sim 6 \mu\text{m}$ zu erwarten [LB 82], während bei 1GHz die bei normalen Skineffekt zu erwartende Eindringtiefe $\sim 0.2 \mu\text{m}$ ist. Das heißt, daß im normalleitenden Zustand die Ungleichung $\ell \gg \delta$ korrekt ist und nichtlokale Effekte gut sichtbar sein sollen. Es gibt zwei Effekte, die bei Experimenten an Blei zu überprüft werden können:

1) Es ist möglich zu überprüfen, ob sich der Oberflächenwiderstand entweder gemäß der Lokalen Formel:

$$Z^* = \sqrt{\frac{i\mu_0\omega}{\sigma^*}},$$

oder gemäß der nichtlokalen Formel

$$Z^* = \left(-\frac{\mu_0^2 \omega^2 \ell}{a\sigma^*} \right)^{1/3}$$

verhält.

2) Beim Messen des Imaginärteils des Widerstandes sollte man im nichtlokalen Fall $X_N \approx \sqrt{3} R_N$ erhalten. Die lokale Gleichung liefert hingegen $X \approx R$. Es ist zu beachten, daß das Meßverfahren nur zuläßt den relativen Wert von X zu messen, und zwar: $X - X(T=0)$. Es gibt eine gewisse Ungenauigkeit beim Ausrechnen des $X(T=0)$ Wertes. Wenn aber $X(T=0)$ in unserem Frequenzbereich knapp 10 mal kleiner ist als X im normalleitenden Zustand, dann bedingt sogar der große Fehler beim Ausrechnen von $X(T=0)$ nur eine relativ geringer Ungenauigkeit der gesamten Reaktanz X .

4.2 Supraleitendes Blei und Frequenzabhängigkeit der Kohärenzlänge

Während in normalleitendem reinem Blei bei Temperaturen des flüssigen He die nichtlokalen Effekte relativ einfach zu sehen sind, ist die ganze Betrachtung viel komplizierter im supraleitendem Zustand. Es gibt dafür zwei Gründe:

1) Die BCS Theorie für Supraleiter [Bar 57] betrachtet nur den Fall schwacher Elektron-Phonon Kopplung. Blei hat aber eine Elektron-Phonon Kopplungskonstante $\alpha \sim 1$, was nicht mehr als klein betrachtet werden kann. Das heißt, daß die Theorie nur als eine erste Näherung genommen werden kann.

2) In Blei ist bei $T=0$ und $\omega=0$ die effektive Kohärenzlänge ξ_0 etwa 800\AA und die Eindringtiefe $\lambda_0 \sim 500\text{\AA}$. Das bedeutet, daß das Verhältnis ξ_0/λ weder im Bereich für anomale noch für lokale Effekte liegt. Unten wird gezeigt, daß der extrem anomale Grenzfall des normalleitenden Bleis im normalen Zustand eine gewisse "Verlängerung" in die supraleitende Phase hat.

Aufgrund der BCS-Theorie ist die charakteristische Kohärenzlänge im Supraleiter mit Hilfe der Funktion $I(\omega, R, T)$ gegeben ist, die in der Strom-Feld-Gleichung (1) benutzt wird. Ein Ausdruck ist für $I(\omega, R, T)$ in der Theorie [Gin 69] wie folgt gegeben:

$$\begin{aligned}
 I(\omega, R, T) = & -\pi i \int_{\Delta - \hbar\omega}^{\Delta} [1 - 2f(E + \hbar\omega)] [g(E) \cos(\alpha\varepsilon_2) - i \sin(\alpha\varepsilon_2)] \exp(i\alpha\varepsilon_1) dE - \\
 & -\pi i \int_{\Delta}^{\infty} [1 - 2f(E + \hbar\omega)] [g(E) \cos(\alpha\varepsilon_2) - i \sin(\alpha\varepsilon_2)] \exp(i\alpha\varepsilon_1) - \\
 & - [1 - 2f(E)] [g(E) \cos(\alpha\varepsilon_1) + i \sin(\alpha\varepsilon_1)] \exp(-i\alpha\varepsilon_2) dE
 \end{aligned} \tag{2}$$

wobei ε_1 und ε_2 die Energien des normalleitenden Zustands sind, die den Zuständen E , beziehungsweise $E + \hbar\omega$ entsprechen:

$$\varepsilon_1 = (E^2 - \Delta^2)^{1/2} \quad \varepsilon_2 = ((E + \hbar\omega)^2 - \Delta^2)^{1/2}$$

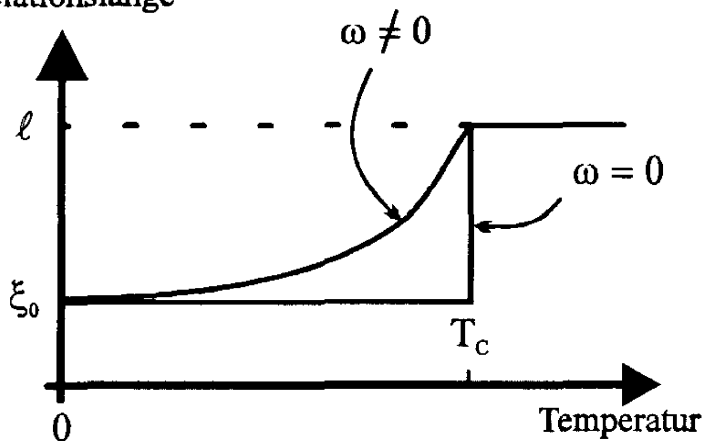
$$g(E) = (E^2 + \Delta^2 + \hbar\omega E) / \varepsilon_1 \varepsilon_2$$

$$\alpha = R / \hbar v_0$$

Diese Integralgleichungen sind zwar kompliziert, es ist aber bekannt, daß es unter der Bedingungen $\omega \rightarrow 0$ eine fast temperaturunabhängige Näherung gibt, nämlich: $\exp(-R/\xi_0)$.

Es ist schon an diese Stelle bemerkbar, daß bei $\omega \rightarrow 0$ die charakteristische Kohärenzlänge des Supraleiters unstetig ist, nämlich im supraleitenden Zustand gleich ξ_0 ist, sogar bei $T \rightarrow T_c - 0$, und im normalen Zustand gleich der freien Weglänge ℓ , sogar bei $T \rightarrow T_c + 0$.

Korrelationslänge



Wir wollen das Hauptverhalten des Integrals $I(\omega, R, T)$ auswerten, wenn die Frequenz zwar ungleich null, aber noch sehr klein ist. Wir nehmen auch an, daß die Temperatur in der Nähe von T_c ist. Beide Bedingungen bedeuten, daß:

$$\hbar\omega \ll \Delta \ll kT_c \quad \text{und} \quad T \sim T_c.$$

Damit kann der erste Integral in $I(\omega, R, T)$ vernachlässigt werden, weil das Integrationsintervall sehr kurz ist und der Term $[1 - 2f(E + \hbar\omega)]$ wie folgt genähert werden kann:

$$[1 - 2f(E + \hbar\omega)] \sim (\Delta + \hbar\omega) / kT \sim 0$$

Der zweite Term hat bei $E \gg \Delta$ die folgende asymptotische Näherung:

wenn $g(E)|_{E \rightarrow \infty} \sim 1$ und $(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)|_{E \rightarrow \infty} \sim \hbar\omega$, dann gilt:

$$I_2|_{E \rightarrow \infty} \sim \int_{E_\infty}^{\infty} \{ [1 - 2f(E + \hbar\omega)] \exp[i\alpha(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)] - [1 - 2f(E)] \exp[i\alpha(\varepsilon_1 - \varepsilon_2)] \} dE \sim \int_{E_\infty}^{\infty} 2 \frac{\partial f(E)}{\partial E} \hbar\omega \exp(-i\hbar\omega\alpha) = \hbar\omega \exp(-i\hbar\omega\alpha) 2f(E_\infty) \quad (3)$$

wobei E_∞ bedeutet, daß uns nur der Teil des Integrales bei großen E interessiert. Typischerweise muß E_∞ viel größer als Δ werden. Das Ergebnis (3) ist einfach ein Rest des gesamten Integrales (2) im normalleitendenem Zustand ($\Delta=0$) multipliziert mit einer Funktion $2f(E_\infty)$. Diese Funktion ist null im reinen supraleitenden Zustand ($T=0$) und eins im normalleitenden Zustand. Das heißt, daß bei $\omega \neq 0$ und $T \rightarrow T_c$ in der Korrelationsfunktion des Supraleiters ein gewisser Anteil wächst, der die gleiche Ortsabhängigkeit $[\exp(-i\hbar\omega\alpha)]$, wie normale Elektronen hat.

Um die oben genannten Effekte genauer zu beschreiben, wurde das Integral numerisch berechnet.

Es muß vorher gesagt werden, daß es nicht korrekt wäre, die charakteristische Kohärenzlänge des Supraleiters als:

$$\xi_1 = \frac{1}{I(0)} \int_0^{\infty} I(R) dR$$

zu definieren. Das kann man beim Analysieren des Ausdrucks (3) zeigen, der eine Ortsabhängigkeit wie $\exp(i\hbar\omega\alpha) = \exp\left(\frac{i\hbar\omega R}{\pi\Delta \xi_0}\right)$ hat. Beim Integrieren wird dieses

Term nicht in Betracht gezogen, obwohl er einen gewissen korrelierten Anteil des elektrischen Strom beschreibt. Es ist besser, unter der charakteristischen Länge den Wert:

$$\xi_2 = \frac{1}{|I(0)|} \int_0^{\infty} |I(R)| dR \quad ,$$

oder bei einer nicht unendlich großen freien Weglänge der Elektronen:

$$\xi_3 = \frac{1}{|I(0)|} \int_0^{\infty} |I(R)| \exp(-R/\ell) dR \quad (4)$$

zu verstehen. Bei Temperaturen, die weit entfernt von T_c sind, gilt:

$$\xi_1 \approx \xi_2 \approx \xi_0,$$

und bei $T \rightarrow T_c$ divergiert ξ_2 . Im letzten Fall ist die gesamte charakteristische Länge ξ_3 wegen des Ausdrucks $\exp(-R/\ell)$ einfach ℓ .

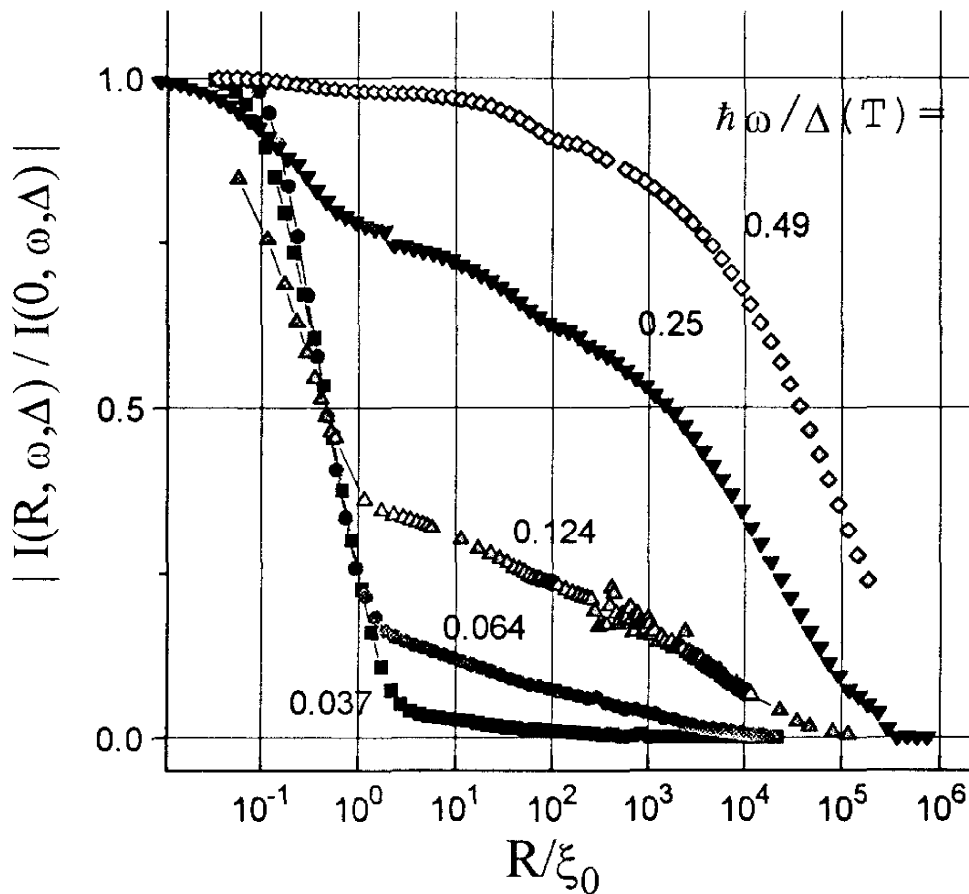


Abbildung 4.1 Relative Amplitude der *range-function* $I(R, \omega, \Delta)$ aus der BCS-Theorie gegen die normierte Ortskoordinate R/ξ_0 . Die Berechnungen werden bei $\hbar\omega/\Delta(0) = 0.034$, entsprechend ~ 10 GHz für Blei, bei Temperaturen $1-T/T_c = \{ 0.41; 0.1; 0.025; 0.0064; 0.0016 \}$ ausgewertet. Die Zahlen bezeichnen die dazugehörigen Werte von $\hbar\omega/\Delta(T)$. Für $R/\xi_0 < 1$ verhält sich die Funktion wie das Exponentialgesetz $\sim \exp(-R/\xi_0)$. Die bei größeren R/ξ_0 wachsenden Abweichungen sind deutlich zu erkennen.

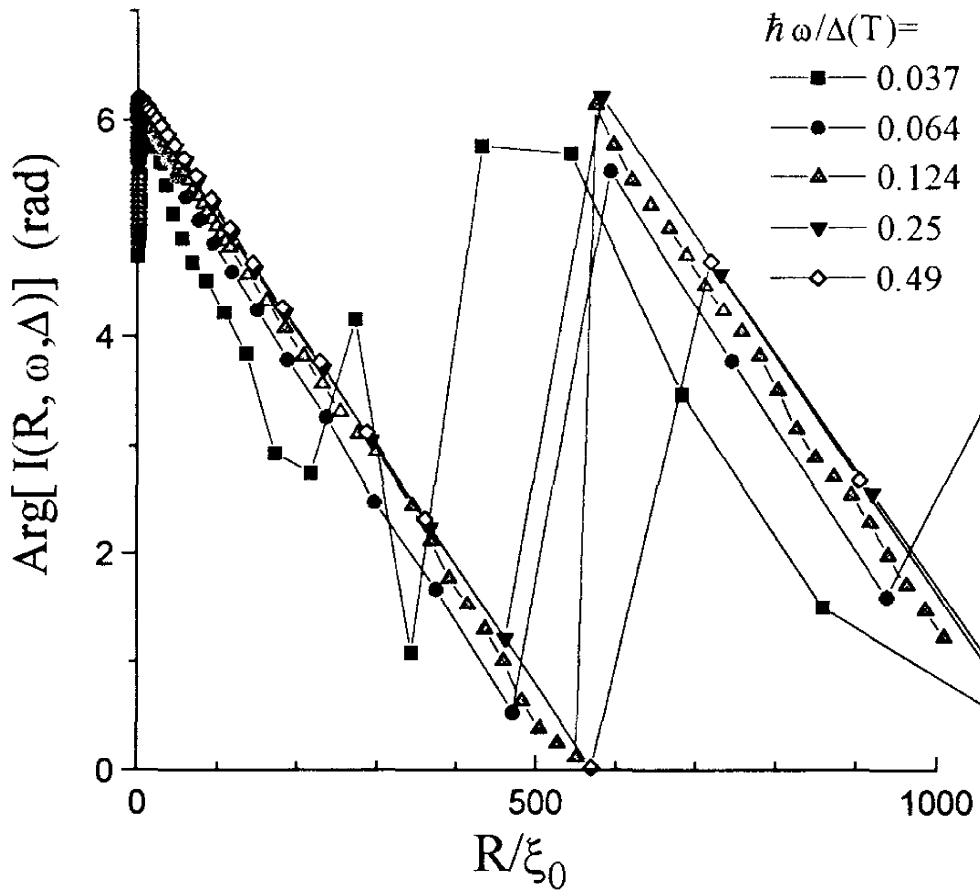


Abbildung 4.2 Phase der BCS *range-function* $I(R, \omega, \Delta)$ gegen normierte Ortskoordinate R/ξ_0 . Alle Parametern sind gleich zu der Abb.4.1:

$$\hbar\omega/\Delta(0) = 0.034, (\sim 10 \text{ GHz für Blei})$$

$$1-T/T_C = \{ 0.41; 0.1; 0.025; 0.064; 0.0016 \}$$

Die lineare Ortsskala ist zu beachten. Der Abfall der Phase entspricht dem bei großen R/ξ_0 im $I(R, \omega, \Delta)$ existierenden Faktor: $\exp(-i\hbar\omega\alpha)$, wobei $\alpha=R/\hbar v_0$ (vgl. Gl.3).

Als Beispiel zeigen Abb.3.1,3.2 die berechnete Ortabhängigkeit der Funktion $I(\omega, R, T)$ bei verschiedenen Temperaturen $1-T/T_C = \{ 0.41; 0.1; 0.025; 0.064; 0.0016 \}$, entsprechend :

$$\frac{\hbar\omega}{\pi\Delta(0)} = 0.034, \text{ und } \frac{\hbar\omega}{\pi\Delta(T)} = \{0.037; 0.064; 0.124; 0.25; 0.49\}$$

Bei kleinsten Temperaturen verhält sich $I(\omega, R, T)$, erwartungsgemäß, fast wie eine Exponentialfunktion $\exp(-R/\xi_0)$. Ein gewisser Teil dieser Exponentialfunktion kann bei $R < \xi_0$ fast bei jeder Temperatur gesehen werden. Wenn die Temperatur zunimmt, wird der Exponentielle Anteil kleiner, in Gegenteil dazu steigt der oszillierende Anteil (Gl.3) des Integrals. Die Ortabhängigkeit dieses Anteils entsprechen in der ersten Näherung dem Wert $A(R)\exp(-i\omega R/v_0)$. Hier ist die $A(R)$ eine langsame fenomenologische Funktion von R wie man aus den Abbildungen sehen kann. Das heißt, daß die gesamte Funktion $I(R, \omega, T)$ als:

$$I \sim \{ [1 - A(R, \omega)] \cdot \exp(-R/\xi) + A(R, \omega) \cdot \exp(-i\omega R/v_0) \}$$

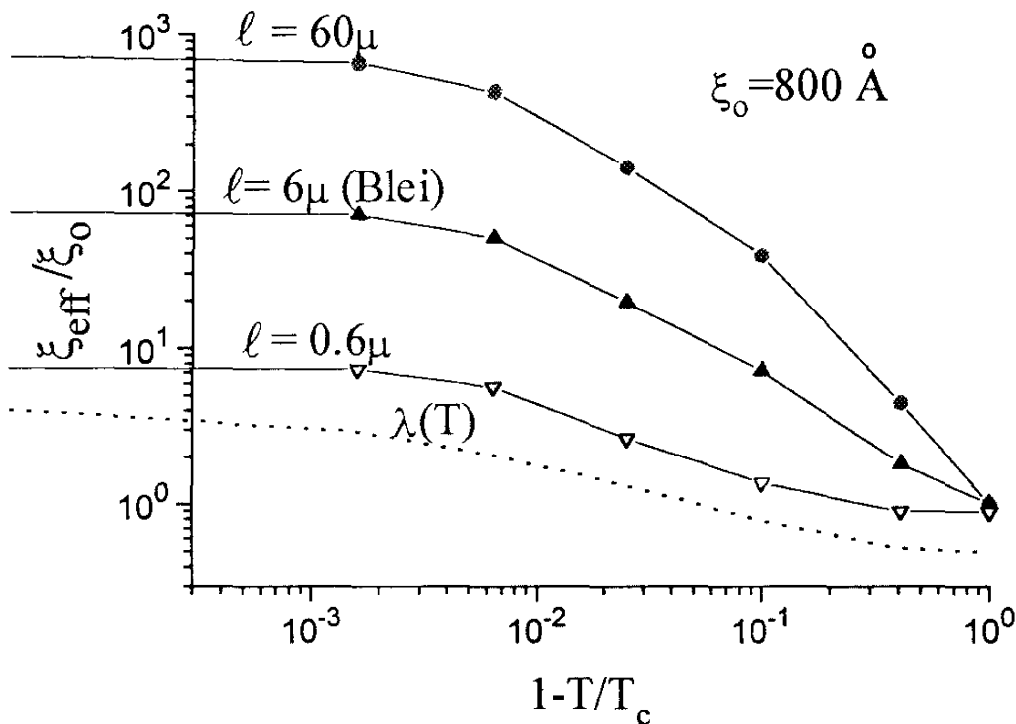


Abbildung 4.3 Temperaturabhängigkeit der mit Hilfe von Gl.4 und Abb.4.1 berechneten effektiven Kohärenzlänge. Die Punktlinie bezeichnet die nach der BCS-Theorie zu erwartende Eindringtiefe $\lambda(T)$. Es ist zu beachten, daß für supraleitendes Blei und $(1-T/T_c) < 0.1$ (ebenso wie im normalen Zustand) der anomale Grenzfall eine gute Näherung darstellt, da in den Bereich immer $\xi_{\text{eff}} \ll \lambda$ gilt.

geschrieben werden kann, und die gesamte charakteristische Länge ist nun:

$$\xi^{\text{ges}} \sim \xi_0 + A(\omega, T)\ell,$$

wobei $A \sim 0.1$ bei $(1-T/T_c) \sim 0.1$ ist.

Diese Betrachtungen lassen den Schluß zu, daß die effektive Temperaturabhängigkeit der charakteristischen Kohärenzlänge in der Nähe von T_c bei nicht unendlich kleinen Frequenzen ein Argument zur Benutzung des extrem nichtlokalen Grenzfalles liefert. Von nun an kann die Formel für den anomalen Skineffekt nicht nur im normalen Zustand benutzt werden, sondern auch teilweise im supraleitenden Zustand, nämlich bei $1-T/T_c \leq 0.1$.

Kapitel 5

Meßergebnisse

5.1. Messergebnisse. La_2CuO_4 , $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$.

5.1.1 Einleitung

Seit der Entdeckung der Supraleitung in $(\text{La,Ba})_2\text{CuO}_4$ durch Bednorz und Müller [Bed 86], sind die oxidischen Hochtemperatursupraleiter immer noch Gegenstand intensiver Forschung. Ziele dieser Bemühungen sind einerseits, mögliche technische Anwendungen, zum Beispiel in der Mikroelektronik, zu realisieren. Andererseits ist der Mechanismus der Hochtemperatursupraleitung noch nicht verstanden, obwohl eine nicht zu überschauende Anzahl experimenteller und theoretischer Arbeiten auf diesem Gebiet veröffentlicht wurde.

$(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_{4+\delta}$ ist trotz der relativ geringen Übergangstemperatur (≤ 45 K) einer der am meisten untersuchten Hoch- T_c -Supraleiter. Er zeichnet sich im Vergleich zu anderen Oxid-supraleitern durch eine relativ einfache perovskitähnliche Kristallstruktur aus und kann unterschiedlich dotiert werden [Phi 89]. Anstelle von Strontium können auch andere Erdalkali- oder Alkalimetalle (Ba, Ca, Na, K,...) auf den Lanthanplatz der Ausgangssubstanz dotiert werden. Weiterhin ist die Einlagerung von zusätzlichem Sauerstoff auf Zwischengitterplätzen möglich. Stöchiometrisches La_2CuO_4 ist, wie auch die Ausgangssubstanzen aller anderen oxidischen Supraleiter, ein antiferromagnetischer Isolator. Durch Dotierung wird die Ladungsträgerkonzentration in der CuO_2 Ebene erhöht. Dies führt zu einer Unterdrückung der antiferromagnetischen Ordnung, und das System wird ab einer bestimmten Konzentration supraleitend. Im überdotierten Bereich verhält sich

$(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_{4+\delta}$ metallisch. Die mit Sauerstoff angereicherten Proben haben besonderes Interesse geweckt, da es in diesem Fall möglich ist, durch Tempern eines Kristalls unter verschiedenen Bedingungen die Sauerstoffkonzentration zu variieren und somit den gleichen Kristall mit einer unterschiedlichen Ladungsträgerdichte in der CuO_2 Ebene zu untersuchen.

Das Studium der elektronischen Struktur der CuO_2 Ebenen der undotierten Ausgangssubstanzen ist für das Verständnis der Hochtemperatursupraleitung von entscheidender Bedeutung. Um diese zu untersuchen, bieten sich zum einen die optische Spektroskopie, zum anderen Leitfähigkeitsmessungen an. Mittels optischer Spektroskopie findet man die niedrigste elektronische Anregung in La_2CuO_4 bei 1.6-2eV. Diese Anregung entspricht einem Übergang vom O 2p zum Cu 3d Band. In der dc-Leitfähigkeit liegt die thermische Aktivierungsenergie dagegen nur bei ≈ 30 meV. Bei tiefen Temperaturen sind die Zustände lokalisiert, und die Temperaturabhängigkeit der dc-Leitfähigkeit kann durch das *Variable-Range-Hopping* Modell beschrieben werden.

Im Gegensatz dazu gibt es auf dem Gebiet der ac-Leitfähigkeit nur wenige Arbeiten, die sich zudem teilweise widersprechen. Leitfähigkeitsmessungen im Mikrowellenbereich [Rea 89] ergaben eine extrem hohe effektive Masse und eine ungewöhnlich große Dielektrizitätskonstante. Dagegen folgt aus Messungen im Radiofrequenzbereich [Che 89, Lun 92], daß die dielektrischen Eigenschaften von La_2CuO_4 dem Verhalten eines konventionellen Halbleiters mit geringer Dotierung entsprechen. Für die ac-Leitfähigkeit erhält man in der Frequenzabhängigkeit ein Potenzgesetz $\sigma_{ac} \sim \omega^s$ mit $s < 1$ [Che 91, Lun 92], welches charakteristisch für Hüpflleitfähigkeit ist. Allerdings besteht Unklarheit über die Temperaturabhängigkeit des Exponenten s und damit auch über den Ladungstransportmechanismus. Chen et. al. [Che 91] erhalten für beide kristallographische Achsen eine starke Temperaturabhängigkeit des Exponenten. Die ac-Leitfähigkeit wird von ihnen mit dem Variable-Range-Hopping Modell erklärt, wobei die nach dem Modell nicht erwartete Temperaturabhängigkeit des Exponenten durch Mehrfachhüpfprozesse interpretiert wird. Allerdings ist die Auswertung der Frequenzabhängigkeit auf den Temperaturbereich zwischen 4 K und 12 K beschränkt. Im Gegensatz dazu ergeben die Messungen, die in unserer Arbeitsgruppe [Lun 92] durchgeführt wurden, oberhalb

25 K einen temperaturunabhängigen Exponenten s , der jedoch stark anisotrop ist und mit diesem Modell nicht erklärt werden kann.

5.1.2 La_2CuO_4 .

Die untersuchten Kristalle wurden am Institut für Festkörperphysik in Chernogolovka aus einer La_2O_3 - CuO_x Schmelze mit CuO Überschuß gezogen. Nähere Informationen zur Kristallzucht sind in [Eme 90] zu finden. Ursprünglich hatten die Kristalle eine Größe von $8 \times 6 \text{ mm}^2$ in der ab-Ebene und in c-Richtung von 15 mm. Für die hier beschriebenen Messungen standen jedoch nur kleinere Bruchstücke dieser Kristalle zur Verfügung. Der größte Kristall hatte eine Geometrie von etwa $2 \times 3 \times 2.5 \text{ mm}^3$.

Die temperaturabhängigen Widerstandsdaten sind in den Abb. 5.1.1 und 5.1.2 zu sehen. Bei sinkender Temperatur steigt der Widerstand bei jeder Frequenz an, zeigt ein Maximum und nimmt danach wieder ab. Wie in Kap. H4 skizziert, läßt das Auftreten des Widerstandsmaximums es zu sowohl den Real- als auch den Imaginärteil der Leitfähigkeit eindeutig zu definieren.

Bei der Temperatur des maximalen Widerstandes gilt: $\sigma_{\text{DC}} \approx \epsilon_0 \omega \epsilon_\infty$. Von nun an soll der maximale Wert des Widerstands die gleiche Temperaturabhängigkeit, wie die DC Leitfähigkeit haben, die im Fall von La_2CuO_4 durch das Mottsche *Variable-Range-Hopping* (VRH) Modell [Mot 74] beschrieben werden kann. Das Modell betrachtet die lokalisierten Zustände in der Nähe der Fermi-Energie E_F in einem Halbleiter. Aus der Analyse der Hüpfprozesse zwischen benachbarten ungeordneten lokalisierten Zuständen folgt das bekannte Mottsche $T^{1/4}$ Gesetz:

$$\sigma = \sigma_0 \exp[-(T_0/T)^{1/4}]$$

wobei die T_0 und σ_0 mikroskopisch mit Hilfe des Modells zu beschreiben sind.

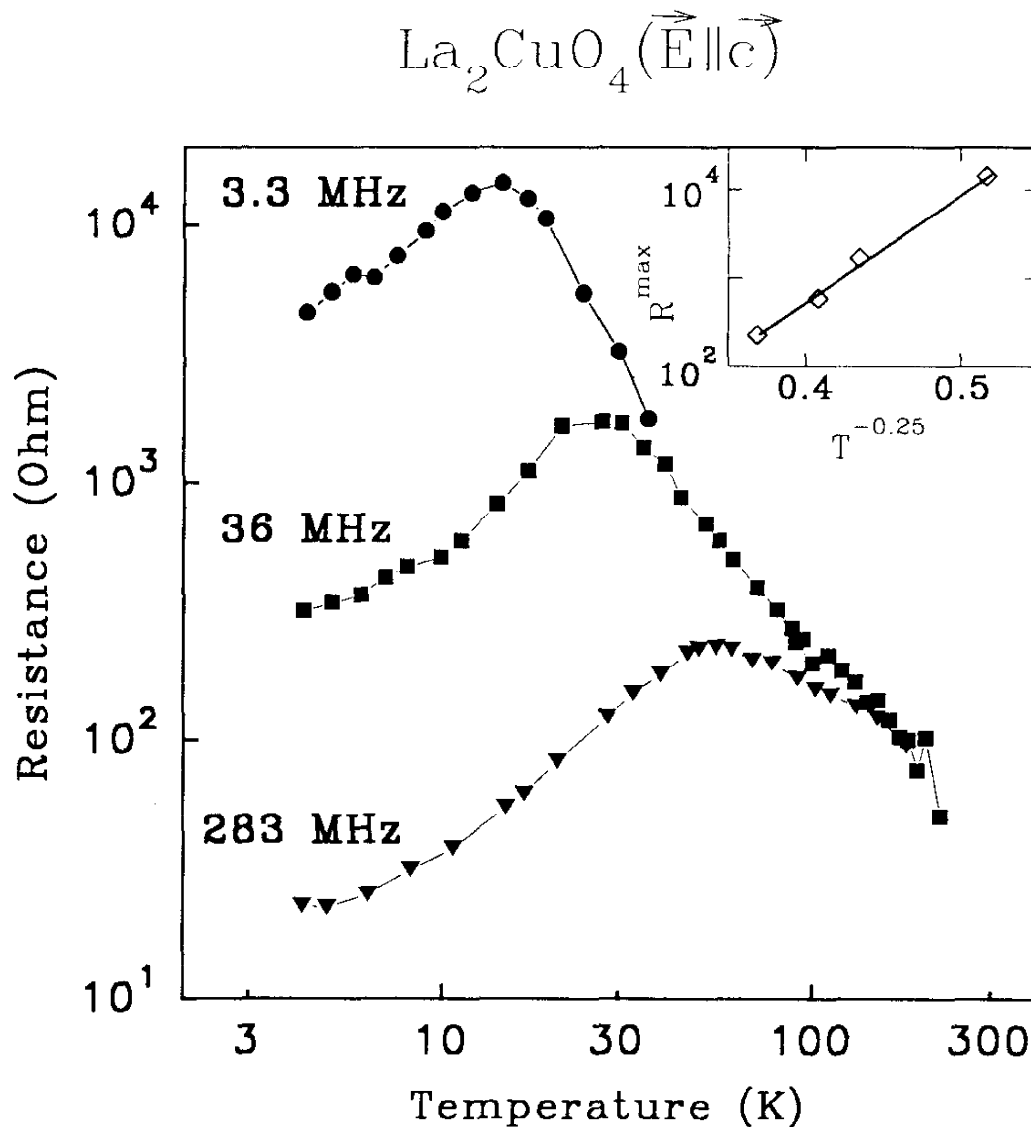


Abbildung 5.1.1: Temperaturabhängigkeit des La_2CuO_4 Widerstands gemessen bei drei verschiedenen Frequenzen, in doppeltlogarithmischem Format. Das elektrische Feld war längs der c-Achse orientiert. Der Einschub zeigt, daß die aus dem Wert von R_{\max} erhaltene DC-Leitfähigkeit dem von Mott vorgeschlagenen Gesetz des *variable-range-hopping* entspricht.

Die Amplituden des Widerstandsmaximums sind auf den Einschüben in Abb.5.1.1 und 5.1.2 als Logarithmus von R_{\max} gegen $T^{-1/4}$ aufgezeichnet. Eine Gerade zeigt, daß das zu erwartende Gesetz vollkommen getroffen ist.

Wir verwenden jetzt Gl.4 (Kap.3.1), um den Realteil G_s der Leitfähigkeit auszurechnen. Die Ergebnisse sind in Abb.5.1.3 und 5.1.4 zusammen mit 4-Punkt

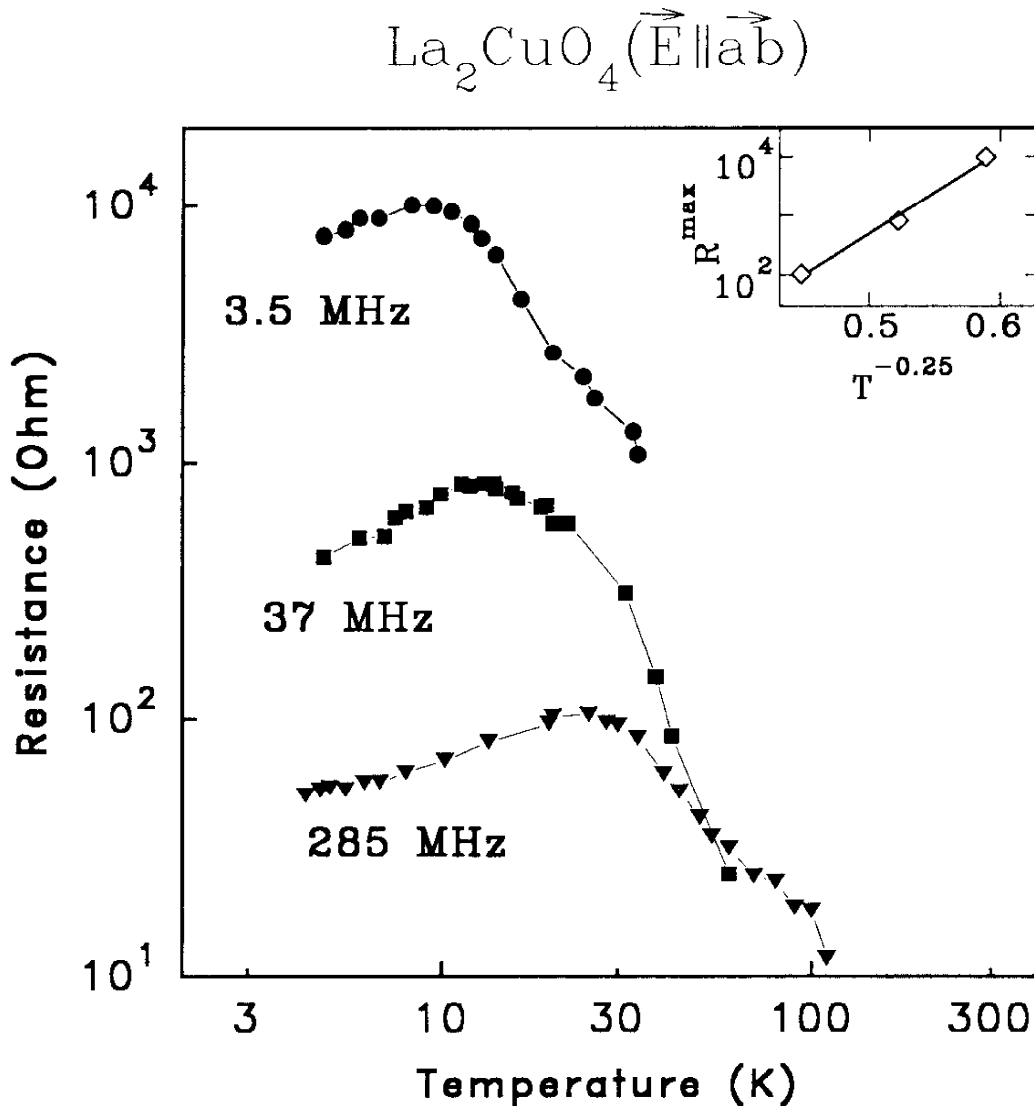


Abbildung 5.1.2: Temperaturabhängigkeit des La_2CuO_4 Widerstands gemessen bei drei verschiedenen Frequenzen, in doppeltlogarithmischem Format. Das elektrische Feld war innerhalb der ab -Ebene orientiert. Der Einschub zeigt, daß die aus dem Wert von R_{\max} erhaltene DC-Leitfähigkeit dem von Mott vorgeschlagenen Gesetz des *variable-range-hopping* entspricht.

DC-Daten dargestellt. In Abb.5.13 ist die Leitfähigkeit längs der c -Achse gezeigt, während in Abb.5.1.4 die Leitfähigkeit in der ab -Ebene dargestellt ist.

Die Ergebnisse, die mit der Hilfe der kontaktfreie Methode gemessen worden sind, sind mit den 4-Punkt DC-Leitfähigkeitsdaten zu vergleichen. Bei $T > 50\text{K}$ fallen alle Daten auf eine gemeinsame Kurve, die die reine DC Leitfähigkeit kennzeichnet. In

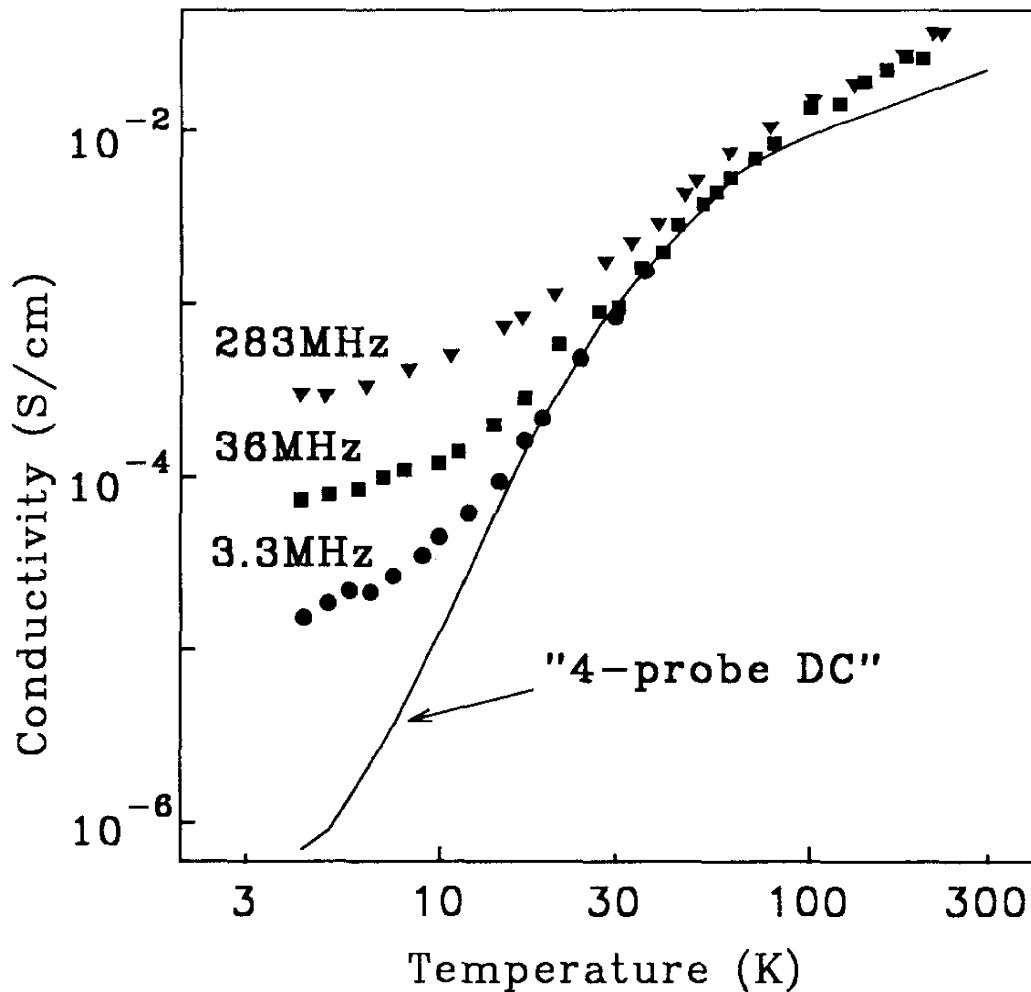


Abbildung 5.1.3: Leitfähigkeit σ' von La_2CuO_4 längs der c -Achse gegen Temperatur bei verschiedenen Meßfrequenzen: 283 MHz, 36 MHz, 3.3 MHz wie im Bild bezeichnet. Die Ergebnisse der 4-Punkt DC-Messung an demselben Einkristall sind auch gezeigt.

diesem Hochtemperaturbereich passen die kontaktfreien Daten gut zu den 4-Punkt DC-Leitfähigkeitsdaten, die an derselben einkristallinen Probe gemessen worden sind.

Bei tiefen Temperaturen herrscht AC-Leitfähigkeit vor, was durch das Verhalten gemäß dem Potenzgesetz $A\omega^s$ bestätigt wird. Bei Temperaturen kleiner als 15 K ist es möglich, den Absolutwert des Frequenzexponenten abzuschätzen. Die Ergebnisse sind in Abb. 5.1.5 gezeigt. Obwohl die experimentellen Fehler relativ groß sind, kann man den Unterschied zwischen den Frequenzexponenten s entlang der

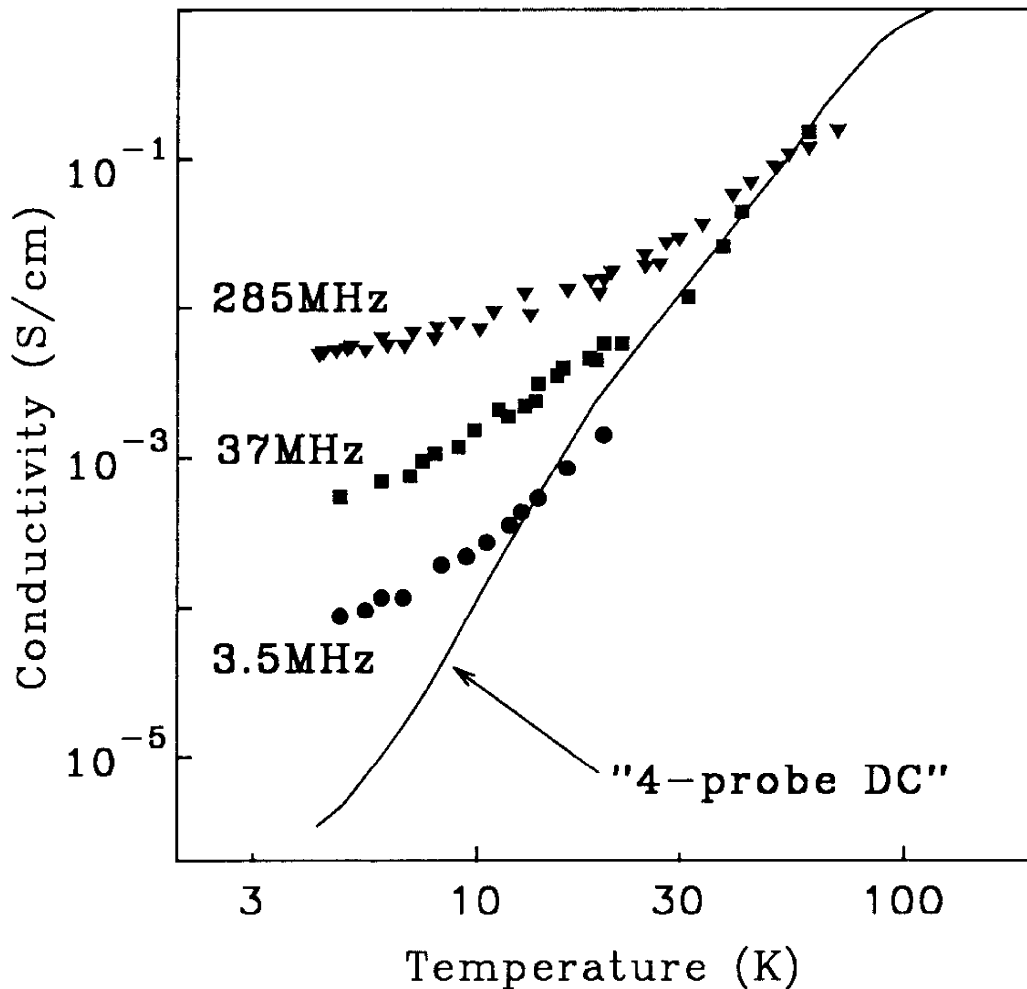


Abbildung 5.1.4: Leitfähigkeit von La_2CuO_4 innerhalb der ab-Ebene gegen Temperatur bei verschiedenen Meßfrequenzen: 285 MHz, 37 MHz, 3.5 MHz wie im Bild bezeichnet. Die Ergebnisse der 4-Punkt DC-Messung an demselben Einkristall sind auch gezeigt.

verschiedenen Richtungen gut sehen. Die beiden Frequenzexponenten nehmen bei steigender Temperatur ab. Es ist zu beachten, daß diese Abhängigkeiten viel kleiner sind, als die, die in [Che 91] berichtet werden. Die dort gemessenen s Werte nehmen zwischen 4K und 12K von $s=0.7$ bis $s=0.51$ ab. Es ist möglich, daß diese starke Temperaturabhängigkeit und auch die in Ref. [Lun 92] gefundenen sehr kleinen s -Werte in C-Richtung ($s \approx 0.25$), auf den ungewünschten Einfluß des Kontaktwiderstandes zurückgeführt werden können.

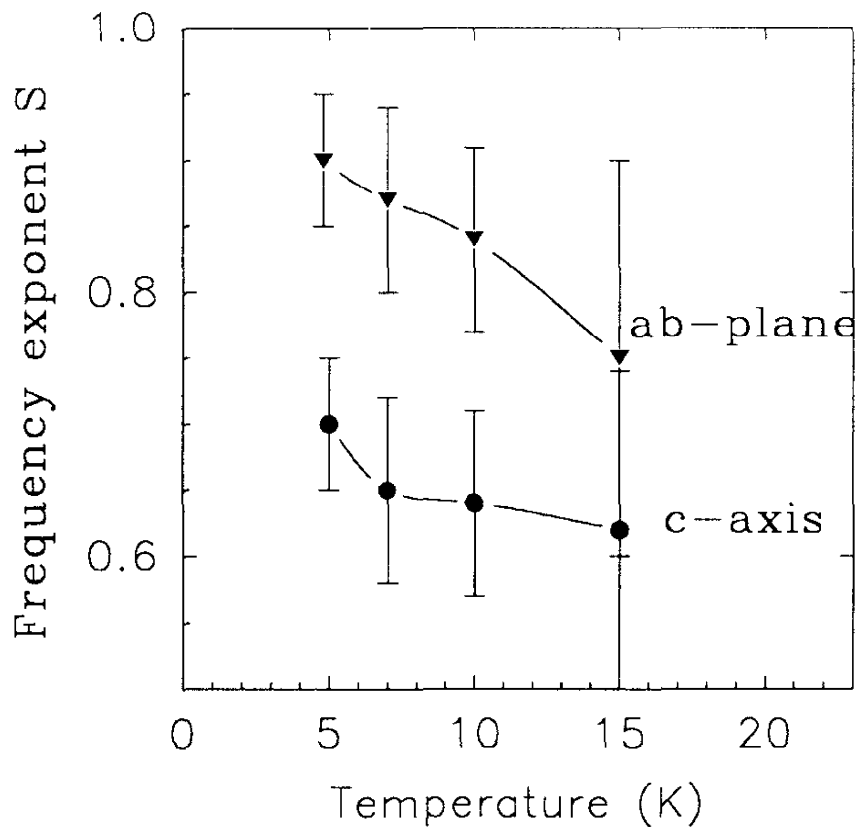


Abbildung 5.1.5: Frequenzexponenten s von La_2CuO_4 gemäß dem Potenzgesetz ($\sigma = \sigma_0 + Av^s$) gegen Temperatur. Die Ergebnisse basieren auf den in Abb.H4.3 und H4.4 gezeigten Daten.

Aus dem maximalen Widerstand entnommen aus Abb. 2 und mit Hilfe der im Kap.H4 genannten Formel:

$$(1/R_s)_{\max} = (\omega C_s/2)_{\max} = (\omega \epsilon' C_G/2)_{\max}$$

kann die Dielektrizitätskonstante in c-Richtung als 29 ± 4 unabhängig von der Meßfrequenz gefunden werden. Dieses Ergebnis stimmt mit dem bei der Zwei-Punkt-Messung gefundenen Wert $\epsilon = 31 \pm 3$ [Lun 95] überein, die am derselben monokristallinen Probe durchgeführt wurde. Innerhalb der ab-Ebene wurde der Wert $\epsilon = 90 \pm 10$ gefunden. Das in diesem Einkristall gemessene ϵ_{ab} kann nicht direkt mit den Kontaktdaten verglichen werden, da diese Daten viel mehr vom Restkontaktwiderstand und von den übrigbleibenden AC-Komponenten abhängig sind. Die typischen Werte aus Zweipunktmessungen [Kne 94] liegen im Bereich zwischen 60 und 110.

5.1.3. $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$.

Alle Messungen, die in diesem Kapitel dargestellt sind, stammen von einer einkristallinen Probe $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$, mit einem Sr-Gehalt vom $x=8\%$. Die Probe wurde mit Hilfe der Zuchtmethode aus einer nichtstöchiometrischen Schmelze gezogen [Bri 92]. Die Kristalle waren etwa $0.9 \times 1 \times 2 \text{ mm}^3$ groß, und die c -Achse lag entlang der kürzesten Seite. Nach dem Phasendiagramm des $(\text{La-Sr})_2\text{CuO}_4$ Systems sollte [Tak 89] sich der supraleitende (SL) Phasenübergang in der Nähe von $T=40\text{K}$ befinden. Um das zu überprüfen, wurde mit Hilfe der 4-Punkt Methode die DC-Leitfähigkeit gemessen. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in der Abb.5.1.6 dargestellt. Der Probenwiderstand steigt mit sinkender Temperatur bis etwa $T \sim 8\text{K}$. Bei einer Temperatur zwischen 7K und 8K sieht man einen Knick in den Widerstandsdaten. Das könnte der supraleitende Phasenübergang sein.

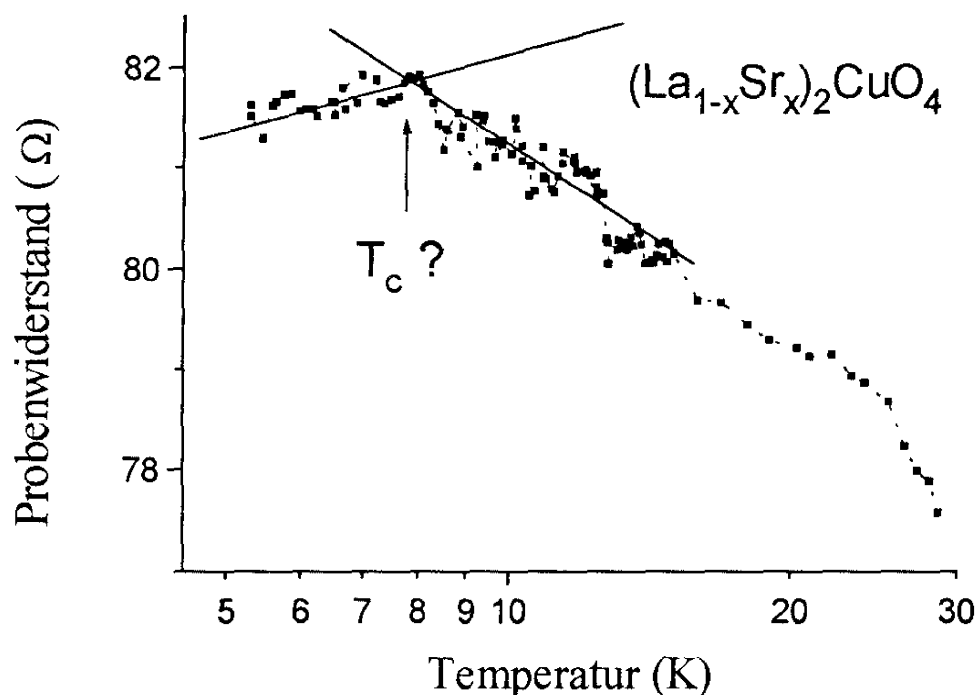


Abbildung 5.1.6: Widerstandsverlauf gegen die Temperatur einer Vierpunktmessung bei einer Frequenz von 20 Hz für eine $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$ Probe mit dem elektrischen Feld innerhalb der ab -Ebene.

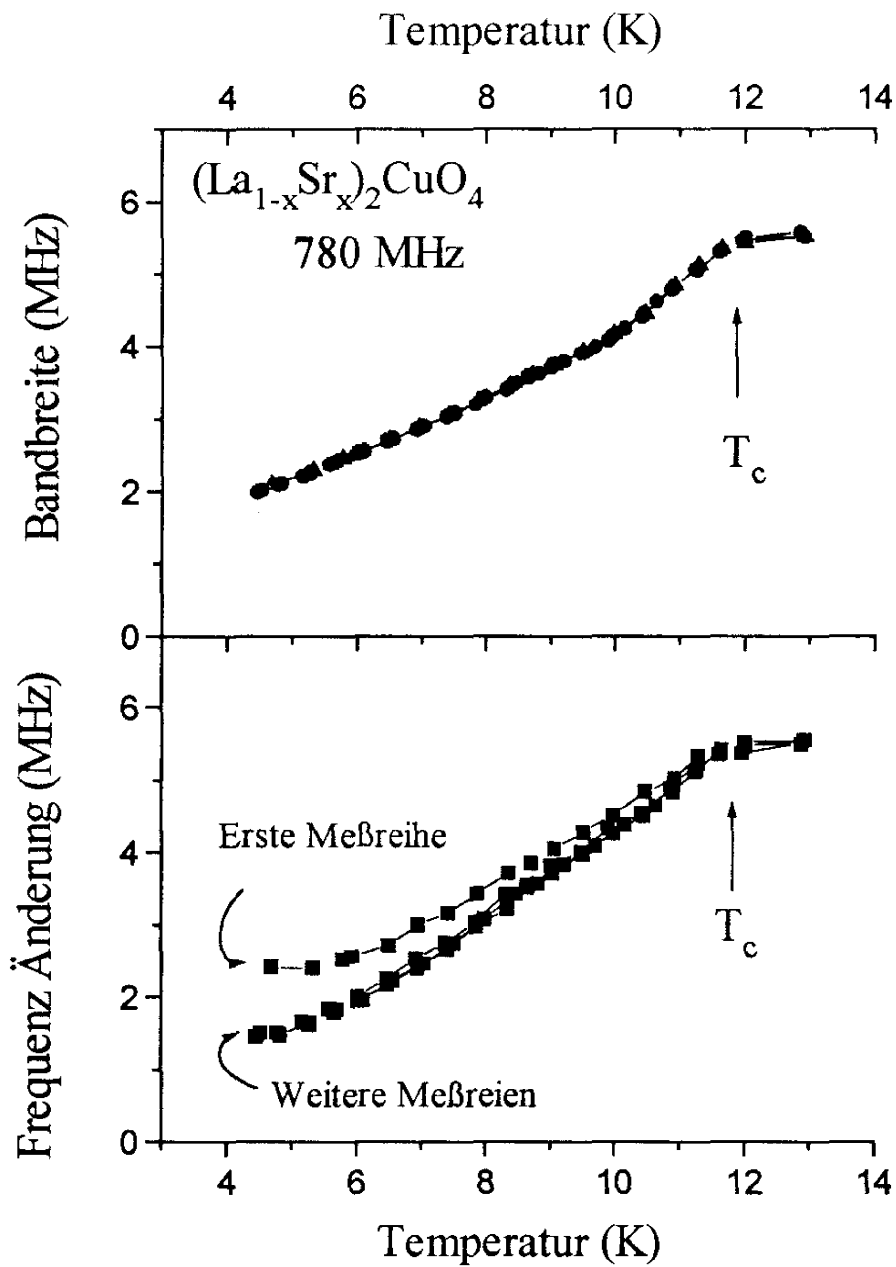


Abbildung 5.1.7: Temperaturabhängige Resonanzdaten des $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$ Einkristalles mit $x=8\%$ bei 780 MHz. Oben: Bandbreite $\Delta\omega=\omega_0/Q$, die proportional zum Oberflächenwiderstand R der Probe ist. Unten: Die Resonanzfrequenzänderung $\Delta\omega_0$ ist proportional zur Oberflächenreaktanz X der Probe. Geschätzter Verhältnisfaktor ist etwa $\frac{(R, X)}{\Delta\omega} = 1.5 (\Omega / \text{MHz})$.

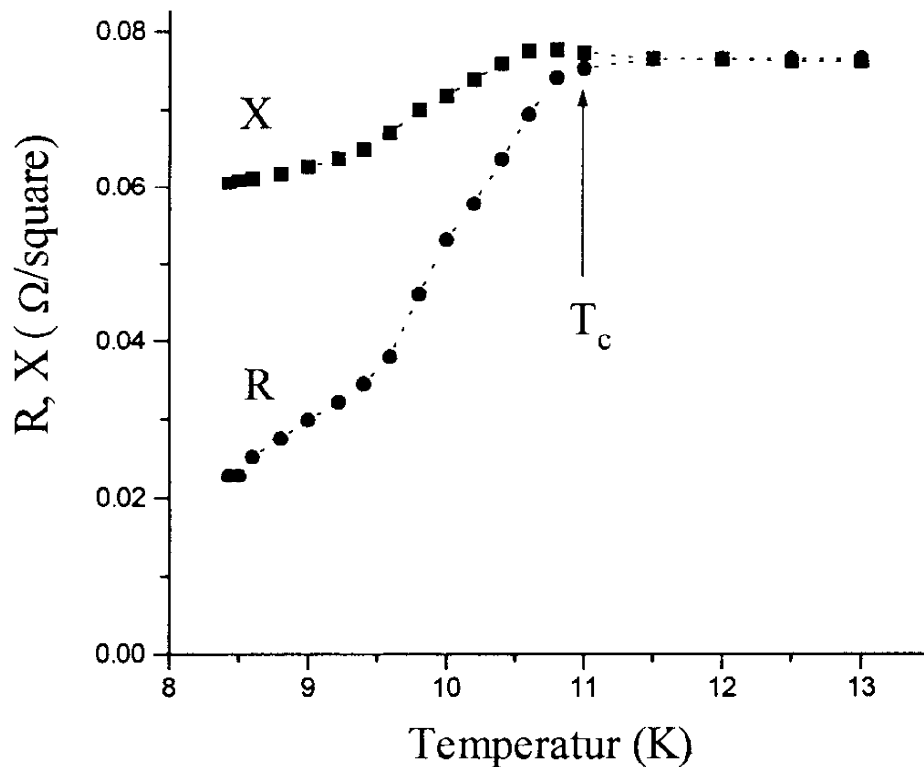


Abbildung 5.1.8: Oberflächenimpedanzdaten des $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$ Einkristalles mit $x=8\%$ gemessen im 20 MHz Helix-Resonator. Der Reaktanzoffset $X(0)$ wurde so eingesetzt, daß $X_N = R_N$.

Die üblichen Zweipunktmessungen (20Hz ÷ 1MHz) an $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$ mit gleichem (8%) Sr-Gehalt und 5% Sr Gehalt haben wegen des zu starken Einflusses des Kontaktwiderstandes keinen Supraleitungsübergang gezeigt [Kne 93], obwohl einschränkend zu sagen ist, daß das Experiment nur auf Temperaturen $T > 10$ K begrenzt wurde.

Die $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$ Probe wurde mit Hilfe einer Resonanzmethode (Kap. H5c) bei 20 MHz und 780 MHz gemessen. Die Ergebnisse dieser Messungen sind in Abb.5.1.7 und 5.1.8 gezeigt. Man sieht ganz deutlich einen Phasenübergang in der Nähe von $T=11$ K. Es ist zu beachten, daß der Phasenübergang sehr breit ist. Bis zur tiefsten bei der Messung benutzten Temperatur von 4.2K (780 MHz) ist keine Ende des Übergangsbereiches zu erkennen.

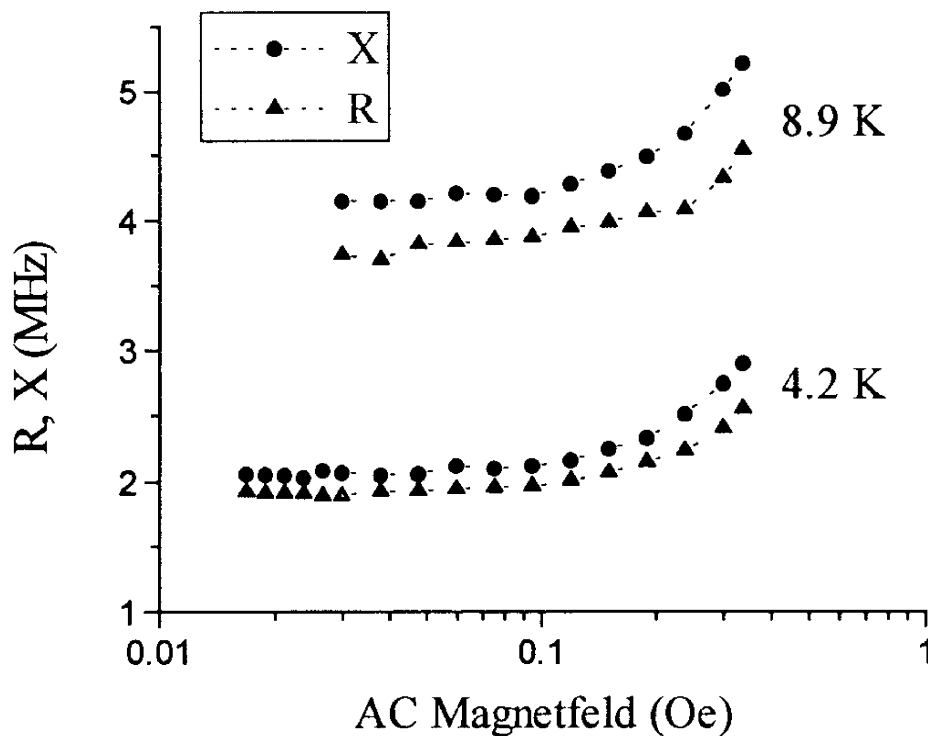


Abbildung 5.1.9: Die zur Veränderung der Resonanzparameter proportionale Oberflächenimpedanz des $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$ Einkristalles mit $x=8\%$ bei 780 MHz gegen, die AC Magnetfeldstärke im Resonator und bei Temperaturen 4.2 und 8.9 K. Die Phasenübergangstemperatur beträgt ca. 11.5 K.

Ein weiteres besonderes Kennzeichen ist die Vorgeschichtsabhängigkeit der Reaktanzdaten, die in Abb.5.1.7 zu sehen ist. Diese Eigenschaften konnten geklärt werden, wenn man vermutet, daß der Kristall nicht homogen ist und einige Teile des Kristalls bei verschiedenen Temperaturen supraleitend sind, andere Teile aber immer im normalleitenden Zustand bleiben. Da der elektrische Strom wegen des geringen Anteils supraleitender Bereiche keinen ununterbrochenen Weg findet, tritt kein eindeutig identifizierbarer SL Phasenübergang bei DC-Messungen auf (vgl. Abb.5.1.7). Das Hochfrequenzexperiment dagegen mißt einen Effekt, der über die ganze Probe gemittelt ist. Das ist der Grund dafür, daß bei höheren Frequenzen ein Phasenübergang klar zu erkennen ist. Die Verbindungen zwischen einzelnen Teilen innerhalb der Probe, die sog. *weak links*, bilden ein Netz, das von der Vorgeschichte abhängt.

In diesem Fall wäre außerdem zu erwarten, daß die Probe eine erhöhte Nichtlinearität zeigt. Einen solchen Effekt sieht man in Abb.5.1.9. Hier ist die Wechselfeldstärkeabhängigkeit des Real und Imaginärteils des Widerstandes aufgetragen. Die nichtlinearen Effekte sind schon bei einer Magnetfeldstärke von 0,2 Oe deutlich erkennbar.

5.2 Meßergebnisse. Blei

5.2.1 Einleitung.

Eine der wichtigsten Vorhersagen der BCS Theorie [Bar 57] der Supraleitung ist der Anstieg der elektromagnetischen Absorption und der NMR-Relaxationsrate unterhalb der Übergangstemperatur T_C und das Auftreten eines Maximums in diesen Meßgrößen bei $T \sim 0.8T_C$ (Kohärenzpeak). 1959 wurde das als Hebel-Shlichter-Peak bezeichnete Maximum in der NMR Relaxationsrate [Heb 59] nachgewiesen. Betreffs der Absorption des elektromagnetischen Feldes, die durch den Realteil der komplexen Leitfähigkeit $\sigma^* = \sigma' + i\sigma''$ beschrieben ist, wurden damals keine experimentellen Beweise für die Existenz des Kohärenzpeaks veröffentlicht.

Ein zusätzliches Interesse an der Untersuchung der komplexen Leitfähigkeit der Supraleiter wurde durch die Entdeckung der Hochtemperatursupraleiter [Bed 86] geweckt. Eine mögliche experimentelle Beobachtung der Kohärenzeffekte in NMR- oder Leitfähigkeitsmessungen sollte einen Beweis für oder gegen den BCS-Mechanismus der Supraleitung liefern. In den NMR Messungen an Hochtemperatursupraleitern konnte nun kein Peak in der Relaxationsrate nachgewiesen werden [War 87], [Ham 89], [Wal 91]. Im Gegensatz dazu wurde seit 1991 in einer Vielzahl von Experimenten ([Bon 93], [Zha 93], [Pim 94] u.a.) ein Peak im Realteil der komplexen Leitfähigkeit gefunden. Es erscheint daher sinnvoll sein, der Frage nachzugehen, ob man für konventionelle Supraleiter einen Peak im Realteil der Leitfähigkeit sehen kann.

In den ersten Experimenten [Hol 91], [Vol 93] konnte der zu erwartende Peak beobachtet werden. Die erste Analyse läßt aber den Schluß zu, daß das gemessene Maximum im Rahmen der BCS Theorie nicht beschrieben werden kann. Während bei 60 GHz [Hol 91] in Blei ($kT_C / \hbar\omega \sim 2.5$) ein Peak -Verhältnis $\Delta\sigma_{\text{Peak}} / \sigma_N \approx 0.9 \pm 0.1$ beobachtet wurde, kann innerhalb der BCS Theorie ein maximaler Wert von etwa 0.3

erreicht werden. Der Widerspruch zwischen Theorie und Experiment ist noch größer im Falle des NbN Film, gemessen bei 240 GHz ([Vol 93]; $kT_C / \hbar\omega \sim 1.1$), wo man theoretisch keinen Kohärenzpeak mehr erwarten sollte.

Diese Effekte können möglicherweise auf Verunreinigungen der Probe zurückgeführt werden, da die neuesten Ergebnisse über die Leitfähigkeit des reinen Blei und Niob bei 60 GHz [Kle 94] einen Absolutwert des Maximum gezeigt haben, der theoretisch beschrieben werden kann, wenn man zusätzlich zur BCS-Theorie Strong-Coupling-Effekte berücksichtigt.

Die Ziele der an Blei durchgeführten und in dieser Arbeit dargestellten Messungen waren:

- Überprüfen, ob bei niedrigen Frequenzen, wenn $\hbar\omega \ll kT_C$, die gleichen Kohärenzeffekte zu sehen sind.
- Ergebnisse zu erhalten, die mit den in unserer Arbeitsgruppe durchgeführten Kontaktmessungen an Blei verglichen werden können.

5.2.2 Ergebnisse und Diskussion.

Für das Experiment wurde 99.999% reines Blei benutzt. Es gab zwei verschiedene Geometrien der Probe, nämlich einen Draht mit 0,5 mm Durchmesser und einen Zylinder \varnothing 7 mm. Aus Kupferdraht wurde rund um den Bleizylinder eine Spule gewickelt und dessen Resonanzcharakteristik gemessen (bei 158 MHz, 540 MHz, 1050 MHz). Wie es in Kap.3.2 gezeigt wurde, ist die Sensitivität der Resonatormessung umso besser, je geringer das freie Volumen des Resonators ist. Deshalb wurde die beste Sensitivität und Genauigkeit in der Geometrie erreicht, in der die Spule aus Kupferdraht bestand, der auf den Bleizylinder gewickelt war. In diesem Fall befindet sich, das elektromagnetische Feld nur in der dünnen Isolatorschicht ($d=100\mu\text{m}$) zwischen dem Blei und dem Draht, und deshalb ist das vom Feld durchdringende Volumen sehr gering.

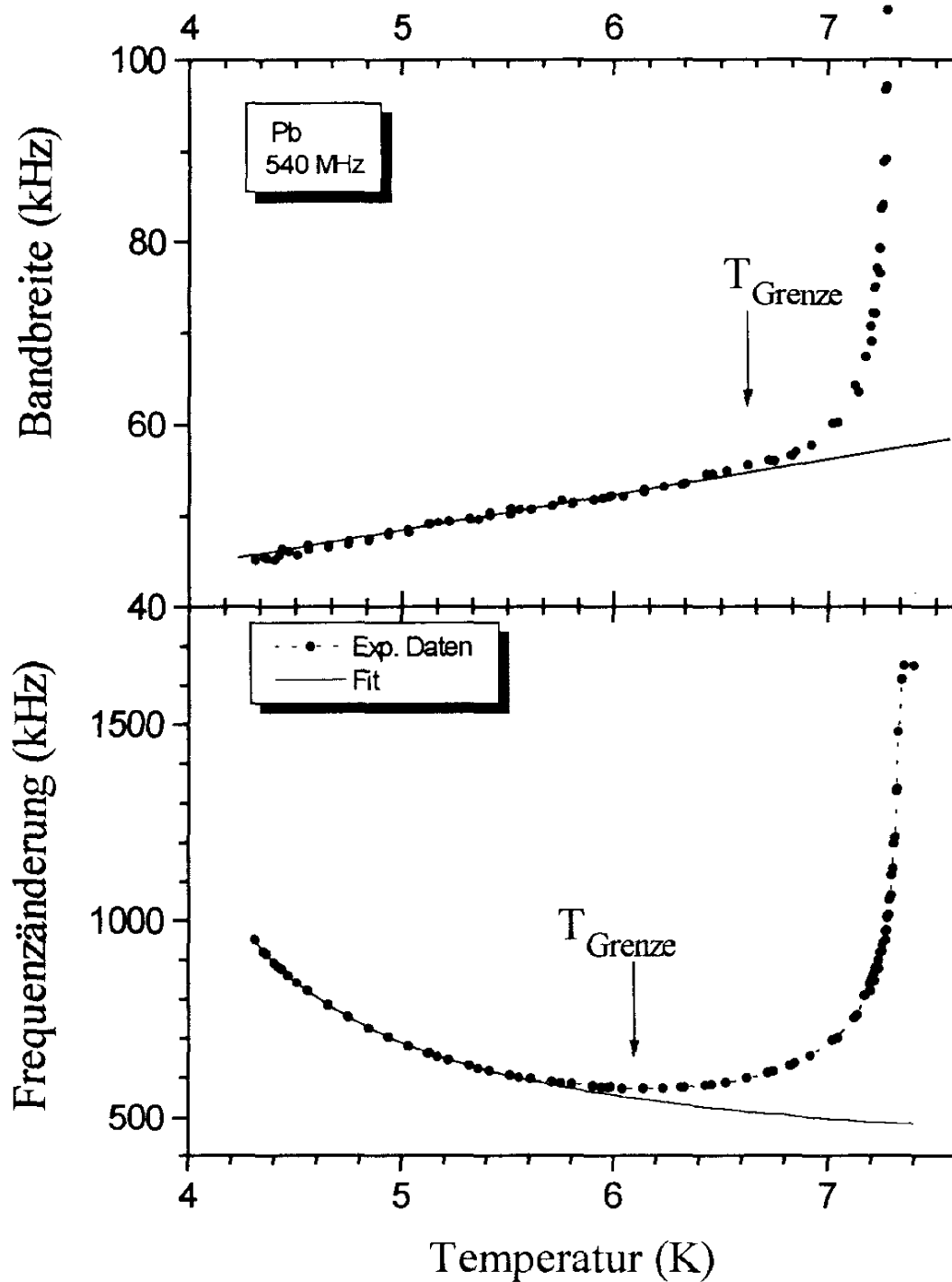


Abbildung 5.2.1: Temperaturabhängigkeit der Resonanzfrequenz (unten) und Bandbreite $\Delta\omega = \omega_0/Q$ (oben) des 540 MHz Resonators mit Bleiprobe. Die Kreise sind die experimentellen Daten, die Linien sind die Korrekturfits (siehe Text).

Bei höheren Frequenzen (2.05 GHz) war es besser statt einer Spule einen Koaxialresonator zu bauen (Kap.3.2.2), dessen innere Leitung aus einem Stück Bleidraht bestand, dessen Länge eine Viertelwellenlänge $\lambda_0/4$ im Vakuum entspricht. Ein Nachteil dieser Experimente mit Blei ist die Unmöglichkeit differentieller Messungen mit und ohne Probe. Stattdessen muß man den Restwiderstand des Resonators abschätzen und danach abziehen.

In der Abb.5.2.1 sind die gemessene Resonanzfrequenz und die Güte des Resonators am Beispiel der 540MHz Daten dargestellt. Die beiden Meßgrößen zeigen einen scharfen Phasenübergang bei $T_C \sim 7.2$ K. Bei Temperaturen kleiner als 6K sieht man nur noch die Resteffekte des Resonators. Da bei diesen Temperaturen auf der experimentellen Meßskala keine Widerstandeffekte mehr beobachtet werden sollten, ist die Temperaturabhängigkeit der Halbwertsbreite bei $T < 6$ K mit dem Restwiderstand des in die Spule (in die Resonatorwand) befindlichen Kupfers zu erklären. In diesem Fall wurde der Restwiderstand als eine Gerade angenähert und die entsprechenden Werte wurden von den Daten abgezogen.

Die Resonanzfrequenz steigt für $T < 6$ K wieder an und der resultierende Effekt kann relativ gut mit Hilfe der Abhängigkeit $\nu = \text{const} / (T-4.2\text{K})$ beschrieben werden. Dieses Verhalten liegt nahe, daß diesem Effekt, in der Nähe des Siedepunktes von Helium bei $T=4.2\text{K}$, die steigende Dichte des He-Gases mit dem entsprechenden Austeigen der Dielektrizitätskonstante zugrunde liegt. Als erste Näherung wurden dann die ν_0 Daten mit der Formel $\nu_0 \sim \text{const}/(T-4.2)$ gefittet, und die Hochtemperaturdaten wurden dementsprechend korrigiert.

Es ist möglich, einen Bereich zu bestimmen, in dem die Korrekturen zu den Daten nicht zu groß sind. Die Grenzen dieser Bereiche sind in Abb.5.2.1 mit den Pfeilen angedeutet. Das sind nämlich die Temperaturbereiche $T \geq 6.5$ K für die Halbwertsbreite (Widerstand) und $T \geq 6.0$ K für die Resonanzfrequenz (Reaktanz). Es ist zu bemerken, daß im letzten Fall der zur Verfügung stehende Bereich etwa zweimal größer ist. Der Grund dafür ist die etwas stärkere Temperaturabhängigkeit der Oberflächenreaktanz $X(T)$ im supraleitenden Zustand im Vergleich zum Oberflächenwiderstand $R(T)$.

Damit kann aus den Daten mit Hilfe der in Kap.5.1 gegebenen Formeln die Oberflächenimpedanz von Blei ausgerechnet werden. In Abb.5.2.2 ist der komplexe Widerstand des Blei, der aus den Resonanzdaten erhalten wurde, dargestellt.

In Abb.5.2.3 sind die gemessenen Werte der Oberflächenreaktanz (der Imaginärteil des Widerstandes) in einer Darstellung die durch Zwei-Flüssigkeits-Modell gezeigt. Das Bild läßt es zu, den experimentell nicht bestimmbar Nullwert $X(0)$ zu finden. Nach den Zwei-Flüssigkeits-Modell sollten die so dargestellten Daten auf einer Geraden liegen. Aus der Steigung der Linie läßt sich $X(0)$ bestimmen. Man findet eine Gerade, die durch Null geht und die bei tieferen Temperaturen gemessenen Daten beschreibt. Mit dem Modell lautet die Gerade:

$$X = \frac{X(0)}{\sqrt{1 - \left(\frac{T}{T_c}\right)^4}} = X(0) \cdot \Phi_{2fl}(T)$$

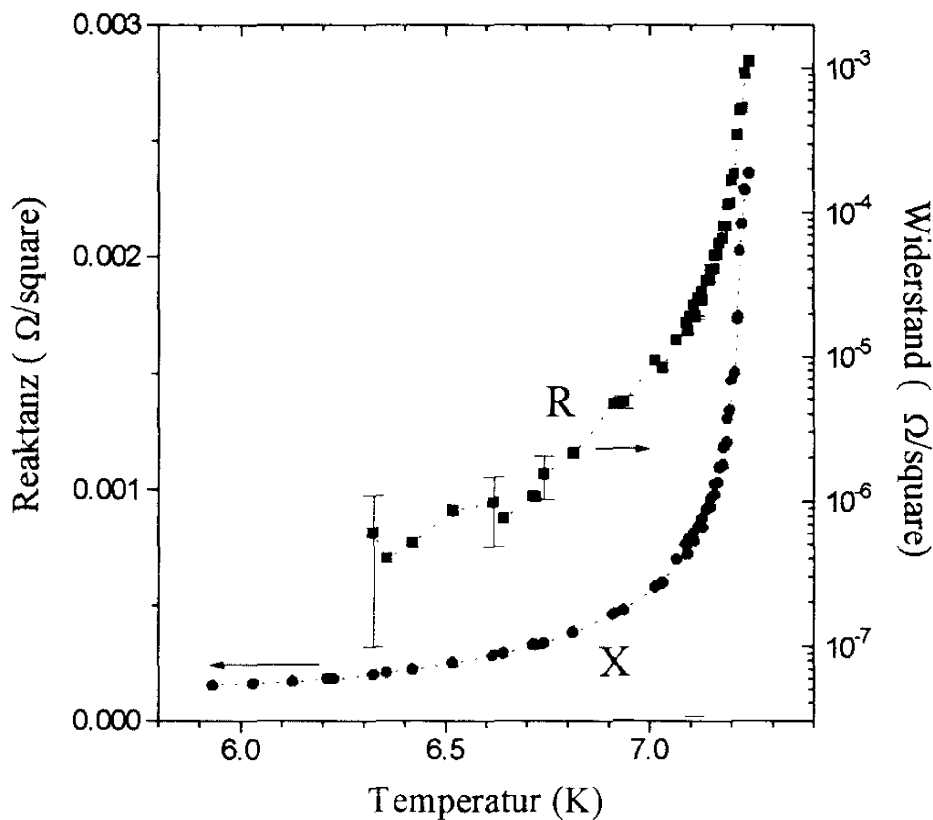


Abbildung 5.2.2: Komplexer Oberflächenwiderstand von Blei ($Z^* = R + iX$) gegen Temperatur, gemessen bei 540 MHz. Die Daten werden unter Verwendung von Abb.5.2.1 berechnet. Die unterschiedlichen Skalentypen für R und X sind zu beachten.

Der Absolutwert der magnetischen Eindringtiefe entspricht $\lambda = 365 \pm 40 \text{ \AA}$ bei Messungen im 2.05 GHz Resonator und $\lambda = 570 \pm 100 \text{ \AA}$ bei Messungen im Helixresonator von 540 MHz. Die deutlich niedrigere Genauigkeit des Absolutwertes im letzten Fall hängt mit der ungenau bestimmten Geometrie des Experimentes zusammen. Die in dieser Arbeit erhaltenen Eindringtiefen (siehe Tabelle M.31) stimmen gut mit dem aus der Literatur bekannten [Gas 70] Wert $\lambda = 418 \pm 9 \text{ \AA}$ überein.

Man sieht, daß bei höherer Temperatur die experimentell erhaltenen Daten von einer Geraden abweichen. Diese Abweichung läßt sich durch die endliche Meßfrequenz erklären, da die genannte Modelldarstellung unter der Näherung $\omega=0$ gerechnet ist.

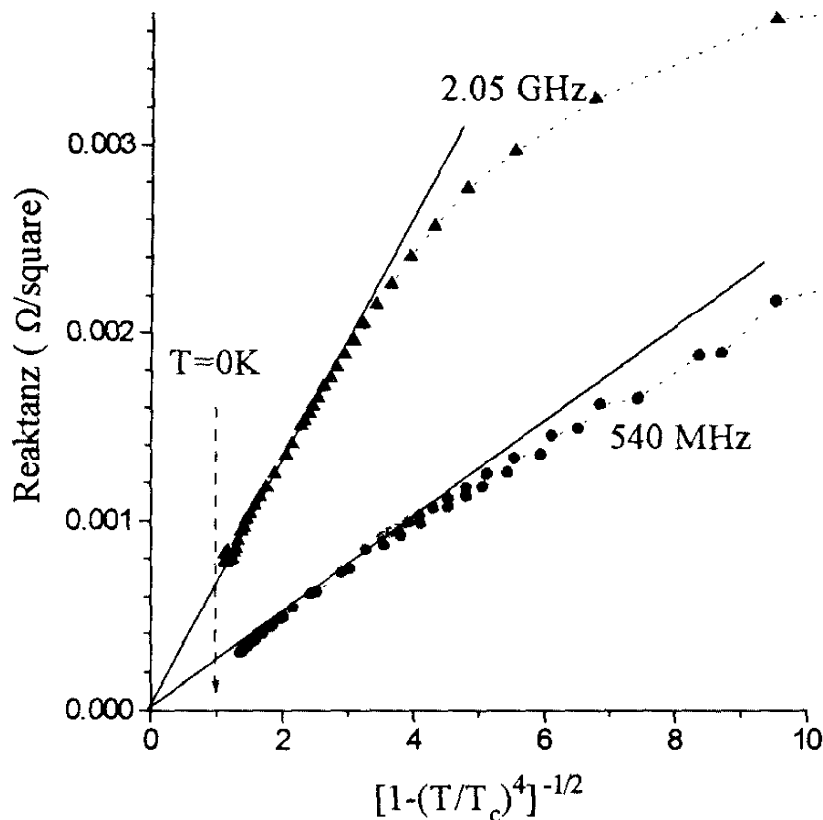


Abbildung 5.2.3: Oberflächenreaktanz (X) von Blei bei zwei verschiedenen Frequenzen 540 MHz und 2.05 GHz in Zwei-Flüssigkeits-Modell-Darstellung. Die Eindringtiefe ist in jedem Fall mit Hilfe der Formel: $X = \mu_0 \omega \lambda$ ausgerechnet.

Frequenz (MHz)	R_N (Exp.) (Ω/\square)	R_N (Theorie)		X_N (Exp) (Ω/\square)	X_N / R_N	λ_0 (Å)
		Nichtlokal (Ω/\square)	Lokal			
158	$5.04 \cdot 10^{-4}$	$3.85 \cdot 10^{-4}$	$3.28 \cdot 10^{-4}$	$8.71 \cdot 10^{-4}$	1.73	425 ± 50
540	$1.11 \cdot 10^{-3}$	$0.88 \cdot 10^{-3}$	$0.61 \cdot 10^{-3}$	$2.40 \cdot 10^{-3}$	2.16	570 ± 100
1050	$2.19 \cdot 10^{-3}$	$1.36 \cdot 10^{-3}$	$0.85 \cdot 10^{-3}$	$3.46 \cdot 10^{-3}$	1.58	478 ± 50
2050	$2.06 \cdot 10^{-3}$	$2.13 \cdot 10^{-3}$	$1.18 \cdot 10^{-3}$	$3.97 \cdot 10^{-3}$	1.93	365 ± 40

Tabelle M3.1: Mikrowellencharakteristik von Blei, erhalten aus Resonanzmessungen.

Noch besser wäre es, statt des Zwei-Flüssigkeits-Modells die BCS-Theorie mit voller Frequenzabhängigkeit zu benutzen. In Wirklichkeit liefern die beiden Theorien das gleiche Ergebnis, und oft wird das Zwei-Flüssigkeits-Modell als einfache und traditionelle Darstellung genommen, um den Wert von $X(0)$ zu finden.

Bei der Frequenz 2.05 GHz ist die Probe ein Draht \varnothing 0.5 mm, in den anderen Fällen - ein massiver Zylinder \varnothing 7 mm. Bei der Berechnung der theoretischen Werte des Oberflächenwiderstandes wurden die folgenden Leitfähigkeitswerte angenommen [LB 82] ($T = 7.3\text{K}$):

$$\sigma_N(\text{dc}) = 5.79 \cdot 10^7 (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}; \quad \sigma_N / \ell = 9.4 \cdot 10^{10} \Omega^{-1} \text{cm}^{-2}$$

Die aus der Messung erhaltenen Absolutwerte der Mikrowellencharakteristik von Blei sind in Tabelle M3.1 gezeigt.

Der in anomaler Näherung theoretisch zu erwartende Absolutwert für den Oberflächenwiderstand läßt sich mit der folgenden Formel [Abr 88] ausrechnen:

$$R_N = (\mu_0 \omega)^{2/3} \left(\frac{\ell}{\sigma_N 4\alpha} \right)^{1/3}$$

Hier ist α eine Konstante, die bei Reuter und Sonderheimer [Reu 48] angegeben wurde: $\alpha = 4\pi/\sqrt{3}$ (*diffuse scattering*). Im nichtlokalen Grenzfall spielt der Wert σ_N/ℓ die Rolle der Leitfähigkeit der lokalen Näherung. Dieser Wert von σ_N/ℓ wird als

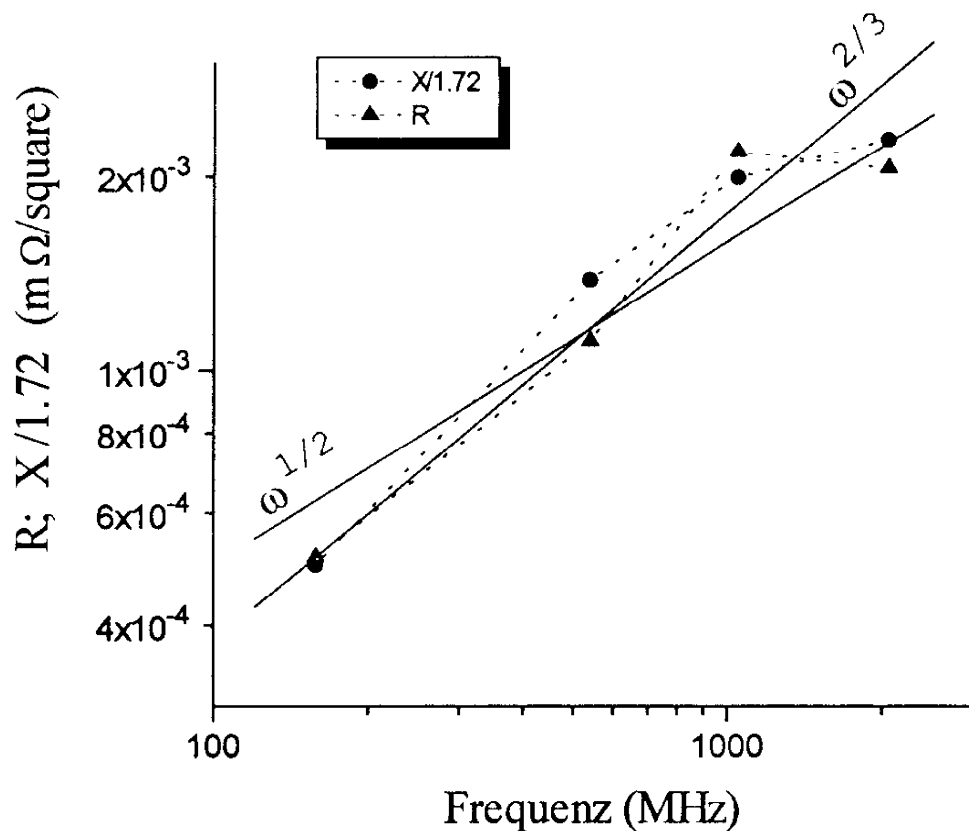


Abbildung 5.2.4: Frequenzabhängigkeit der Oberflächenimpedanz ($R+iX$) von Blei im normalleitenden Zustand bei $T = T_C$ (7.23 K). Die Reaktanzwerte (X) sind aufgrund des nichtlokalen *skin-effekt* durch $\sqrt{3}$ dividiert, um sie direkt mit dem Widerstand (R) vergleichen zu können.

$\sim 9.4 \cdot 10^{10} \Omega^{-1} \text{cm}^{-2}$ angenommen [Cha 52] (Vergleichsdaten sind in [LB 82] zu finden).

Im lokalen Grenzfall gilt:

$$R_N = \sqrt{\frac{\mu_0 \omega}{2\sigma_N}},$$

wobei bei $T \approx 7.3$ K die Leitfähigkeit von reinem Blei im normalen Zustand als $\sigma_N(\text{dc}) = 5.79 \cdot 10^7 (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$ [LB 82] angenommen werden kann.

Es ist möglich zu überprüfen, ob Blei im normalen Zustand wirklich dem extrem nichlokalen Grenzfall entspricht. Es ist deutlich zu erkennen, daß das

Verhältnis zwischen R_N und X_N nicht mehr 1:1 ist (wie es im Hagen-Rubens Limit erwartet wird), sondern $\sim 1.85 \pm 0.2$, was als theoretischer anomaler Grenzfalldwert von $\sqrt{3}$ interpretiert werden kann. Die experimentellen Absolutwerte der Oberflächenwiderstandes stimmen relativ gut mit denen überein, die mit Hilfe der nichtlokalen Formel berechnet werden, obwohl man sagen muß, daß in diesem Frequenzbereich für Blei die Ergebnisse der beiden Grenzfälle nicht weit voneinander

entfernt sind. Diesem liegt das nicht zu starke Verhältnis $\frac{R_N^{\text{anomal}}}{R_N^{\text{lokal}}} \sim \left(\frac{\ell}{\delta}\right)^{1/3}$ zugrunde.

Die temperaturabhängigen Werte der Oberflächenimpedanz bei verschiedenen Frequenzen sind in Abb. 5.2.4, 5.2.5 dargestellt. Aufgrund der Daten kann man die Frequenzabhängigkeit der Oberflächenimpedanz im normalen Zustand abschätzen. Theoretisch sollte man unter diesen experimentellen Bedingungen ein Potenzgesetz mit unterschiedliche Exponente finden. Man kann unterscheiden zwischen dem lokalen $\omega^{1/2}$ und nichtlokalen $\omega^{2/3}$ Gesetz. Der für den Frequenzexponenten gemessene Wert betrug: 0.68 ± 0.1 . Die Genauigkeit ist in diesem Fall zwar relativ niedrig, läßt aber trotzdem den Schluß ziehen, daß der gefundene Wert einem nichtlokalen Gesetz entspricht.

Mit Hilfe der Werte $R(T)$ und $X(T)$ kann man nun die komplexe Leitfähigkeit ausrechnen. Aus den Gründen, die im Kap.4.2 diskutiert wurden, wurde trotz der nicht gut erfüllten Ungleichung $\xi_0 \gg \lambda_0$ die anomale Formel für die Rechnungen benutzt [Mat 58]:

$$\frac{Z_S}{Z_N} = \left(\frac{\sigma_N}{\sigma_S}\right)^{1/3}$$

Die Ergebnisse für die komplexe Leitfähigkeit des Blei sind in Abb.5.2.5, 5.2.6 dargestellt. Hier werden nur die Daten für zwei Frequenzen gezeigt, nämlich für 540MHz und für 2GHz, da bei diesen Frequenzen die Genauigkeit und die Sensitivität am größten waren, und deshalb die Ergebnisse in einem relativ großen Temperaturbereich ausgewertet werden konnten.

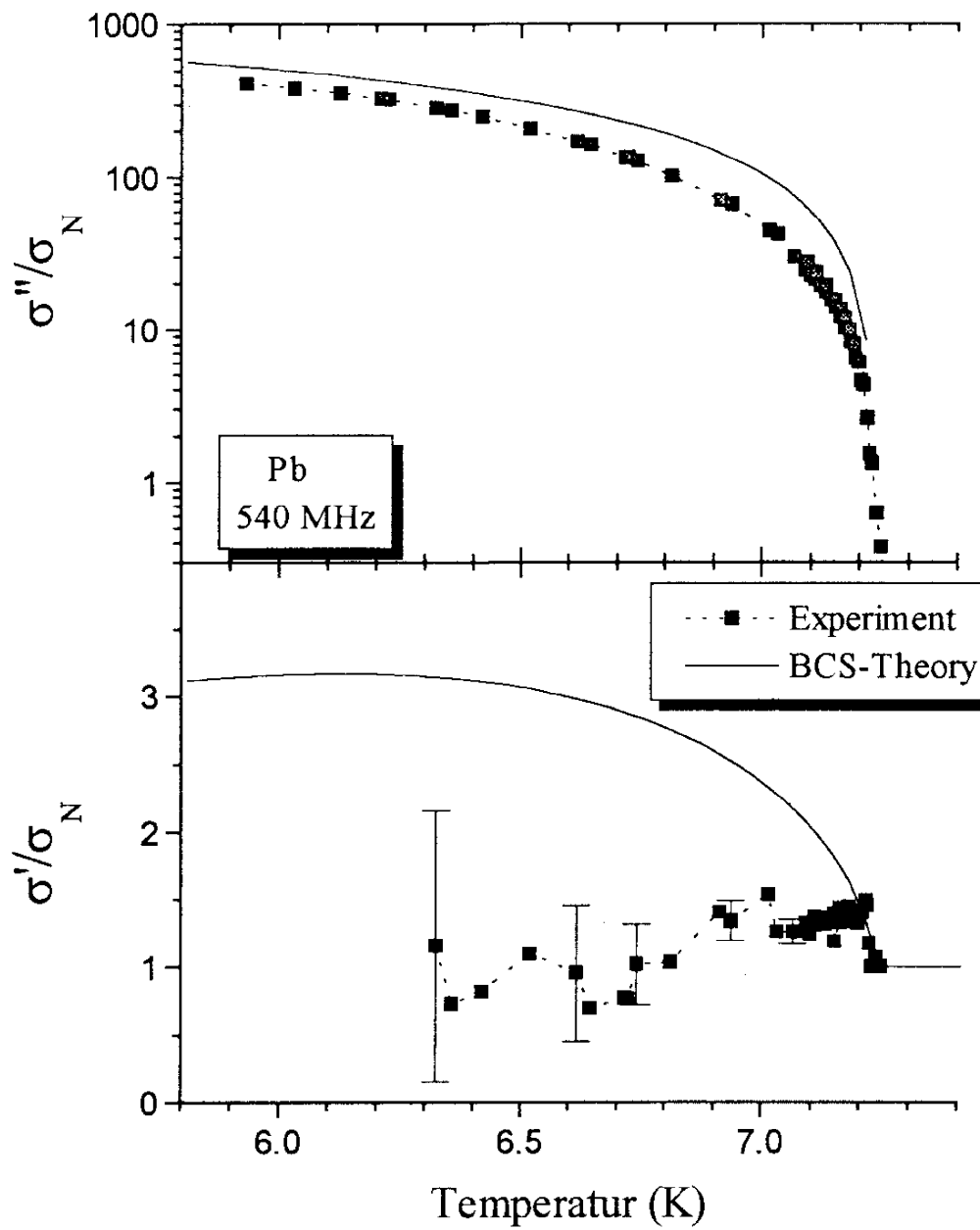


Abbildung 5.2.5: Komplexe Leitfähigkeit des Blei bei 540 MHz. Die Linien sind berechnet gemäß dem extrem anomalen Grenzfall der BCS-Theorie, die keine Fitparameter zuläßt.

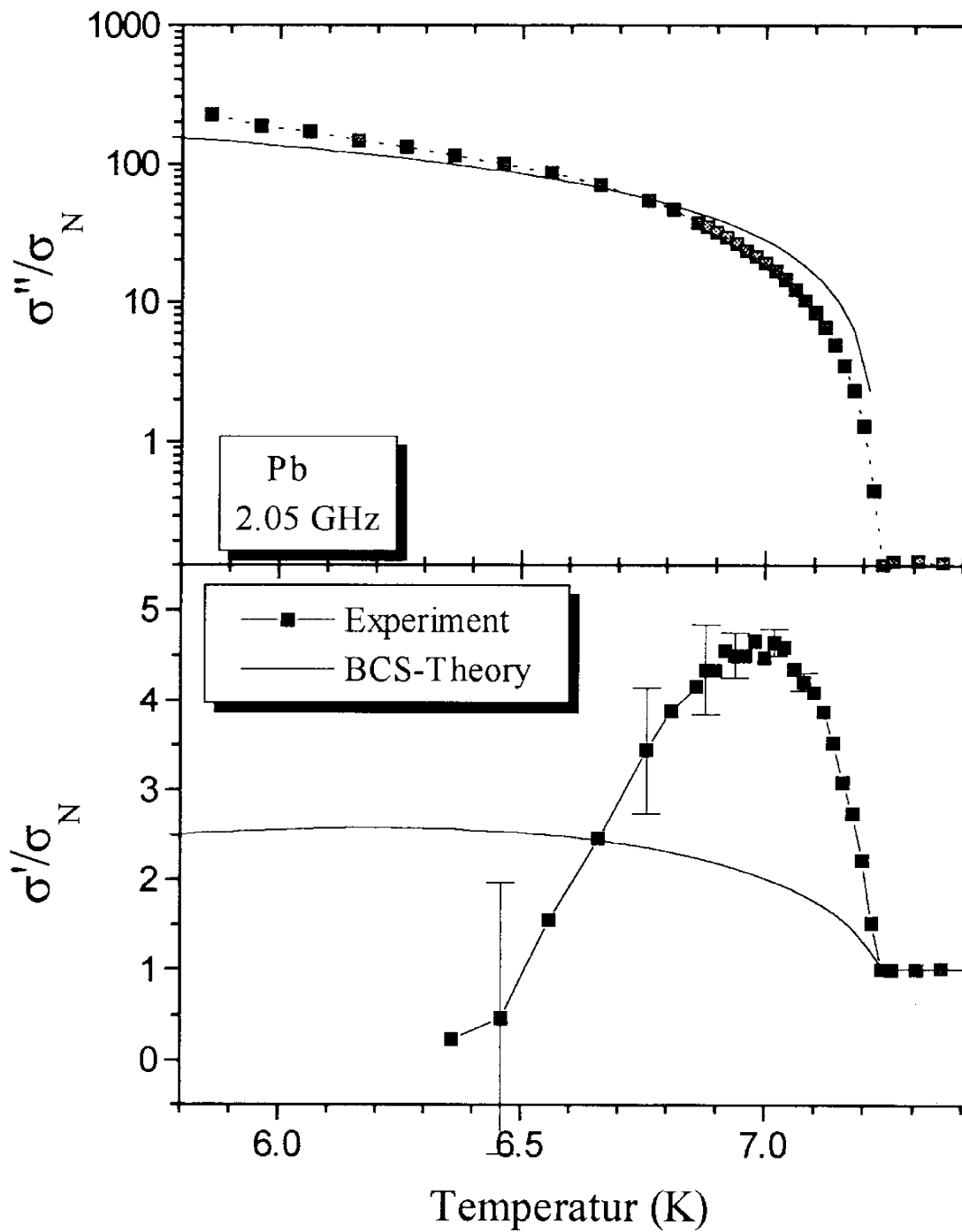


Abbildung 5.2.6: Komplexe Leitfähigkeit des Blei bei 2.05 GHz. Die Linien sind berechnet nach extrem anomalen Grenzfall der BCS-Theorie. Es gibt keine Fitparameter in der theoretischen Kurve.

Die experimentellen Daten werden mit der BCS Theorie verglichen. Im extrem anomalen Grenzfall gibt's keine Fitparameter in der Theorie, da in diesem Fall die komplexe Leitfähigkeit des Supraleiters nicht mehr von ℓ und ξ abhängig ist. Das liegt daran, daß im Hauptausdruck ((1), Kap.5.2) für die komplexe Leitfähigkeit der Term $A(\mathbf{r}')$ die stärkste Ortsabhängigkeit hat und für die anderen Terme einfach der entsprechende Wert bei $R=0$ genommen werden kann. Der resultierende Ausdruck für σ_S / σ_N sieht dann genauso aus wie derselbe Ausdruck im lokalen "dirty" Limit ($\lambda \gg \xi \gg \ell$), und deshalb kann beim Berechnen der theoretischen Kurve die Formel [Bra 89] im extrem "dirty" Limit (mit $\tau = \frac{\pi\xi_0}{2\ell} \gg 1$) verwendet werden, obwohl diese Formel formal für die lokale Näherung geeignet ist.

Der Imaginärteil der Leitfähigkeit stimmt mit der theoretischen Kurve relativ gut überein. Der Unterschied ist auf die angenommenen Näherungen zurückzuführen. Der zweite Effekt, der eine Rolle spielen kann, ist der Effekt der starken Kopplung zwischen den Elektronen und Phononen in Blei [Gas 70], der in diesem Experiment nicht in Betracht gezogen wurde.

Der Realteil der Leitfähigkeit kann mit der BCS-Theorie nicht beschrieben werden. Für die Probe, die bei 2 GHz gemessen wurde, liegt die theoretische Kurve für $T \leq 6.5K$ niedriger als die experimentell erhaltenen Punkte. Die wahrscheinliche Ursache ist die Inhomogenität der Temperatur, die keine Rolle für den Imaginärteil spielt, aber für den Realteil extrem wichtig ist. Es kann gezeigt werden [Deu 80], daß die Verteilung der Phasenübergangstemperaturen in der Probe oder die Inhomogenität der Temperatur einen Peak in der temperaturabhängigen Leitfähigkeit verursachen, dessen Breite einer Breite der Temperaturverteilung entspricht. Bei 540MHz sieht man diesen Effekte kaum, weil in dem Fall statt einem Draht ein massiver Zylinder gemessen wurde. Stattdessen wurde eine Unterdrückung der Kohärenzeffekte beobachtet. Man sieht eine deutliche Steigerung der Leitfähigkeit, die aber niedriger ist, als im Rahmen der BCS Theorie zu erwarten ist. Eine wahrscheinliche Ursache dafür ist die große Kopplungskonstante in Blei ($\alpha \sim 0.39$) [Ric 65]. Es kann theoretisch gezeigt werden, daß solche Effekte den im Experiment beobachteten Wert des Realteils, der Leitfähigkeit unterdrücke [Aki 91] [All 91]. Dies wurde auch in der Resonanzmessung des Blei bei 60 GHz beobachtet [Kle 94].

5.3 Meßergebnisse. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.8}$

5.3.1 Allgemeines

Alle Proben, die untersucht wurden, stammen aus dem Institut für Kristallographie in Moskau. Die Herstellung der Kristalle wird von Bykov *et al.* [Byk 88] beschrieben. Sie wurden in Platintiegeln mit der Methode der spontanen Kristallisation aus einer nichtstöchiometrischen, mit Cu-Oxiden angereicherten Schmelze gezogen. Alle Kristalle haben die Form eines kleinen dünnen Plättchens mit den Abmessungen von etwa $1 \times 1 \times 0.02 \text{ mm}^3$. Die c-Achsen der Kristalle stehen senkrecht auf der Plättchenebene. Alle untersuchten Kristalle besaßen eine glatte und homogene Oberfläche.

Kristall-Nr.	T_C (50%)	ΔT_C (K)	δ	7- δ
1	91.8 K	0.4	0.0	7.0
1a	doppelt	-	0.0	7.0
2	91.8 K	0.4	0.03	6.97
3	91.5 K	0.6	0.11	6.89
5	90.6 K	1.0	0.16	6.84
6	92 K	~10	0.16	6.84
7	86 K	>3.5	0.18	6.82
12	61 K	>5.0	0.31	6.69

Tabelle 5.3.1: $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.8}$ - Einkristalle, die zur Auswertung benutzt wurden. Als ΔT_C wurde der Bereich definiert, in dem der Widerstand von 50% auf 10% des Wertes bei der Springtemperatur abnimmt.

Die fertigen Kristalle wurden in Sauerstoff bis zur konstanten Masse unter dem Druck $p \approx 1 \text{ atm}$ und der Temperatur $T \approx 723 \text{ K}$ getempert. Die ausschließlich vorgenommene Analyse [Ale 88] läßt den Schluß zu, daß der Sauerstoffgehalt in den Proben als $\delta = 0.0$ angenommen werden kann. Bei einigen Kristallen wurde der Sauerstoffgehalt durch eine weitere Temperprozedur gezielt eingestellt [Sic 93]. Die Einkristalle wurden in einem Platinschälchen im Glasrohrföfen getempert. Durch das Ofenglasrohr wurde Argongas (99.999%) geleitet. Bei dem Tempervorgang wird ausgenutzt, daß sich bei einer vorgegebenen Temperatur bei einem definierten äußeren Sauerstoffpartialdruck ein bestimmter Gleichgewichtssauerstoffgehalt einstellt [Bry 89]. Die damit erhaltenen Werte von δ werden dann mit Hilfe der aus der Literatur [Gra 90] bekannten Abhängigkeit zwischen dem Sauerstoffgehalt und der supraleitenden Übergangstemperatur zur supraleitenden Phase überprüft. Obwohl das genannte Verfahren den genauen Sauerstoffpartialdruck nicht bestimmen und stabil halten läßt, können die mit Hilfe der Vergleichsmethode erhaltenen δ Werte als Näherungswerte benutzt werden. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 5.3.1 dargestellt.

Bei Resonanzmessungen der Kristalle, wie es in Kap.3.2.3 beschrieben ist, wurde in jedem Experiment die Resonanzkurve zweimal gemessen, mit und ohne Probe. Im Gegensatz zu den Bleidaten war dies hier möglich, weil die $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Proben sehr klein waren und die Resonanz nicht stark störten. Eine typische Frequenzänderung beim Einführen der Probe in den Resonator ist weniger als 3% des Absolutwertes der Resonanzfrequenz. Eine solche doppelte Messung der Resonanzfrequenz läßt es zu, den wesentlichen Teil der Selbstabsorption des Resonators abzuziehen.

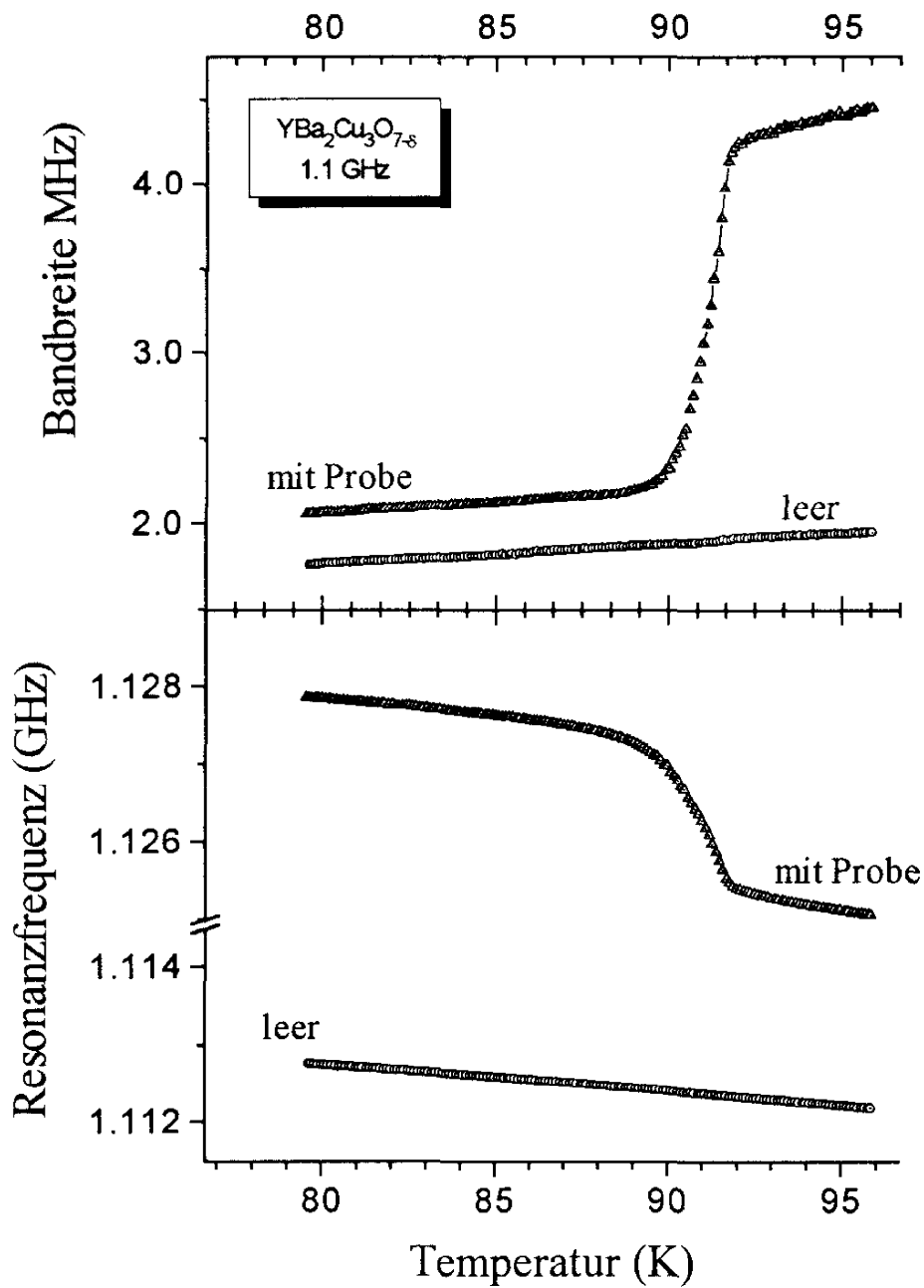


Abbildung 5.3.1: Temperaturabhängigkeit der Resonanzfrequenz (unten) und Bandbreite $\Delta\omega = \omega_0/Q$ (oben) des 1.1 GHz Helixresonators mit und ohne (leer) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Probe. Es sind die Daten für die Probe Nr.5 dargestellt (siehe Tab.5.3.1). Man beachte die Unterbrechung der Achse auf der die Resonanzfrequenz aufgetragen ist.

Hauptsächlich wurden die $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ -Proben in dem Resonator gemessen, der eine Resonanzfrequenz von 1.1 GHz hat. Einzelne Messungen wurden auch bei 200 MHz durchgeführt. Ein Hauptgrund dafür ist die hohe Sensitivität der Messung bei höheren Frequenzen, der unter anderen durch die $\sim \omega^2$ Frequenzabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes zu erwarten ist. Die Frequenz von ~ 1 GHz ist einerseits praktisch der höchste Frequenzwert, den man mit Hilfe eines Helixresonators erreichen kann, andererseits sind höhere Frequenzen weniger interessant, da bei $\nu \geq 10$ GHz viele Literaturdaten über die komplexe Impedanz von YBaCuO zur Verfügung stehen ([Kle 92], [Shi 92], [Kln 93]). Einige Proben wurden trotzdem bei anderen Frequenzen gemessen, um zu überprüfen, ob die für die Rechnungen benutzte Näherung richtig ist, daß nämlich die Strom-Feld-Verhältnisse lokal sind und das elektromagnetische Feld nur an der Oberfläche wirkt.

Die gemessenen Resonanzparameter in Abhängigkeit von der Temperatur sind in Abb.5.3.1 zu sehen. Der Phasenübergang bei etwa 91.5 K ist relativ scharf, und nur bis $T=85$ K kann man noch zwischen Proben- und leeren Resonatordaten unterscheiden.

Alle Messungen an $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ werden zunächst separat behandelt und abschließend zusammen diskutiert.

1. Probe Nr.1, $\delta = 0.0$

Dies ist eine Probe, die in Sauerstoff getempert wurde, und deshalb wird angenommen, daß für die Probe $\delta = 0.0$ gilt. Diese Probe hat den schmalsten supraleitenden Phasenübergang, im Vergleich zu den anderen YBaCuO Proben, deren Meßdaten in dieser Arbeit präsentiert werden.

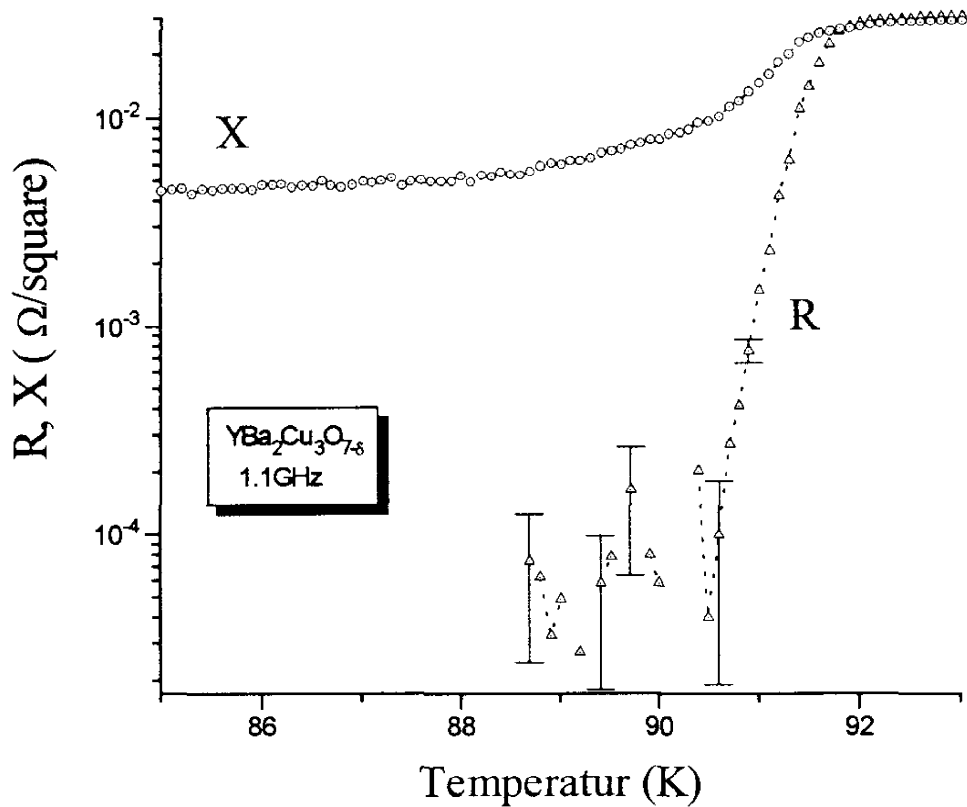


Abbildung 5.3.2: Temperaturabhängigkeit der Oberflächenimpedanzen bei 1.1 GHz vom $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.8}$ Einkristall Nr.1 ($\delta=0.0$).

Die gemessenen Oberflächenimpedanzen sind in Abb.5.3.2 dargestellt. Obwohl die Reaktanzdaten in einem relativ großen Temperaturbereich gemessen werden konnten, stehen die Widerstandsdaten wegen der begrenzten Sensitivität der Messung nur bis etwa 2K unterhalb des Phasenübergangs zur Verfügung. Es ist trotzdem möglich, in diesem Bereich die komplexe Leitfähigkeit auszurechnen. Man benutzt dafür eine Formel für die Oberflächenimpedanz im lokalen Limit (Kap.4.1):

$$Z^* = \left(\frac{i\mu_0\omega}{\sigma^*} \right)^{1/2}$$

Der $X(0)$ Wert, den man für die Rechnungen braucht, wurde mit Hilfe des Zwei-Flüssigkeits-Modells berechnet. Die entsprechende Darstellung ist in Abb.5.3.3 zu sehen. Die temperaturabhängigen komplexen Leitfähigkeitsdaten sind in Abb.5.3.4 dargestellt. Die durchgezogene Linie ist ein BCS-Fit, der mit Hilfe des Brandtschen

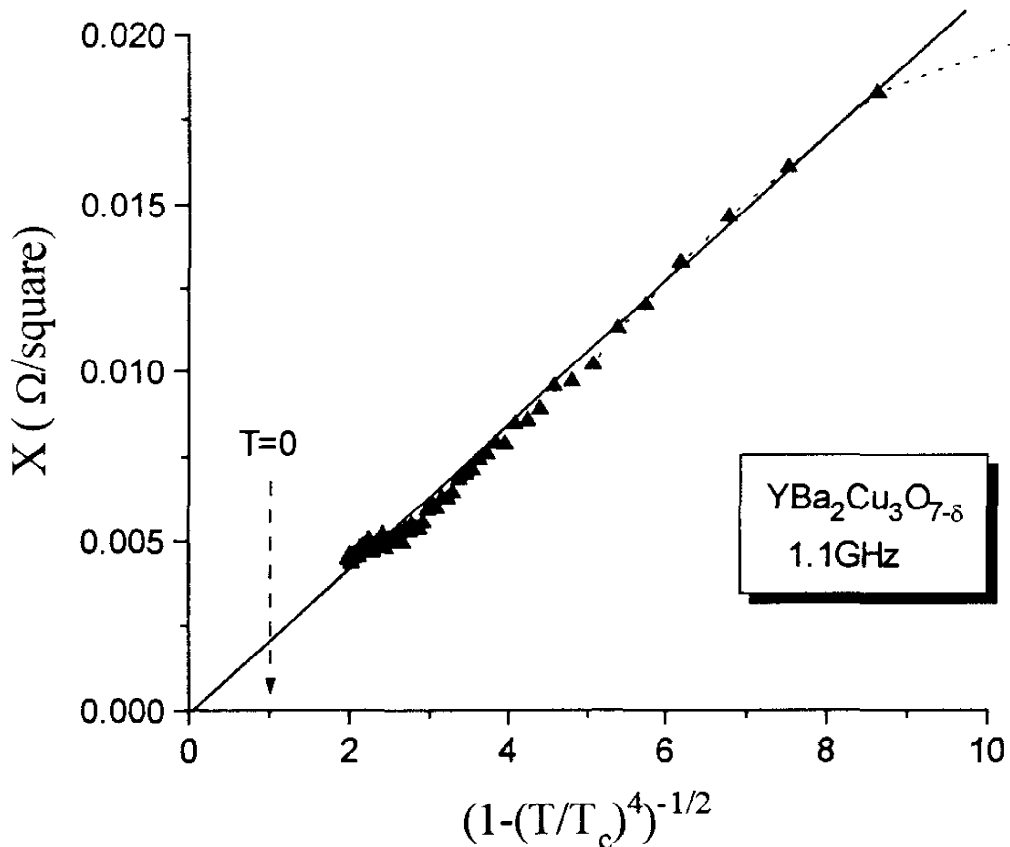


Abbildung 5.3.3 Oberflächenreaktanz (X) des $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristalls Nr.1 ($\delta=0.0$) bei 1.1 GHz in Zwei-Flüssigkeits-Modell-Darstellung. Die Gerade entspricht einer magnetischen Eindringtiefe von $\lambda = \frac{1}{\mu_0 \omega} \frac{\partial X}{\partial f_{2fl}} = 230 \mu\text{m}$.

FORTTRAN - Programmes [Bra 89] durchgeführt wurde. Der einzige Fitparameter des Programmes (*dirty parameter*) $\tau = \frac{\pi \epsilon_0^{\epsilon}}{2\ell}$ hat in diesem Fall einen Wert von 0.15.

Man sieht, daß der Imaginärteil der Leitfähigkeit mit Hilfe der BCS-Theorie gut beschrieben werden kann, obwohl der Realteil der Leitfähigkeit fast immer kleiner als der theoretische Wert ist, ausgenommen den schmalen Bereich in der Nähe des Phasenübergangs.

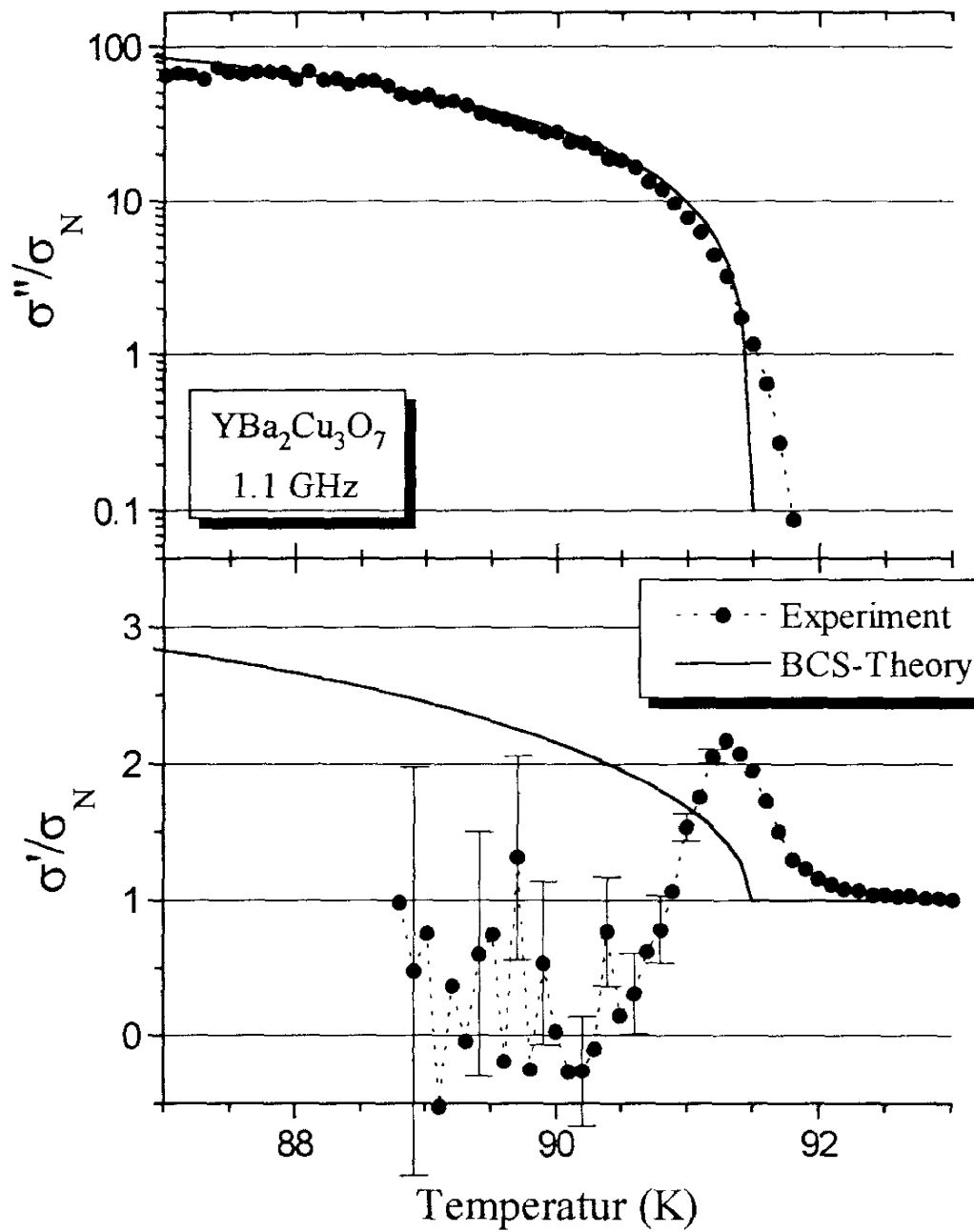


Abbildung 5.3.4: Die komplexe Leitfähigkeit von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristall Nr.1 ($\delta=0.0$) bei 1.1 GHz. Die durchgezogene Linie entspricht dem BCS-Theorie Fit. Der Fitparameter $\pi\xi_0/2$ hat in diesem Fall den Wert 0.15.

2. Probe Nr.1a. $\delta = 0.0$

Diese Probe zeigt einen doppelten Phasenübergang. Abb.5.3.5 zeigt die gemessenen Impedanzdaten; auf dem Bild bezeichnen die Pfeile zwei Übergangstemperaturen. Es ist noch zu beachten, daß im normalleitenden Zustand $R_N \neq X_N$ ist. Das ist ein Hinweis auf mögliche Nichtoberflächeneffekte, die mit dem doppelten Phasenübergang verbunden sein könnten. Deshalb wurden die Daten dieser Probe nicht weiter behandelt.

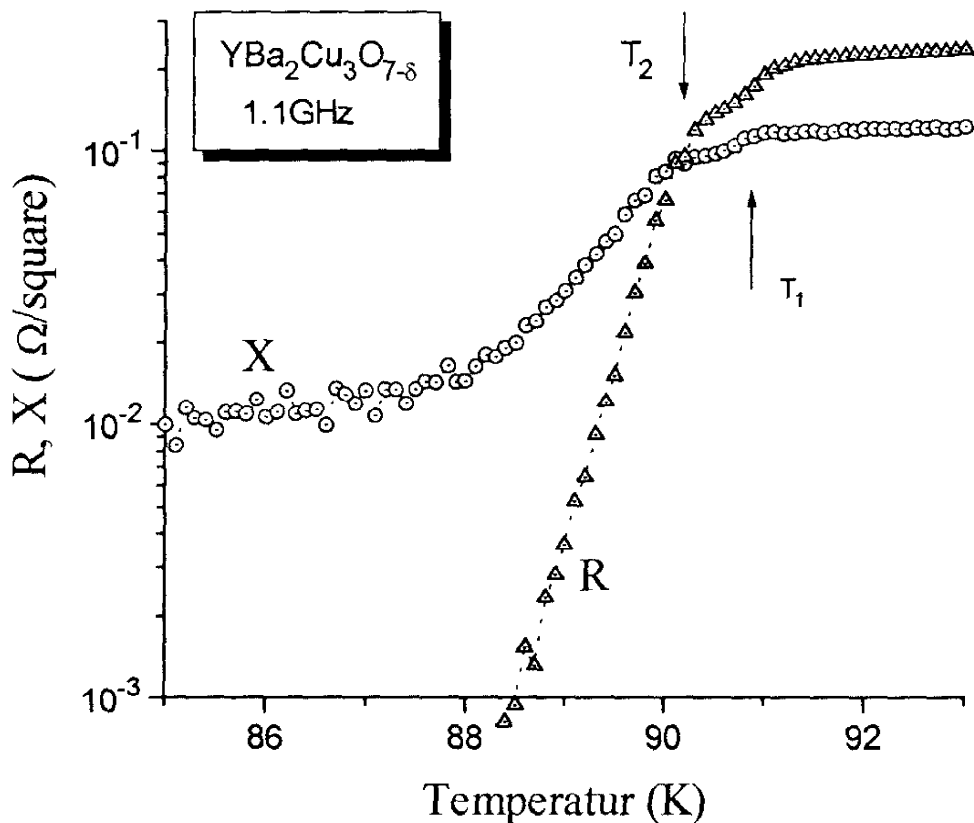


Abbildung 5.3.5: Temperaturabhängigkeit der Oberflächenimpedanz bei 1.1 GHz des $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristalls Nr.1a ($\delta=0.0$). Der doppelte Phasenübergang ist zu beachten.

3. Probe Nr.2. $\delta = 0.03$ Probe Nr.3. $\delta = 0.11$

Im Vergleich zur Probe Nr.1 weisen die beiden Proben Nr.2 und Nr.3 einen etwas breiteren Phasenübergang auf. Die Meßergebnisse sind in Abb.5.3.6-5.3.10 dargestellt. Die Abb.5.3.6, 5.3.9 zeigen den Oberflächenwiderstand bei 1.1 GHz und die Abb.5.3.7, 5.3.8 die daraus berechnete komplexe Leitfähigkeit. Der für die Berechnungen notwendige Wert von $X(0)$ wurde wie immer mit Hilfe des Zwei-Flüssigkeits- Modells gefunden.

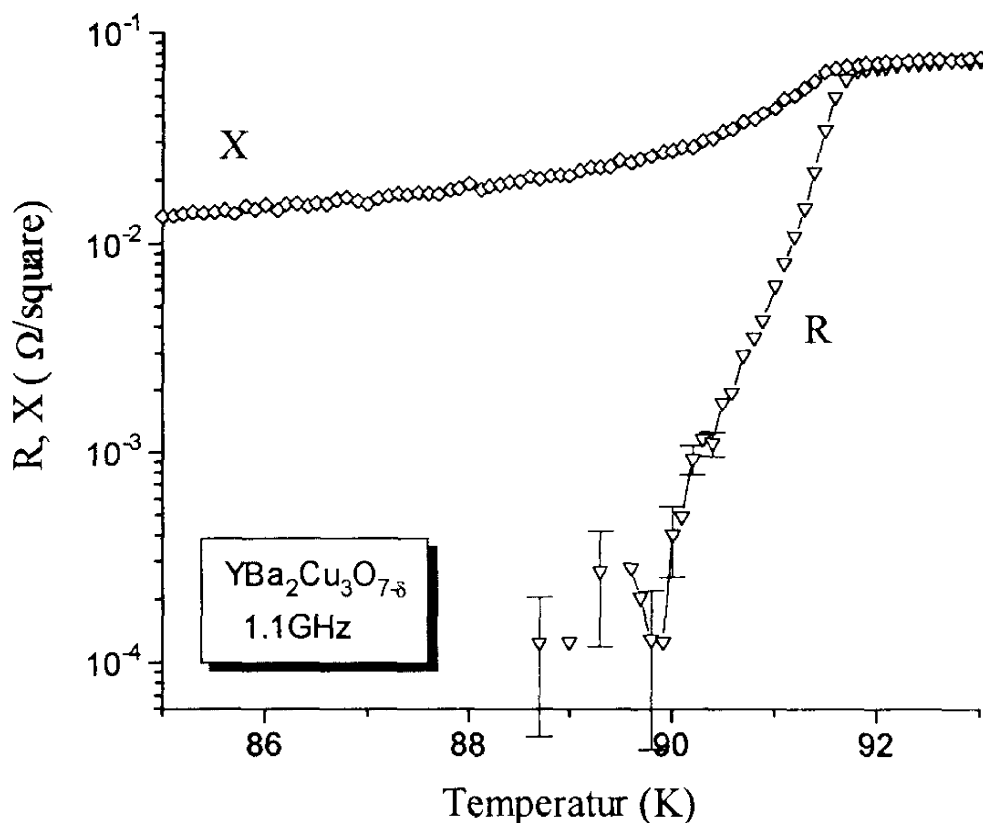


Abbildung 5.3.6 Temperaturabhängigkeit der Oberflächenimpedanzdaten bei 1.1 GHz von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristall Nr.2 ($\delta=0.03$).

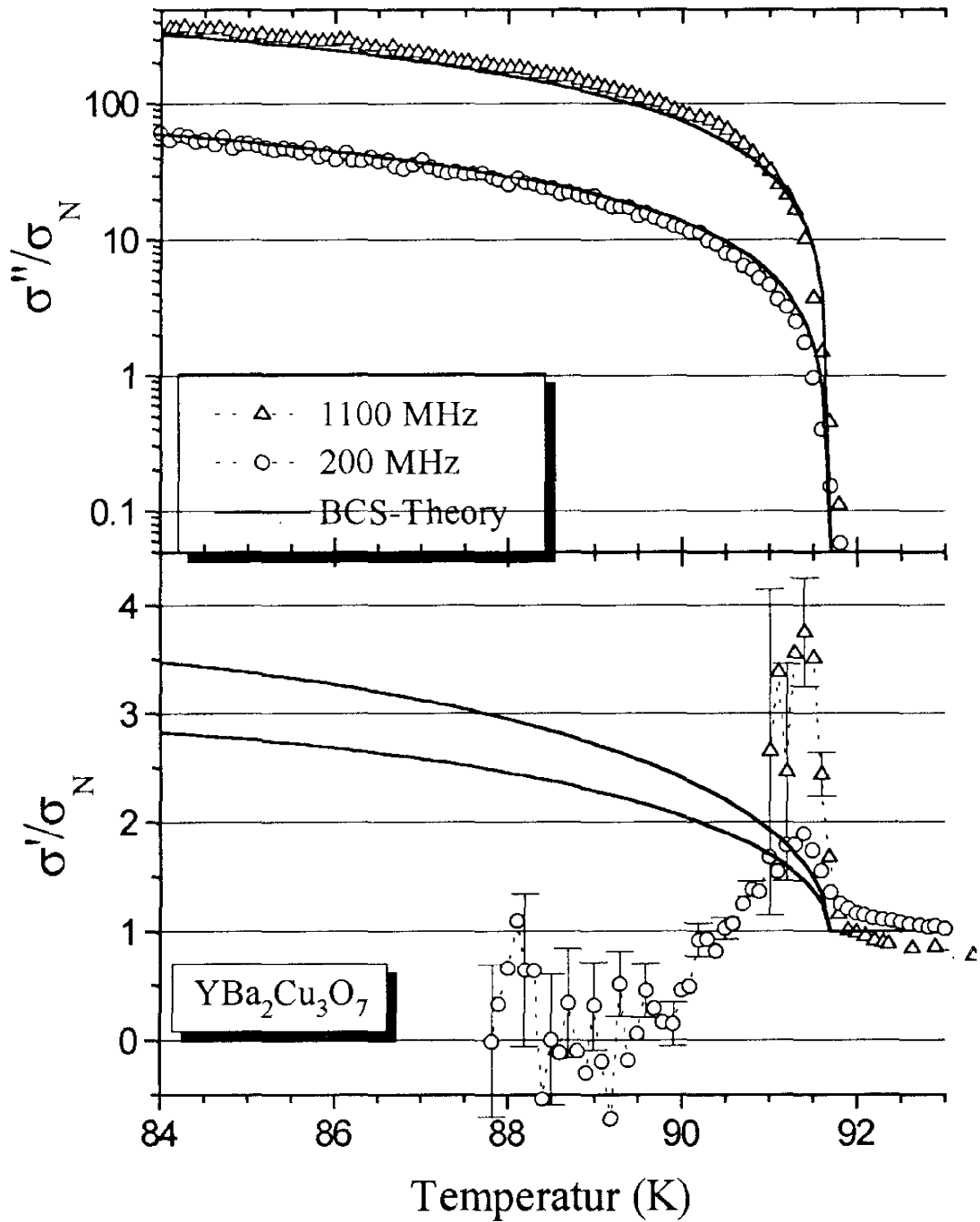


Abbildung 5.3.7: Die komplexe Leitfähigkeit von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristall Nr.2 ($\delta=0.03$) bei 200 MHz und 1.1 GHz. Die durchgezogene Linie entspricht dem Fit gemäß der BCS-Theorie. Der Fitparameter $\pi\xi_0/2\ell$ wird bei beiden Frequenzen als 0.06 angenommen.

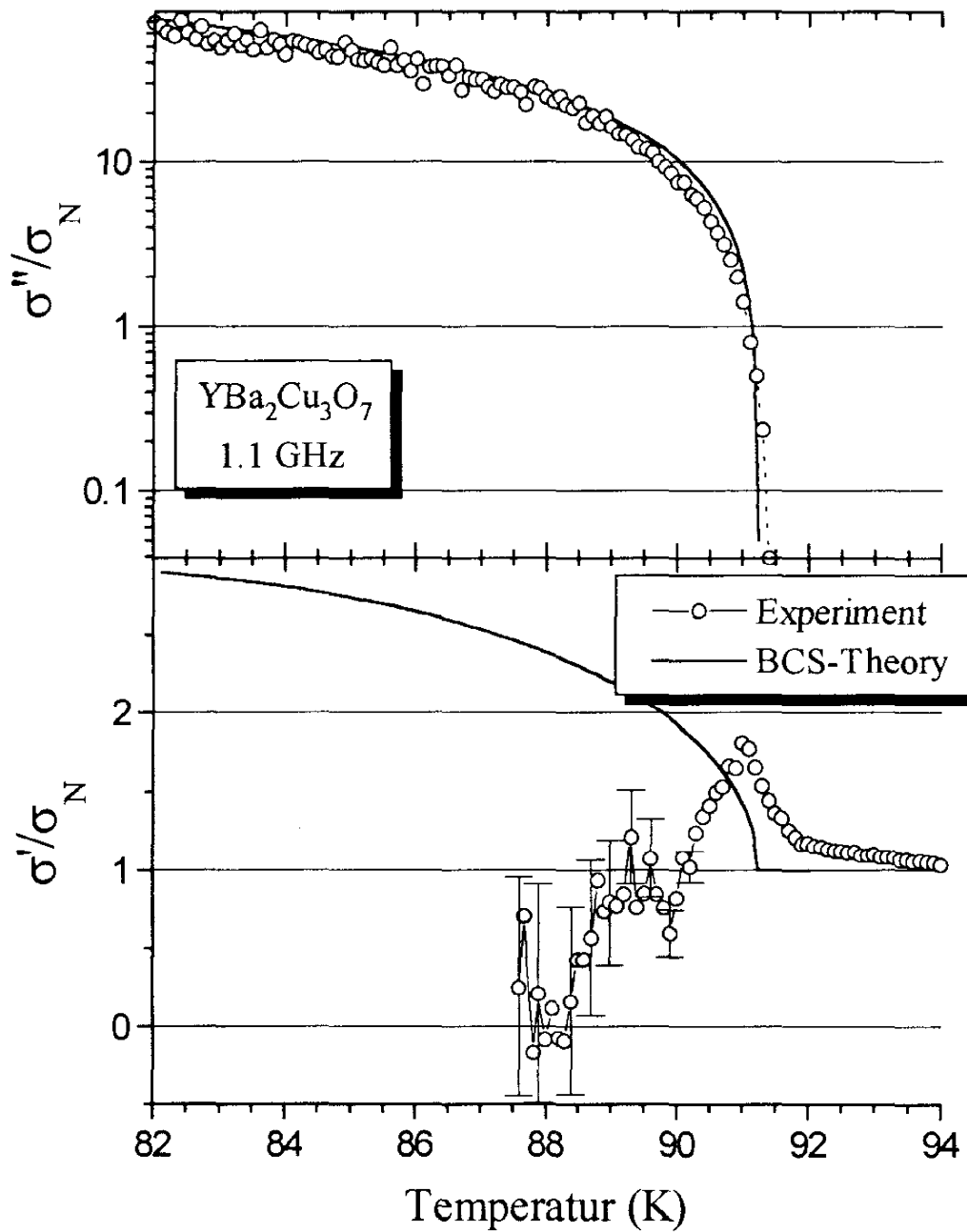


Abbildung 5.3.8: Die komplexe Leitfähigkeit von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristall Nr.3 ($\delta=0.11$) bei 1.1 GHz. Die durchgezogene Linie entspricht dem Fit gemäß der BCS-Theorie. Der Fitparameter $\pi\xi_0/2l$ hat den Wert 0.06.

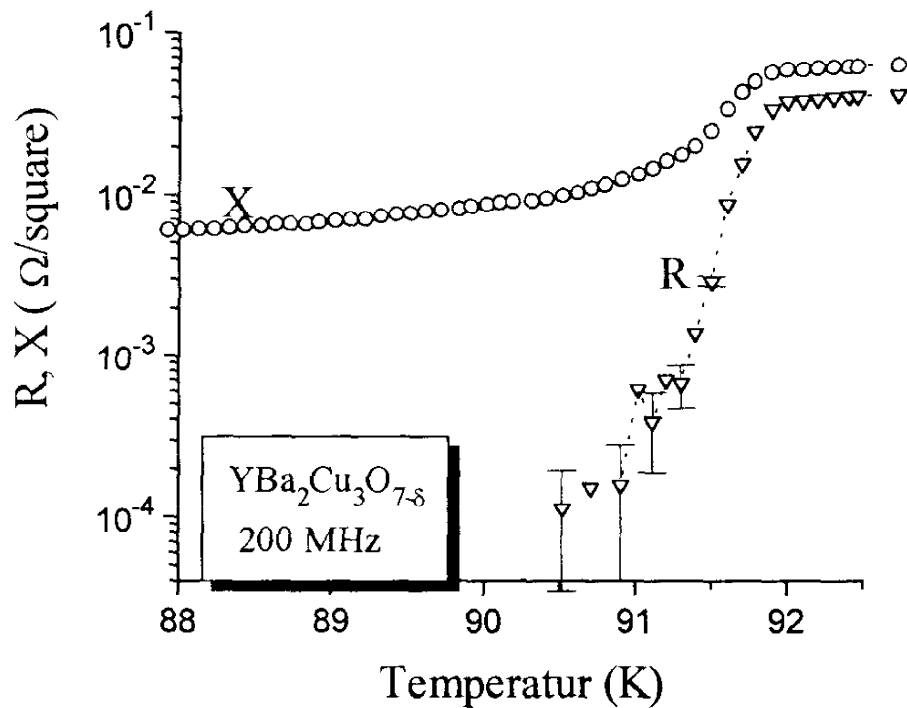


Abbildung 5.3.9: Temperaturabhängigkeit der Oberflächenimpedanz bei 200 MHz von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristall Nr.2 ($\delta=0.03$).

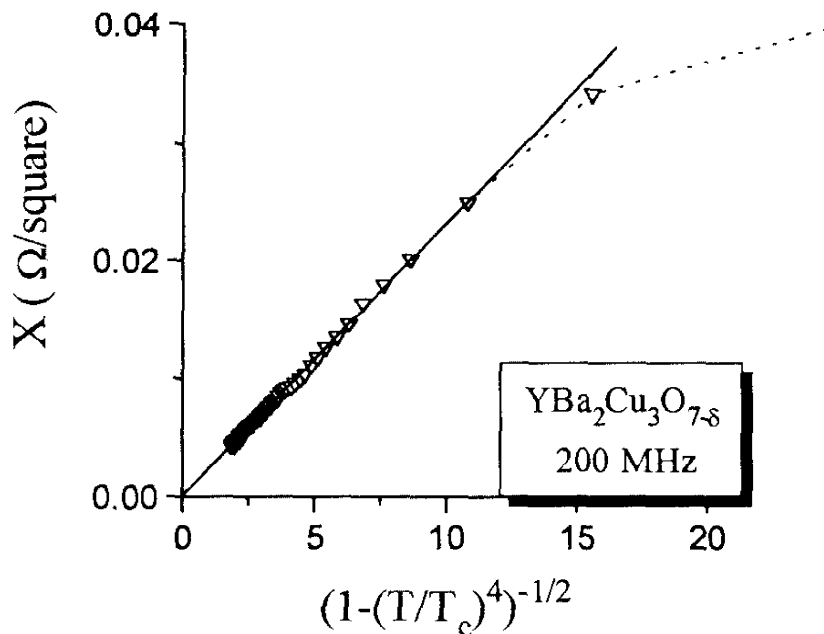


Abbildung 5.3.10 Zwei-Flüssigkeits-Darstellung der Oberflächenreaktanz von Probe Nr.2 bei 200 MHz. Die Gerade entspricht einer magnetischen Eindringtiefe von $\lambda=1300 \text{ \AA}$. Es ist ein größerer linearer Bereich im Vergleich zur Probe mit $\delta=0.0$ (Abb.5.3.3) zu bemerken.

Die Probe Nr.2 wurde auch in 200 MHz Resonator gemessen, obwohl hier die Empfindlichkeit gegenüber der Messung bei 1.1 GHz deutlich reduziert war. Das typische Temperaturverhalten der 200 MHz Daten ist grundsätzlich dasselbe wie bei 1 GHz. Zwei Unterschiede treten jedoch auf:

-1. Im der normalleitende Phase sind R und X ungleich. Das Verhältnis X/R beträgt etwa 1.5. Dieser Wert hat aber nichts mit dem nichtlokalen Wert $\sqrt{3}$ (Kap.4.1) zu tun, sondern ist frequenzabhängig und hängt mit der vergrößerten Eindringtiefe zusammen.

2. Ein schmaler Peak im Realteil der Leitfähigkeit in der Nähe des Phasenüberganges ist nicht mehr deutlich zu erkennen. Man sieht nur einen Anstieg der Leitfähigkeit nach T_c . Das weitere Verhalten ist wegen der zu großen Streuung der Daten nicht mehr auszumachen.

4. Probe Nr.5. $\delta = 0.16$.

Die Probe Nr.5 hat einen besonderen Platz in der Reihe aller in dieser Arbeit dargestellten Proben. Obwohl die Breite des Phasenübergangs noch mit der Breite des Übergangs bei Proben mit einem größeren Sauerstoffgehalt vergleichbar ist, ist der Oberflächenwiderstand im supraleitenden Zustand hoch genug, um in einem großen Temperaturbereich meßbar zu sein. Die gemessenen Widerstandsdaten sind in Abb.5.3.11 gezeigt, und die daraus bestimmte komplexe Leitfähigkeit ist in Abb.5.3.12 zu sehen.

Der Imaginärteil der Leitfähigkeit sieht im wesentlichen wie bei der Probe mit großen Sauerstoffgehalt (kleinem δ) aus und paßt wesentlich schlechter zur theoretischen Vorhersage als die Daten der Kristalle Nr.1,2 und 3. Die Abweichungen sind am größten in der Nähe der Phasenübergangstemperatur. Der Realteil der Leitfähigkeit kann nicht mit Hilfe der BCS-Theorie gefittet werden. Die Daten liegen immer höher als die theoretischen Kurven.

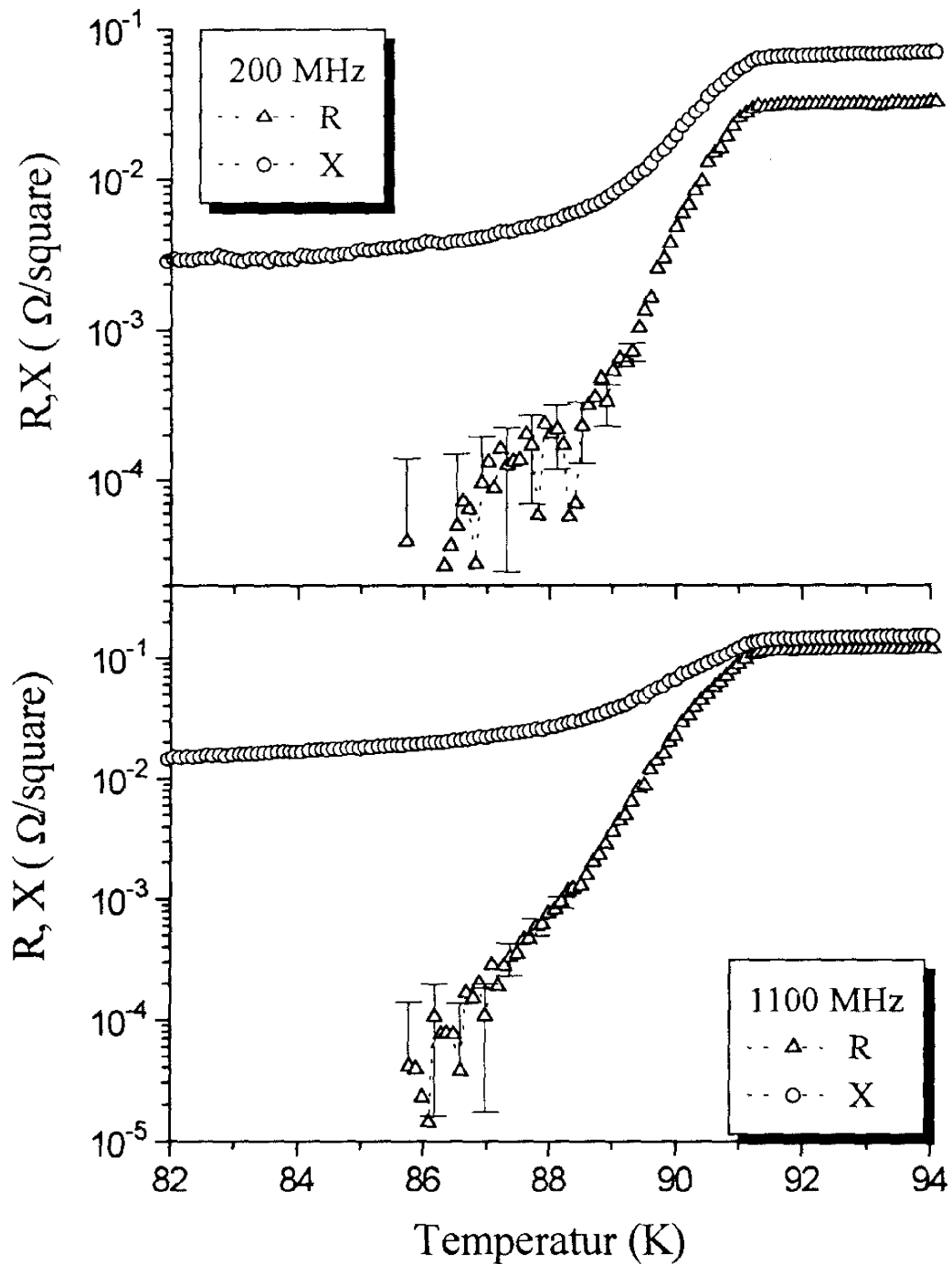


Abbildung 5.3.11 Temperaturabhängigkeit der Oberflächenimpedanz bei 1.1 GHz (unten) und 200 MHz (oben) von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristall Nr.5 ($\delta=0.16$).

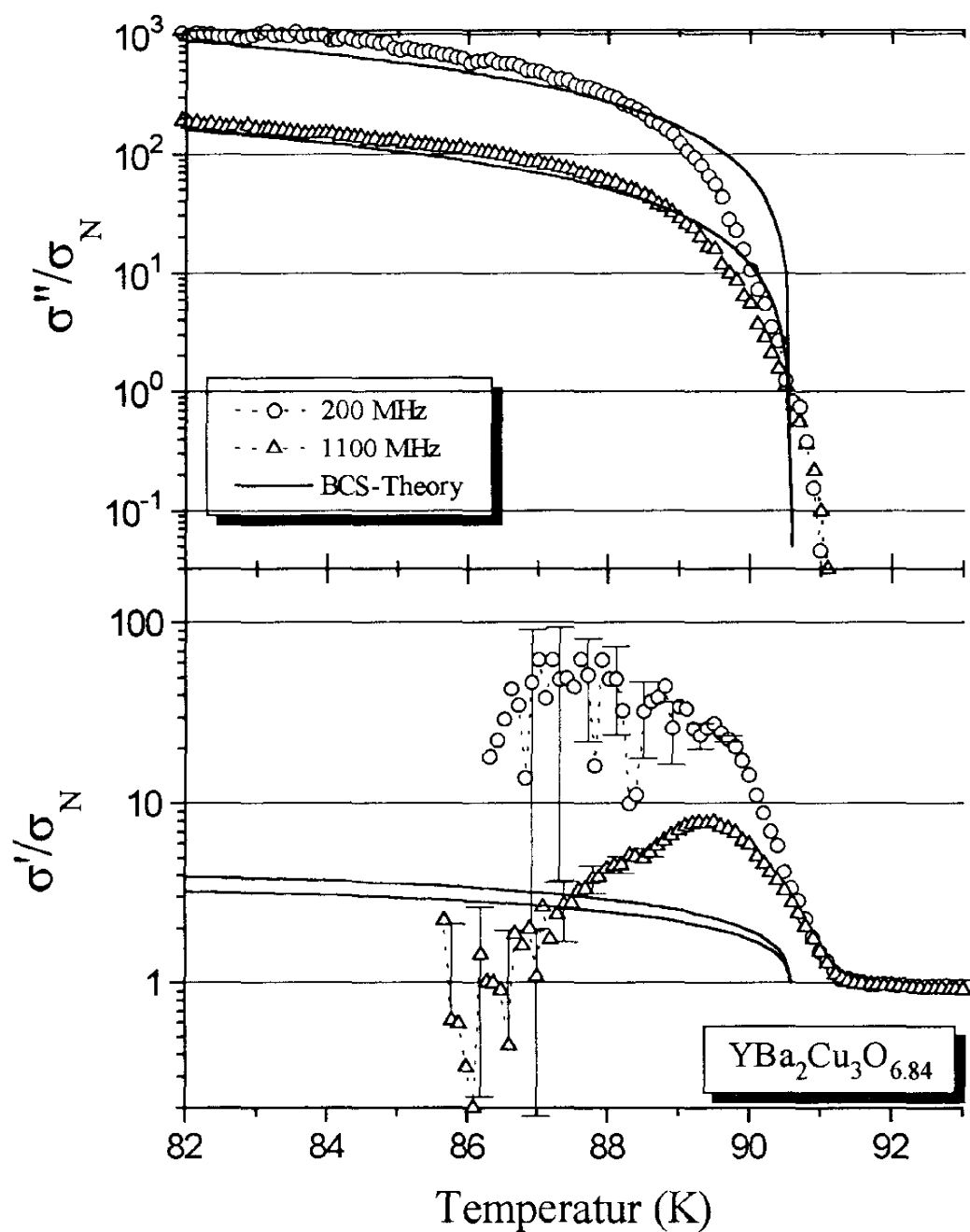


Abbildung 5.3.12: Die komplexe Leitfähigkeit von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristall Nr.5 ($\delta=0.16$) bei 200 MHz und 1.1 GHz. Die durchgezogene Linie entspricht dem Fit gemäß der BCS-Theorie. Der Fitparameter $\pi\xi_0/2\ell$ wird bei beiden Frequenzen als 0.16 genommen.

5. Probe Nr.6 $\delta = 0.16$

Probe Nr.7 $\delta = 0.18$

Probe Nr.12 $\delta = 0.31$

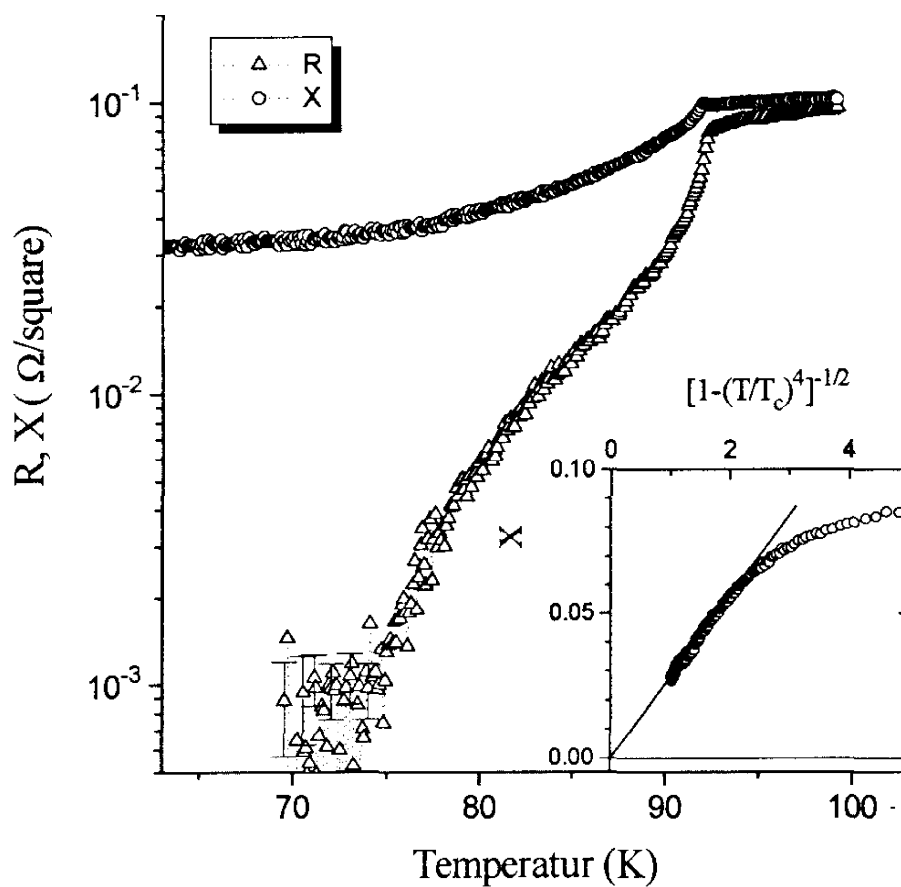


Abbildung 5.3.13: Temperaturabhängigkeit der Oberflächenimpedanz bei 1.1 GHz von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristall Nr.6 ($\delta=0.16$). Im Einschub ist die Reaktanz gemäß dem Zwei-Flüssigkeits-Modell aufgetragen. Die Gerade entspricht einer magnetischen Eindringtiefe von $\lambda = 3200 \text{ \AA}$.

Die Probe Nr.6 ist ein erstes Beispiel für einen stark verbreiterten Phasenübergang, obwohl die Phasenübergangstemperatur noch hoch ist. Die geschätzte Breite des Überganges ist etwa 10 K. Die gemessenen temperaturabhängigen komplexen Impedanzdaten sind in Abb.5.3.13 gezeigt. Man kann vermuten, daß die Probe noch relativ gleichmäßig ist, die Impedanzdaten und die Zwei-FlüssigkeitsModell-Auftragung sehen qualitativ noch genauso aus, wie die Daten der Proben mit größerem Sauerstoffgehalt. Es gibt einen linearen Bereich in Zwei-Flüssigkeits-Modell-Darstellung, der den Nullwert $X(0)$ bestimmen läßt, um die komplexe Leitfähigkeit zu berechnen. Die Abb.5.3.14 stellt die berechneten Leitfähigkeitsdaten dar. Es ist zu sehen, daß der Realteil der Leitfähigkeit viel größer und der Imaginärteil etwa 10 mal kleiner, als bei anderen Proben ist. Es wurde in diesem Fall kein theoretischer Fit gezeigt, da der Imaginärteil der Leitfähigkeit sich mit keinen physikalisch plausiblen Parametern fitten läßt.

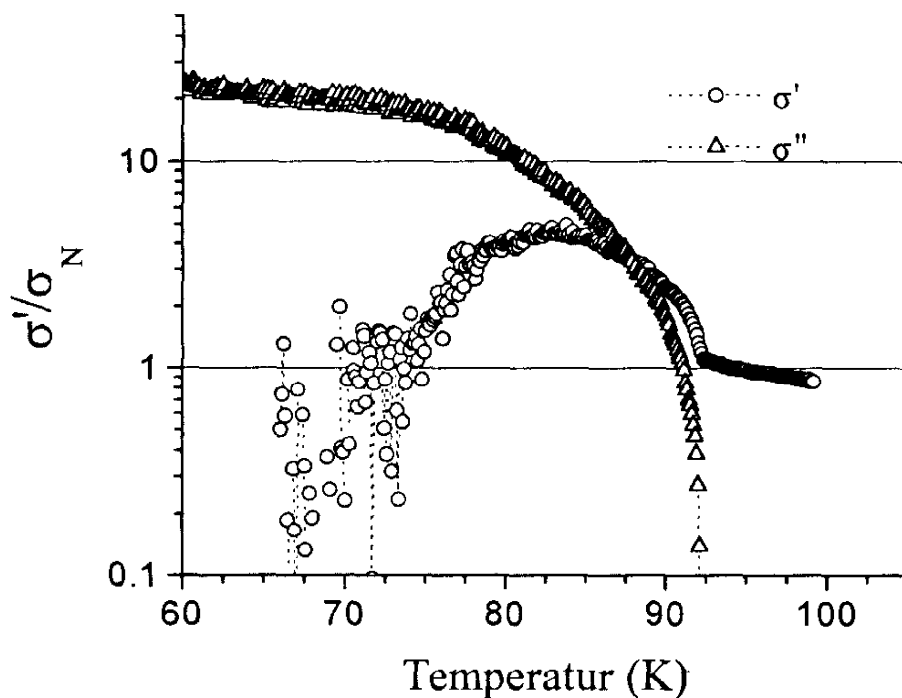


Abbildung 5.3.14: Die komplexe Leitfähigkeit von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.5}$ Einkristall Nr.6 ($\delta=0.16$) bei 1.1 GHz.

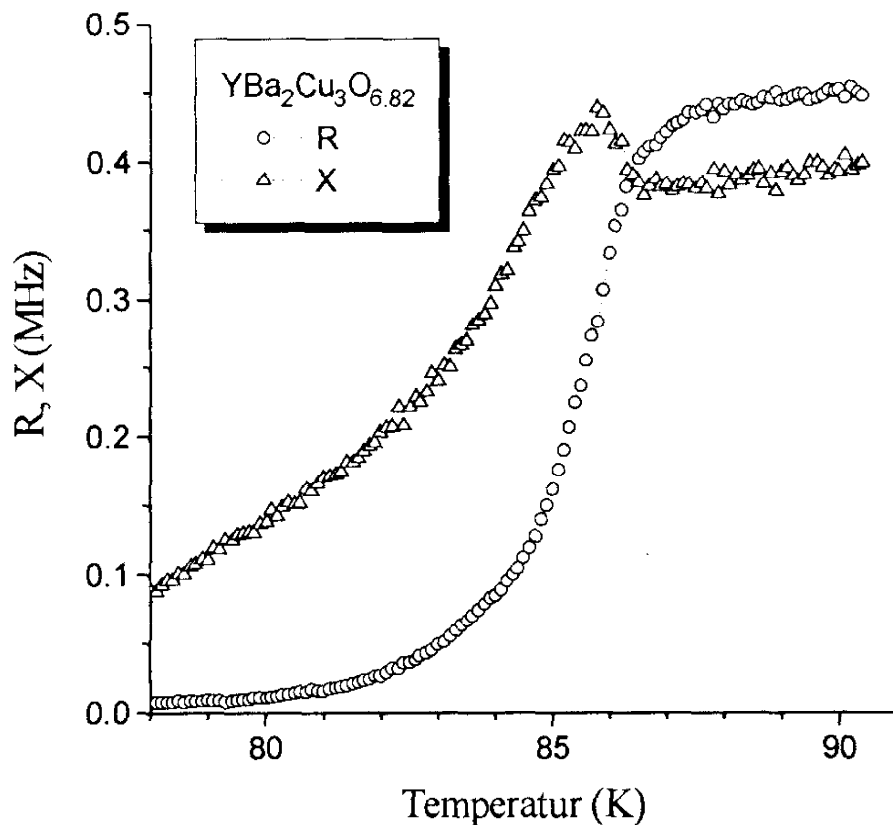


Abbildung 5.3.15: Temperaturabhängigkeit der Oberflächenimpedanzdaten bei 1.1 GHz von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristall Nr.7 ($\delta=0.18$).

Bei den beiden Proben Nr.7 und Nr.12 ist der Sauerstoffmangel schon so groß, daß die Übergangstemperatur deutlich niedriger als 90K liegt. T_C ist 86K für Probe Nr.7 und 61K für Probe Nr.12. Die komplexen Impedanzergebnisse sind in den Abb.5.3.15, 5.3.16 gezeigt. Eines der Ziele dieser Messungen war, die Impedanzdaten bei gleich hergestellten Proben mit unterschiedlichen Phasenübergangstemperaturen zu vergleichen. Die Meßergebnisse lassen es aber nicht zu: der stark verbreitete Phasenübergang bei Proben mit großem Sauerstoffmangel läßt nur der Schluß zu, daß diese Proben schon stark inhomogen sind in Bezug auf die räumliche Sauerstoffsverteilung.

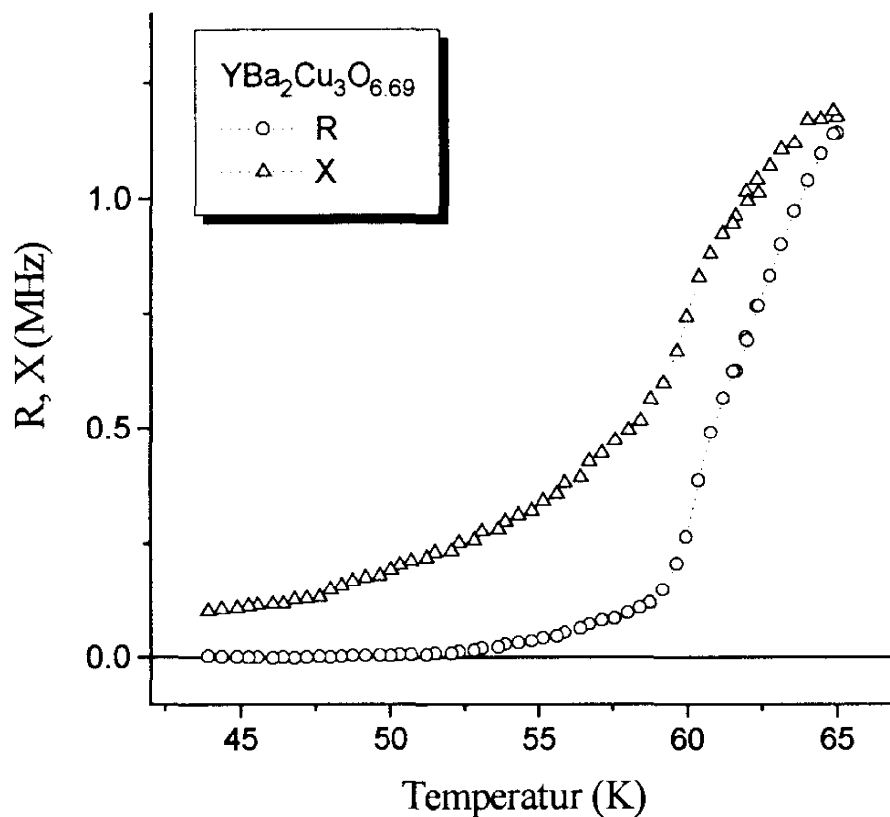


Abbildung 5.3.16: Temperaturabhängigkeit der Oberflächenimpedanz bei 1.1 GHz von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristall Nr.12 ($\delta=0.31$).

Die Oberflächenwiderstände beider Proben sind in den Abb.5.3.15, 5.3.16 dargestellt. In Abb.5.3.16 (Probe Nr.12) sieht man einen stark verbreiterten Phasenübergang mit dem Hauptsprung des Widerstandes bei 61 K. In Abb.5.3.15 (Probe Nr.7) sieht man sogar einen Peak in der Temperaturabhängigkeit des Imaginärteils der Impedanz bei etwa 86K. Der Peak läßt sich leicht erklären, wenn man das volle Eindringen des elektromagnetischen Feldes in den Kristall betrachtet. In diesem Fall kann die Reaktanz X mit folgender Formel beschrieben werden:

$$X \sim \frac{\sigma''}{\sigma'^2 + \sigma''^2}. \text{ Im normalleitenden Zustand ist der Imaginärteil der Leitfähigkeit } \sigma'' = 0$$

und steigt nach dem Phasenübergang wie $\sigma'' \sim (1 - \frac{T}{T_c})$ an, σ' hat im Vergleich zu σ'' eine viel schwächere Temperaturabhängigkeit, wenigstens in einem schmalen Bereich in der Nähe des Phasenübergangs. Das heißt, daß oberhalb des Phasenübergangs $\sigma' \gg \sigma''$ ist und die im Experiment beobachtete Reaktanz X proportional zu $\frac{\sigma''}{\sigma'^2}$ ist

und deswegen mit sinkender Temperatur steigt. Unterhalb des Phasenübergangs ist $\sigma' \ll \sigma''$, und X ist nun proportional zu $\frac{1}{\sigma'}$ und nimmt bei sinkender Temperatur ab.

Um beide Bedingungen zu erfüllen, muß die Reaktanz X ein Maximum haben, wenn $\sigma' \approx \sigma''$. Um den im Experiment beobachtenden Peak zu beschreiben, darf man eigentlich nicht die gerade unterstellte qualitative Änderung des vollen Eindringens des elektrischen Feldes annehmen, sondern muß die Formel (z.B. [Dum 94]):

$$Z = R + iX = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{i\mu_0\omega}{\sigma}} \coth\left(\frac{d}{2} \sqrt{i\mu_0\omega\sigma}\right)$$

benutzen, wobei d die Dicke der Probe ist, die als ein dünner Film betrachtet wird.

Die gegebene einfache Erklärung ist aber qualitativ korrekt und liefert prinzipiell die gleichen Ergebnisse wie die genaue Berechnung nach der oben angegebenen Formel.

5.3.2 Diskussion und Vergleich der Daten

Um die Ergebnisse der verschiedenen Proben vergleichen zu können, wurden die Daten auf $\frac{T}{T_c}$ und $\frac{R}{R_m}$ skaliert. Das Vergleichsbild des Oberflächenwiderstandes ist in Abb.5.3.17 zu sehen. Die Proben mit höherem Sauerstoffgehalt haben die am schärfsten definierten Phasenübergänge. Ein Schnitt der Daten wurde in der Nähe der Übergangstemperatur T_c bei zwei verschiedenen Temperaturen vorgenommen und ist in Abb.5.3.18 dargestellt. Der Oberflächenwiderstand nimmt mit steigendem Sauerstoffmangel δ zu, wofür die steigende Inhomogenität der Kristalle ein Grund sein kann. Die Imaginärteile X der Impedanz bei diesen Proben sind in Abb.5.3.19 in der Zwei-Flüssigkeits-Modell-Darstellung aufgetragen. Hier konnte keine direkte Abhängigkeit vom Sauerstoffgehalt in der Probe beobachtet werden.

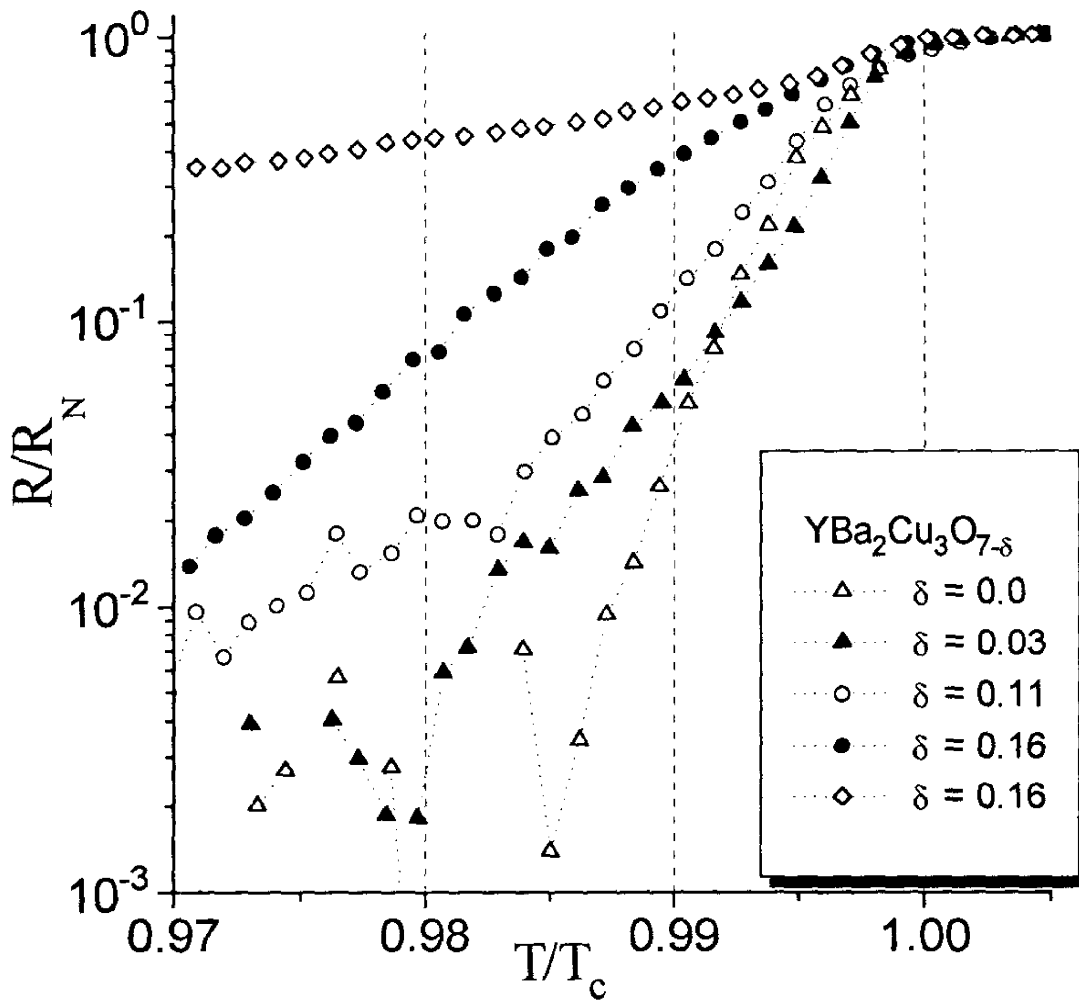


Abbildung 5.3.17: Oberflächenwiderstand von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ gegen Temperatur bei 1.1 GHz in normierter Darstellung.

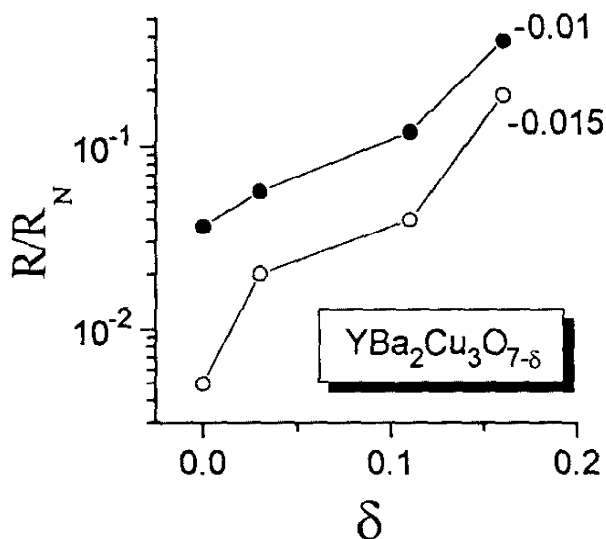


Abbildung 5.3.18: Die Sauerstoffmangelabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ in der Nähe der Phasenübergangstemperatur. Die Zahlen neben den Kurven bedeuten den Abstand von T_C , d.h.: $(T/T_C - 1)$.

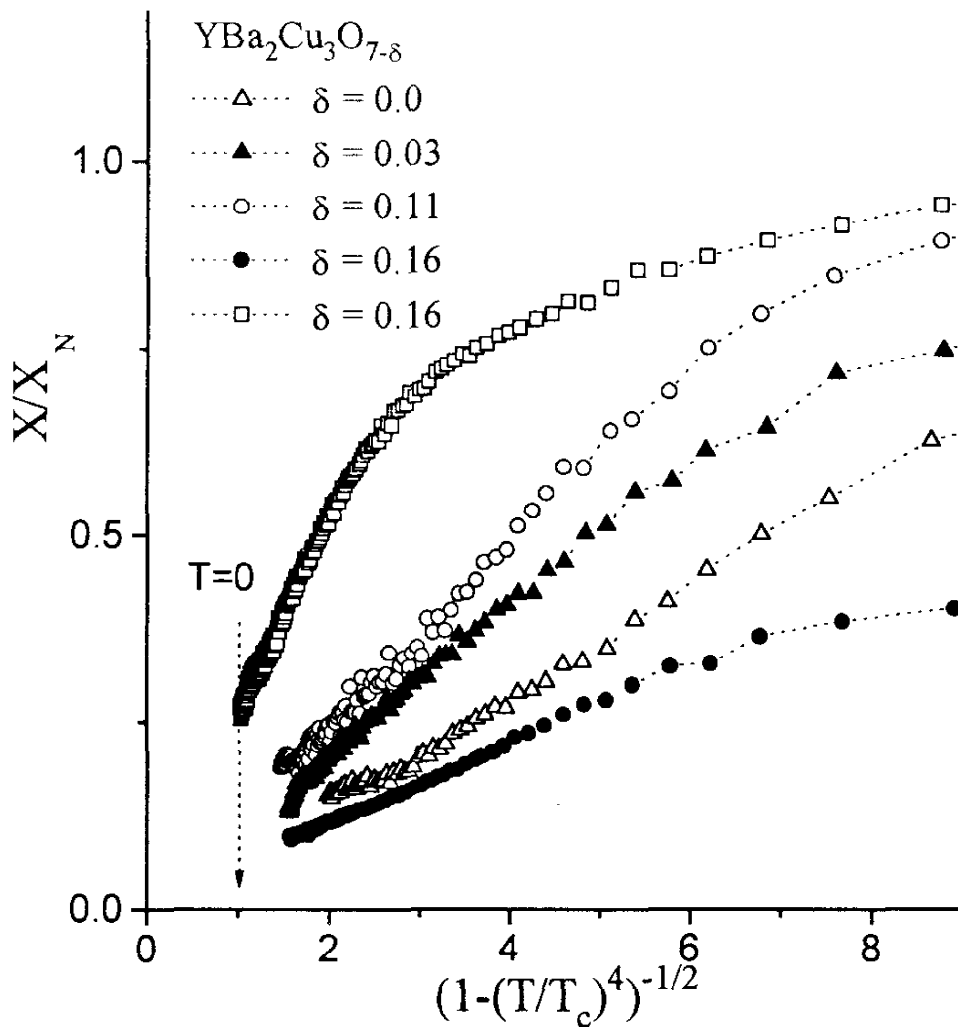


Abbildung 5.3.19: Die normierten Reaktanzdaten von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ in Zwei-Flüssigkeits-Modell-Darstellung. Die Kristalle Nr.5 (●) und Nr.6 (□) haben die gleiche Sauerstoff-Stöchiometrie $\delta=0.16$.

Wie es im Kap.3.2.3 beschrieben wurde, wurden bei allen Proben die Absolutwerte von Oberflächenimpedanz ($R_N=X_N$), Eindringtiefe (δ_N) und spezifischem Widerstand (ρ_N) im normalleitenden Zustand und Eindringtiefe (λ) im supraleitenden Zustand berechnet. Die Ergebnisse dieser Berechnungen sind in Tab.5.3.2 bzw. in Abb.5.3.20 dargestellt. Obwohl die δ -Abhängigkeiten nicht so eindeutig sind wie in Abb.5.3.18, kann aber auch hier eine steigende Tendenz beobachtet werden. In jeden Fall zeigt die Probe mit $\delta=0.0$ die beste Mikrowellen-Charakteristik nämlich die geringsten Eindringtiefen im normalleitenden ($\delta_\mu=6.4\mu\text{m}$) und im supraleitenden

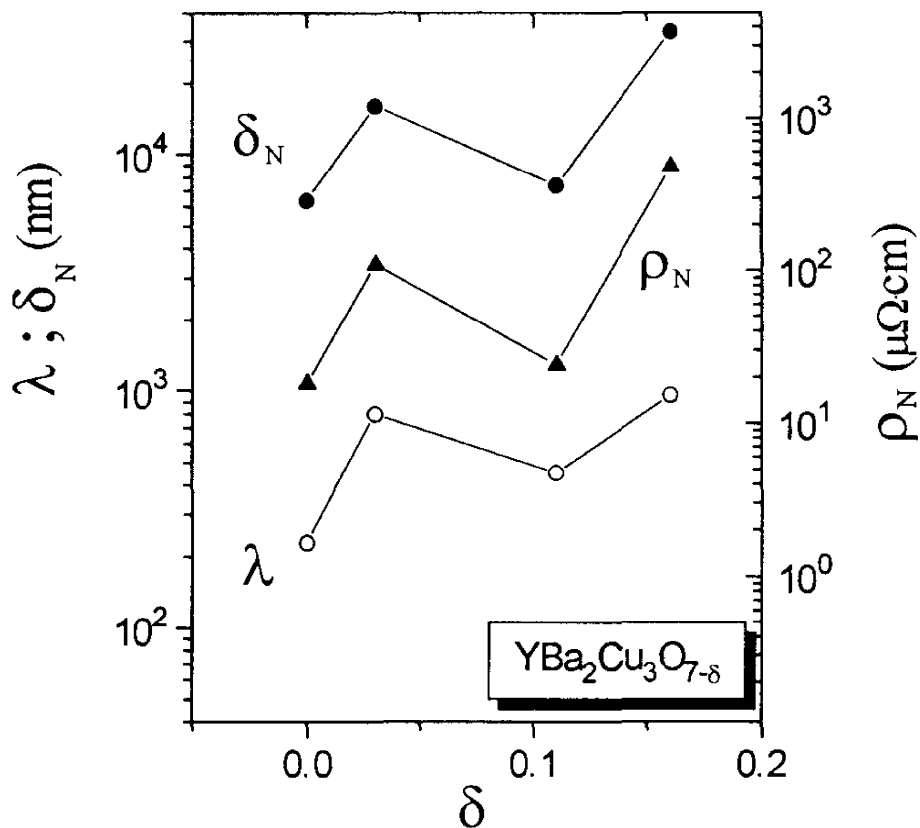


Abbildung 5.3.20: Mikrowellencharakteristik von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristallen bei 1.1 GHz: Eindringtiefe im supraleitenden (λ) und normalen (δ_N) Zustand, spezifischer Widerstand (ρ_N)

Zustand ($\lambda \approx 230\text{nm}$). Dieser letzte Wert stimmt gut überein mit den Literaturdaten von 140 nm [Bon 93], (170 nm [Rev 94])

Die Leitfähigkeitsdaten sind in der Abb.5.3.21 zusammenfassend dargestellt. Der Imaginärteil der Leitfähigkeit ist hier in linearer Darstellung aufgetragen, um zu zeigen, daß in der Nähe von T_c σ'' eine lineare Temperaturabhängigkeit hat. Dies kommt aus der Analyse der bekannten BCS Formel die für $\hbar\omega \ll \Delta$ gilt:

$$\frac{\sigma''}{\sigma_N} = \frac{\pi\Delta}{\hbar\omega} \tanh\left(\frac{\pi\Delta}{2kT}\right) \sim \Delta^2 \Big|_{\Delta \ll kT} \sim 1 - \frac{T}{T_c}$$

Probe	Frequenz (MHz)	ρ_N ($\mu\Omega \cdot \text{cm}$)	X_N (Ω/\square)	δ_N (μm)	$\lambda(0)$ (nm)	ξ_0 (\AA)
1	1100	18	0.028	6.4	230	0.75
2	200	430	0.058	75	1300	1.5
2	1100	110	0.068	16	800	3.0
3	1100	24	0.032	7.4	450	0.5
5	200	560	0.066	84	1160	-
5	1100	480	0.145	33	960	-
6	1100	260	0.105	24	3200	-

Tabelle 5.3.2: Mikrowellencharakteristik von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristallen :

Eindringtiefe im supraleitenden (λ) und normalleitenden (δ_N) Zustand, spezifischer Widerstand (ρ_N), Oberflächenwiderstand (X_N), Kohärenzlänge (ξ_0) parallel zur c-Achse (siehe Kap.5.3.3). Alle Parameter außer ξ_0 sind innerhalb der ab-Ebene gemessen.

In Abb. 5.3.21 sind die Fits mit der BCS-Theorie als durchgezogene Linien mit dem entsprechenden Wert von $\frac{\pi\xi_0}{2\ell} \sim 0.1$ für alle $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Proben gegeben. Der Wert scheint realistisch zu sein, wenn man die aus der Literatur bekannten Werte für die Kohärenzlänge ξ_{ab} ($\sim 30 \text{ \AA}$ [Jia 94], die verschiedenen Daten im Vergleich) und für die freie Weglänge ℓ ($\sim 160 \text{ \AA}$ [Kam 90]; $\sim 300 \text{ \AA}$ [Anl 94] (NCCO)) nimmt. Dann erhält man einen Literaturwert als $\frac{\pi\xi_0}{2\ell} \sim 0.3$.

Im Bild des Realteils der Leitfähigkeit (5.3.21 unten) zeigen die Proben mit geringstem Oberflächenwiderstand (1, 2, 3) nur einen schmalen Peak, der nur in einem kleinen Temperaturbereich größer als die theoretische Kurve ist.

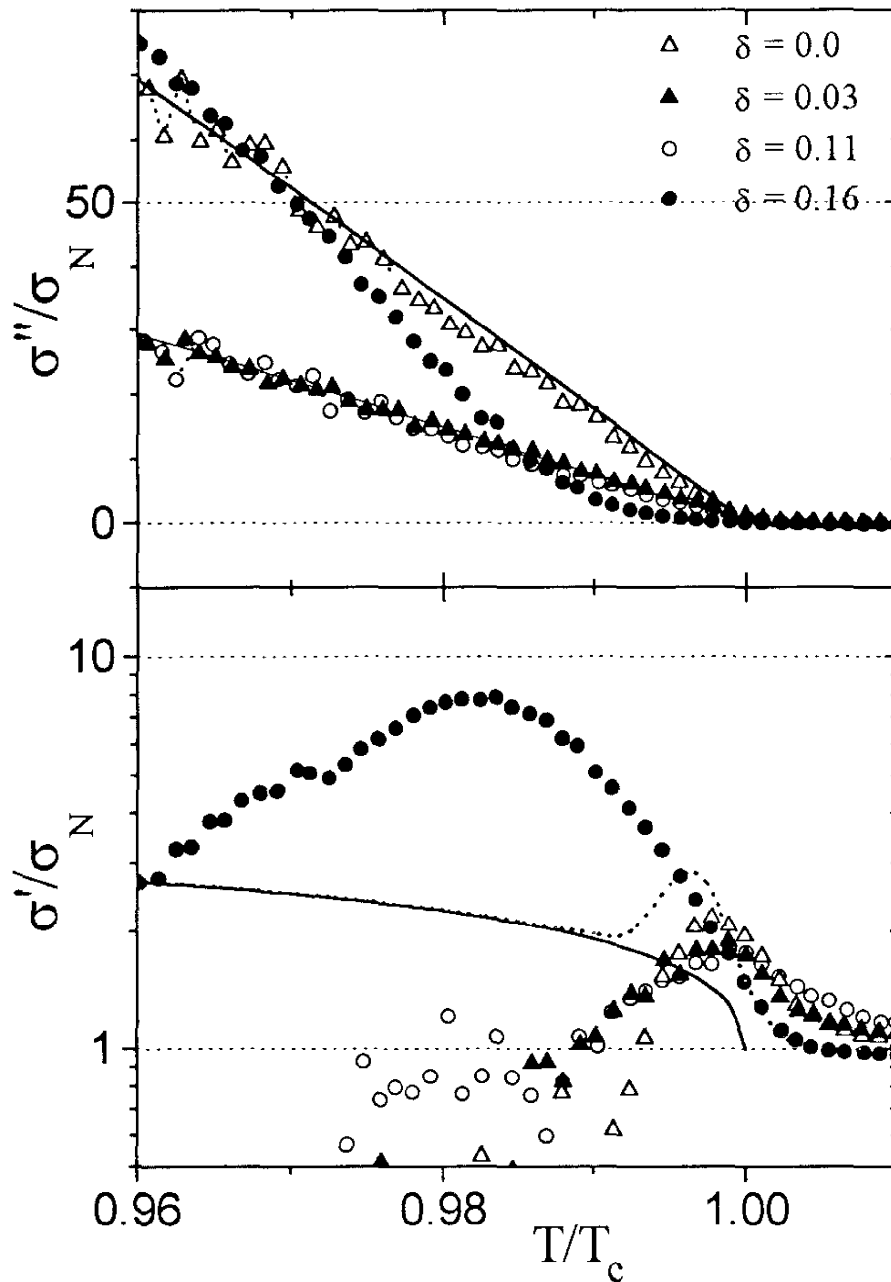


Abbildung 5.3.21: Die komplexe Leitfähigkeit von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristallen bei 1.1 GHz. Die durchgezogenen Linien entsprechen den Fits mit der BCS-Theorie. Die Fitparameter $\pi\xi_0/2\ell$ werden als 0.15 ($\delta=0.0$) und 0.06 ($\delta=0.03$; 0.11) angenommen. Die gestrichelte Linie (unten) ergibt sich durch Einführen einer Verteilung der Phasenübergangstemperaturen $\Delta T_C=0.25\text{K}$. Dies führt zu keinen merklichen Effekten im Imaginärteil der Leitfähigkeit.

Die gestrichelte Linie zeigt das Ergebnis eines Versuchs den Peak mit einer Verteilung der Übergangstemperaturen auf einer Breite von 0.25 K zu beschreiben. Man sieht zwar die gleiche experimentelle und theoretische Peakform, aber die theoretische Kurve liegt immer höher als die experimentellen Daten (außer $\delta=0.16$). Ein Grund für die Verminderung des Realteils der Leitfähigkeit kann z.B. in Ref. [Aki 91], [All 91] gefunden werden. Normalerweise ist in der ursprünglichen Form der BCS- Theorie die Entstehung des Peaks mit einer Divergenz der Zustandsdichte an der Energielücke verbunden. In der erweiterten BCS-Theorie, die von Eliashberg entwickelt worden ist, ist der Peak bei der Verschmierung der supraleitenden Zustandsdichte eliminiert. Dafür sind die einer starken Elektron-Phonon-Kopplung Effekte verantwortlich.

Der größere gefundene Peak für die Probe Nr.5 ($\delta=0.16$) kann die gleiche Ursache wie die anderen Peaks haben. Noch ein dazugehörige Effekt ist die merkliche Abweichung von σ'' von der theoretischen Kurve. Die gleiche Temperaturabhängigkeit von $\lambda^{-2} \sim \sigma''$ wurde in [Gas 91] in YBCO-Filmen beobachtet und als ein Beweis für einen Berezinskii-Kosterlitz-Thouless Übergang interpretiert. Daß diese Effekte bei den Kristallen Nr.1,2,3 fehlen, ist ein Hinweis darauf, daß hier möglicherweise die mit zunehmendem δ steigende Ungleichmäßigkeit der Proben eine Rolle spielt. Die Ergebnisse von Tunnelexperimenten mit Ortsauflösung [Ale 89] zeigen die räumliche Ungleichmäßigkeit der supraleitenden Energielücke. In diesem Experiment wurden Proben mit $\delta < 6.5$ gemessen, die mit der gleichen Methode hergestellt werden, wie die, die in dieser Arbeit verwendet wurden.

Der Schluß, daß die räumliche Heterogenität der Proben größer bei niedrigerem Sauerstoffgehalt ($7-\delta$) ist, folgt aus der experimentell beobachteten Verbreiterung des Phasenübergangs bei Proben mit niedrigerem δ (Proben Nr.6,7,12). Zwei weitere Gründe dafür sind die Anstieg des Oberflächenwiderstandes im supraleitenden Zustand (R_s , Abb.5.3.17) und die zunehmenden Eindringtiefen (δ_N, λ , Abb.5.3.20).

5.3.3. Diskussion der Fluktuationseffekten.

Es ist bekannt, daß die Hoch-T_C Supraleiter einen relativ breiten Phasenübergang haben. Diesem liegen hauptsächlich Fluktuationseffekte zugrunde. Thermische Fluktuationen lassen die Bildung von supraleitenden Paaren auch oberhalb T_C zu und erhöhen damit die effektive Leitfähigkeit. Die resultierende Leitfähigkeit ergibt sich durch Addition eines Fluktuationsterms zur normalleitende Leitfähigkeit:

$$\sigma_{\text{total}} = \sigma_{\text{N}} + \Delta\sigma_{\text{flukt}}$$

Der Ausdruck für $\Delta\sigma_{\text{flukt}}$ wurde bei Aslamasov und Larkin [Asl 68] für die zwei wichtigsten Fällen angegeben:

$$\text{Drei Dimensionen: } \Delta\sigma^{3D} = \frac{e^2}{32\hbar\xi(0)} t^{-1/2} \quad (\text{AL})$$

$$\text{Zwei Dimensionen: } \Delta\sigma^{2D} = \frac{e^2}{16\hbar d} t^{-1}$$

wobei d die charakteristische zweidimensionale Distanz ist, $\xi(0)$ die Ginsburg-Landau Kohärenzlänge bei T=0 und t die reduzierte Temperatur: $t = \frac{T - T_C}{T_C}$.

Da die Hochtemperatursupraleiter eine viel kürzere Kohärenzlänge $\xi(0)$ und viel kleinere Leitfähigkeit in normalem Zustand als die "normalen" Supraleiter haben, sind die relativen Fluktuationseffekte $\Delta\sigma_{\text{flukt}} / \sigma_{\text{N}}$ gut zu beobachten.

Der in der temperaturabhängigen Leitfähigkeit beobachtete Peak kann nicht vollkommen mit Hilfe von Fluktuationen beschrieben werden. Man kann aber feststellen, daß für das Verhalten der Daten bei $T > T_C$ die Fluktuationseffekte verantwortlich sind.

Beim Analysieren der Fluktuationen in YBa₂Cu₃O_{7-δ} Daten sollen noch einige Effekte berücksichtigt werden:

1. Die endliche Frequenz $\omega \neq 0$.

Die entsprechenden Formeln wurden bei Schmidt [Sch 68] entnommen. Die Frequenz geht in erster Näherung als Korrekturfaktor $\sim (1 + \varpi^2)$ ein, wobei die normierte Frequenz ϖ als $\varpi = \frac{\pi \hbar \omega}{16 k T_c t}$ definiert ist. Die Rechnung zeigt, daß bei $\Delta T \sim 0.1 \text{ K}$ und $\omega/2\pi = 1 \text{ GHz}$ der Korrekturfaktor mit einer Genauigkeit besser als 1% vernachlässigt werden kann.

2. Der Maki-Thompson Term [Mak 68], [Tho 70].

Obwohl es Rechnungen [Kim 90] [Hik 90] gibt, die zeigen, daß der Maki - Thompson Term bei genauem Betrachten der YBaCuO Daten nicht vernachlässigt werden sollte, wurde dies im weiteren trotzdem als eine erste Näherung gemacht. Die Zulässigkeit dieser Vernachlässigung wurde auch in [Hor 92] als Folge der starken *pair breaking* Effekte angenommen und kürzlich experimentell nachgewiesen [Pom 94].

3. Die Temperaturabhängigkeit der normalen Leitfähigkeit.

Bei der Analyse von Fluktuationen in Hochtemperatursupraleitern wird oft angenommen, daß diese Abhängigkeit linear ist ($\rho_N = aT + b$). Da die Daten nur in einen sehr schmalen Temperaturbereich zur Verfügung stehen ($90\text{K} \div 95\text{K}$), wurde diese Abhängigkeit weiter vereinfacht ($\rho_N = aT$), um die Zahl der Fitparameter zu vermindern. Dies sollte keine großen Fehler bei Berechnungen ergeben, weil der Temperaturbereich schmal ist.

4. Lawrence - Doniach Erweiterung [Law 70] der Formeln von Aslamasov und Larkin.

Es wird in der Literatur nachgewiesen [Gas 91], [Hop 91], daß das $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.5}$ -System nicht direkt mit Hilfe der zwei- oder dreidimensionalen AL Formel beschrieben werden kann: In der Nähe des Phasenübergangs sind die Fluktuationen dreidimensional und wenige Grad davon entfernt sind sie zweidimensional. In dieser Situation sollte die Lawrence - Doniach Formel [Law 70] benutzt werden:

$$\Delta\sigma^{\text{LD}} = \frac{e^2}{16\hbar d} t^{-1} \left\{ 1 + \left[\frac{2\xi(0)}{d} \right]^2 t^{-1} \right\}^{-1/2}$$

Die Formel beschreibt den dreidimensionalen Fall der AL Formeln in der Nähe der Phasenübergangstemperatur, solange $T_C < T < T_{\text{cr}}$, wobei die kritische Temperatur T_{cr} als $T_{\text{cr}} = T_C \left(1 + \left[\frac{2\xi(0)}{d} \right]^2 \right)$ gegeben ist. Wenn man als Richtwerte die aus der Literatur bekannten Werte für d und $\xi(0)$ (6.4 Å bzw. 1.5 Å [Gas 91]) annimmt, erhält man: $(T_{\text{cr}} - T_C) \sim 10\text{K}$. Das heißt, daß beim Auswerten der Daten, die

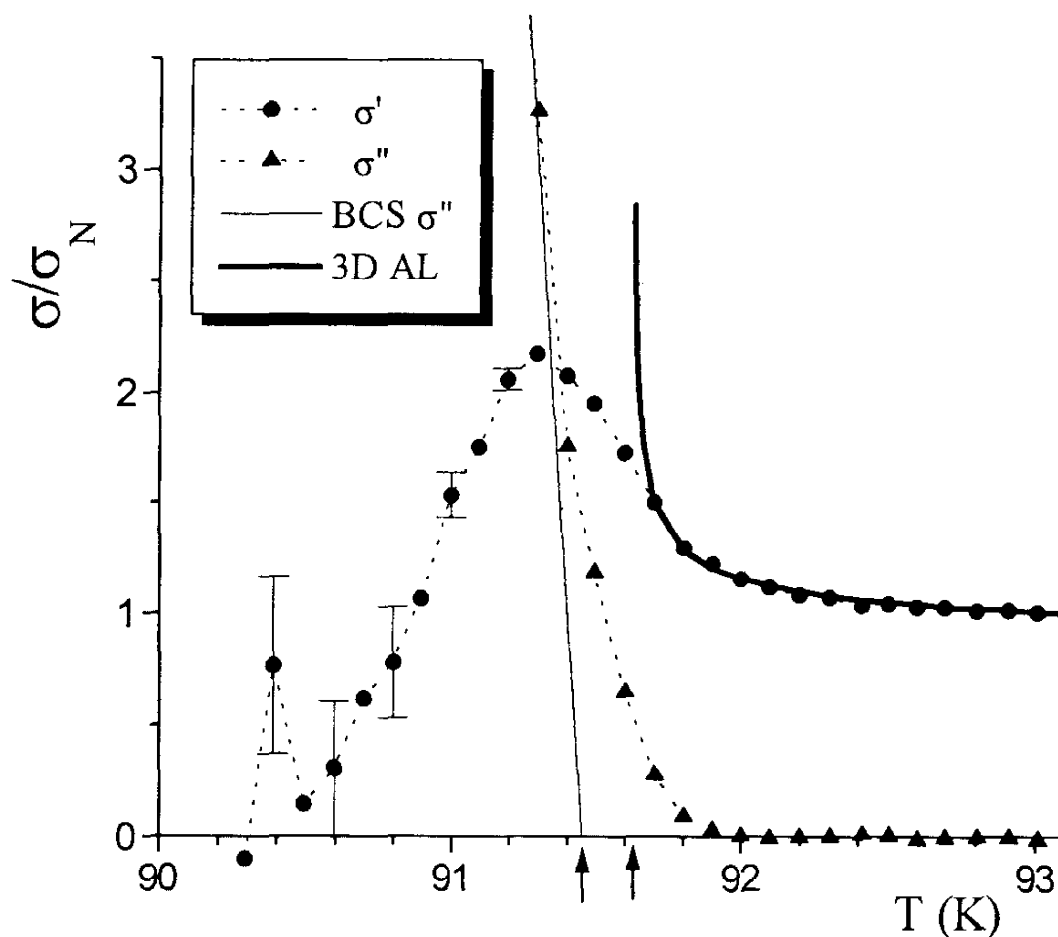


Abbildung 5.3.22: Kritisches Verhalten der komplexen Leitfähigkeit von YBa₂Cu₃O_{7.6} Einkristall Nr.1 ($\delta=0.0$) bei 1.1 GHz. Die Symbole sind die experimentellen Daten, "3D AL" ist ein Fluktuationsfit nach der dreidimensionalen AL-Theorie mit der Kohärenzlänge $\xi_{\perp}(0) = 0.75 \text{ \AA}$. Die Pfeile bezeichnen den feststellbaren Unterschied zwischen den zwei Werten der Phasenübergangstemperatur nach dem fit mit der BCS-Theorie und nach der 3D AL Formel: $T_{\text{c}}(\text{BCS}) = 91.45 \text{ K}$, $T_{\text{c}}(\text{3D AL}) = 91.62 \text{ K}$.

bis zu $\sim 5\text{K}$ von T_C entfernt sind, trotzdem die dreidimensionale AL Formel benutzt werden kann.

Der insgesamt resultierende Näherungsausdruck hat nur drei Fitparameter (T_C , $\xi(0)$ und a) und sieht wie folgt aus:

$$\sigma^{\text{tot}} = \sigma^{3D} + (aT)^{-1}$$

Mit Hilfe dieser Formel wurden die Leitfähigkeitsdaten der drei Proben Nr. 1,2,3 analysiert. Probe Nr.5 wurde nicht in Betracht gezogen, da ihre Leitfähigkeit bei T_C stark vom Peak dominiert ist. Ein Beispiel des Fits ist in Abb.5.3.22 gegeben und die endgültigen $\xi(0)$ Werte wurden in Tabelle 5.3.2 (Kap.5.3.1) dargestellt. Diese Werte stimmen relativ gut mit dem aus der Literatur bekannten Wert $\xi_{\perp}(0) = 1.5 \pm 0.5 \text{ \AA}$ [Gas 91] [Hop 91] überein, obwohl die Korrelation zwischen Eindringtiefe (λ) und Kohärenzlänge (ξ) (Probe Nr.2 im Vergleich zu Proben Nr.1,3) die Vermutung zuläßt, daß die angenommenen Näherungen zu drastisch waren.

5.3.4. Diskussion des Maximums in der Leitfähigkeit

Es wurde experimentell nachgewiesen und ist allgemein akzeptiert, daß die Hochtemperatursupraleiter keinen Peak unterhalb T_c in der NMR Relaxationsrate zeigen [War 87], [Ham 89], [Wal 91]. Verschiedene mögliche Erklärungen wurden dafür gegeben. Die starke inelastische Streuung [All 91] [Aki 91] verursacht eine Verschmierung der Singularität in der Zustandsdichte, und bei einer genügend großen Kopplungskonstanten bringt das die Eliminierung des Kohärenzpeaks mit sich. Da die NMR Relaxationsrate und die elektrische Leitfähigkeit den gleichen Kohärenzfaktor in der Theorie haben [Tin 75], sollte auch in Leitfähigkeitsmessungen kein Kohärenzpeak gesehen werden.

Im Gegensatz dazu wurde ein Peak im Realteil der komplexen Leitfähigkeit beobachtet (Fig.M4.), [Mir 91], [Kob 91], [Hol 92], [Kle 92], [Lun 93], [Bon 93], [Ma 93], [Shi 94], [Pim 94]. Dieser Peak scheint anders als der *weak-coupling* BCS Kohärenzpeak zu sein, da er ganz dicht bei T_c liegt und sehr schmal ist (~ 0.5 K, Proben 1-3). Man findet in der Literatur eine Reihe von Mechanismen, die versuchen diese experimentellen Ergebnisse zu erklären ([Hor 92] und Referenzen hierin). Die neuesten theoretischen Analysen [Gin 94] lassen aber den Schluß zu, daß man zur Beschreibung der Eigenschaften von Hoch- T_c Supraleitern keine "exotischen" Mechanismen außerhalb der BCS-Theorie braucht. Dies angenommen, bleiben nur zwei mögliche Effekte zur Erklärung des Peaks übrig:

- Fluktuationseffekte
- Existenz einer Verteilung von Phasenübergangstemperaturen

Wie in [Moo 93] gezeigt wurde, kann die Verteilung der Phasenübergangstemperaturen T_c einen Peak im Realteil der Leitfähigkeit produzieren. Die Ursache des Effektes ist eine Mischung von normalleitenden und supraleitenden Bereichen in der Probe. Im Experiment wurde jedoch nur die gemittelte Impedanz gemessen. In diesen Fall bekommt man einen Peak, der etwas niedriger als T_c liegt und dessen charakteristische Breite gleich der Verteilungsbreite

ist. Ein zusätzlicher Hinweis, der zu diesen Schluß führt, ist die Korrelation zwischen dem etwa ~ 2.5 mal breiteren supraleitenden Phasenübergang von der Probe Nr.5 im Vergleich zu den Proben Nr.1,2,3, die eine höhere Sauerstoffkonzentration aufweisen.

Berechnungen zur Anwendung von Fluktationseffekten auf Hoch- T_C Supraleiter wurden bei Horbach und Saarloos durchgeführt [Hor 92]. Diese Rechnungen basieren auf einer früheren Theorie von Schmidt [Sch 68], [Sch 70] der die Fluktuationen sowohl oberhalb als auch unterhalb T_C analysiert hat. Es ergibt sich, daß sich der Fluktationspeak bei T_c befindet, praktisch symmetrisch ist und im Falle der Hoch- T_C Supraleiter eine typische Größe $\frac{\Delta\sigma}{\sigma_N} \sim 1$ besitzen kann. Die letzte

Aussage konnte auch durch die in Kap.5.3.3 erzielten Resultate bestätigt werden. Der experimentell gemessene Peak liegt aber etwas tiefer als die Phasenübergangstemperatur, was als ein Hinweis gegen das Vorliegen von Fluktationseffekten gewertet werden kann, oder, besser gesagt, was für eine Mischung der beiden Effekte spricht. Dabei spielt in den Proben Nr.5,6 die Verteilung der T_C 's die größte Rolle. In den Proben 1,2,3 jedoch, kommt den die beiden Mechanismen in etwa gleiche Bedeutung zu.

Zusammenfassung

1. Methoden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Methoden zur kontaktfreien Messung der komplexen Leitfähigkeit von elektrisch leitenden Proben entwickelt. Es wurden Experimente an supraleitenden Proben (Blei, $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$, $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$) und verwandten halbleitenden Materialien (La_2CuO_4) vorgenommen.

Die Idee des kontaktfreien Meßverfahrens beruht auf der Veränderung der Resonanzkurve eines elektrischen Schwingkreises mit und ohne Probe. Es wurden zwei Fälle unterschieden:

- 1) Kapazitive Kopplung: Die Probe ist im elektrischen Feld des Resonators
- 2) Induktive Kopplung: Die Probe ist im magnetischen Feld des Resonators

Die erste Methode ist für Proben mit einem typischen Wert des Realteils der Leitfähigkeit von $10^{-4} (\Omega \cdot \text{cm})^{-1} < \sigma' < 1 (\Omega \cdot \text{cm})^{-1}$ geeignet. Ein Vorteil des Verfahrens ist die einfache Meßgeometrie, die die Auswertung vereinfacht, und die Möglichkeit, die Dielektrizitätskonstante abzuschätzen, wenn sie nicht stark temperaturabhängig ist. Die Experimente wurden an einem La_2CuO_4 -Einkristall im Frequenzbereich von 3 bis 300 MHz und bei Temperaturen $4.2 \div 300$ K durchgeführt.

Die zweite Methode kann zur Messung von Metallen und Supraleitern benutzt werden. Hier wurden Experimente bei Frequenzen 100 MHz \div 2 GHz an massivem Blei, sowie an $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$ und $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristallen durchgeführt. Da die Auswertungen bei dieser Methode relativ kompliziert sind, wurde für jede Meßgeometrie die entsprechende Arbeitsformel hergeleitet, um die Probeneigenschaften zu erhalten.

2. Theorie

Bei Experimenten mit Blei wurde das Problem gelöst, wie die in der Messung erhaltenen Oberflächenimpedanzdaten in die komplexe Leitfähigkeit umgewandelt werden sollen. Die Schwierigkeit lag darin, daß in supraleitendem Blei die Kohärenzlänge ($\xi_0 \sim 800\text{\AA}$) im Vergleich zur Eindringtiefe ($\lambda \sim 400\text{\AA}$) nicht groß genug ist, um die Benutzung der Formeln für den nichtlokalen Skineffekt zu erlauben. Im Rahmen dieser Arbeit wurden numerische Rechnungen zur BCS *range-function* vorgenommen, die zeigen, daß in der Nähe der Phasenübergangstemperatur die effektive Kohärenzlänge ξ_{eff} höher als ξ_0 ist. Außerdem wurde gezeigt, daß in diesem Temperaturbereich, für supraleitendes sowie für normalleitendes Blei, zur Berechnung der komplexen Leitfähigkeit die Formeln für den extrem nichtlokalen Grenzfall benutzt werden können.

3. Experimentelle Ergebnisse

3.1 La_2CuO_4 .

Die kontaktfreie Messung wurde für die zwei Hauptkristallrichtungen durchgeführt: ab-Ebene und c-Achse. Die Leitfähigkeit ist in La_2CuO_4 stark anisotrop und hat einen effektiven Anisotropiefaktor $\sigma_a/\sigma_c \sim 100$. Bei Temperaturen $T > 50\text{ K}$ dominiert in den Daten die DC-Leitfähigkeit, die dem Mottschen *variable-range-hopping* Gesetz entspricht ($\sigma \sim \exp\{-[T_0/T]^{1/4}\}$). Bei tiefen Temperaturen wird die DC-Leitfähigkeit kleiner, und die frequenzabhängigen Daten werden durch ein *universal response* Gesetz ($\sigma = \sigma_{\text{DC}} + A\omega^S$) beschrieben. Die Mechanismen, die, betreffend La_2CuO_4 , zu diesem Gesetz führen, wurden in einer separaten Arbeit [Lun 95] behandelt.

3.2 $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$.

Obwohl in den experimentellen Daten ein supraleitender Phasenübergang bei $T \sim 11\text{ K}$ detektiert wurde, ist die Oberflächenimpedanz durch starke Probeninhomogenität beeinflusst und kann kaum auf reine Probeneigenschaften zurückgeführt werden.

3.3 Blei.

Es wurde experimentell gezeigt, daß die Impedanz von reinem Blei im normalen Zustand und im Frequenzbereich $\nu \sim 100\div 2000$ MHz durch den nichtlokalen Skin-Effekt bestimmt wird. Die komplexe Leitfähigkeit vom supraleitenden Blei wurde mit der BCS-Theorie verglichen. Der Imaginärteil stimmt relativ gut mit der theoretischen Kurve überein, obwohl im extrem anomalen Grenzfall kein Fitparameter mehr in der Theorie bleibt.

Der Realteil der Leitfähigkeit zeigt einen Peak in der Nähe des Phasenübergangs. In der Messung bei 2 GHz wurde dieser Peak auf die Ungleichmäßigkeit der Temperatur in der Probe zurückgeführt, da bei dieser Probengeometrie (0.5 mm dünner Draht) die Temperaturhomogenität nicht aufrecht erhalten werden kann. Beim 540 MHz Experiment mit dem massiven Zylinder dagegen kann der beobachtende Peak als Kohärenzpeak identifiziert werden. Die theoretischen Vorhersagen für den Realteil der Leitfähigkeit stimmen mit dem Experiment nicht überein. Die Ursache dafür sind wahrscheinlich die *strong-coupling* Effekte.

3.4 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

Diese Arbeit stellt die Meßergebnisse an mehreren $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ Einkristallen vor, die bei 1.1 GHz erhalten wurden. Einige ergänzende Experimente wurden auch bei 200 MHz durchgeführt. Es wurde ein Versuch unternommen, die systematische Abhängigkeit der Mikrowellencharakteristik von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ vom Sauerstoffmangel δ zu untersuchen. Resultierend kann gesagt werden, daß die Probe mit dem kleinsten δ die besten Ergebnisse gezeigt hat, d.h. bei dieser Probe wurde der schmalste Phasenübergang ~ 0.4 K und die kleinste Eindringtiefe ~ 230 Å beobachtet.

Die BCS-Fits für den Imaginärteil der Leitfähigkeit zeigen eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment. Der aus den Fits gewonnene *dirty-parameter* $\pi\xi_0/2\ell$ hat bei allen Proben den Wert von etwa 0.1, in guter Übereinstimmung mit aus Literaturdaten berechneten Werten.

Die Ergebnisse für den Realteil der Leitfähigkeit weisen einen sehr schmalen (meistens 0.5 K breiten) Peak nahe T_C auf, der nicht als BCS-Kohärenzpeak identifiziert werden kann. Als zwei Mechanismen, die beim Auftreten des Peaks eine vergleichbare Rolle spielen, wurden die Fluktuationseffekte und Probeninhomogenität genannt. Die mit Hilfe des dreidimensionalen Modells von Aslamasov-Larkin durchgeführte Analyse der Fluktuationseffekte ergab einen Wert für die Kohärenzlänge entlang der c-Achse von $\xi_c \sim 1 \text{ \AA}$.

Die Übereinstimmung der Temperaturabhängigkeit der magnetischen Eindringtiefe (Imaginärteil der Leitfähigkeit) von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ mit den theoretischen Ergebnissen der BCS Rechnung spricht für die Gültigkeit des BCS-Mechanismus der Supraleitung in diesen Substanzen. Obwohl der im Experiment gefundene Verlauf des Realteils $\sigma'(T)$ der Leitfähigkeit nicht mit der BCS -Theorie übereinstimmt, kann er unter Berücksichtigung der T_C -Verteilungs- und Fluktuationskorrekturen zur BCS-Theorie sowie unter Einbeziehung von *strong-coupling* Effekten erklärt werden.

Literaturverzeichnis

- [Abr 88] A. A. Abrikosov, "Fundamentals of the theory of metals", Elsevier, Amsterdam, 1988
- [Aki 91] R. Akis and J. P. Carbotte, *Sol. St. Comm.* **79**, 577 (1991)
- [Ale 88] I. V. Aleksandrov, A. B. Bykov, I. P. Zibrov, I. N. Makarenko, O. K. Melnikov, V. N. Molchanov, L. A. Muradyan, D. V. Nikiforov, L. E. Svistov, V. I. Simonov, S. M. Chigishov, A. Ya. Shapiro and S. M. Stichov, *JETP Lett.* **48**, 493 (1988)
- [Ale 89] I. V. Aleksandrov, A. P. Volodin, I. N. Makarenko, L. E. Svistov and S. M. Stichov, *JETP Lett.* **49**, 327 (1989)
- [All 91] P. B. Allen and D. Rainer, *Nature* **349**, 396 (1991)
- [Anl 94] S. M. Anlage, Dong-Ho Wu, J. Mao, S. N. Mao, X. X. Xi, T. Venkatesan and J. L. Green, *Phys. Rev.* **B50**, 523 (1994)
- [Asl 68] L. G. Aslamazov and A. I. Larkin, *Sov. Phys. Sol. State* **10**, 875 (1968)
- [Bar 57] J. Bardeen, L. N. Cooper, J. R. Schrieffer, *Phys. Rev.* **108**, 1175 (1957)
- [Bed 86] J. G. Bednorz, K. A. Müller, *Z. Phys.* **64**, 189 (1986)
- [Bon 91] D. A. Bonn, D. C. Morgan and W. N. Hardy, *Rev. Sci. Instrum.* **62**, 1819 (1991)
- [Bon 93] D. A. Bonn, R. Liang, T. M. Riseman, D. J. Baar, D. C. Morgan, K. Zhang, P. Dosanjh, T. L. Duty, A. MacFarlane, G. D. Morris, J. H. Brewer, W. N. Hardy, *Phys. Rev.*, **B47**, 11314 (1993)
- [Bra 63] A. A. Brandt, "Issledovaniya Dielektrikov na Sverhvysokih Chastotah" (Untersuchung von Dielektrika bei Mikrowellenfrequenzen), Moskau, 1963, (auf Russisch)

- [Bra 89] E. -H. Brandt, FORTRAN-Program zur Berechnung der Komplexen Leitfähigkeit von BCS-Supraleitern aufgrund der Mattis-Bardeen Integralformeln [Mat 58] und im lokalen Limit ($\lambda \ll \xi_0, \ell$); W. Zimmermann, E. H. Brandt, M. Bauer, E. Seider, and L. Genzel, *Physica C* **183**, 99 (1991)
- [Bri 92] M. Brinkmann, Hauptpraktikumsbericht, Kassel 1992
- [Bry 65] C. A. Bryant and J. B. Gunn, *Rev. Sci. Instrum.* **36**, 1614 (1965)
- [Bry 89] H. M. O'Bryan, P. K. Gallagher, R. A. Laudise, A. J. Caporaso and R. C. Sherwood, *J. Am. Ceram. Soc.* **72**, 1298 (1989)
- [Byk 88] A. B. Bykov, L. N. Demianets, I. P. Zibrov, G. V. Kanunnikov, O. K. Melnikov and S. M. Stichov, *J. Crystal Growth* **91**, 302 (1988)
- [Cha 52] R. G. Chambers, *Proc. Roy. Soc. London*, **A215**, 481 (1952)
- [Che 91] C. Y. Chen, R. J. Birgeneau, M. A. Kastner, N. W. Preyer and Tineke Thio, *Phys. Rev.* **B43**, 392 (1991); C. Y. Chen, N. W. Preyer, P. J. Picone, M. A. Kastner H. P. Jenssen, D. R. Gabbe, A. Cassanho and R. J. Birgeneau, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 2307 (1989)
- [Deu 80] G. Deutscher, O. Entin-Wohlman, S. Fishman and Y. Shapira, *Phys. Rev.* **B21**, 5041 (1980)
- [Dum 94] M. Dumm, Diplomarbeit, TH Darmstadt 1994
- [Ell 87] S. R. Elliott, *Adv. Phys.* **36**, 135 (1987); A. R. Long, *Adv. Phys.* **31**, 553 (1982)
- [Eme 90] G. A. Emel'chenko, V. M. Masalov, N. V. Abrosimov, P. K. Kononovich, V. A. Merzhanov, V. A. Tatarchenko, I. F. Shchegolev and T. K. Parsamyan, *Inorg. Mater.* **26**, 1330 (1990)
- [Gas 70] R. F. Gasparovic and W. L. McLean, *Phys. Rev.* **B2**, 2519, 1970
- [Gas 91] V. A. Gasparov, *Physica C* **178**, 449 (1991)
- [Gin 57] E. L. Ginston, "Microwave Measurements", McGraw-Hill, New York, 1957
- [Gin 69] D. M. Ginsberg and L. C. Nebel, in "Superconductivity", ed. by R. D. Parks, Marsel Dekker Inc. , New York, 1969

- [Gin 94] V. L. Ginzburg, E. G. Maksimov, *Physica* **C235-240**, 193 (1994)
- [Gor 53] W. Gordy, W. V. Smith and R. F. Trambarulo, "Microwave Spectroscopy", John Willey & Sons, New York, 1953
- [Gra 90] T. Graf, G. Triskone and J. Muller, *J. Less-Comm. Metals*, **159**, 349 (1990)
- [Gua 78] D. M. Gualtieri, *Rev. Sci. Instrum.* **49**, 1716 (1978)
- [Hai 77] R. W. Haistry, *Rev. Sci. Instrum.* **38**, 262 (1967)
- [Ham 89] P. C. Hammel, M. Takigawa, R. H. Heffner, Z. Fisk, K. C. Ott, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 1992 (1989)
- [Har 61] R. Harrington, "Time Harmonic Electromagnetic Fields", Mc Graw Hill, New York, 1961.
- [Heb 59] L. C. Hebel, C. P. Slichter, *Phys. Rev.* **113**, 1504 (1959); L. C. Hebel, *Phys. Rev.* **116**, 79 (1959)
- [Hik 90] M. Hikita and M. Suzuki, *Phys. Rev.* **B41**, 834 (1990)
- [Hol 91] K. Holczer, O. Klein and G. Grüner, *Sol. St. Comm.* **78**, 875 (1991)
- [Hol 92] K. Holczer, L. Forro, L. Mihaly and G. Grüner, *Phys. Rev. Lett.* **67**, (1991)
- [Hop 91] R. Hopfengärtner, B. Hensel and G. Saemann-Ischenko, *Phys. Rev.* **B44**, 741 (1991)
- [Hor 92] M. L. Horbach and W. van Saarloos, *Phys. Rev.* **B46**, 432 (1992)
- [Jia 94] H. Jiang, T. Yuan, H. How, A. Widom, C. Vittoria, D. Chrisey, J. Horwitz, and A. Drehman, *Phys. Rev.* **B49**, 9924 (1994)
- [Kam 90] K. Kamaras, S. L. Herr, C. D. Porter, N. Tache, D. B. Tanner, S. Etemad, T. Venkatesan, E. Chase, A. Inam, X. D. Wu, M. S. Hegde and B. Dutta, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 84 (1990)
- [Kim 90] J. -J. Kim, J. Kim, H. J. Shin and H. J. Lee, *Sol. St. Comm.* **75**, 921 (1990)
- [Kle 92] O. Klein, K. Holczer, G. Grüner and G. A. Emelchenko, *J. Phys. I (France)* **2**, 517 (1992)

- [Kle 94] O. Klein, E. J. Nicol, K. Holczer and G. Grüner, *Phys. Rev.* **B50**, 6307 (1994)
- [Kln 93] N. Klein, N. Tellman, H. Schulz, K. Urban, S. A. Wolf and V. Z. Kresin, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 3355 (1993)
- [Kob 91] P. H. Kobrin, J. T. Cheung, W. W. Ho, N. Glass, J. Lopez, I. S. Gergis, R. E. DeWames and W. F. Hall, *Physica* **C176**, 121 (1991)
- [Kne 93] G. Knebel, private communication
- [Kne 94] G. Knebel, Diplomarbeit, TH Darmstadt 1994
- [Law 70] W. E. Lawrence and S. Doniach, *Proc. XXII Int. Conf. Low Temp. Phys.*, Kyoto 1970, p. 361
- [LB 82] Landolt-Börnstein, "Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology. New Series", Springer-Verlag, Berlin, 1982
- [Lun 92] P. Lunkenheimer, M. Resch, A. Loidl and Y. Hidaka, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 498 (1992)
- [Lun 93] P. Lunkenheimer, A. Loidl, C. Tome-Rosa, P. Wagner and H. Adrian, *Physica* **C201**, 13 (1992)
- [Lun 95] P. Lunkenheimer, G. Knebel, A. Pimenov, G. A. Emelchenko and A. Loidl, to be published in *Z. Phys. B*
- [Ma 93] Z. Ma, R. C. Taber, L. W. Lombardo, A. Kapitulnik, M. R. Beasley, P. Merchant, C. B. Eom, S. Y. Hou and J. M. Phillips, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 781 (1993)
- [Mak 68] K. Maki, *Progr. Theor. Phys.* **39**, 897 (1968); **40**, 193 (1968)
- [Mat 58] D. C. Mattis and J. Bardeen, *Phys. Rev.* **111**, 412 (1958)
- [McE 80] R. G. C. McElroy, *Rev. Sci. Instrum.* **51**, 1374 (1980)
- [Mey 81] W. Meyer, *IEEE Trans. MTT-29*, 240 (1981)
- [Mir 91] F. A. Miranda, W. L. Gordon, K. B. Bhasin, V. O. Heinen and J. D. Warner, *J. Appl. Phys.* **70**, 5450 (1991)
- [Miy 67] N. Miyamoto and J. -I. Nishigawa, *Rev. Sci. Instrum.* **38**, 360 (1967)

- [Moo 93] J. T. Moonen, L. J. Adriaanse, H. B. Brom, N. Y. Chen, D. van der Marel, M. L. Horbach and W. van Saarloos, Phys. Rev. **B47**, 14525 (1993)
- [Mot 74] N. F. Mott, "Metal-Insulator Transitions", Taylor and Francis, London, 1974
- [Mou 94] A. P. Mourachkine and A. R. F. Barel, to be published in IEEE Transactions MTT 1995
- [Müh 91] V. Mühlhaus and Y. Kanh, Rev. Sci. Instrum. **62**, 2465 (1991)
- [Oat 91] D. E. Oates, A. C. Anderson, D. M. Sheen and S. M. Ali, IEEE Trans. **MTT-39**, 1522 (1991)
- [Phi 89] J.C. Phillips, "Physich of High-T_c Superconductors", Academic Press, San Diego, 1989
- [Pim 94] A. Pimenov, A. Loidl, Physica. **C235-240**, 1831 (1994)
- [Pip 47] A. B. Pippard, Proc. Roy. Soc. **A191**, 370 (1947)
- [Pip 53] A. B. Pippard, Proc. Roy. Soc. **A216**, 547 (1953)
- [Pom 94] A. Pomar, F. Miguez, C. Torron, E. G. Miramontes, M. V. Ramallo, S. Rodriguez, J. A. Veira and F. Vidal, Physica **C235-240**, 1957 (1994)
- [Rea 89] D. Reagor, E. Ahrens, S-W. Cheong, A Migliori und Z. Fisk, Phys. Rev. Lett. **62**, 2048 (1989)
- [Reu 48] G. E. H. Reuter and E. H. Sondheimer, Proc. Roy. Soc. London, **A195**, 336 (1948)
- [Rev 94] S. Revenaz, D. E. Oates, D. Labbe-Lavinge, G. Dresselhaus and M. S. Dresselhaus, Phys. Rev. **B50**, 1178 (1994)
- [Ric 65] G. Rickauzen, "Theory of Superconductivity", Interscience Pub. , New York, 1965
- [Riz 88] P. A. Rizzi, "Microwave Engineering Passive Cirquits", Prentice-Hall, New York, 1988
- [Sch 68] H. Schmidt, Z. Phys. **216**, 336 (1968)
- [Sch 70] H. Schmidt, Z. Phys. **232**, 443 (1970)

- [Shi 92] T. Shibauchi, A. Maeda, H. Kitano, T. Honda and K. Uchinokura, *Physica* **C203**, 315 (1992)
- [Shi 94] T. Schibauchi, H. Kitano, A. Maeda, T. Tamegai, K. Uchinokura, T. Kimura, K. Kishio, H. Asaoka and H. Takei, *Physica* **C235-240**, 1819 (1994)
- [Sic 93] J. Sichelschmidt, Diplomarbeit, TH Darmstadt 1993
- [Sri 88] S. Sridhar and W. L. Kennedy, *Rev. Sci. Instrum.* **59**, 531 (1988)
- [Tab 90] R. C. Taber, *Rev. Sci. Instrum.* **61**, 2200 (1990)
- [Tak 89] H. Takagi, T. Ido, S. Ishibashi, M. Uota, S. Uschuda and Y. Tokura, *Phys. Rev.* **B40**, 2254 (1989)
- [Tel 94] N. Tellmann, N. Klein, U. Dänne, A. Scholen, H. Schulz, H. Chaloupka, to be published in *IEEE-Trans. on Appl. Supercond.* 1995
- [Tho 70] R. S. Thompson, *Phys. Rev.* **B1**, 327 (1970)
- [Tin 75] M. Tinkham, "Introduction to Superconductivity", McGraw-Hill, Tokyo, 1975
- [Vol 93] A. A. Volkov, B. P. Gorshunov, G. V. Kozlov and I. V. Fedorov, *JETP* **77**, 153 (1993)
- [War 87] W. W. Warren, R. E. Walstedt, G. F. Brennert, G. P. Espinosa, J. P. Remeika, *Phys. Rev. Lett* **59**, 1860 (1987)
- [Wal 91] R. E. Walstedt, R. F. Bell, D. B. Mitzi, *Phys. Rev.* **B44**, 7760 (1991)
- [Wes 27] W. Westphal (Hrsg.) *Handbuch der Physik. Band 15. Magnetismus. Elektromagnetisches Feld.* Springer Verlag, Berlin, 1927
- [Zha 93] D. Zhang, D. V. Plant, H. R. Fetterman, N. E. Glass, J. T. Cheung, P. H. Kobrin, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 1298 (1993)
- [Zim 61] J. E. Zimmerman, *Rev. Sci. Instrum.* **32**, 402 (1961)

Danksagung

Mein besonderer Dank gilt Herrn Prof.Dr. A.Loidl, der mir die Möglichkeit gab, dieser Arbeit durchzuführen, sowie für seine Unterstützung und hilfreichen Vorschläge.

Herrn Dr. R.Böhmer und Dipl.-Phys. H.-A. Krug von Nidda danke ich herzlich für die kritische Durchsicht des Manuskripts.

Für zahlreiche Diskussionen und die gute Zusammenarbeit danke ich Herrn Dr. P.Lunkenheimer, Herrn Dipl.-Phys. G.Knebel und Herrn Dipl.-Phys. M.Dumm.

Mein Dank gilt allen Mitarbeitern der Mechanik- sowie der Elektronikwerkstatt.

Bei allen Mitarbeitern unseres Instituts bedanke ich mich für das angenehme und freundliche Arbeitsklima.

Meine Frau Anna danke ich für ihre technische und moralische Unterstützung und dafür, daß sie immer an mich geglaubt hat.