c-Achsen-Transporteigenschaften des intrinsischen Supraleiter-Ferromagnet-Hybrids $RuSr_2GdCu_2O_8$

DISSERTATION

zur Erlangung des Grades eines Doktors
der Naturwissenschaften

der Fakultät für Mathematik und Physik
der Eberhard-Karls-Universität zu Tübingen

vorgelegt von

Timo Nachtrab

aus Bruchsal

2004

Tag der Disputation:	16. Juli 2004
Dekan:	Prof. Dr. H. Müther
1. Berichterstatter:	Prof. Dr. R. Kleiner
2. Berichterstatter:	PD Dr. T. Dahm
3. Berichterstatter:	Prof. Dr. J. Mannhart

Alku aina hankala,
lopussa kiitos seisoo! *
(finn. Sprichwort)

*sinngemäß: Aller Anfang ist schwer,
aber Beharrlichkeit führt zum Erfolg!
(aus [Bar02])

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **1**

2 Grundlagen **7**

2.1 Intrinsischer Josephson-Effekt 7

2.1.1 Grundlegendes zur Supraleitung 7

2.1.2 Josephson-Effekt 11

Josephson-Gleichungen 12

Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms 14

Punktförmige Josephson-Kontakte 14

Ausgedehnte Josephson-Kontakte 16

Josephson-Vortexdynamik 18

Kurzer Kontakt im Magnetfeld 20

2.1.3 Hochtemperatursupraleiter 21

Kristallstruktur & Dotierung 21

Symmetrie des Ordnungsparameters 21

Hoch-T_c-Josephson-Kontakte 22

Charakteristische Größen 23

2.1.4 Intrinsischer Josephson-Effekt im Hochtemperatursupraleiter $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ 24

2.2 Intrinsische Spinventile 27

2.2.1 Grundlegendes zum Ferromagnetismus 27

Quantenmechanische Interpretation 28

Molekularfeld-Näherung 31

Antiferromagnet im Magnetfeld: Suzeptibilität und Spin-Flop 34
2.2.2 Spinpolarisiertes Tunneln - der TMR-Effekt 36
2.2.3 Intrinsische Spinventile im Schichtmanganat $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$ 38
2.3 Supraleiter-Ferromagnet-Hybride 41
2.3.1 Grundlegendes zu SF-Hybriden 41
2.3.2 π-Kontakte 43
Endliche Dicke des Ferromagneten 43
Atomar dünner Ferromagnet 47
FFLO-Zustand 50
2.4 $RuSr_2GdCu_2O_8$ 51
2.4.1 Kristallstruktur 51
2.4.2 Magnetische Struktur 53
2.4.3 Supraleitende Eigenschaften 55
2.4.4 Elektronische Eigenschaften 57

3 Experimente **59**
3.1 Proben 59
3.1.1 Einkristalle 59
3.1.2 Problemstellung 61
3.1.3 Mesatechnik 62
Vorgehensweise 63
3.1.4 Stifttechnik 71
Vorgehensweise 72
Vor- und Nachteile 72
3.1.5 Probengeometrie 72
3.2 Messaufbau 73
3.2.1 Probenhalter & Probenstab 73
3.2.2 Adiabat 75
3.2.3 Magnetkryostat 77
3.2.4 Messelektronik 78
3.2.5 Fehler 78

4 Ergebnisse & Diskussion **83**
4.1 Magnetisierungsmessungen 83
4.2 Transportmessungen 90
4.2.1 Temperaturabhängigkeit des Widerstands 92
Supraleitender Übergang & Sprungtemperatur 92
Widerstandsverlauf unterhalb T_c & Kontaktwiderstand 96
Widerstandsverlauf oberhalb T_c & spezifischer Widerstand 96
4.2.2 Strom-Spannungs-Kennlinien 97
4.2.3 Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms . . 107
4.2.4 Elektrischer Transport im Magnetfeld 112
Magnetowiderstand oberhalb T_c 113
Supraleitender Übergang im Magnetfeld . . . 117
Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stroms 121
Josephson-Vortex-Dynamik 125
4.3 Die Abwesenheit des 0-π-Übergangs 143

5 Schlussdiskussion **149**

6 Zusammenfassung **153**

Kapitel 1

Einleitung

Supraleitung und Ferromagnetismus sind antagonistische Phänomene. Bereits in den 50er Jahren konnte V. L. Ginzburg zeigen, dass es in einem massiven ferromagnetischen Supraleiter nur unter der sehr unwahrscheinlichen Voraussetzung einer extrem geringen Magnetisierung bei gleichzeitig genügend hohem kritischen Feld zur Koexistenz der beiden Zustände kommen könnte [Gin57]. Handelt es sich bei der Verbindung um einen Typ II-Supraleiter, so wurde aufgrund des nichtverschwindenden magnetischen Flusses die Ausbildung einer sogenannten „spontanen Vortex-Phase“, d. h. die Existenz magnetischer Flussschläuche auch ohne externes Magnetfeld, vorhergesagt [Buz83]. Eine Betrachtung im mikroskopischen Modell der BCS-Theorie zeigt, dass für Spin-Singlett-Cooper-Paare die Wechselwirkung mit dem Austauschfeld des Ferromagneten zu einer paarbrechenden Wirkung und damit zu einer Unterdrückung der Supraleitung führen kann [SJ69, Pic99]. Unter gewissen Umständen ist aufgrund dieser Wechselwirkung allerdings auch eine räumlichen Modulation des supraleitenden Ordnungsparameters, der sogenannte FFLO-Zustand, möglich [Ful64, Lar65]. Die gleichzeitige Anwesenheit von Ferromagnetismus und Supraleitung ist daher häufig mit einem „exotischen“ Verhalten des jeweiligen Materials verknüpft.

In der Tat gibt es nur sehr wenige Verbindungen (beispielsweise $HoMo_6S_8$

[Ish77]), die sowohl ferromagnetische Ordnung als auch Supraleitung aufweisen. In der Regel kommt es bei diesen Systemen auch nicht zu einer ausgeprägten Koexistenz der Phänomene. Vielmehr wird meist ein sogenanntes reentrantes Verhalten beobachtet, bei dem mit sinkender Temperatur das Material zunächst beispielsweise supraleitend, bei weiterer Abkühlung ferromagnetisch, aber wieder normalleitend wird. Lediglich in einem kleinen Temperaturintervall kann es dabei zur gleichzeitigen Anwesenheit der beiden Zustände kommen [Buz83]. Darüber hinaus fanden diese Übergänge in den bisher bekannten Materialien typischerweise erst bei sehr tiefen Temperaturen ($< 10\,\mathrm{K}$) statt.

Vor diesem Hintergrund ist es verständlich, dass die Entdeckung des Ruthenokuprats der Form $RuSr_2GdCu_2O_8$ mit seinen eindeutigen Hinweisen auf eine *echte* Koexistenz zwischen einer schwach ferromagnetischen Ordnung ($T_{mag} = 130$–$140\,\mathrm{K}$) und Supraleitung ($T_c < 60\,\mathrm{K}$) im gesamten Temperaturbereich unterhalb seiner Sprungtemperatur für Wirbel sorgte. Als der „unmögliche magnetische Supraleiter“ wurde er teilweise sogar in einem Atemzug mit der erstmaligen Bose-Einstein-Kondensation als eine der aufregensten Entdeckungen des ausgehenden 20. Jahrhunderts genannt [Wyb00]. Die ursprüngliche Motivation für die Herstellung von Ruthenokupraten war zunächst jedoch eine völlig andere: Beabsichtigt war, durch den zusätzlichen Einbau metallischer Lagen in die intrinsische Schichtstruktur eines typischen Hochtemperatursupraleiters wie $YBa_2Cu_3O_7$ die kritische Stromdichte polykristalliner Systeme zu erhöhen [Bau95, Bau96]. Aufgrund chemischer Überlegungen wie Bindungslänge und Koordinationszahl wurden dazu die CuO_2-Ketten durch RuO_2 ersetzt. Was letztlich herauskam war eine Verbindung mit eine schichtartigen Kristallstruktur, in der sich unterhalb des supraleitenden Übergangs magnetisch geordnete RuO_2-Lagen und supraleitende CuO_2-Doppelebenen abwechselten, ein *intrinsischer* Stapel aus alternierend ferromagnetischen und supraleitenden Schichten [Ber99, Tal99]. Die dazwischen eingeschobenen Schichten aus Sr-Oxid konnten dabei als isolierend angenommen werden.

Die anisotropen Transporteigenschaften intrinsischer Schichtsysteme, die

entweder aus supraleitenden und isolierenden *oder* aus ferromagnetischen und isolierenden Schichten aufgebaut sind, wurden bereits seit einigen Jahren, unter anderem auch von der eigenen Arbeitsgruppe, intensiv untersucht. Ein besonderes Augenmerk galt dabei nicht zuletzt dem elektrischen Transport senkrecht zu den intrinsischen Ebenen (entlang der sogenannten *c*-Achse) des jeweiligen Einkristalls. Vertreter für die erstgenannten Systeme sind beispielsweise die stark anisotropen Hochtemperatursupraleiter wie $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$. Da hier die Supraleitung hauptsächlich auf die CuO_2-Doppelebenen beschränkt ist, sind benachbarte Doppelebenen nur sehr schwach miteinander gekoppelt. Es kommt zur Ausbildung sogenannter „intrinsischer Josephson-Kontakte“, die anfang der 90er Jahre erstmals direkt durch elektrischen *c*-Achsen-Transport nachgewiesen werden konnten [Kle92a, Kle92b]. Mittlerweile lässt sich mit Hilfe geeignet strukturierter $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristalle detailliert das Verhalten induktiv gekoppelter Josephson-Kontakte, beispielsweise bezüglich Fragen der Josephson-Vortex-Dynamik, studieren [Hei02b, Cla02].

Zu den Materialien, die eine intrinsische Schichtstruktur aus alternierend *magnetischen* und isolierenden Schichten aufweisen, zählen die sogenannten Schichtmagnanate. Ein wichtiger Vertreter dieser Klasse ist die Verbindung $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$. Hier kommt es bei Transport senkrecht zu den Ebenen zum Tunneln spinpolarisierter Ladungsträger zwischen benachbarten ferromagnetischen MnO_2-Doppelebenen [Kim96]. Messungen an magnetisch eindomänigen Strukturen konnten belegen, dass sich solche Systeme unter gewissen Umständen wie magnetfeldabhängige Schalter, sogenannte „Spin-Ventile“, verhalten [Nac00, Nac02].[1] Diese Arbeiten wurden in einer im Rahmen dieser Dissertation betreuten Diplomarbeit von H. Eitel fortgeführt [Eit03].

[1] An dieser Stelle sei angemerkt, dass im Rahmen der Dissertation eine Diplomarbeit betreut wurde, die sich intensiv mit dem Einfluss magnetischer Domänen auf den elektrischen Transport über eine künstliche Tunnelbarriere beschäftigt. Mit Hilfe der sogenannten „Laser-Raster-Mikroskopie“[Sch02] konnte dabei das elektrische Signal ortsaufgelöst mit der Domänenkonfiguration korreliert werden. Details hierzu finden sich in [Wag04].

Das Ruthenokuprat $RuSr_2GdCu_2O_8$ stellt nun in gewisser Weise eine Kombination aus beiden Systemen dar. Für Temperaturen oberhalb des supraleitenden Übergangs könnte es beispielsweise mit den Schichtmanganaten vergleichbar sein. Ein elektrischer Transport entlang der c-Achse würde zu spinpolarisiertem Tunneln zwischen benachbarten RuO_2-Ebenen führen. Im supraleitenden Zustand wäre ein intrinsischer Josephsoneffekt ähnlich dem in den stark anisotropen Hochtemperatursupraleitern denkbar. Darüber hinaus kann aber auch nicht ausgeschlossen werden, dass es hier zu ausgeprägten Unterschieden kommen könnte [Pic99]. Im Vergleich zu $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ ist im Falle des Ruthenokuprats jeweils zusätzlich eine schwach ferromagnetische Schicht in die Barriere der intrinsischen Josephson-Kontakte eingeschoben. Für solche Systeme wurde ein vom gewöhnlichen Josephson-Kontakt abweichendes Verhalten, ein sogenannter „π-Zustand“ mit Vorzeichenumkehr des kritischen Stroms, vorhergesagt [Pro99a, Hou01].

Die obigen Überlegungen machen deutlich, dass es durchaus wünschenswert erscheint, eine exklusiv c-achsenorientierte Messung des elektrischen Transports an $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristallen durchzuführen. Glücklicherweise ist es mittlerweile möglich, Einkristalle dieser Verbindung herzustellen [Lin01]. Auch wenn diese zum jetzigen Zeitpunkt noch sehr klein sind (max. $\sim 200\,\mu$m Kantenlänge), so sollte im Rahmen dieser Arbeit dennoch der Versuch unternommen werden, diese auf geeignetem Wege zu kontaktieren und den elektrischen c-Achsen-Transport unter verschiedenen Umgebungsbedingungen (Temperatur, Magnetfeld) zu untersuchen. Ein Vergleich mit den oben beschriebenen Referenzsystemen $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ und $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$ könnte dann wichtige Hinweise auf die Wechselwirkung zwischen den supraleitenden und magnetischen Untergittern liefern. Konkret sollte zunächst die Existenz intrinsischer Josephson-Kontakte nachgewiesen werden. Für den Fall, dass solche in den untersuchten $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen zu finden wären, würde sich unmittelbar die Frage eines möglichen 0-π-Übergangs der Kontakte anschließen. Da alle bisherigen Transportmessungen an $RuSr_2GdCu_2O_8$ (z.B. [Ber99, Tak01, Che01]) ausnahmslos an polykristallinen Proben

durchgeführt wurden, kann aufgrund der starken Anisotropie der Ruthenokuprate davon ausgegangen werden, dass dort hauptsächlich das Verhalten des Transports parallel zu den Ebenen wiedergegeben wurde. Die Möglichkeit, die Kristalle definiert entlang ihrer c-Achse zu vermessen, würde daher auch Fragen eher technischer Natur, beispielsweise nach der kritischen Stromdichte oder dem spezifischen Widerstand senkrecht zu den Ebenen, beantworten.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich wie folgt:
In **Kapitel 2** sollen zunächst die wichtigsten Grundlagen bezüglich (intrinsischer) Schichtsysteme, supraleitender wie magnetischer, rekapituliert werden. Anschließend wird auf die Besonderheiten von Supraleiter-Ferromagnet-Hybridstrukturen eingegangen. Dabei gilt ein spezielles Augenmerk den Bedingungen zur Ausbildung von π-Kontakten. Am Ende des Kapitels werden die wichtigsten bisher bekannten Eigenschaften von $RuSr_2GdCu_2O_8$ vorgestellt, so wie sie anhand *polykristalliner* Proben erhalten wurden.
Die charakteristischen Merkmale der speziell in dieser Arbeit verwendeten Kristalle finden sich am Anfang von **Kapitel 3**. In diesem Kapitel wird auch ausführlich auf die Probenpräparation, d. h. die Kontaktierung der Einkristalle, sowie den Messaufbau eingegangen.
Das Kernstück der Arbeit bildet **Kapitel 4**. Hier werden die Ergebnisse der Messungen an den $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen vorgestellt. Als direkter Nachweis der Koexistenz von magnetischer Ordnung und Supraleitung wird hier zunächst auf die Ergebnisse der Magnetisierungsmessungen eingegangen. Im Anschluss werden dann die elektrischen Eigenschaften des c-Achsentransports, auch im Hinblick auf die Möglichkeit eines 0-π-Phasenübergangs, diskutiert. Direkte Vergleiche mit dem Hochtemperatursupraleiter $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ werden dabei immer wieder die starke Ähnlichkeit der beiden Systeme betonen.
Mit den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen konnte selbstverständlich nur ein begrenzter Teil der möglichen Eigenschaften der Ruthenokuprate untersucht werden. Die Schlussdiskussion in **Ka-**

pitel 5 widmet sich daher unter Einbeziehung der erzielten Ergebnisse weiteren noch offenen Fragestellungen und bietet einen Ausblick auf weitere denkbare Untersuchungen.
In **Kapitel 6** werden schließlich die wichtigsten Ergebnisse der Arbeit knapp zusammengefasst.

Kapitel 2

Grundlagen

2.1 Intrinsischer Josephson-Effekt

2.1.1 Grundlegendes zur Supraleitung

Die Entdeckung der Supraleitung Im Jahre 1911 (gerade einmal drei Jahre nachdem es ihm möglich war, Helium zu verflüssigen) machte H. Kamerlingh-Onnes in Leiden die Entdeckung, dass der Widerstand von Quecksilber nahezu schlagartig auf einen unmessbar kleinen Wert abfiel, sobald er es unter eine kritische Temperatur T_c von etwa 4 K abkühlte [Onn11]. Bald darauf wurde dieses Verhalten an vielen weiteren Materialien (Zinn, Blei, Niob etc.) beobachtet. Zwar war klar, dass es sich aufgrund des abrupten Übergangs um einen neuen Zustand des Metalls handeln musste. Doch erst 22 Jahre später konnten W. Meißner und R. Ochsenfeld [Mei33] mit dem nach ihnen benannten Effekt die Vermutung widerlegen, dass man es hierbei lediglich mit einem idealen Leiter, d. h. ein Stück Metall mit verschwindendem Widerstand, zu tun habe. Vielmehr wurde hier der Übergang in eine neue Phase beobachtet.

Ginzburg-Landau-Theorie In dieser Theorie [Gin50] wird der supraleitende Übergang als Phasenübergang 2. Ordnung aufgefasst, d. h.

sie ist genau genommen nur in der unmittelbaren Umgebung von T_c gültig. Der supraleitende Zustand wird dabei als kohärente Überlagerung aller supraleitenden Ladungsträger angenommen. Dieser kann quantenmechanisch durch eine komplexe, makroskopische Wellenfunktion[1] der Form

$$\Psi = \Psi_0 e^{i\varphi} \tag{2.1}$$

beschrieben werden. $|\Psi_0|^2 = n_s$ ist dabei die Dichte der supraleitenden Ladungsträger. Die Existenz einer makroskopischen Phase φ führt zu Effekten wie der Flussquantisierung oder auch dem →Josephson-Effekt [Tin96]. Die Tatsache, dass alle Ladungsträger durch eine einzige Wellenfunktion beschrieben werden können, stellt den dissipationsfreien Stromfluss sicher [Sch97]. Eine wichtige charakteristische Größe in der Ginzburg-Landau-Theorie ist die sogenannte „Kohärenzlänge“ ξ_{GL}. Sie gibt an, auf welcher Längenskala es zu einer Änderung im supraleitenden Zustand kommen kann (Abbildung 2.1). Im Gültigkeitsbereich nahe T_c kann die folgende Temperaturabhängigkeit gefunden werden [Buc04]:

$$\xi_{GL}(T) = \frac{\xi_{GL}(0)}{\sqrt{1 - T/T_c}} \tag{2.2}$$

BCS-Theorie Während in der Ginzburg-Landau-Theorie keine Aussagen über die mikroskopische Ursache des supraleitenden Zustands gemacht werden, konnte diese Frage im Rahmen der nach ihren Enteckern J. Bardeen, L. Cooper und J. Schrieffer benannten BCS-Theorie beantwortet werden [Bar57]. Voraussetzung ist hier eine nichtverschwindende attraktive Wechselwirkung zwischen den Elektronen. In konventionellen Supraleitern ist dies beispielsweise eine Kopplung via Gitterschwingungen. Die Wechselwirkung führt dazu, dass es zur Ausbildung sogenannter Cooper-Paare, bestehend aus zwei Elektronen mit entgegengesetztem Impuls und Spin[2], kommen kann. Diese Paare besitzen einen ganzzahligen Gesamtspin, d. h. sie sind Bosonen und können daher in einen

[1] diese wird gemäß der allgemeineren Landau'schen Theorie der Phasenübergänge 2. Ordnung auch als „Ordnungsparameter“ bezeichnet

[2] Eine S=0-Kopplung ist nicht unbedingt zwingend. So werden beispielsweise im Ruthenat Sr_2RuO_4 Cooper-Paare mit S=1 diskutiert [Sig97, Ish98].

gemeinsamen (BCS-)Grundzustand kondensieren [Sch97]. Dieser kann dann durch die bereits im Rahmen der Ginzburg-Landau-Theorie gefundene Wellenfunktion beschrieben werden. Die mittlere Ausdehnung eines Cooper-Paars wird in Anlehnung an die Ginzburg-Landau-Theorie ebenfalls als Kohärenzlänge ξ_0 bezeichnet. Bezüglich des BCS-Grundzustands werden ungepaarte Elektronen als Anregungen aufgefasst. Sie werden als „Quasiteilchen“ bezeichnet. Für diese Anregungen muss eine Energielücke Δ_0 überwunden werden, zum Aufbrechen eines Cooper-Paares also $2\Delta_0$. Es zeigt sich, dass die Dichte der Cooper-Paare proportional zu Δ_0^2 ist. Somit ergibt sich ein direkter Zusammenhang zwischen Δ_0 und dem Betrag des Ordnungsparameters Ψ aus der Ginzburg-Landau-Theorie,

$$\Delta_0 \propto |\Psi|, \tag{2.3}$$

so dass diese Größen daher häufig synonym verwendet werden.

Supraleiter im Magnetfeld Wird ein Supraleiter in ein schwaches externes Magnetfeld gebracht, so kann dies nur geringfügig auf einer Längenskala λ_L, der sogenannten London'schen Eindringtiefe, in den Supraleiter eindringen (Abbildung 2.1). Im Rahmen der Ginzburg-Landau-Theorie wird nun für höhere Felder zwischen Typ I- und Typ II-Supraleitern unterschieden. Erstere verdrängen bis zu einem kritischen Wert H_c den Fluss vollständig aus ihrem Inneren (Meißner-Phase). Wird dieses Feld überschritten, bricht die Supraleitung schlagartig zusammen. Anders verhalten sich die Typ II-Supraleiter: Auch sie zeigen bis zu einem kritischen Feld H_{c1} eine Meißner-Phase. Mit weiterer Erhöhung des Magnetfelds können nun jedoch sukzessive Flussquanten eindringen. Diese besitzen einen normalleitenden Kern. Die Supraleitung verschwindet hier erst bei einem deutlich höheren Feld H_{c2}, wenn es zu einem Überlapp der normalleitenden Kerne kommt. Ob es sich um einen Typ I- oder Typ II-Supraleiter handelt, hängt vom Verhältnis aus London'scher Eindringtiefe und Kohärenzlänge, dem sogenannten Ginzburg-Landau-Parameter

$$\kappa = \frac{\lambda_L}{\xi_{GL}} \tag{2.4}$$

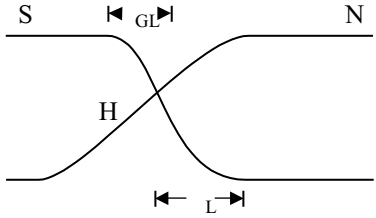

Abbildung 2.1: Definition der Kohärenzlänge ξ_{GL} und der London'schen Eindringtiefe λ_L.

ab. Dieser ist im Rahmen der Ginzburg-Landau-Theorie unabhängig von der Temperatur. Für $\kappa > 1/\sqrt{2}$ wird Typ II-Supraleitung bevorzugt [Sch97].

Oberes kritisches Feld und WHH-Theorie Gemäß der Ginzburg-Landau-Theorie ergibt sich der Zusammenhang zwischen der Kohärenzlänge ξ_{GL} und dem oberen kritischen Feld H_{c2} zu [Buc04]

$$H_{c2} = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi_{GL}^2(T)}, \tag{2.5}$$

wobei die Definition

$$\Phi_0 = \frac{h}{2e} \qquad \text{(Flussquant)}$$

verwendet wurde. Mit Gleichung 2.2 folgt damit eine lineare Temperaturabhängigkeit des kritischen Feldes. Da die Ginzburg-Landau-Theorie jedoch lediglich in der Nähe des supraleitenden Übergangs exakte Ergebnisse liefert, kommt es bei tieferen Temperaturen zu Abweichungen. Eine genauere Berechnung auf Basis einer mikroskopischen Theorie liefert den von N. R. Werthamer, E. Helfand und P. C. Hohenberg (WHH-Theorie) gefundenen Zusammenhang [Hel66]

$$H_{c2}(0) \approx 0.7 \cdot T_c \cdot \left.\frac{dH_{c2}}{dT}\right|_{T=T_c}. \tag{2.6}$$

2.1.2 Josephson-Effekt

Suprastromdichte Der Zusammenhang zwischen der Suprastromdichte j_s und der Wellenfunktion Ψ eines (nicht notwendigerweise homogenen) Supraleiters ist unter Einbeziehung des Vektorpotentials $\vec{A}$ gegeben durch [Sch97, Kle03]

$$\begin{aligned} \vec{j}_s &= \frac{2e\hbar}{2m}\left\{\frac{1}{2i}(\Psi^*\vec{\nabla}\Psi - \Psi\vec{\nabla}\Psi^*) - \frac{2\pi}{\Phi_0}\vec{A}|\Psi|^2\right\} \\ &= n_s\frac{e}{m}(\hbar\vec{\nabla}\varphi - 2e\vec{A}). \end{aligned} \tag{2.7}$$

Dies entspricht im Prinzip der quantenmechanischen Teilchenstromdichte, allerdings wurde zusätzlich berücksichtigt, dass es sich bei den Cooper-Paaren um Teilchen der Ladung $2e$ und Masse $2m$ handelt. Gleichung 2.7 macht deutlich, dass es an einer Stelle, an der lokal der Betrag des supraleitenden Ordnungsparameters ($\propto \sqrt{n_s}$) unterdrückt wird, zum Zwecke der Stromerhaltung zu einem ausgeprägten Gradienten in der Phase der supraleitenden Wellenfunktion kommen muss.

Josephson-Kontakt Eine der Möglichkeiten, den Ordnungsparameter sehr stark zu unterdrücken, ist, zwei Supraleiter durch eine dünne isolierende Barriere voneinander zu trennen (Abbildung 2.2). 1962 konnte B. Josephson zeigen, dass es in einem solchen „Josephson-Kontakt“ zum Tunneln von Cooper-Paaren, also einem geringen Suprastrom zwischen den Elektroden, kommen kann [Jos62]. Der Phasengradient $\vec{\nabla}\varphi$ ist gemäß den obigen Überlegungen im Bereich der Barriere am ausgeprägtesten. Daher kann der Suprastrom letzlich als eine Funktion der (eichinvarianten)[3] Phasendifferenz

$$\gamma = \varphi_2 - \varphi_1 - \frac{2\pi}{\Phi_0}\int_1^2 \vec{A}\cdot d\vec{s} \tag{2.8}$$

zwischen den beiden supraleitenden Elektroden beschrieben werden.

[3] Das Verhalten unter Eichtransformationen wird weiter unten genauer untersucht. Im Moment werde die Definition gemäß Gleichung 2.8 ohne Herleitung angegeben.

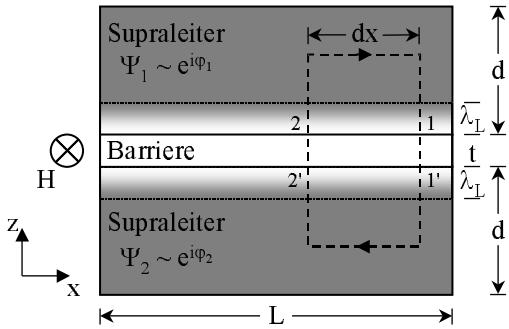

Abbildung 2.2: Schematische Darstellung eines Josephson-Kontakts. Die charakteristischen Dimensionen sind angegeben.

Josephson-Gleichungen

Die Wellenfunktion Ψ ist eine 2π-periodische Funktion bezüglich der Phase. Dasselbe trifft auch auf die Suprastromdichte zu, was es ermöglicht, sie durch eine Fourier-Reihe in γ auszudrücken. Damit die Zeitumkehrinvarianz ($j_s(\gamma) = -j_s(-\gamma)$) erfüllt ist, müssen in dieser Reihe alle cos-Terme ausgeschlossen werden. Bei geringer Transparenz der Barriere, so wie sie im Falle eines Tunnelkontakts angenommen werden kann, sind darüber hinaus Terme höherer Ordnung vernachlässigbar. Man erhält somit die *1. Josephson-Gleichung*

$$j = j_c \sin\gamma. \tag{2.9}$$

Die Größe j_c ist die maximal mögliche Suprastromdichte, die über die Barriere geschickt werden kann und wird als „kritische Stromdichte“ bezeichnet. Wird der kritische Strom $I_c = \int_A j_c \, dA$ (A: Barrierenfläche) überschritten, so tragen Quasiteilchen zum Transport bei, es kommt zu einem Spannungsabfall ($U \neq 0$). Um diesen mit der Phasendifferenz γ zu korrelieren, lohnt es, das Verhalten des Systems unter einer Eichtransformation des Vektorpotentials $\vec{A}$ und des skalaren Potentials V

$$\vec{A} \to \vec{A} + \vec{\nabla}\chi \quad , \quad V \to V - \frac{\partial \chi}{\partial t} \tag{2.10}$$

zu betrachten. Ein Blick auf Gleichung 2.7 macht deutlich, dass sich in diesem Fall auch die Phase[4] transformieren muss,

$$\varphi \rightarrow \varphi - \frac{2e}{\hbar}\chi. \tag{2.11}$$

Man sieht sofort, dass

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} - \frac{2e}{\hbar}V = 0 \tag{2.12}$$

eine eichinvariante Beziehung darstellt. Mit ihr ist es möglich, die zeitliche Ableitung von Gleichung 2.8 zu

$$\frac{\partial \gamma}{\partial t} = \frac{2e}{\hbar}V_2 - \frac{2e}{\hbar}V_1 - \frac{2e}{\hbar}\int_1^2 \frac{\partial A}{\partial t}\, dz \tag{2.13}$$

zu bestimmen. Die rechte Seite entspricht nun aber bis auf den Faktor $2e/\hbar$ genau der Spannung U über den Kontakt. Damit folgt die *2. Josephson-Gleichung*

$$\frac{\partial \gamma}{\partial t} = \frac{2e}{\hbar}U. \tag{2.14}$$

Aus ihr ist unmittelbar ersichtlich, dass ein Josephson-Kontakt im supraleitenden Zustand ($j < j_c$, $U = 0$) eine zeitlich konstante Phasendifferenz γ besitzt. Mit Gleichung 2.9 ergibt sich damit auch ein zeitlich konstanter Suprastrom. Im resistiven Zustand ($j > j_c, U \neq 0$) wächst die Phasendifferenz hingegen linear mit der Zeit. Für die Suprastromdichte ergibt sich in diesem Fall

$$j_s = j_c \sin\left(\gamma_0 + \frac{2e}{\hbar}Ut\right). \tag{2.15}$$

Der Suprastrom besitzt also einen Wechselstromanteil, dessen Frequenz direkt proportional zum Spannungsabfall über dem Josephson-Kontakt ist. Der Faktor $2e/h$ entspricht in etwa $483.6\,\mathrm{MHz}/\mu\mathrm{V}$, weshalb diese Frequenzen bereits bei kleinen Spannungen sehr hoch sein können.

[4] Aus dieser Umeichung folgt letztlich gemeinsam mit der Transformation des Vektorpotentials die Form der eichinvarianten Phasendifferenz γ in Gleichung 2.8.

Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms

Für einen idealisierten Josephson-*Tunnel*kontakt (Supraleiter-Isolator-Supraleiter, SIS), dessen (identische) supraleitende Elektroden im Rahmen der BCS-Theorie beschrieben werden können[5], folgt der kritische Strom dem allgemein gültigen, nur von der Energielücke Δ des Supraleiters abhängigen Ambegaokar-Baratoff-Gesetz

$$I_c R_n = \frac{\pi}{2e} \Delta(T) \tanh \frac{\Delta(T)}{2k_B T}. \tag{2.16}$$

Dabei ist R_n der Normalwiderstand ungepaarter Elektronen. Nahe T_c geht diese Funktion linear gegen Null, wenn eine BCS-konforme Temperaturabhängigkeit der Energielücke angenommen wird. Für $T \to 0$ sättigt das $I_c R_n$-Produkt bei $\pi\Delta(0)/(2e)$ [Tin96]. Im Falle einer metallischen Barriere (Supraleiter-Normalleiter-Supraleiter, SNS) ist diese Sättigung deutlich schwächer bis überhaupt nicht vorhanden [Lik79].

Punktförmige Josephson-Kontakte

In diesem Abschnitt sollen die Strom-Spannungs-Kennlinien eines *punktförmigen* Josephson-Kontakts näher beleuchtet werden. Eine recht gute Näherung ist dabei das auf W. C. Stewart und D. E. McCumber zurückgehende RCSJ-Modell („**R**esistively and **C**apacitively **S**hunted **J**unction-Modell“) [Ste68, McC68].
Wurde in den obigen Überlegungen lediglich der Cooper-Paar-Suprastrom $I_s = I_c \sin\gamma$ betrachtet, so muss in einem realen Kontakt bei endlichen Spannungen auch der Stromtransport via Quasiteilchen, $I_R = U/R$, berücksichtigt werden. R ist dabei der Quasiteilchen-Widerstand. Es werde vereinfacht ein Ohmsches Verhalten angenommen, was für nicht allzu große Spannungsänderungen in der Regel eine gute Näherung darstellt. Darüber hinaus besitzt ein Josephson-Kontakt stets eine endliche Kapazität[6] C, weshalb auch ein Verschiebungsstrom I_C in die Überlegungen aufgenommen werden soll. Dieser spielt bei sich zeitlich

[5] Diese Art Supraleiter besitzen einen räumlich isotropen Ordnungsparameter mit s-Wellen-Symmetrie, siehe Abschnitt 2.1.3.

[6] Auch wenn die Kapazität unter Umständen sehr gering sein mag, so darf dieser

verändernden Spannungen eine Rolle, $I_C = C\dot{U}$. Das Ersatzschaltbild eines solchen durch einen aufgeprägten Strom I_b („Biasstrom“) versorgten Josephson-Kontakts ist in Abbildung 2.3 wiederggegeben. Die drei

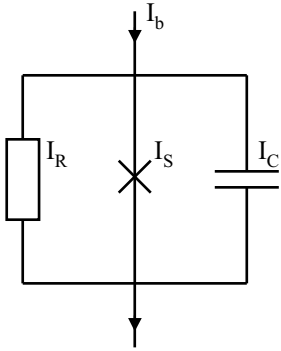

Abbildung 2.3: Ersatzschaltbild eines Josephson-Kontakts im RCSJ-Modell.

Beiträge addieren sich zum Gesamtstrom

$$I_b = I_s + I_R + I_C = I_c \sin\gamma + \frac{U}{R} + C\dot{U}. \tag{2.17}$$

Mit Hilfe der 2. Josephson-Gleichung kann nun die Spannung zugunsten der Phase γ eliminiert werden,

$$I_b = I_c \sin\gamma + \frac{\Phi_0}{2\pi R}\dot{\gamma} + \frac{C\Phi_0}{2\pi}\ddot{\gamma}. \tag{2.18}$$

Durch Einführung der Größen

$$f_{pl} = \sqrt{\frac{I_c}{2\pi\Phi_0 C}} \qquad \text{(Plasmafrequenz)}$$

und

$$\beta_c = \frac{2\pi I_c R^2 C}{\Phi_0} \qquad (\text{McCumber} - \text{Parameter})$$

und Ersetzen des Stromes und der Zeit durch die dimensionslosen Parameter $i = I_b/I_c$ bzw. $\tau = 2\pi f_{pl} t$ vereinfacht sich die Gleichung schließlich zu

$$i = \sin\gamma + \frac{1}{\sqrt{\beta_c}}\frac{\partial\gamma}{\partial\tau} + \frac{\partial^2\gamma}{\partial\tau^2}. \tag{2.19}$$

Beitrag aufgrund der hohen Frequenzen, die in einem Josephson-Kontakt gemäß der 2. Josephson-Gleichung möglich sind, nicht vernachlässigt werden.

Dies entspricht mathematisch betrachtet der Bewegungsgleichung eines gedämpften physikalischen Pendels mit externem Antrieb. In diesem Analogon entspricht die eichinvariante Phasendifferenz γ dem Auslenkwinkel des Pendels, die Spannung über den Josephson-Kontakt der Winkelgeschwindigkeit und der Biasstrom einem externen Drehmoment. Dem McCumber-Parameter kommt die Rolle einer inversen Dämpfung zu [Buc04]. Für kleine γ kann $\sin\gamma \approx \gamma$ gesetzt werden. In diesem Fall ergibt sich der Ausdruck für ein mathematisches Pendel mit der Eigenfrequenz f_{pl}.

Ausgedehnte Josephson-Kontakte

Im RCSJ-Modell wurde angenommen, dass die Stromverteilung entlang des Kontaktes homogen sei. Bei ausgedehnten Kontakten muss dies nicht mehr zwangsläufig gegeben sein. Somit kann sich auch γ entlang der x-Richtung (siehe Abbildung 2.2) verändern. Zur Bestimmung von $d\gamma/dx$ wird zunächst mit Hilfe von Gleichung 2.7 die Phase φ entlang des gestrichelten Weges (Abbildung 2.2) aufsummiert, $\oint \vec{\nabla}\varphi\, d\vec{l}$. Wegen der Eindeutigkeit der Wellenfunktion muss dieses Integral Null ergeben. Unter Verwendung von Gleichung 2.8 errechnet sich die Differenz in γ zwischen dx entfernten Punkten damit zu

$$\gamma(x+dx) - \gamma(x) = \frac{m}{2n_s e\hbar}\left[\int_1^2 \vec{j}_s(\vec{r})\, d\vec{r} + \int_{2'}^{1'} \vec{j}_s(\vec{r})\, d\vec{r}\right] + \frac{2e}{\hbar}\oint \vec{A}\cdot\, d\vec{l}, \tag{2.20}$$

bzw.

$$\frac{\partial\gamma}{\partial x} = \frac{m}{2n_s e\hbar}(j^u_{s,x} - j^o_{s,x}) + \frac{2e\mu_0}{\hbar} t_{eff} H_y. \tag{2.21}$$

$j^{o,u}_{s,x}$ ist dabei der in der oberen bzw. unteren Elektrode fließende Querstrom. t_{eff} ist über $\oint \vec{A}\cdot d\vec{l} = \int \vec{B}\cdot d\vec{f} = \mu_0 H_y \cdot t_{eff}\cdot dx$ definiert und wird als magnetische Dicke des Kontakts bezeichnet. Allgemein gilt

$$t_{eff} = t + 2\lambda_L \tanh\frac{d}{2\lambda_L}, \tag{2.22}$$

was in Kontakten mit dicken supraleitenden Elektroden ($d \gg \lambda_L$) einem Wert von $t+2\lambda_L$, im Falle dünner Elektroden ($d \ll \lambda_L$) $t+d$ entspricht.

Anmerkung: Im Folgenden wird die Diskussion für einen einzelnen Josephson-Kontakt mit dicken Elektroden fortgeführt, um die relevanten Begriffe zu definieren. Auf die Abweichungen für den Fall eines Stapels aus atomar dünnen supraleitenden Ebenen, so wie er beispielsweise in Hochtemperatursupraleitern realisiert ist, wird knapp in Abschnitt 2.1.4 eingegangen. Details hierzu finden sich beispielsweise in [Cla04].

Für einen Josephson-Kontakt mit dicken Elektroden kann der obige Integrationspfad so tief im Inneren der Supraleiter gewählt werden, dass die Abschirmströme entlang der x-Richtung vernachlässigt werden können, $j_{s,x}^{o,u} = 0$. Nun ist aus den Maxwell-Gleichungen bekannt, dass die Rotation des magnetischen Feldes der Summe aller Ströme entspricht,

$$\left(\vec{\nabla} \times \vec{H}\right)_z = \frac{\partial H_y}{\partial x} - \frac{\partial H_x}{\partial y} = j_c \sin\gamma + \sigma E + \epsilon\epsilon_0 \dot{E}. \tag{2.23}$$

Der Strom besteht hier analog zum RCSJ-Modell aus Josephson-, Quasiteilchen- und Verschiebungsstrom. σ ist die Leitfähigkeit, ϵ die Dielektrizitätskonstante des Barrierenmaterials. Der Josephson-Kontakt sei lediglich entlang der x-Achse ausgedehnt, weshalb die Ableitung in y-Richtung vernachlässigt werden kann.[7] Wird nun in Gleichung 2.23 das Magnetfeld mit Hilfe von Gleichung 2.21 durch $\gamma' = \partial\gamma/\partial x$ ersetzt und das elektrische Feld mit Hilfe der 2. Josephson-Gleichung durch $\dot{\gamma}$, so erhält man bei Normierung auf die kritische Stromdichte j_c die sog. gestörte *Sine-Gordon-Gleichung*

$$\frac{\hbar}{2et_{eff}\mu_0 j_c}\gamma'' = \sin\gamma + \frac{\hbar\sigma}{2etj_c}\dot{\gamma} + \frac{\hbar\epsilon\epsilon_0}{2etj_c}\ddot{\gamma}, \tag{2.24}$$

die sich mit Hilfe der charakteristischen Größen

$$\lambda_J = \sqrt{\frac{\hbar}{2et_{eff}\mu_0 j_c}} \qquad \text{(Josephson} - \text{Eindringtiefe)}$$

$$\omega_{pl} = \sqrt{\frac{2etj_c}{\hbar\epsilon\epsilon_0}} \qquad \text{(Plasmafrequenz)}$$

[7] Homogen über den Kontakt aufgeprägte Transportströme müssen dann auf der rechten Seite der Gleichung 2.24 als zusätzlicher Quellterm $-j_{ext}$ berücksichtigt werden.

$$\alpha \quad = \quad \frac{\hbar\sigma}{2etj_c} \qquad \text{(Dämpfung)}$$

umschreiben lässt zu

$$\lambda_J^2\gamma'' = \sin\gamma + \alpha\dot{\gamma} + \omega_{pl}^{-1}\ddot{\gamma}. \tag{2.25}$$

Die Josephson-Eindringtiefe λ_J gibt die Längenskala vor, auf der es zu einer räumlichen Änderung in der Phasendifferenz kommen kann. Ein Kontakt kann daher als „kurz“ bezeichnet werden, wenn seine lateralen Abmessungen kleiner als etwa λ_J sind. Umgekehrt können die im nächsten Abschnitt beschriebenen Solitonen erst auftreten, wenn der Kontakt „lang“ ist, d. h. eine Seite deutlich größer als λ_J ist.
Werden nur kleine Auslenkungen der Phasendifferenz betrachtet, so kann der sin-Term in Gleichung 2.25 linearisiert werden. Als Lösungen der so erhaltenen Differentialgleichung ergeben sich für den Fall vernachlässigbarer Dämpfung (α=0) transversale elektromagnetische Wellen der Form $\gamma = \exp(i\omega t - kx)$, die sogenannten „Plasmawellen“. Sie besitzen eine Dispersionsrelation der Form

$$\omega^2 = \omega_{pl}^2 + \omega_{pl}^2\lambda_J^2k^2. \tag{2.26}$$

Josephson-Vortexdynamik

Die ungestörte Sine-Gordon-Gleichung (Gleichung 2.25 für den Fall vernachlässigbarer Dämpfung, α=0) besitzt Lösungen der Form

$$\gamma(x,t) = 4\arctan\exp\left[\pm\frac{x-vt}{\lambda_J\sqrt{1-v^2/\bar{c}^2}}\right]. \tag{2.27}$$

Es handelt sich dabei um sogenannte *Solitonen*, d. h. räumlich lokalisierte Anregungen, die sich unter Beibehaltung ihrer Form fortbewegen können. Anschaulich ist diese Lösung nichts anderes als ein auf eine Länge von etwa $2\lambda_J$ begrenzter „Knick“[8] in der Phasendifferenz von 0 nach 2π (Abbildung 2.4 a). Das Auftreten des Lorentzterms $1/\sqrt{1-v^2/\bar{c}^2}$

[8] *engl.* kink

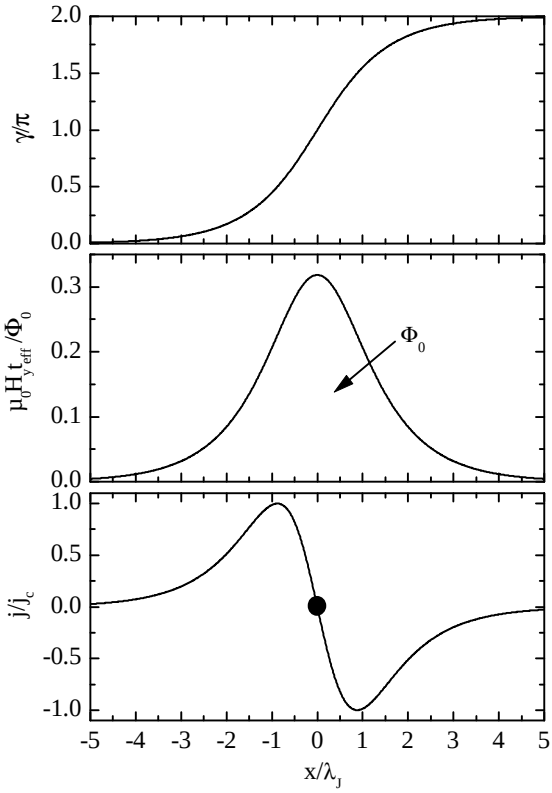

Abbildung 2.4: a) Ortsabhängigkeit der Phasendifferenz γ entsprechend Gleichung 2.27. b) Das daraus gemäß Gleichung 2.21 berechnete Magnetfeld H_y. Die Fläche unter der Kurve entspricht einem Flussquant. c) z-Komponente des Suprastroms gemäß der 1. Josephson-Gleichung ($\sim \sin\gamma$). Der Schwerpunkt des Solitons ist durch einen Kreis (•) markiert.

macht deutlich, dass sich die Solitonen wie relativistische Teilchen verhalten, die maximal auf eine Geschwindigkeit $\bar{c}$, die sogenannte „Swihart-Geschwindigkeit“, beschleunigt werden können. Für diese gilt:

$$\bar{c} = \omega_{pl}\lambda_J. \tag{2.28}$$

In den Abbildungen 2.4 b) und c) wird die physikalische Interpretation des Solitons deutlich: Zum einen entspricht es gemäß Gleichung 2.21

einem magnetischen Flussquant der Größe Φ_0, zum anderen beschreibt der Josephsonstrom einen um dieses Flussquant lokalisierten Kreisstrom. Die Solitonen werden daher auch häufig als „Fluxonen“, „Josephson-Vortizes“ bzw. „Josephson-Flusswirbel“ bezeichnet.
Unter dem Einfluss eines Biasstroms werden die Solitonen auf eine Geschwindigkeit v beschleunigt („Flux-Flow“), wodurch eine Spannung proportional zu ihrer Geschwindigkeit und ihrer Anzahl ($N \propto Ht_{\mathit{eff}}L$) über dem Josephson-Kontakt abfällt [Leb67],

$$\begin{aligned} U_{\mathit{ff}} &= v\mu_0 H t_{\mathit{eff}} \\ &\propto N \cdot v. \end{aligned} \tag{2.29}$$

Werden die Solitonen weiter beschleunigt, nähern sie sich asymptotisch ihrer Grenzgeschwindigkeit $\bar{c}$. Entsprechend kommt es zu einem Aufsteilen der Kennlinie bei der Grenzspannung $U_{FFS} = \bar{c}\mu_0 H t_{\mathit{eff}}$, der sogenannten Flux-Flow-Stufe. Bei weiterer Erhöhung des Biasstroms springt der Kontakt üblicherweise auf seinen McCumber-Ast.

Kurzer Kontakt im Magnetfeld

Besitzt ein Josephson-Kontakt laterale Abmessungen $L \lesssim \lambda_J$, so können sich keine Josephson-Flusswirbel in ihm ausbilden. Die eichinvariante Phasendifferenz ändert sich nur geringfügig auf der Länge des Kontakts, so dass ihre x-Abhängigkeit linearisiert werden kann ($\gamma'' = 0$). Aus Gleichung 2.21 folgt dann

$$\gamma(x) = \gamma(0) + \frac{2e\mu_0}{\hbar} t_{\mathit{eff}} H_y x. \tag{2.30}$$

Setzt man diese Beziehung in die 1. Josephson-Gleichung ein und integriert die so erhaltene Stromdichte $j_s(x)$ über die Fläche des Kontakts, so erhält man (unter der Annahme einer homogenen kritischen Stromdichte j_c) für die Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stroms den Zusammenhang

$$I_c(H) = I_c(0) \cdot \left| \frac{\sin(\pi H/H_0)}{\pi H/H_0} \right|, \tag{2.31}$$

wobei $H_0 = \Phi_0/(\mu_0 t_{\mathit{eff}} L)$ dem Feld entspricht, das zur Erzeugung eines elementaren Flussquants im Kontakt nötig ist.

2.1.3 Hochtemperatursupraleiter

In diesem Abschnitt sollen die wichtigsten Eigenschaften der Hochtemperatursupraleitung in Kupraten (auch als „Hoch-T_c-Supraleitung“ bezeichnet) vorgestellt werden, die erstmals 1986 von G. Bednorz und K. A. Müller im System La-Ba-Cu-O nachgewiesen werden konnte [Bed86].

Kristallstruktur & Dotierung

Alle Vertreter dieser Stoffgruppe haben gemeinsam, dass sie eine schichtartige Perovskit-Struktur besitzen (vgl. beispielsweise $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$, Abbildung 2.8). Die Supraleitung entsteht dabei in den CuO-Ebenen, während die dazwischenliegenden (isolierenden) Schichten die Rolle eines Ladungsreservoirs zum Dotieren der CuO-Ebenen mit Löchern bzw. Elektronen übernehmen (bei $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ sind die supraleitenden Ladungsträger beispielsweise Cooper-Paare aus Löchern). Ohne diese Dotierung sind die Kuprate normalerweise antiferromagnetische Isolatoren. Die Sprungtemperatur des Kuprats kann entscheidend durch die Ladungsträgerkonzentration beeinflusst werden. Dies definiert die Begriffe *optimal dotiert* (=höchstes T_c), *unterdotiert* bzw. *überdotiert*.

Symmetrie des Ordnungsparameters

Der supraleitende Zustand in den Kupraten unterscheidet sich in einigen seiner Eigenschaften deutlich von dem der konventionellen (durch die BCS-Theorie beschreibbaren) Supraleiter. In den konventionellen Systemen wird die Cooper-Paarbildung durch eine isotrope Elektron-Phonon-Wechselwirkung hervorgerufen, d. h. sie ist größtenteils unabhängig von der Richtung des Wellenvektors $\vec{k}$ der Elektronen. Daher besitzt die Paaramplitude Ψ_0 im $\vec{k}$-Raum eine isotrope s-Wellen-Symmetrie (Abbildung 2.5 a). Auch die Energielücke besitzt hier für alle Richtungen von $\vec{k}$ in etwa den gleichen endlichen Wert Δ_0. Anders die Kuprate: Bei ihnen gibt es eindeutige Hinweise darauf, dass der supraleitenden Ordnungsparameter zum überwiegenden Teil eine $d_{x^2-y^2}$-Wellen-Symmetrie (Abbil-

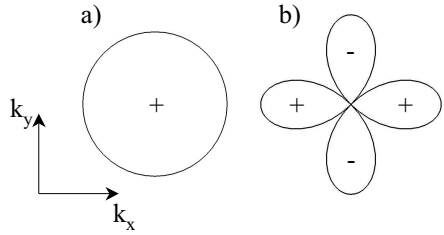

Abbildung 2.5: Amplitude des supraleitenden Ordnungsparameters im k-Raum. a) s-Welle, b) $d_{x^2-y^2}$-Welle.

dung 2.5 b) besitzt [Tsu00].[9] Die Amplitude Ψ_0 hat somit für bestimmte Richtungen im $\vec{k}$-Raum Nullstellen. In diese Richtungen verschwindet die Dichte der Cooper-Paare ($\propto |\Psi_0|^2$), so dass für jene $\vec{k}$-Vektoren kein Suprastrom möglich ist. Darüber hinaus besitzt in diese Richtungen auch die Energielücke Nullstellen, $\Delta(\theta) = \Delta_{max}|\cos(2\theta)|$.

Hoch-T_c-Josephson-Kontakte

Dass die Energielücke aufgrund der d-Wellen-Symmetrie Knoten besitzt, hat unmittelbare Auswirkungen auf das Quasiteilchenspektrum eines Hochtemperatursupraleiters. Während in der BCS-Theorie eine Energie von mindestens $2\Delta_0$ nötig war, um ein Cooper-Paar in zwei Quasiteilchen zu zerbrechen, ist dies nun je nach $\vec{k}$-Vektor bereits bei kleinsten Energien möglich. Dies hat Folgen für die Form der Strom-Spannungs-Kennlinie eines d-Welle/Isolator/d-Welle-Josephson-Kontakts (Abbildung 2.6 b). Im Falle eines Josephson-Kontakts aus konventionellen Supraleitern (Abbildung 2.6 a) können keine Quasiteilchen unterhalb einer Spannung $U = 2\Delta_0/e$ erzeugt werden.[10] Bei Erreichen des kritischen Stroms springt die Kennlinie daher bis zu diesem Wert. Für Elektroden aus d-Wellen-Supraleitern (Abbildung 2.6 b) gibt es jedoch bereits für Energien unterhalb Δ_{max} Quasiteilchenzustände. Die Quasiteilchenkennlinie ist daher im Falle eines solchen Kontakts deutlich abgerundeter.

[9] Aufgrund der Spin-Singulett-Paarung, die auch in den Kupraten beobachtet werden kann, muss wegen der Antisymmetrie der Wellenfunktion (bei den konstituierenden Löchern bzw. Elektronen handelt es sich ja um Fermionen) der Ortsanteil symmetrisch, d. h. der Bahndrehimpuls geradzahlig sein.

[10] Diese gilt genau genommen nur für $T = 0$.

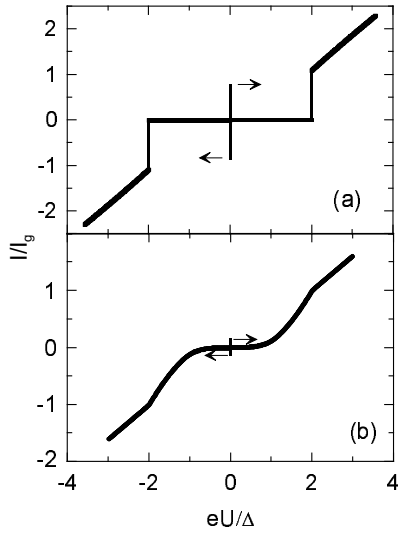

Abbildung 2.6: Schematische Strom-Spannungs-Kennlinie eines SIS-Tunnelkontakts für T=0, bei dem die supraleitenden Elektroden a) s-Wellen-Symmetrie, b) d-Wellen-Symmetrie besitzen. (aus [Kle03]).

Charakteristische Größen

Bei den Größen wie spezifischer Widerstand, Kohärenzlänge, kritisches Feld u. ä. muss aufgrund der Anisotropie der Hochtemperatursupraleiter zwischen der *ab*-Richtung (parallel zu den Ebenen) und *c*-Richtung (senkrecht zu den Ebenen) unterschieden werden. Die vorgestellten Werte beziehen sich auf $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$, einen der am besten untersuchten Vertreter dieser Stoffklasse.

spezifischer Widerstand: ρ_{ab} liegt bei Raumtemperatur in der Größenordnung von etwa $100\,\mu\Omega$cm, ρ_c besitzt hier einen Wert von einigen Ωcm. Da der in-plane-Widerstand eine metallische Temperaturabhängigkeit zeigt, ρ_c aber je nach Dotierungsgrad teilweise mit sinkender Temperatur ansteigt (Abbildung 2.7), kann bei T_c ein Verhältnis $\rho_c/\rho_{ab} \approx 10^5$ erreicht werden [Mar88].

kritisches Magnetfeld & London'sche Eindringtiefe: Bei den Kupraten handelt es sich ausnahmslos um Typ II-Supraleiter. Das obere kritische Feld ist dabei mit Werten für $H_{c2}^{\perp}(0) \approx 60$–$100\,\mathrm{T}$ (senkrecht zu den

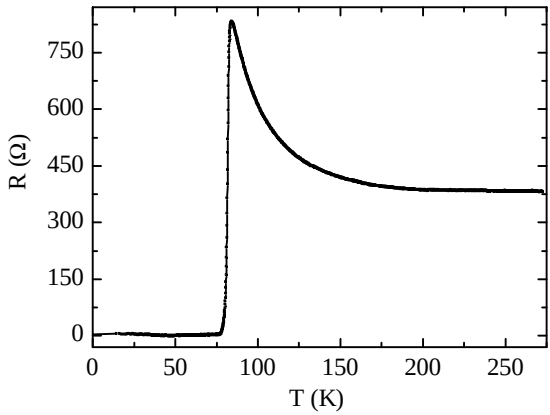

Abbildung 2.7: Temperaturabhängigkeit des c-Achsenwiderstands eines $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristalls (aus [Cla04]).

Ebenen) bzw. $H_{c2}^{\parallel}(0) \gg 100\,\mathrm{T}$ (parallel zu den Ebenen) sehr hoch [Nau88]. Die London'schen Eindringtiefen betragen $\lambda_{ab} \approx 200$–$300\,\mathrm{nm}$ bzw. mehrere $100\,\mu\mathrm{m}$ für λ_c. Für unterdotierte Kuprate existiert ein universeller Zusammenhang zwischen λ_{ab} und der kritischen Temperatur, $\lambda_{ab} \propto 1/\sqrt{T_c}$ [Uem89].

Kohärenzlänge: Durch die hohen kritischen Felder ergeben sich sehr kleine Kohärenzlängen, vor allem entlang der c-Achse. So erhält man für $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ die Längen $\xi_{ab} \approx 23\,\text{Å}$ und $\xi_c < 1\,\text{Å}$. Dies hat unmittelbare Auswirkungen auf die supraleitende Kopplung zwischen benachbarten CuO_2-Doppelebenen, die im Folgenden näher beleuchtet werden soll.

2.1.4 Intrinsischer Josephson-Effekt im Hochtemperatursupraleiter $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$

Die extrem geringe Kohärenzlänge ξ_c legt nahe, dass in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ die Supraleitung auf die etwa 3 Å dicken CuO_2-Doppelebenen beschränkt ist. Die dazwischenliegenden Schichten aus SrO und BiO fungieren als isolierende Barrieren (vgl. Abbildung 2.8). Das System kann daher in

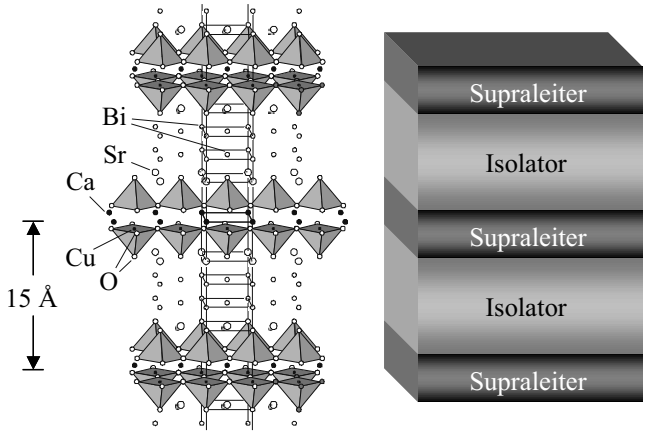

Abbildung 2.8: Kristallstruktur des Hochtemperatursupraleiters $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ sowie dessen Analogon, ein Stapel aus alternierend supraleitenden und isolierenden Schichten.

guter Näherung als Stapel aus quasi 2-dimensionalen, Josephson-gekoppelten[11] Supraleitern betrachtet werden. Dass es tatsächlich zur Ausbildung „intrinsischer“, d. h. durch die Kristallstruktur selbst erzeugter Josephson-Kontakte in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ kommt, konnte durch direkte Messung des c-Achsen-Transports an $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen nachgewiesen werden [Kle92a, Kle92b]. Eine typische Strom-Spannungs-Kennlinie einer solchen Messung ist in Abbildung 2.9 dargestellt. Da selbst ein nur wenige μm dickes Kristallplättchen mehrere tausend Einheitszellen besitzt (die Gitterkonstante entlang der c-Achse beträgt in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ lediglich $\sim$30 Å), werden in einer Transportmessung entsprechend viele intrinsische Josephson-Kontakte (jede Einheitszelle enthält zwei Kontakte, vgl. Abbildung 2.8) vermessen. Man kann sich daher die Kennlinie in Abbildung 2.9 *in erster Näherung* aus einer Vielzahl von d-Welle/Isolator/d-Welle-Kennlinien (Abbildung 2.6 b) mit leicht unterschiedlichen kritischen Strömen zusammengesetzt denken. Sobald der

[11] Nur so ist zu verstehen, weshalb es auch bei Messungen von ρ_c zu einem supraleitenden Übergang kommt.

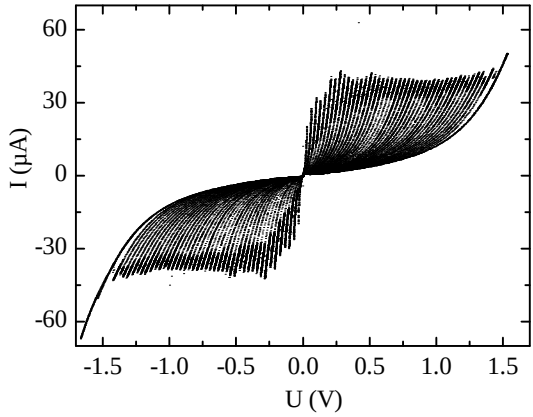

Abbildung 2.9: Strom-Spannungs-Kennlinie eines $2\times2\,\mu\mathrm{m}^2$ großen $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Mesas bei 4.2 K (aus [Hei02a]).

kritische Strom des schwächsten intrinsischen Kontakts überschritten wird, schaltet dieser in den resistiven Zustand, es kommt zum ersten resistiven Ast der Kennlinie. Eine weitere Stromerhöhung führt dazu, dass weitere Kontakte resistiv werden. Wird auf einem beliebigen resistiven Ast der Strom zurückgefahren, springt die Kennlinie bei einem deutlich geringeren Strom auf einen der inneren Äste bzw. auf den supraleitenden Zustand zurück.

Eine genauere Analyse zeigt jedoch, dass dieses einfache Modell dahingehend erweitert werden muss, dass die supraleitenden Elektroden nun extrem dünn sind. Während bei der Herleitung der Sine-Gordon-Gleichung (Seite 16 ff) für einen Kontakt mit dicken Elektroden die Querströme vernachlässigt werden konnten, da sie innerhalb der Supraleiter exponentiell abfallen, so führen sie nun zu einer zusätzlichen (induktiven) Kopplung zwischen benachbarten intrinsischen Kontakten. Dies führt zu den sogenannten „gekoppelten Sine-Gordon-Gleichungen“ [Sak93, Kle94], in denen eine Beziehung zwischen der 2. Ableitung γ_n'' der Phasendifferenz im n-ten Kontakt und den Strömen im n-ten, (n-1)-ten und (n+1)-ten Kontakt hergestellt wird. Ohne näher auf die Details dieser Theorie eingehen zu wollen, sollen im Folgenden die wichtigsten Konsequenzen aus

dieser Kopplung beschrieben werden:

- Zusätzlich zur effektiven Barrierendicke t_{eff} (Gleichung 2.22) wird nun auch eine effektive *Elektrodendicke* $d_{eff} = \lambda_L \sinh(d/\lambda_L)$ eingeführt. Für den Fall $d \ll \lambda_L$, so wie er in den intrinsischen Kontakten realisiert ist, gilt: $t_{eff} \approx t + d$, $d_{eff} \approx d$.

- Die Josephson-Eindringtiefe nimmt die Form

$$\lambda_J = \sqrt{\frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0 j_c(t_{eff} + 2\lambda^2/d_{eff})}} \tag{2.32}$$

  an.

- Anstelle einer 1-dimensionalen Kette aus Flusswirbeln (mit der Grenzgeschwindigkeit $\bar{c}$) in einem einzelnen Kontakt kann es nun zur Bildung von 2-dimensionalen Vortex-Gittern kommen. Bei den dynamischen Eigenschaften dieses Gitters ist zu beachten, dass die Vortizes in zwei benachbarten Kontakten entweder direkt untereinander oder um einen halben Wirbelabstand zueinander verschoben angeordnet sein können (Vierecks- bzw. Dreiecksanordnung). Bei einem Stapel aus N Kontakten gibt es hierfür N verschiedene Möglichkeiten. Es kann gezeigt werden, dass für jede dieser Möglichkeiten eine eigene Grenzgeschwindigkeit existiert,

$$c_n = \frac{\omega_{pl}\lambda_J}{\sqrt{1 - 2s\cos[\pi n/(N+1)]}} \quad \text{mit } n = 0 \ldots N. \tag{2.33}$$

  Der dimensionslose „Kopplungsparameter“ s besitzt für atomar dünne Kontakte etwa den Wert 0.5. Die langsamste Geschwindigkeit ist c_N und entspricht einem vollständigen Dreiecksgitter.

2.2 Intrinsische Spinventile

2.2.1 Grundlegendes zum Ferromagnetismus

Ein Ferromagnet ist ein Festkörper, der unterhalb einer für ihn charakteristischen Temperatur, der sogenannten „Curie-Temperatur“ T_c, ein

spontanes, d. h. ohne externes Magnetfeld hervorgerufenes, magnetisches Moment besitzt [Kit96]. In einem makroskopischen Körper tritt dieses Moment häufig nicht in Erscheinung, da er meist aus einer Vielzahl mikroskopisch kleiner, zufällig orientierter, magnetischer Domänen[12] zusammengesetzt ist. Der Begriff der spontanen Magnetisierung bezieht sich daher auf einen eindomänigen Bereich, in dem es unterhalb T_c zu einer Ordnung der elementaren magnetischen Momente kommt [Cra77]. Die Ursache dieser elementaren Momente sowie die Frage, weshalb es zur Ausbildung einer magnetischen Ordnung unter ihnen kommt, kann nur mit Hilfe der Quantenmechanik zufriedenstellend beantwortet werden. Im Folgenden wird auf die magnetische Wechselwirkung zwischen *lokalisierten* magnetischen Momenten näher eingegangen.[13]

Quantenmechanische Interpretation

Lokale magnetische Momente Das magnetische Moment eines *freien* Atoms bzw. Ions wird bestimmt durch die magnetischen Momente der Elektronen in der äußersten, teilweise unbesetzte Schale (inklusive deren Bahndrehimpulse) und besitzt den Wert

$$\vec{\mu} = -g\mu_B \vec{J}. \tag{2.34}$$

Dabei ist g der Landé'sche Faktor, μ_B das Bohr'sche Magneton und $\vec{J}$ der Gesamtdrehimpuls. J kann mit Hilfe der Hund'schen Regeln aus dem Gesamtspin S sowie dem Gesamtbahndrehimpuls L der Elektronen berechnet werden (die Spin-Bahn-Kopplung sei der Einfachheit halber vernachlässigbar)[Nol86a]. Innerhalb eines Festkörpers kann es jedoch zu deutlichen Abweichungen vom Verhalten eines freien Ions kommen. Sie treten vor allem bei denjenigen Ionen auf, deren Magnetismus durch die Elektronen in den *d*-Orbitalen verursacht wird (beispielsweise die Übergangsmetalle Ru und Mn). Die *d*-Orbitale bilden hier die äußersten

[12] den sogenannten „Weiß'schen Bezirken"

[13] Der Fall, dass die zum magnetischen Moment beitragenden Elektronen delokalisiert sind, tritt beispielsweise in den elementaren Ferromagneten (Eisen, Kobalt, Nickel) auf und kann mit Hilfe des „Bandmagnetismus"-Modells beschrieben werden.

Schalen. Wird ein solches Ion in das Gitter eines Festkörpers eingebaut, so „spüren“ daher vor allem diese Orbitale das anisotrope elektrische Feld, das von den Nachbarionen hervorgerufen wird [Kit96]. Dieses *Kristallfeld* führt dazu, dass es zu einer Aufspaltung in der Entartung der 5 *d*-Orbitale kommt (Abbildung 2.10). Anders als im isotropen Fall des

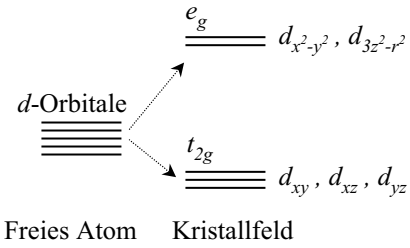

Abbildung 2.10: Durch die (in diesem Beispiel oktaedrische) Umgebung des Atoms/Ions kommt es im Kristall zur Aufhebung der 5-fachen Entartung der *d*-Orbitale.

freien Atoms, ist nun L_z keine „gute“ Quantenzahl mehr. Ihr Erwartungswert ist somit im zeitlichen Mittel häufig Null [Cra77]. Man spricht hierbei auch von „orbital quenching“. Damit vereinfacht sich der Gesamtdrehimpuls dieser Ionen auf S. Entsprechend erhält man für das magnetische Moment

$$\vec{\mu}_{d,\text{Kristallfeld}} = -g\mu_B\vec{S}. \tag{2.35}$$

Arten magnetischer Wechselwirkung Die lokalen Momente innerhalb des Festkörpers können auf verschiedene Arten miteinander wechselwirken, von denen hier einige kurz vorgestellt werden sollen.

Dipol-Dipol: Da jedes magnetische Ion ein kleines Magnetfeld verursacht, könnte dies benachbarte Ionen zur magnetischen Ordnung veranlassen. Allerdings sind die Energien hierbei winzig. Diese Art der Wechselwirkung spielt somit keine nennenswerte Rolle [Nol86a].

Direkter Austausch: Er spielt nur bei einem nicht-verschwindenden Überlapp der Wellenfunktionen der beteiligten magnetischen Ionen eine Rolle. Er ist daher sehr kurzreichweitig und leistet einen deutlich geringeren Beitrag als die im Folgenden vorgestellten *indirekten* Wechselwirkungen.

Superaustausch: Der Superaustausch findet sich häufig in isolierenden Oxiden und verursacht dort eine (in der Regel antiferro-)magnetische Ordnung über die p-Orbitale des Sauerstoffs. Abbildung 2.11 a zeigt ein Beispiel. Die halbgefüllten d-Orbitale des magnetischen Mn^{2+}-

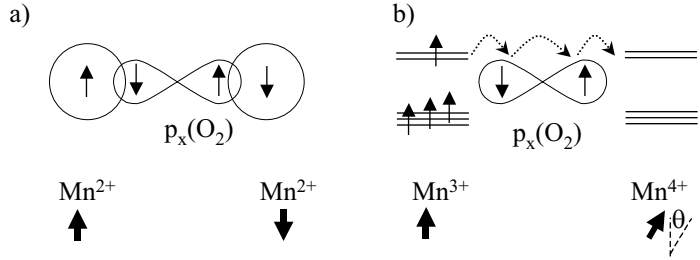

Abbildung 2.11: Zur Veranschaulichung a) des antiferromagnetischen Superaustauschs mittels kovalenter Bindungen, b) des ferromagnetischen Doppelaustauschs mittels itineranter Elektronen.

Ions können mit den vollständig gefüllten p-Orbitalen des Sauerstoffs mischen, unter der Vorraussetzung, dass das p-Elektron einen den d-Elektronen entgegengesetzten Spin besitzt. Da die p-Orbitale aufgrund des Pauli-Prinzips mit zwei Elektronen entgegengesetzten Spins besetzt sind, führt dies letztlich zu einer Folge aus drei antiferromagnetischen Spinkopplungen, was netto einer antiferromagnetischen Kopplung zwischen den Mn-Ionen entspricht.

Doppelaustausch: Er spielt in Systemen mit magnetischen Ionen zweier verschiedener Valenzen (beispielsweise Mn^{3+}/Mn^{4+}) eine Rolle. Ein Beispiel hierfür ist in Abbildung 2.11 b angegeben. Das zusätzliche (itinerante) e_g-Elektron des Mn^{3+}-Ions kann über den Sauerstoff zum leeren e_g-Band des Mn^{4+}-Ions wechseln. Aufgrund einer starken Hund'schen Kopplung wird bei den Mn-Ionen ein High-Spin-Zustand (alle Spins parallel) bevorzugt. Das Transferintegral t des Elektronenaustauschs ist daher im Falle einer ferromagnetischen Ordnung am höchsten. Allgemein gilt: $t \propto \cos(\theta/2)$, wobei θ den Verkippungswinkel zwischen den benachbarten magnetischen

Momenten angibt [Zen51, And55].

Molekularfeld-Näherung

In diesem Abschnitt sollen ausführlich die Grundzüge der Molekularfeld-Näherung dargelegt werden. Dies vor allem deshalb, weil in vielen Lehrbüchern (beispielsweise [Kit96, Iba95, Nol86a, Nol86b]) die Herleitung wichtiger Parameter sehr knapp gehalten ist. Der folgende Zugang wurde mit Hilfe der genannten Bücher zusammengestellt. Die Molekularfeldnäherung ist deshalb wichtig, weil für den später diskutierten 0-π-Übergang in Supraleiter-Ferromagnet-Schichtstrukturen vor allem das Austauschfeld H_{ex} im Ferromagneten von Bedeutung ist. Dieses ist deutlich größer als die im Labor erzielbaren Felder H_{ext} bzw. das durch die Magnetisierung im Inneren des Ferromagneten hervorgerufene Dipolfeld $H_{ind} = M$.

Die Idee In der Molekularfeld-Näherung wird der Ferromagnet zunächst wie ein Paramagnet behandelt. Bei letzterem kommt es in einem externen Feld H_{ext} zur Ausrichtung der magnetischen Momente und damit zu einer Magnetisierung. Bei einem Ferromagneten werde nun angenommen, dass die spontane Magnetisierung, die ja gerade einen Ferromagneten auszeichnet, analog durch ein internes Feld hervorgerufen wird, dem sogenannten Austauschfeld. Dieses interne Feld des Ferromagneten ist proportional zur Magnetisierung

$$\vec{H}_{ex} = \lambda \vec{M} \tag{2.36}$$

wobei λ als *Austauschparameter* bezeichnet wird. Würde es sich dabei einfach um das durch die Magnetisierung hervorgerufene Dipolfeld H_{ind} handeln (in Eisen beispielsweise 0.1 T), so könnte nicht erklärt werden, weshalb es bei hohen Temperaturen (Curie-Temperatur $T_{C,Fe} \approx 1000\,\mathrm{K}$) noch zu einer spontanen Magnetisierung kommen kann. Die thermische Energie $k_B T_C$ würde dort einem Feld von etwa 1500 T entsprechen. Die Abschätzung zeigt damit offenkundig, dass das postulierte Austauschfeld zum einen nicht dem klassischen Dipolfeld entspricht, zum anderen bei

Messungen in typischen Laborfeldern von einigen Tesla der dominierende Faktor ist.

Die Herleitung Zur Berechnung des Austauschparameters λ wird zunächst der Hamiltonoperator eines Ferromagneten mit lokalen magnetischen Momenten $g\mu_B S_i^z$ in einem externen Feld H_{ext} betrachtet

$$\mathcal{H} = -\sum_{ij} J_{ij} S_i^z S_j^z + g\mu_B \mu_0 \sum_i S_i^z H_{ext}. \tag{2.37}$$

Der zweite Term ist dabei der sog. Zeeman-Term und beschreibt die Energie der einzelnen magnetischen Momente im externen Feld. Der erste Term berücksichtigt, dass es zu einer Kopplung der magnetischen Momente untereinander kommt. Je nach Vorzeichen des sog. *Austauschintegrals* J ist diese dabei ferromagnetisch ($J > 0$) bzw. antiferromagnetisch ($J < 0$). Man kann nun ein Austauschfeld der Form

$$H_{ex} = -\frac{2}{g\mu_B\mu_0} \sum_j J_{ij} S_j^z \approx -\frac{2Jz}{g\mu_B\mu_0} \langle S^z \rangle = \lambda M \tag{2.38}$$

definieren. Dabei ist

$$\lambda = -\frac{2Jz}{ng^2\mu_B^2\mu_0} \tag{2.39}$$

der Austauschparameter, $M = ng\mu_B\langle S^z \rangle$ die Magnetisierung des Ferromagneten und z die Zahl der unmittelbaren Nachbarn. Die Wechselwirkung mit weiter entfernten Momenten sei vernachlässigbar. Gleichung 2.37 lässt sich damit umschreiben zu

$$\mathcal{H} = \sum_i g\mu_B S_i^z \mu_0 (H_{ex} + H_{ext}), \tag{2.40}$$

d. h. die magnetischen Momente befinden sich in einem effektiven Feld, das durch die Summe aus H_{ex} und H_{ext} gegeben ist. Dieser Hamiltonoperator besitzt die Eigenwerte

$$E = \{-S^z, -S^z + 1, ..., S^z - 1, S^z\} \cdot g\mu_B\mu_0 (H_{ex} + H_{ext}). \tag{2.41}$$

Jedes dieser Energieniveaus ist bei endlicher Temperatur gemäß der Boltzmannverteilung besetzt. Die Magnetisierung ist proportional zum thermischen Mittelwert dieser Verteilung:

$$M = ngS\mu_B B_S(x) \tag{2.42}$$

mit $x = gS\mu_B\mu_0(H_{ex} + H_{ext})/k_BT$. B_S ist dabei die sog. Brillouin-Funktion

$$B_S(x) = \frac{2S+1}{2S}\coth\left(\frac{2S+1}{2S}x\right) - \frac{1}{2S}\coth\frac{x}{2S}. \tag{2.43}$$

Da $B_S(x)$ von H_{ex} und damit über Gleichung 2.38 von M abhängt, muss Gleichung 2.42 selbstkonsistent gelöst werden. Ohne externes Feld ($H_{ext} = 0$) erhält man für $T \to T_C$[14]

$$M \approx ngS\mu_B\frac{(S+1)}{3S}x = ngS\mu_B\frac{(S+1)}{3S}\cdot\frac{gS\mu_B\mu_0\lambda M}{k_BT_C}. \tag{2.44}$$

Damit folgt unmittelbar für den Austauschparameter

$$\lambda = \frac{3k_BT_C}{\mu_0 ng^2S(S+1)\mu_B^2}, \tag{2.45}$$

d. h. er ist direkt proportional zu T_C. Darüber hinaus kann mit Hilfe von Gleichung 2.39 das Austauschintegral J zu

$$J = \frac{3k_BT_C}{2zS(S+1)} \tag{2.46}$$

angegeben werden.
Bei der Diskussion des 0-π-Übergangs in Kapitel 4 ist die Höhe des Austauschfeldes in Abhängigkeit von der Magnetisierung der ferromagnetischen Zwischenschicht entscheidend. Normiert auf die Sättigungsmagnetisierung $M_s = ng\mu_BS$ ergibt sich dieses zu

$$H_{ex} = \lambda M = \frac{3k_BT_C}{\mu_0\mu_B g(S+1)}S_{\mathit{eff}}. \tag{2.47}$$

Dabei ist $S_{\mathit{eff}} = M/M_s$.

[14] hier gilt $x \to 0$ und $B_S(x)$ kann mit Hilfe von $\coth(x) \approx \frac{1}{x} + \frac{x}{3} + \mathcal{O}(x^3)$ bis zur ersten Ordnung in x approxmiert werden

Zwei Schlussbemerkungen

1. Das Austauschfeld ist kein wirkliches magnetisches Feld. Es wirkt lediglich auf das magnetische Moment, beispielsweise der Elektronen. In den Maxwell-Gleichungen spielt es keine Rolle, d. h. es werden keine Ströme durch das Austauschfeld induziert.

2. Für einen Antiferromagneten ($J < 0$) funktioniert die Herleitung des Austauschfeldes ganz analog. Man betrachtet nun zwei antiparallele Untergitter mit Magnetisierungen M_+ bzw. M_-. Das Austauschfeld des einen Gitters wird dabei durch die Magnetisierung des anderen hervorgerufen. Da $|M_+| = |M_-|$ gilt, erhält man die gleichen Beziehungen wie im ferromagnetischen Fall.

Antiferromagnet im Magnetfeld: Suzeptibilität und Spin-Flop

Das Verhalten eines Antiferromagneten im Magnetfeld ist abhängig davon, in welche Richtung das Magnetfeld bezüglich seiner leichten Achse angelegt wurde. Die leichte Achse[15] ist dabei jene Richtung, entlang welcher die magnetischen Momente ohne externes Feld orientiert sind (in Abbildung 2.12 beispielsweise die z-Achse). Ursache dieser Anisotropie kann die Kristallstruktur aber auch die Geometrie der Probe sein. Die ferromagnetischen Untergitter richten sich in externen Feldern so aus, dass die Energiedichte

$$U = \underbrace{\lambda\mu_0\vec{M}_1 \cdot \vec{M}_2}_{\text{AF-Kopplung}} \underbrace{-\mu_0\vec{H} \cdot (\vec{M}_1 + \vec{M}_2)}_{\text{Zeeman}} - \underbrace{K\cos^2\alpha}_{\text{Anisotropie}} \tag{2.48}$$

minimal wird. α ist dabei der Winkel, um den die Magnetisierungen von der leichten Achse weggedreht werden, K die Anisotropiekonstante [Nol86b].

Kleine Felder Für Magnetfelder *senkrecht* zur leichten Achse (Abbildung 2.12 a) kommt es schon bei kleinsten Feldern durch Drehung der

[15] *engl.* easy axis

Magnetisierungsvektoren zu einer messbaren ferromagnetischen Komponente entlang der Feldrichtung. Die Beträge der Magnetisierung, $|\vec{M}_1|$ bzw. $|\vec{M}_2|$, ändern sich dabei nicht. Umgekehrt ist es im Fall *paralle-*

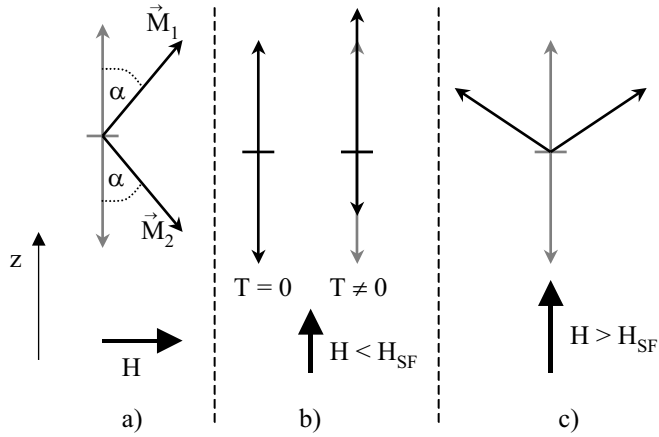

Abbildung 2.12: Verhalten der magnetischen Untergitter eines Antiferromagneten im externen Magnetfeld. a) Feldrichtung senkrecht zur leichten Achse (=z-Achse), b) Feld parallel zur leichten Achse, $H < H_{SF}$, c) Feld parallel zur leichten Achse $H > H_{SF}$. Die grauen Pfeile geben dabei die Magnetisierungsvektoren der Untergitter im Nullfeld an.

ler Feldorientierung: Hier bleiben die Richtungen der Untergitter konstant, während die Beträge sich verändern (Abbildung 2.12 b). Allerdings ist dies nur für $T \neq 0$ möglich. Entsprechend zeigt die Temperaturabhängigkeit der Suzeptibilität (Abbildung 2.13) einen konstant hohen Wert für Felder senkrecht zur leichten Achse, während bei paralleler Anordnung die Suszeptibilität für $T \to 0$ verschwindet [Kit96]. Oberhalb T_N, das heißt im paramagnetischen Bereich, gibt es keine Ordnung des Antiferromagneten. Daher ist die Suszeptibilität hier isotrop.

Höhere Felder Wenn das externe Feld groß genug ist, kann es zu einem sogenannten „Spin-Flop“ kommen. Die Magnetisierungen der Untergitter klappen dabei in die zum Feld senkrechte Richtung. Dies führt

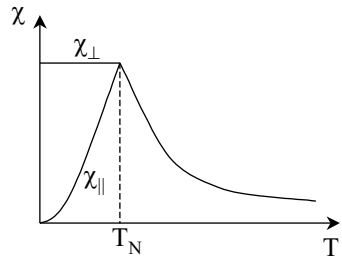

Abbildung 2.13: Temperaturabhängigkeit der Suzeptibilität eines Antiferromagneten für kleine Felder parallel (||) bzw. senkrecht (⊥) zur leichten Achse.

zwar zu einer Erhöhung der Anisotropie-Energie, allerdings können sich die magnetischen Momente nun kontinuierlich entlang des Magnetfelds ausrichten, was ab einem gewissen externen Feld (dem Spin-Flop-Feld H_{SF}) insgesamt energetisch günstiger ist [Nol86b].

2.2.2 Spinpolarisiertes Tunneln - der TMR-Effekt

Werden zwei (zunächst unmagnetische) metallische Elektroden durch eine isolierende Barriere der Dicke d voneinander getrennt, so kann für den Fall, dass diese Barriere dünn genug ist, ein messbarer Tunnelstrom zwischen den Elektroden fließen. Dieser ist proportional

- zur Tunnelwahrscheinlichkeit der Elektronen (sie kann in der WKB-Näherung mit $T \propto \exp(-2\sqrt{2m_eV/\hbar^2}\cdot d)$ angegeben werden, wobei V die Höhe der Potentialbarriere bezüglich des Ferminiveaus der Elektroden angibt)

- zur Anzahl besetzter (unbesetzter) Zustände an der Fermikante in der ersten (zweiten) Elektrode. Diese ist wiederum proportional zur Zustandsdichte $Z(E_F)$.

Es werde dabei vereinfacht angenommen, dass es sich um elastische, d. h. energieerhaltende Tunnelprozesse handelt. Darüber hinaus seien Zwischenzustände innerhalb der Barriere ausgeschlossen.
Nun werde ein Tunnelkontakt mit *ferromagnetischen* Elektroden betrachtet. Der Unterschied zum oben geschilderten Fall besteht darin,

dass in einem solchen Material die Elektronen der einen Spinsorte (Majoritätsladungsträger) im Vergleich zur anderen Spinsorte (Minoritätsladungsträger) energetisch abgesenkt sind. Das bedeutet aber nichts anderes, als dass die Zustandsdichten an der Fermikante für die beiden Spinsorten normalerweise unterschiedlich sind. Schematisch ist dies in Abbildung 2.14 dargestellt. Im sogenannten Jullière-Modell [Jul75] wird

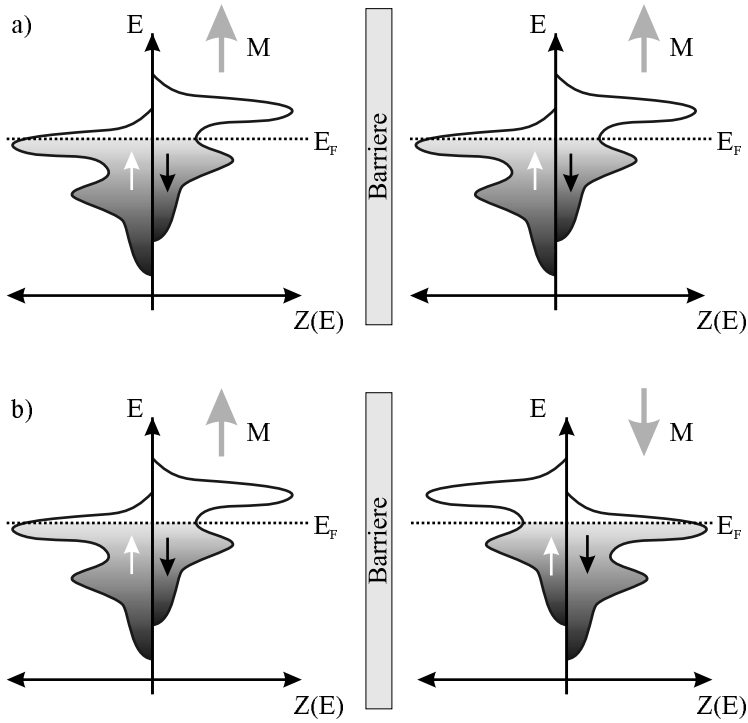

Abbildung 2.14: Schematische Elektronen-Zustandsdichten in einem Ferromagnet/Isolator/Ferromagnet-Tunnelkontakt.
a) Ferromagnetische, b) Antiferromagnetische Anordnung der Elektroden.

nun davon ausgegangen, dass ein Elektron unter Beibehaltung seines Spins von der einen Elektrode in die andere tunnelt. Da aber ein Spin↑-Elektron lediglich in einen Spin↑-Zustand tunneln kann (analog für Spin↓-Elektronen), können die beiden Spinsorten im sogenannten „Zweika-

nalmodell“ getrennt voneinander betrachtet werden. Eine Analyse der zwei parallelen Tunnelströme macht schnell klar, dass der Gesamtstrom im Falle einer antiparallelen Ausrichtung der Magnetisierungen der Elektroden geringer ist als im Falle einer parallelen Ausrichtung. Beispielsweise stehen in Abbildung 2.14 b zwar viele Spin↑-Elektronen in der linken Elektrode zum Tunneln bereit, da hier $Z(E)_\uparrow$ hoch ist, allerdings finden sie nur wenige freie Spin↑-Zustände in der rechten Elektrode, in die sie tunneln können; umgekehrt verhält es sich für die Spin↓-Elektronen. Dieses Verhalten (dass der Tunnelstrom von der relativen Ausrichtung der Magnetisierung der beiden Elektroden abhängt), wird als „Tunnelmagnetowiderstand“ (**T**unneling**M**agneto**R**esistance, TMR), ein solcher Tunnelkontakt häufig als „Spin-Ventil“ bezeichnet.

2.2.3 Intrinsische Spinventile im Schichtmanganat $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$

Die Kristalle vom Typ $La_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn_2O_7$ besitzen eine schichtartige Kristallstruktur, in der Doppelebenen aus Manganoxid-Oktaedern durch (isolierende) Schichten aus La- und Sr-Ionen voneinander getrennt sind (Abbildung 2.15) [Mor96]. Durch die Loch-Dotierung mit Sr-Ionen kommt es zu einer Mischung aus Mn^{3+}- und Mn^{4+}-Ionen. Deren mit vier bzw. drei Elektronen besetzte $3d$-Orbitale spalten im oktaedrischen Kristallfeld auf (vgl. Abbildung 2.10).[16] Aufgrund einer starken Hund'schen Kopplung befinden sich alle Mn-Ionen im High-Spin-Zustand, d. h. das zusätzliche Elektron in den Mn^{3+}-Ionen ist im e_g-Band untergebracht. Durch Doppelaustausch (Abbildung 2.11) kommt es zu einer ferromagnetischen Kopplung zwischen den Mn-Ionen *innerhalb* einer Doppelebene [Zen51]. Da hierbei gleichzeitig die Leitfähigkeit der itineranten Elektronen zunimmt, ist dieser ferromagnetische Übergang (für $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$ bei etwa 100 K) als drastischer Widerstandsabfall messbar (Abbildung 2.16). Mit Hilfe eines starken Magnetfelds kann die ferromagnetische

[16] Genau genommen kommt es bei Mn^{3+} zusätzlich zu einer Jahn-Teller-Aufspaltung der e_g-Orbitale [Lou98], auf die hier jedoch nicht näher eingegangen werden soll.

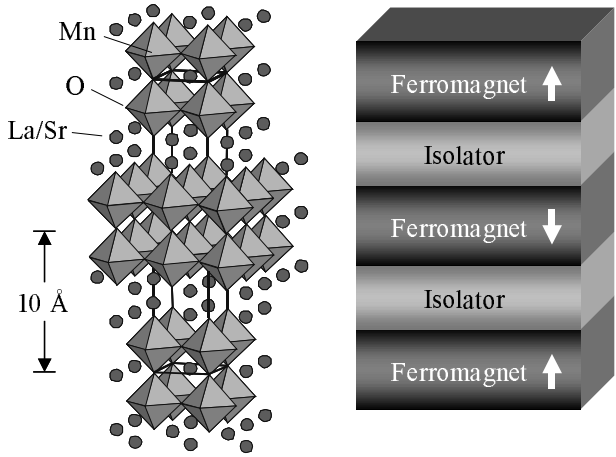

Abbildung 2.15: Kristallstruktur des Schichtmanganats $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$ sowie dessen Analogon, ein Stapel aus alternierend ferromagnetischen und isolierenden Schichten. Die Pfeile im Stapelmodell deuten dabei die Richtung der Magnetisierung innerhalb der Ebenen an.

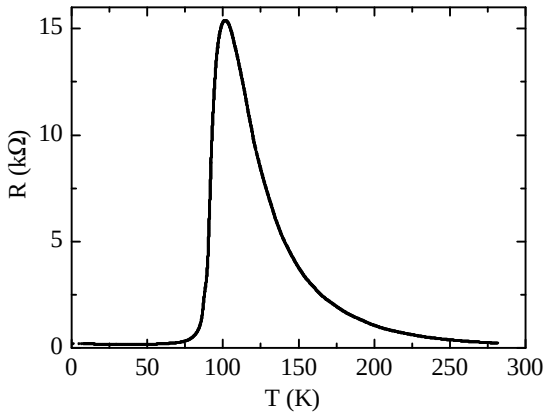

Abbildung 2.16: Temperaturabhängigkeit des c-Achsenwiderstands eines $5\times5\,\mu m^2$ großen $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$-Mesas.

Ordnung zu höheren Temperaturen verschoben werden. Dies hat nahe 100 K einen ausgeprägten Magnetwiderstandseffekt zur Folge, der auf-

grund seiner Größe (es sind bei 100 K Widerstandsabnahmen auf 1 % in Feldern von 5 T möglich [Kim96]) auch als „Kolossaler Magnetwiderstand“ (**C**olossal **M**agneto**R**esistance, CMR) bezeichnet wird.[17] Je nach Sr-Dotierung liegt die leichte Achse dabei in-plane bzw. out-of-plane. Im Falle von $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$ liegt die out-of-plane Orientierung vor. Darüber hinaus ordnen bei *dieser* Zusammensetzung unterhalb von etwa 70 K benachbarte Doppelebenen antiferromagnetisch zueinander (vgl. Abbildung 2.15) [Kim96]. Das System verhält sich also bei tiefen Temperaturen wie ein intrinsischer Stapel aus im Nullfeld antiferromagnetisch zueinander orientierten, ferromagnetischen Metallschichten, die durch eine isolierende Barriere getrennt sind. Es liegt nahe, die Möglichkeit eines *intrinsischen* TMR-Effekts für den elektrischen Widerstand senkrecht zu den Ebenen in Betracht zu ziehen. Für Felder senkrecht zu den Ebenen wurde dabei ein sogenannter Spin-*Flip* vorausgesagt [Per98]. Da die antiferromagnetische Ordnung zwischen benachbarten Doppelebenen aufgrund des relativ großen Abstands sehr gering ist, kommt es in diesem Szenario anders als beim Spin-*Flop* zu einem sprungartigen Schalten vom antiferromagnetischen zum ferromagnetischen Zustand, wobei die magnetischen Momente in *beiden* Konfigurationen senkrecht zu den Ebenen (entlang der leichten Achse) stehen (Abbildung 2.17). In der Tat

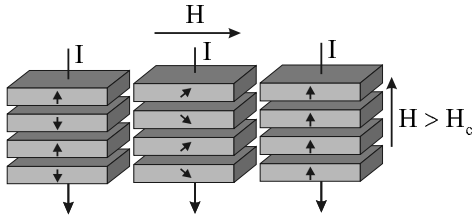

Abbildung 2.17: Verhalten eines $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$-Kristalls im Magnetfeld.

konnte im Rahmen dieser Arbeit unter anderem die durch den Spin-Flip zu erwartende sprunghafte Abnahme des c-Achsenwiderstands anhand eindomäniger (d. h. wenige μm großer) Strukturen nachgewiesen werden

[17] Es sei angemerkt, dass der Doppelaustausch alleine nicht für einen so großen Widerstandseffekt verantwortlich sein kann. Das Modell muss unter anderem auch polaronische Effekte aufgrund der Jahn-Teller-Verzerrung berücksichtigen.

(Abbildung 2.18) [Nac00, Nac02]. In Analogie zu künstlichen Systemen werden die atomar dünnen TMR-Elemente in $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$ als „intrinsische Spin-Ventile“ bezeichnet.

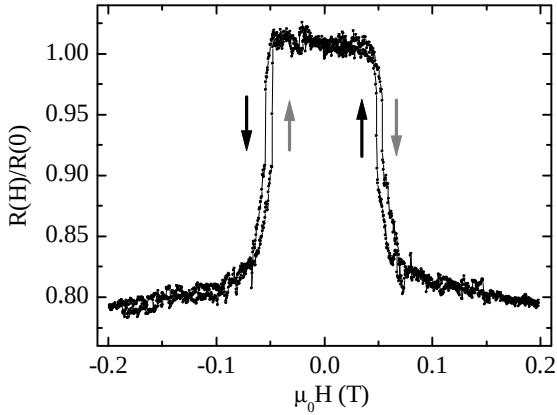

Abbildung 2.18: Magnetfeldabhängigkeit des c-Achsen-Widerstands eines $5\times5\,\mu m^2$ großen $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$-Mesas. Das Feld wurde senkrecht zu den Mn_2O_7-Ebenen angelegt, die Temperatur betrug 4.2 K. Die Pfeile deuten die Hysterese an (aus [Nac00]).

2.3 Supraleiter-Ferromagnet-Hybride

2.3.1 Grundlegendes zu SF-Hybriden

Konventionelle Supraleitung und magnetische (speziell ferromagnetische) Ordnung sind zwei Phänomene, die sich in einem homogenen Festkörper in den meisten Fällen ausschließen [Gin57]. So zeigt bereits eine geringfügige Verunreinigung eines Supraleiters mit paramagnetischen Ionen eine deutliche Reduzierung der kritischen Temperatur bis zu hin zur völligen Abwesenheit eines supraleitenden Übergangs [Mat58]. Ursache ist hier zum einen die paarbrechende Wirkung des magnetischen Feldes aber auch der direkte Spin-Austausch mit den paramagnetischen Ionen [Buc04].

Es gibt jedoch einige wenige Verbindungen, die antiferromagnetische, ja sogar ferromagnetische Ordnung und Supraleitung zeigen. Zur ersten Gruppe gehören unter anderem bestimmte Chevrel-Phasen (z. B. $TbMo_6S_8$), die Borkarbide oder auch die Schwere-Ionen-Supraleiter wie UPt_3[18]. Bei einigen Vertretern dieser Gruppen kommt es dabei sogar zur *Koexistenz* zwischen Antiferromagnetismus und Supraleitung. Ferromagnetische Ordnung hingegen verursacht normalerweise eine sogenannte *reentrante Supraleitung*. So wird die Verbindung $HoMo_6S_8$ bei etwa 2 K supraleitend. Bei 0.93 K setzt die ferromagnetische Ordnung ein und die Supraleitung verschwindet wieder [Buc04].

Ein Zugang, das Wechselspiel zwischen Supraleitung und Ferromagnetismus genauer zu studieren, besteht darin, Multilagen aus abwechselnd supraleitenden und ferromagnetischen Schichten zu untersuchen. Hierbei kann es sich um metallische Systeme (beispielsweise Niob und Eisen [Müh97, Ver98]) oder aber auch um oxidische Materialien, speziell epitaktisch abgeschiedene Kuprat/Manganat-Übergitter (beispielsweise $YBa_2Cu_3O_7$ und $La_{0.67}Ca_{0.33}MnO_3$ [Jak95, Hab01]) handeln. In diesen Messungen wurde deutlich, dass es durchaus zu einer signifikanten Wechselwirkung der beiden Systeme kommt. Diese zeigt sich beispielsweise in einer reduzierten kritischen Temperatur der supraleitenden Schichten sowie einer abgesenkten Curie-Temperatur des magnetischen Untergitters [Hab01]. Speziell in den metallischen Systemen konnte darüber hinaus ein oszillatorisches Verhalten der Sprungtemperatur des Supraleiters in Abhängigkeit von der Dicke des Ferromagneten beobachtet werden [Müh97].

Während sich die hier erwähnten Untersuchungen allesamt auf den in-plane-Transport (d. h. parallel zu den Schichten) der Supraleiter-Ferromagnet-Hybride beschränkten, sind für den vertikalen Transport weitere Effekte zu erwarten. Einer davon ist die Ausbildung von sogenannten $\rightarrow\pi$-Kontakten.

[18] Letztere zeigen allerdings keine konventionelle Supraleitung [Joy02].

2.3.2 π-Kontakte

Unter gewissen Umständen ist es möglich, Josephson-Kontakte zu erzeugen, bei denen bereits ohne angelegten Biasstrom eine Phasendifferenz von π zwischen den beiden supraleitenden Elektroden herrscht. Gemäß der 1. Josephson-Gleichung entspricht dies effektiv einer „negativen kritischen Stromdichte“

$$j = j_c \sin(\varphi + \pi) = -j_c \sin \varphi. \tag{2.49}$$

Bei Hochtemperatursupraleitern kann hierzu beispielsweise die d-Wellen-Symmetrie mit ihrem richtungsabhängigen Vorzeichen der Phase ausgenutzt werden (siehe beispielsweise [Tsu00]).
Aber auch mittels einer ferromagnetischen Barriere kann ein solcher Zustand erzielt werden [Dem97, Rya01b]. Hierbei wird von der Tatsache Gebrauch gemacht, dass die Elektronen der Cooper-Paare, wenn sie sich durch die Barriere bewegen, von dem dort existierenden Austauschfeld beeinflusst werden.[19] Die Orientierung dieses Feldes spielt für alle weiteren Überlegungen keine Rolle. Zunächst soll der Effekt anhand einer ferromagnetischen Schicht vorgestellt werden, deren Dicke d_F endlich ist, d. h. im Bereich der freien Weglänge l der Elektronen liegt. Danach wird auf den Grenzfall atomar dünner Barrieren eingegangen, der in $RuSr_2GdCu_2O_8$ realisiert ist (siehe auch Abschnitt 2.4).

Endliche Dicke des Ferromagneten

In Abbildung 2.19 ist schematisch das Verhalten eines Cooper-Paars dargestellt, das in die ferromagnetische Schicht eindringt. Das Spin↑-Elektron senkt im Austauschfeld H_{ex} seine potentielle Energie um den Betrag

$$E_{ex} = \mu_B \mu_0 H_{ex} \tag{2.50}$$

ab. Das Spin↓-Elektron erhöht seine potentielle Energie entsprechend um E_{ex}. Damit die Gesamtenergie des jeweiligen Elektrons erhalten bleibt,

[19] Es werde angenommen, es handele sich dabei um Spin-Singlett(S=0)-Cooper-Paare. Dies trifft auf die Kuprate zu.

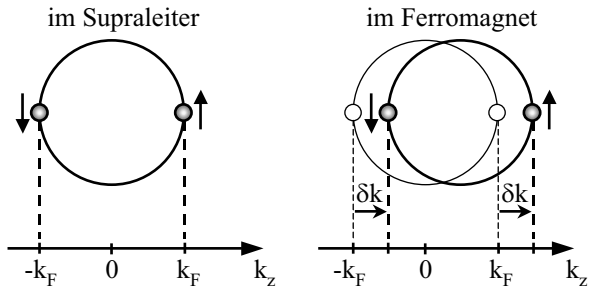

Abbildung 2.19: Schema eines Cooper-Paars im Impulsraum. Durch das Austauschfeld im Ferromagneten gewinnt bzw. verliert ein Elektron je nach Spinausrichtung den Impuls $p = \hbar\delta k$ (nach [Dem97]).

erhöht das Spin↑-Elektron seine kinetische Energie um E_{ex} bzw. den Impuls um $p = \hbar\delta k = E_{ex}/v_F$. Dabei ist v_F die Fermi-Geschwindigkeit. Das Spin↓-Elektron senkt seinen Impuls entsprechend. Der Schwerpunktsimpuls des Cooper-Paars wächst somit um

$$Q = 2E_{ex}/v_F. \tag{2.51}$$

Analog zu Abbildung 2.19 könnte auch der Fall vorliegen, dass das Spin↑-Elektron einen Impuls von $-k_F$ und das Spin↓-Elektron einen Impuls von k_F besitzt. Aufgrund der fermionischen Antisymmetrie muss auch dieses Szenario berücksichtigt werden. Es ergibt sich also letztendlich eine Überlagerung eines Cooper-Paars mit Impuls Q und Impuls $-Q$. Das Austauschfeld des Ferromagneten führt daher mit

$$\Psi(z) \propto e^{\frac{iQ}{\hbar}z} + e^{\frac{-iQ}{\hbar}z} \propto \cos\left(\frac{Q}{\hbar}z\right) \tag{2.52}$$

zu einer räumlichen Oszillation der supraleitenden Wellenfunktion $\Psi(z)$ innerhalb der Barriere.

In den bisherigen Überlegungen wurde der Einfluss der Streuung vernachlässigt. In der Realität wird die Cooper-Paar-Amplitude hierdurch exponentiell abfallen. Auch wurde davon ausgegangen, dass die Austauschenergie deutlich höher als die thermische Energie ist, $H_{ex} \gg k_B T$. In stark verdünnten Ferromagneten ist dies aber nicht mehr unbedingt

gegeben. Für den Fall, dass die Austauschenergie in der Größenordnung der thermischen Energie liegt, konnten Ryazanov *et al.* zeigen [Rya01b], dass mit $\Psi(z) \propto e^{-z/\xi_{m1}} e^{-iz/\xi_{m2}}$ und

$$\xi_{m1,2} = \sqrt{\frac{\hbar D}{\left[E_{ex}^2 + (\pi k_B T)^2\right]^{1/2} \pm k_B T}} \tag{2.53}$$

die Länge ξ_{m1}, auf der die Cooper-Paar-Amplitude abfällt, mit sinkender Temperatur ansteigt ($D = \frac{2}{3} l v_F$ ist dabei die sogenannte Diffusionskonstante des Ferromagneten). Wichtiger ist allerdings, dass die Oszillationslänge $2\pi\xi_{m2}$ hierbei abnimmt. Durch Veränderung der Temperatur ist es also bei gegebener Dicke d_F und Austauschfeld H_{ex} des Ferromagneten möglich, die räumliche Modulation der Wellenfunktion $\Psi(z)$ dahingehend zu beeinflussen, dass es zu verschiedenen Vorzeichen des komplexen Ordnungsparameters in den beiden supraleitenden Elektroden kommen kann. Dies entspricht einer zusätzlichen Phasendifferenz von π. In Abbildung 2.20 ist die Modulation der Wellenfunktion zwischen den Elektroden für verschiedene Verhältnisse von $d_F/2\pi\xi_{m2}$ dargestellt.

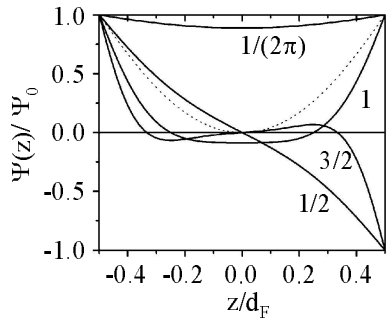

Abbildung 2.20: Verlauf der Wellenfunktion $\Psi(z)$ zwischen den beiden supraleitenden Elektroden für verschiedene Verhältnisse $d_F/2\pi\xi_{m2}$. Die gestrichelte Linie gibt den Verlauf für $d_F/2\pi\xi_{m2}$=1/2 und 0-Phase an, was aber energetisch ungünstig ist (aus [Rya01b]).

Für die Physik des Josephson-Kontakts bedeutet dies, dass bei einer bestimmten Temperatur der kritische Strom gemäß Gleichung 2.49 nominell sein Vorzeichen wechselt. Wird der kritische Strom eines einzelnen Josephson-Kontakts gemessen, so kann dabei immer nur der Absolutwert $|I_c|$ bestimmt werden. Der Vorzeichenwechsel (=Nulldurchgang) macht

sich hier also lediglich in einem Abfall und Wiederanstieg des kritischen Stroms bemerkbar. Abbildung 2.21 zeigt hierfür als Beispiel eine Messung an einem $Nb/Cu_{0.48}Ni_{0.52}/Nb$-Kontakt mit einer Barrierendicke von etwa 22 nm [Rya01b]. Mittlerweile konnte mit Hilfe von SQUID-

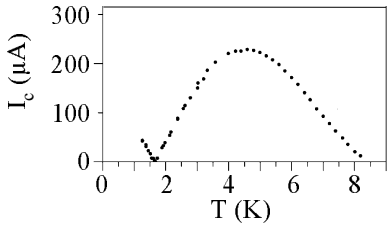

Abbildung 2.21: Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms eines künstlichen SFS-Kontakts (aus [Rya01b]).

Messungen der Vorzeichenwechsel in der Strom-Phasen-Relation eines solchen Kontakts direkt beobachtet werden [Fro04].

SIFS und SIFIS Die obige Theorie für endliche Schichtdicken wurde am Beispiel eines Stapels aus supraleitenden und metallisch-ferromagnetischen Schichten (kurz: SFS) vorgestellt. In guter Näherung sind die genannten Überlegungen aber auch für Stapel der Form Supraleiter/Isolator/Ferromagnet/Supraleiter (SIFS) bzw. Supraleiter/Isolator/Ferromagnet/Isolator/Supraleiter (SIFIS) gültig ([Kon02, Rad03]).
Wie gezeigt werden wird, findet der Transport zwischen den CuO_2-Ebenen in $RuSr_2GdCu_2O_8$ via Tunnelprozessen statt. Daher lohnt es, kurz auf die Vorhersagen für SIFIS-Strukturen einzugehen. Abbildung 2.22 zeigt das von Radović *et al.* berechnete Verhalten für die Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms für drei verschiedene Schichtdicken d_F des Ferromagneten [Rad03]. Je nach Wahl von d_F können Systeme erzeugt werden, deren Strom-Phasen-Relation a) immer 0-Phase, b) immer π-Phase oder c) je nach Temperatur einen Übergang zwischen 0- und π-Phase zeigt. Der augenscheinlichste Unterschied zwischen den $I_c(T)$-Kurven der Fälle a) und b) besteht darin, dass bei ersterem der kritische Strom bei tiefen Temperaturen nur eine geringe Temperaturabhängigkeit zeigt, während er in der π-Phase hier mit steigender Temperatur stark

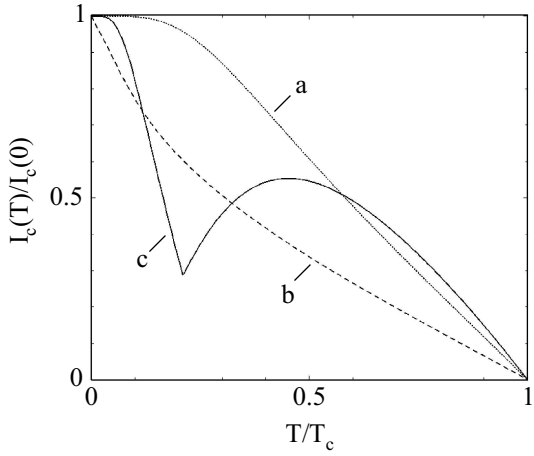

Abbildung 2.22: Theoretische Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms eines SIFIS-Kontakts. Der Unterschied zwischen den drei Kurven besteht in der Schichtdicke des Ferromagneten. a) 0-Zustand; b) π-Zustand; c) Die Schichtdicke ist so gewählt, dass es zu einem 0-π-Übergang kommen kann (aus [Rad03]).

abfällt.

Atomar dünner Ferromagnet

Eine grobe Abschätzung der Längenskala, auf der es nach Gleichung 2.52 zu Modulationen in der Wellenfunktion kommt, ergibt für $E_{ex}\sim 10\,\mathrm{meV}$, $v_F\sim 10^5\,\mathrm{m/s}$

$$\lambda = 2\pi/k = 2\pi\hbar v_F/2E_{ex} \approx 200\,\text{Å}. \tag{2.54}$$

Bei atomar dünnen Barrieren, wie sie beispielsweise in $RuSr_2GdCu_2O_8$ realisiert sind, ist die oben dargelegte Herleitung also nicht mehr sehr hilfreich.

Trotzdem konnten Andreev *et al.* zeigen, dass es auch in diesem Fall unter gewissen Umständen zur Ausbildung von π-Kontakten kommen kann [And91]. Das Modell wurde in den letzten Jahren durch Prokić *et al.* und Houzet *et al.* erweitert, die beispielsweise die Temperaturabhängigkeit

des kritischen Stroms genauer untersuchten [Pro99a, Hou01]. Für die Theorie wird angenommen, dass es sich bei dem System um einem Stapel aus alternierend supraleitenden und magnetischen Schichten handelt. Dabei spielt es keine Rolle, ob die magnetischen Schichten metallisch oder isolierend sind. In dem untersuchten Modell werden die Ebenen als Josephson-gekoppelt betrachtet, d. h. für den Hopping-Parameter t soll gelten: $t \ll T_c$.[20] *Hier wie im Folgenden wird die in diesem Spezialgebiet etablierte Konvention benutzt, dass sowohl der Kopplungsparameter t als auch das Austauschfeld h in relativen Einheiten bezüglich der Temperatur angegeben werden. Für Berechnungen im SI-System sind die Größen um Faktoren wie k_B, μ_B etc. zu ergänzen.* Ein größeres t hat Auswirkungen auf die unterschiedlichsten Größen wie T_c (sinkt, daher wird normalerweise alles auf den Wert $T_{c0} = T_{c,t=0}$ normiert), 0-π-Übergang (wird breiter) etc. Darüber hinaus wurde angenommen, dass sich der supraleitende Ordnungsparameter zwischen allen Kontakten im Stapel um den gleichen Wert k ändert,

$$\Psi_n = |\Psi| e^{i\varphi_n} \quad \text{mit} \quad \varphi_n = kn. \tag{2.55}$$

Das numerisch berechnete Phasendiagramm für den 0-π-Übergang ist in Abbildung 2.23 dargestellt. Als Parameter tauchen hierbei nur noch die normierte Temperatur T/T_{c0} sowie das normierte Austauschfeld h/T_{c0} auf. Die schräge Linie gibt dabei an, in welchem Bereich es zu einem Übergang zwischen 0- und π-Phase kommt. Da in den Berechnungen $t \to 0$ angenommen wurde, ist dieser Übergang sehr scharf (für die Breite gilt etwa $\Delta h \approx t^4/T_{c0}^3$). Die Änderung von $k = 0$ zu $k = \pi$ ist also annähernd sprunghaft (tatsächlich ist dieser Übergang kontinuierlich, was aber erst bei Termen $\mathcal{O}(t^8)$ eine Rolle spielt). Das Phasendiagramm in Abbildung 2.23 ist für den Fall supraleitender Elektroden mit s-Wellen-Symmetrie bestimmt worden. Im Falle von d-Wellen-Symmetrie erhält man in etwa das gleiche Verhalten, der Übergang bei $T = 0$ findet jedoch bereits bei etwa $h = 0.6T_{c0}$ statt [Pro99b].

Wie bei den Systemen mit endlicher Barrierendicke, so ist auch bei den atomar dünnen Barrieren der kritische Strom prinzipiell ein geeignetes

[20] Dies entspricht der Bedingung: $\xi_c \ll s \ll \xi_{ab}$ [Hou02].

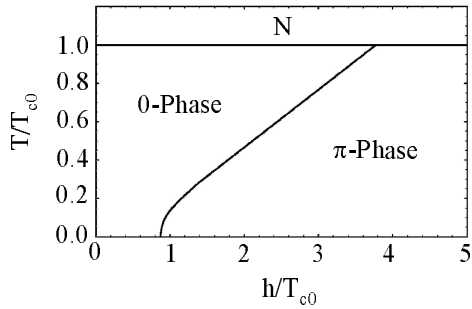

Abbildung 2.23: (h,T)-Phasendiagramm für $t \to 0$, s-Welle (aus [Hou01]). Im Falle von d-Wellen-Symmetrie sinkt $h_{c,T=0}$ auf $0.6T_{c0}$.

Mittel, um den 0-π-Übergang zu untersuchen. Abbildung 2.24 zeigt die berechnete Abhängigkeit des Absolutbetrags $|j_c|$ in Abhängigkeit von der Stärke des Austauschfelds im Ferromagneten. Auch bei den infinite-

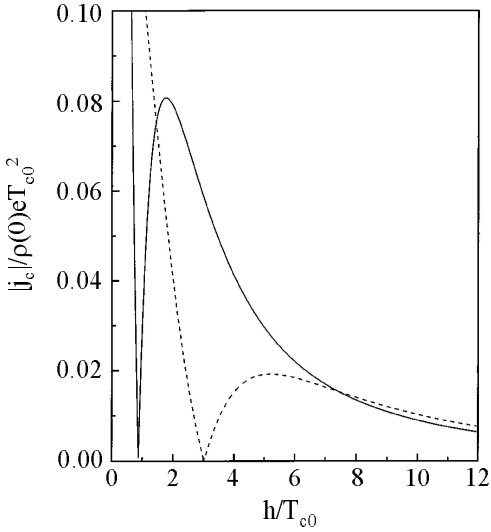

Abbildung 2.24: Berechnete Abhängigkeit des Absolutbetrags des kritischen Stroms $|j_c|$ vom Austauschfeld im Ferromagneten. Es wurde dabei s-Wellen-Symmetrie angenommen. Die durchgezogene Linie entspricht einer Temperatur $T = 0.01T_{c0}$, die gestrichelte Kurve $T = 0.8T_{c0}$ (aus [Pro99a]).

simal dünnen Barrieren kommt es zur Ausbildung einer Nullstelle beim Übergang von 0-Phase (kleines h) zur π-Phase (großes h).

(Gekippter) Antiferromagnet als Barriere Es werde nun der Fall betrachtet, dass die Barriere durch einen Antiferromagneten erzeugt wird. Dieser sei zunächst nicht gekippt. Das magnetische Feld ist hier räumlich moduliert, und zwar in der Form

$$h(\vec{r}) = he^{i\vec{q}\cdot\vec{r}}, \tag{2.56}$$

wobei $\vec{q}$ den antiferromagnetischen Ordnungsvektor beschreibt. Da die Ausdehnung des Cooper-Paars deutlich größer als diese Modulationsperiode ist, „fühlen“ die Elektronen effektiv ein Austauschfeld von $h = 0$, es kommt selbst bei sehr hohen Werten für h zu keiner Ausbildung eines π-Zustands [And91]. Anders verhält es sich, wenn die beiden antiparallel magnetisierten Untergitter des Antiferromagneten geringfügig in eine Richtung verkippt sind (=„gekippter Antiferromagnet“). Es kann nun ein effektives Austauschfeld

$$h = JS_{\mathit{eff}} \tag{2.57}$$

definiert werden [Hou01]. Dabei ist J das Austauschintegral und S_{eff} das Verhältnis aus der Magnetisierung entlang dieser Richtung zur Sättigungsmagnetisierung des Antiferromagneten. Es ist dann dieses effektive Feld, was in die obigen Überlegungen eingeht.

FFLO-Zustand

1964 veröffentlichten P. Fulde und R. A. Ferrell von der University of Maryland sowie A. I. Larkin und Y. N. Ovchinnikov vom Kurchatov Institut in Moskau zeitgleich ihre theoretischen Arbeiten zur Supraleitung in starken Austauschfeldern [Ful64, Lar65]. Die prinzipielle Physik dieser nach ihren Enteckern als „LOFF“- bzw. „FFLO“-Zustand bezeichneten Phase ist dabei dem oben diskutierten π-Zustand in Josephson-Kontakten sehr ähnlich, doch handelt es sich jetzt um eine räumliche Modulation des

supraleitenden Ordnungsparameters innerhalb des Supraleiters.[21] Das Austauschfeld erzeugt Cooper-Paare mit einem nichtverschwindenden Schwerpunktsimpuls $Q = 2E_{ex}/v_F$, so dass die Modulation von der Form

$$\Psi(\vec{Q}, \vec{r}) = \Psi(\vec{Q} = 0)e^{i\vec{Q}\cdot\vec{r}} \tag{2.58}$$

ist. In reinen Supraleitern kann eine Temperatur $T \approx 0.55T_c$ angegeben werden, unterhalb der der FFLO-Zustand stabil ist [SJ69]. Der Effekt tritt lediglich in starken Austauschfeldern auf, die in der Größenordnung von k_BT_c liegen. Dies bedeutet, dass die oben genannte Modulationen in der Größenordnung der supraleitenden Kohärenzlänge $\xi_0 \sim \hbar v_F/k_BT_c$ angesiedelt sind. In konventionellen Supraleitern ist dieser Effekt allerdings nur sehr schwer nachzuweisen, da er sehr empfindlich auf Verunreinigungen reagiert.

2.4 $RuSr_2GdCu_2O_8$

In diesem Abschnitt sollen die wichtigsten Eigenschaften des Ruthenokuprats $RuSr_2GdCu_2O_8$ aufgelistet werden. Die hier vorgestellten Ergebnisse wurden ausnahmslos anhand polykristalliner Proben erzielt. Die speziellen Eigenschaften der in dieser Arbeit untersuchten Einkristalle finden sich in Kapitel 3.1.1.

2.4.1 Kristallstruktur

Die Kristallstruktur von $RuSr_2GdCu_2O_8$ ist in Abbildung 2.25 dargestellt. Sie ist mit der Struktur von $YBa_2Cu_3O_7$ vergleichbar, in der Yttrium und Barium durch Gadolinium und Strontium, sowie die Kupferionen der CuO-Ketten durch Ruthenium-Ionen ersetzt wurden [Chm00]. Wie im Hochtemperatursupraleiter $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ kommt es zur Ausbildung von CuO_2-Doppelebenen; die Kupferionen sind dabei tetraedrisch von Sauerstoff umgeben. Die Ruthenium-Ionen befinden sich in der Mit-

[21] Diese ist im Allgemeinen 3-dimensional. Der π-Zustand in Stapeln aus Josephson-Kontakten wird daher teilweise auch als „1-dimensionaler FFLO-Zustand“ bezeichnet.

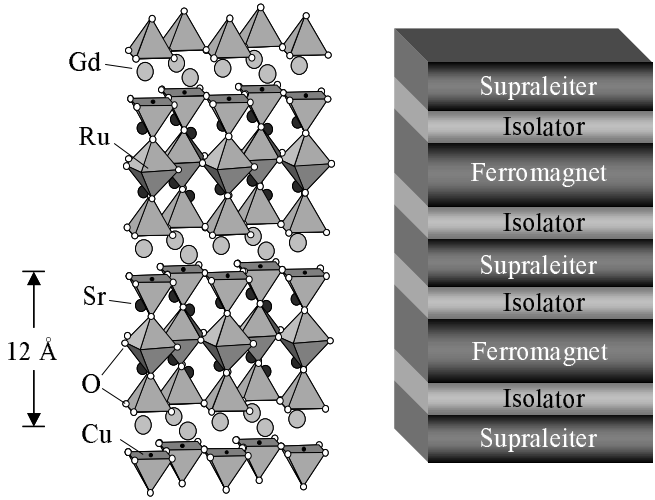

Abbildung 2.25: Kristallstruktur des Ruthenokuprats $RuSr_2GdCu_2O_8$ und dessen Analogon, ein Stapel aus abwechselnd supraleitenden und ferromagnetischen Schichten, die durch Isolatoren voneinander getrennt sind.

te von Sauerstoffoktaedern. Diese sind abwechselnd um etwa 14° im bzw. gegen den Uhrzeigersinn entlang der c-Achse verdreht (Abbildung 2.26).[22] Es ergibt sich eine Raumgruppe P4/mbm mit den Abmessun-

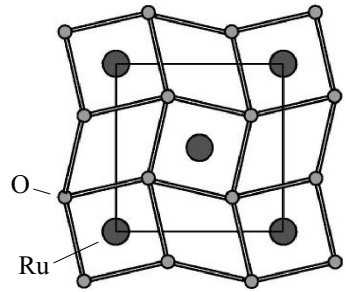

Abbildung 2.26: Aufsicht auf eine RuO_2-Schicht. Die Oktaeder sind entlang der c-Achse verdreht (aus [Nak01]).

gen für die Einheitszelle: $a/b \approx 5.43\,\text{Å}$ und $c \approx 11.56\,\text{Å}$. Unter Vernachlässigung der Drehungen gelangt man zur einfacheren Raumgruppe

[22] Wie sich herausstellen wird, hat diese Verdrehung Auswirkungen auf die magnetische Ordnung [Nak01].

P4/mmm. Hier geben die Dimensionen der Einheitszelle ($a/b \approx 3.83$ Å, c wie oben) unmittelbar den Abstand benachbarter Ru-Ionen in der Ebene und senkrecht zur Ebene wieder [Tal99, McL99, Chm00].

2.4.2 Magnetische Struktur

Die Frage der magnetischen Ordnung ist bis heute noch nicht vollständig geklärt. Es soll daher versucht werden, eine groben Überblick über die verschiedenen, teilweise widersprüchlichen Ergebnisse zu liefern und die wahrscheinlichsten Kandidaten näher zu diskutieren. Durch Messungen wie beispielsweise der Myonenspinresonanz [Ber99] ist sichergestellt, dass es sich bei dem magnetischen Verhalten um eine Eigenschaft des kompletten Systems und nicht um Fremdphasen handelt.

Ru-Gitter Das Ru-Gitter ordnet unterhalb von etwa 133 K. Einige Untersuchungen deuten dabei auf eine ferromagnetische Ordnung ($\mu_{Ru} \approx 1.05\,\mu_B$) hin [Tal99, Ber99]. So zeigt sich einerseits in Magnetisierungsmessungen eine geringe Hysterese. Auf der anderen Seite lassen sich die Ergebnisse von Myonenspinresonanz-Untersuchungen sehr gut mit einer ferromagnetischen Ordnung der Ru-Ionen senkrecht zur c-Achse (entlang der Ebenen) erklären.
Neutronenstreudaten verschiedener Gruppen zeigen hingegen, dass das Ru-Gitter überwiegend antiferromagnetisch entlang aller Kristallrichtungen (G-Typ-Antiferromagnet) mit $\mu_{Ru} \approx 1.18\,\mu_B$ ordnet [Chm00, Lyn00, Jor01, Tak01]. Die leichte Achse (d. h. die Lage der magnetischen Momente) ist dabei die c-Richtung. In diesem Szenario könnte die ferromagnetische in-plane Komponente durch eine geringe Verkippung des magnetischen Gitters („gekippter Antiferromagnet“) hervorgerufen werden (vgl. Abbildung 2.27). Die Obergrenze für dieses deutlich kleinere Moment beläuft sich auf maximal $0.1\,\mu_B$ [Lyn00]. Berechnungen von Nakamura *et al.* bestätigen, dass die oben diskutierte Drehung der MnO_6-Oktaeder eine antiferromagnetische Ordnung des Ru-Gitters hervorrufen kann [Nak01]. Das magnetische Moment eines Ru-Ions errechnet sich hierbei zu $1.16\,\mu_B$. Darüber hinaus führt in diesen Berechnungen

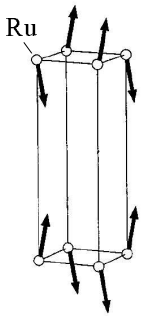

Abbildung 2.27: Magnetische Struktur des Ru-Untergitters, so wie sie aufgrund von Neutronenstreumessungen vorgeschlagen wird. Die dominierende Ordnung ist G-Typ antiferromagnetisch. Allerdings sind die lokalen magnetischen Momente geringfügig entlang der *ab*-Ebenen verkippt, was zu einer kleinen ferromagnetischen Komponente führt (aus [Jor01]).

ein geringfügig verkippter Zustand tatsächlich zu einer (sehr kleinen) Energieabsenkung [Nak02]. Für Felder entlang der *c*-Achse wäre für eine solche Spin-Anordnung ein Spin-Flop-Übergang zu erwarten. In den Neutronenstreudaten zeigt sich bei etwa 0.4 T ein Anstieg im ferromagnetischen Signal, der auf diesen Effekt zurückgeführt werden könnte [Lyn00].
Messungen mittels Kernspinresonanz [Tok01] und Elektronenspinresonanz [Fai99] deuten jedoch abermals auf eine ferromagnetische Ordnung des Ru-Gitters hin. Aufgrund der quasi 2-dimensionalen Struktur der RuO_6-Ebenen sowie der schwachen Kopplung zwischen den Ebenen wird daher auch ein Typ I-Antiferromagnet als mögliche Ordnung diskutiert. Hier ordnen ferromagnetische Ru-Ebenen (mit der leichten Achse senkrecht zur *c*-Achse) antiferromagnetisch untereinander [But01]. In diesem Fall wäre in Feldern parallel zu den Ebenen ein Spin-Flop-Übergang bei etwa 0.14 T und eine Sättigung bei etwa 2 T zu erwarten.

Gd-Gitter Die Gadolinium-Ionen besitzen ein magnetisches Moment von ungefähr $7\,\mu_B$ [Ber99]. Sie würden daher als magnetischer Untergrund viele der oben genannten Messungen sehr stark beinflussen. Aus diesem Grund wurde ein Großteil der vorgestellten Ergebnisse an Systemen erzielt, in denen Gd durch Eu bzw. Y ausgetauscht wurde, so dass dementsprechend dieses Gitter nicht so eingehend untersucht wurde. Aus Neutronenstreuungsexperimenten ist jedoch bekannt, dass es bei etwa 2.6 K antiferromagnetisch (G-Typ) mit den Momenten entlang der

c-Achse ordnet [Lyn00].

2.4.3 Supraleitende Eigenschaften

Messungen des elektrischen Transports (Abbildung 2.28), der magnetischen Suszeptibilität sowie der Wärmekapazität belegen, dass es bei einer gewissen (von den Präparationsbedingungen abhängigen) Temperatur zu einem Übergang der CuO_2-Ebenen in den supraleitenden Zustand kommt [Ber99, Tal99, Tal00]. Die Sprungtemperatur T_c hängt dabei wie

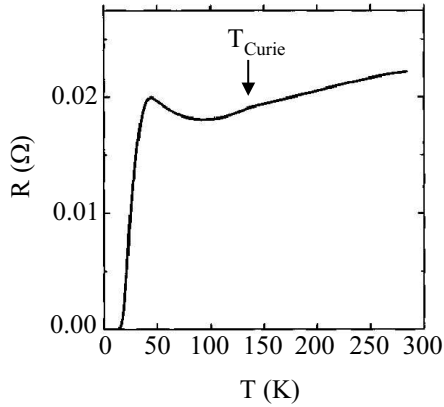

Abbildung 2.28: Temperaturabhängigkeit des Widerstands einer polykristallinen $RuSr_2GdCu_2O_8$-Probe. Bei der magnetischen Ordnungstemperatur kommt es zur Ausbildung einer leichten Schulter (aus [Ber99]).

bei allen Kupraten entscheidend von der Dotierung ab (Abbildung 2.29) [Kla03]. Der supraleitende Übergang kann durch ein externes Magnetfeld zu tiefen Temperaturen verschoben werden, ist aber auch in Feldern von 9 T noch nachzuweisen [Tak01]. Das Einsetzen der Supraleitung hat keine nennenswerten Auswirkungen auf die magnetische Ordnung der Ru-Ionen. Umgekehrt wird hingegen eine durch die geringe ferromagnetische Komponente hervorgerufene „spontane Vortex-Phase“ (SVP) knapp unterhalb T_c diskutiert. Das Erreichen der Meißnerphase kann daher, wenn überhaupt, häufig erst bei Temperaturen T_{ms} deutlich unterhalb T_c beobachtet werden. Auch ein durch das intrinsische Feld provozierter FFLO-Zustand wäre in $RuSr_2GdCu_2O_8$ denkbar [Pic99, Ber00].
Einen Überblick über verschiedene charakteristischen Größen des su-

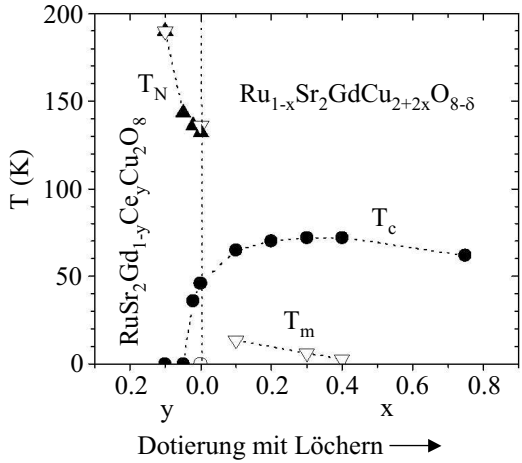

Abbildung 2.29: Abhängigkeit der charakteristischen Temperaturen (T_N, T_m: magnetische Ordnung, T_c: supraleitender Übergang) von der Lochkonzentration. Die durch offene Symbole markierten Datenpunkte wurden mittels Nullfeld-Myonenspinresonanz ermittelt, die mit geschlossenen Symbolen gekennzeichneten Messpunkte mit Hilfe von Magnetisierungs- und Transportmessungen (aus [Kla03]).

Größe	Wert	Quelle(n)
$\rho(T_c)$	1–7 mΩ cm	[Bau96], [Tal99], [McC03]
$\lambda_L(0\,\mathrm{K})$	400–500 nm bzw. 2.5–6 μm	[Ber00], [Xue01]
$\Delta(0\,\mathrm{K})$	6 meV	[Umm03]
$j_c(0\,\mathrm{K})$	70 A cm^{-2}	[Gar03]
$H_{c1}(0\,\mathrm{K})$	80–120 Oe	[Ber00]

Tabelle 2.1: Charakteristische Größen des supraleitenden Zustands *polykristalliner* $RuSr_2GdCu_2O_8$-Proben.

praleitenden Zustands, so wie sie zum momentanen Zeitpunkt für polykristalline $RuSr_2GdCu_2O_8$-Proben in der Literatur gefunden werden können, liefert Tabelle 2.1.

Intrinsischer Josephson-Effekt Die anisotrope Schichtstruktur legt nahe, dass es wie in den Hoch-T_c-Kupraten zu einem intrinsischen Josephson-Effekt in $RuSr_2GdCu_2O_8$ kommen könnte [Pic99]. Die ferromagnetische Komponente der Ru-Ionen innerhalb der Barrieren würde dabei unter Umständen eine π-Phase im supraleitenden Ordnungsparameter entlang der c-Achse provozieren. Houzet *et al.* geben für den Fall einer gekippt-antiferromagnetischen Struktur des Ru-Gitters das Austauschfeld zu etwa $0.6\,T_{c0}$ an, was im Falle einer d-Wellen-Symmetrie für einen 0-π-Übergang ausreichen würde [Hou01].
Was die Möglichkeit einer Josephson-Kopplung zwischen den CuO_2-Doppelebenen betrifft, so zeigt sich in der Tat, dass die einzelnen Körner der polykristallinen Proben typische Signaturen eines Stapels aus intrinsischen Josephson-Kontakten aufweisen [Xue01, Lor02]. Darüber hinaus konnte mittels Fern-Infrarot-Spektroskopie eine Josephson-Plasma-Resonanz bei etwa $8.5\,\mathrm{cm}^{-1}$ nachgewiesen werden [Shi02, Shi03]. Deren Temperaturabhängigkeit zeigt jedoch keinerlei Nulldurchgang, so wie es für den Fall eines 0-π-Übergangs zu erwarten wäre.

2.4.4 Elektronische Eigenschaften

Die Ru-Ionen liegen in $RuSr_2GdCu_2O_8$ als Mischung aus etwa 40% Ru^{4+} und 60% Ru^{5+} vor [Liu01, Tok01]. Dies ist mit großer Wahrscheinlichkeit auf einen Ladungsaustausch mit den CuO_2-Ebenen zurückzuführen (ein Teil der Ru^{5+}-Ionen nimmt von dort Elektronen auf, was letztlich zu einer Loch-Dotierung der CuO_2-Ebenen beiträgt) [Kum01]. Aufgrund der gemischten Valenzen ist daher ein Doppelaustausch-Verhalten denkbar [Nak02]. So zeigt sich, dass sich die Leitfähigkeit der RuO_2-Ebenen unterhalb der magnetischen Ordnungstemperatur in etwa verdreifacht [McC03].
Die Frage, weshalb es innerhalb eines Materials zur Koexistenz von Supraleitung und Magnetismus kommen kann, lässt sich anhand der elektronischen Struktur verstehen. Der Magnetismus von Ru^{5+} bzw. Ru^{4+} wird durch die t_{2g}-Orbitale hervorgerufen (Konfiguration: t_{2g}^3 bzw. t_{2g}^4). Diese sind nahezu vollständig vom e_g-Band der Cu-Ionen entkoppelt, das

für die Hoch-T_c-Supraleitung verantwortlich ist [Pic99, Nak01, Nak02]. Der Einfluss eines von den RuO_2-Ebenen ausgehenden Dipolfeldes kann aufgrund seiner geringen Stärke (selbst unter der Annahme einer ferromagnetischen Ordnung des Ru-Gitters würde die Zeeman-Aufspaltung mehr als drei Größenordnungen unterhalb 2Δ liegen) vernachlässigt werden [Pic99].

Kapitel 3

Experimente

3.1 Proben

3.1.1 Einkristalle

Die untersuchten Einkristalle wurden mittels der „Self-Flux Methode“ von C. T. Lin am Max-Planck-Institut für Festkörperforschung in Stuttgart hergestellt [Lin01]. Abbildung 3.1 zeigt eine rasterelektronenmikroskopische Aufnahme der so erhaltenen Kristalle. EDX-Messungen

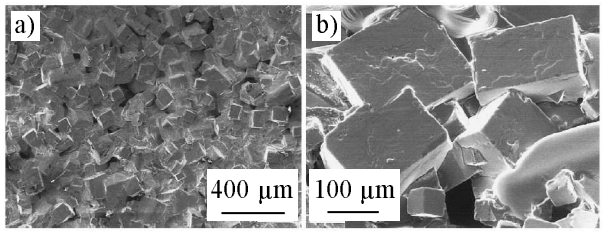

Abbildung 3.1: Rasterelektronenmikroskopische Aufnahmen der $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalle (aus [Lin01]).

bestätigten im Rahmen der Messgenauigkeit eine nominelle Zusammensetzung der Form $RuSr_2GdCu_2O_8$. Anhand ausgewählter, zu Pulver

zerriebener Einkristalle wurden Röntgenbeugungsuntersuchungen durchgeführt. Sie ergaben für die Kristalle eine tetragonale Einheitszelle vom Typ P4/mmm mit $a/b = 3.921(9)\,\text{Å}$ und $c = 11.70(1)\,\text{Å}$ (Abbildung 3.2). Magnetisierungsmessungen an größeren Bruchstücken zeigten ei-

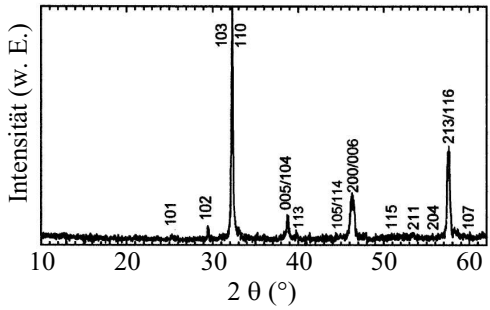

Abbildung 3.2: Typisches Röntgenbeugungsspektrum von zu Pulver zerriebenen $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen. CuK_α, $\lambda = 1.5406\,\text{Å}$ (aus [Lin01]).

ne spontane Magnetisierung unterhalb $T_{mag} \approx 135\,\text{K}$ und ein nennenswertes diamagnetisches Signal unterhalb $T_c \approx 57\,\text{K}$ (Abbildung 3.3). Als eine Art „Fingerabdruck“ des Kristallgitters kann das Phononen-

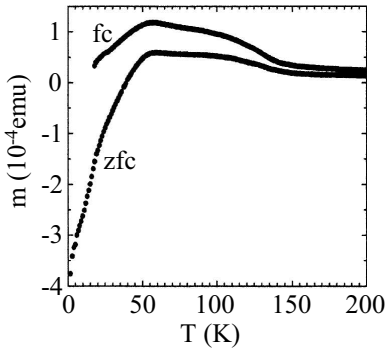

Abbildung 3.3: Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung eines $RuSr_2GdCu_2O_8$-Bruchstücks (bestehend aus mehreren Einkristallen). Das Feld betrug 4.5 Oe (aus [Lin01]).

spektrum betrachtet werden. Mittels Mikro-Raman-Messungen wurde dieses an Einkristallen sowie an polykristallinen Proben gemessen. Wie Abbildung 3.4 deutlich macht, zeigen sich die charakteristischen Pho-

nonenmoden des $RuSr_2GdCu_2O_8$-Systems bei genau den gleichen Frequenzen. Zusammenfassend lässt sich somit festhalten, dass die Einkri-

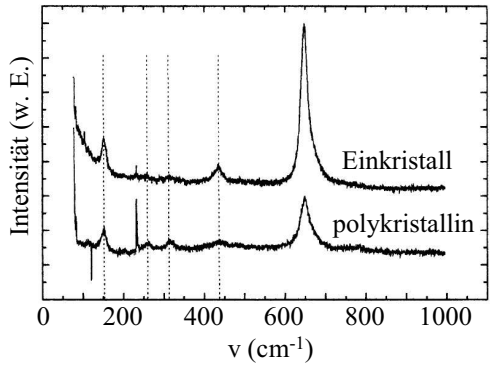

Abbildung 3.4: Mikro-Raman-Spektren von polykristallinem und einkristallinem $RuSr_2GdCu_2O_8$. Die Temperatur betrug 300 K, das verwendete (unpolarisierte) Licht hatte eine Wellenlänge von 514 nm (aus [Lin01]).

stalle in nahezu allen untersuchten Eigenschaften eine Übereinstimmung mit den in den Grundlagen (Abschnitt 2.4) vorgestellten polykristallinen $RuSr_2GdCu_2O_8$-Proben aufzeigen. Der Fremdphasen-Anteil scheint sehr gering zu sein. Die hier untersuchten Einkristalle entstammen einer Schmelze mit der Bezeichnung *LuRu09*.

3.1.2 Problemstellung

Ziel der in dieser Arbeit vorgestellten Messungen ist die Untersuchung des elektrischen Transports entlang der *c*-Achse (d.h. senkrecht zu den intrinsischen Ebenen) der $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalle. Untersuchungen an Materialien mit vergleichbarer Anisotropie (beispielsweise den Schichtmanganaten vom Typ $La_{2-2x}Sr_{1+2x}Mn_2O_7$ [Kim96, Nac00, Nac02]) haben gezeigt, dass metallische Systeme mit intrinsischer Schichtstruktur häufig eine um mehrere Größenordnungen höhere Leitfähigkeit entlang der *ab*-Richtung (parallel zu den Ebenen) als senkrecht zu den Ebenen aufweisen. Es musste daher davon ausgegangen werden, dass alle bisherigen Messungen an *polykristallinen* $RuSr_2GdCu_2O_8$-Proben lediglich den

Transport entlang der Ebenen wiedergaben. *c*-achsenorientierte Bereiche wurden hier vermutlich durch andere Bereiche „kurzgeschlossen“. Daher galt es bei der Kontaktierung der Kristalle vor allem sicherzustellen, dass der elektrische Transport ausschließlich entlang der *c*-Achse erfolgte.
Im Folgenden sollen die beiden Methoden vorgestellt werden, mit denen in der vorliegenden Arbeit versucht wurde, diesem Anspruch gerecht zu werden.

3.1.3 Mesatechnik

Dieses Verfahren ist bereits seit vielen Jahren in der Strukturierung von Hochtemperatursupraleitern wie $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ etabliert [Hei02a, Sch99, Yur00] und konnte in jüngerer Zeit auch erfolgreich auf Schichtmanganate übertragen werden [Nac00, Eit03]. Der Grundgedanke dabei ist der Folgende:
Auf der *ab*-Oberfläche eines Einkristalls werden kleine Türmchen (Höhe: wenige intrinsische Einheitszellen, laterale Abmessungen: wenige 100 nm bis einige μm), die sogenannten Mesas[1], strukturiert. Diese werden in weiteren Schritten von oben mit Leiterbahnen elektrisch kontaktiert. Abbildung 3.5 zeigt schematisch in einer Seitenansicht, wie die Struk-

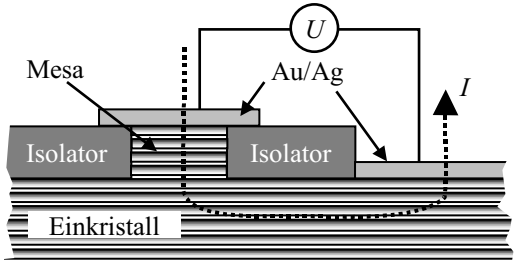

Abbildung 3.5: Schema des Messprinzips bei Mesatechnik (Seitansicht). Die Zeichnung ist nicht maßstabsgetreu. In der Realität entspricht die Höhe des Mesas wenigen intrinsischen Ebenen des Einkristalls (d. h. wenige nm), während die lateralen Abmessungen bis zu einigen μm betragen können.

[1] mesa: *span.* Tisch

turierung auf $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen geplant war. Aufgrund der geringen Größe der Einkristalle wurde lediglich ein Kontakt auf dem Mesa sowie auf dem Basiskristall angebracht. Da somit keine Vier-Punkt-Messung möglich war, wurde sowohl der Kontaktwiderstand als auch der Transport entlang der Ebenen mitgemessen. Da letzterer jedoch im supraleitenden Zustand keinen Beitrag leisten sollte, spielte er nur eine untergeordnete Rolle. Der Kontaktwiderstand hingegen stellte ein ernstzunehmendes Problem beim Vermessen der Proben dar. Das Mesa-Verfahren wurde daher letztlich in dieser Arbeit nicht weiter verfolgt. Trotzdem sollen im Folgenden die Grundzüge der Mesa-Präparation, so wie sie in dieser Arbeit vorgenommen wurde, aufgeführt werden. Dafür gibt es zwei Gründe:

1. Die Mesa-Technik kann derzeit als das einzige Verfahren betrachtet werden, mit dem es möglich ist, Proben *definierter Geometrie* aus den nur wenige μm großen $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen herzustellen.

2. Das Verfahren, wie es im Folgenden dargestellt ist, geht über die „konventionelle“ Mesa-Strukturierung hinaus, da es speziell auf die Präparation kleinster ($\leq 50\,\mu$m) Einkristalle ausgerichtet ist. In diesem Zusammenhang sei angemerkt, dass es mit Erfolg auf winzigste Kristalle des Schichtmanganats $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$ übertragen werden konnte (siehe hierzu die Diplomarbeit von H. Eitel [Eit03]).

Vorgehensweise

Einen groben Überblick über den Präparationsablauf verschafft Abbildung 3.6 . Im Folgenden werden die einzelnen Prozessschritte detaillierter beschrieben:

- Zunächst wurden die Einkristalle mit Hilfe einer Kanüle aus einem mehrere Millimeter großen Brocken der Schmelze *LuRu09* herausgebrochen. Die so erhaltenen Kristallite hatten typischerweise die Form dünner Plättchen, deren Ober- und Unterseite eine extrem

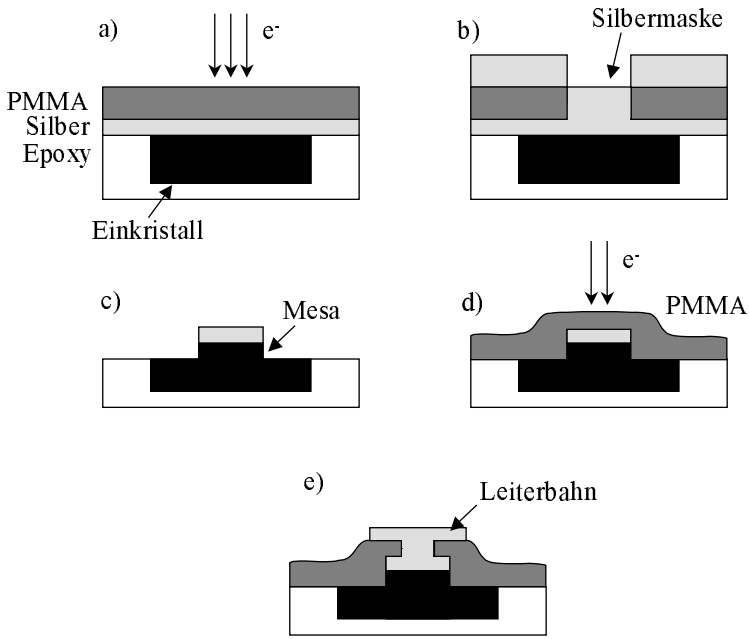

Abbildung 3.6: Strukturierung eines Mesas (Details siehe Text).
a) Mit dem Rasterelektronenmikroskop wird ein Loch in den Elektronenstrahllack strukturiert. b) Nach dem Entwickeln des Lacks wird eine 300 nm dicke Silberschicht als Ätzmaske aufgebracht, die anschließend um das Mesa herum durch Lift-Off entfernt wird. c) Durch Argon-Ionen-Ätzen entsteht unter der Silberschicht ein Mesa. d) PMMA wird als Isolator aufgebracht und auf der Oberfläche des Mesas wieder entfernt. e) Nach dem Quervernetzen des PMMAs werden abschließend Leiterbahnen strukturiert.

glatte, spiegelnde Oberfläche aufwiesen. Da bekannt ist, dass intrinsisch geschichtete Materialen bevorzugt entlang der Ebenen spalten, konnte davon ausgegangen werden, dass es sich hierbei um die *ab*-Oberfläche der Einkristalle handelte. Die lateralen Abmessungen betrugen etwa 30–100 μm, die Dicke etwa 10–20 μm.

- Mit Hilfe eines handelsüblichen Zahnstochers ließen sich die Plätt-

chen manipulieren, d.h. sowohl wenden als auch transportieren. Der Zahnstocher wurde hierzu möglichst spitz zurechtgeschnitzt. Einzelne, nur unter dem Mikroskop sichtbare Holzfasern ($\varnothing < 100\,\mu$m) am Ende der Spitze ermöglichten es schließlich, die Plättchen mittels elektrostatischer Aufladung aufzunehmen.

- Die $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristalle wurden anschließend auf einen dünn mit Vakuumfett beschichteten Objektträger gesetzt und einseitig mit 100 nm Gold bedampft. Daraufhin wurden die Kristalle 8 h bei 450°C unter Umgebungsathmosphäre getempert, um einen besseren Kontakt zwischen Gold und Kristalloberfläche zu erzielen.

- Die so präparierten Einkristalle wurden nun mit der vergoldeten Seite nach oben in Epoxidkleber (*UHU endfest 300*) gesetzt, der dünn auf einem Saphirsubstrat aufgebracht worden war. Hierbei wurde ausgenutzt, dass die extrem kleinen Plättchen leicht genug waren, um nicht vollständig in den Kleber einzusinken. Vielmehr sanken sie meist gerade so tief ein, dass der Kleber die Seiten vollständig benetzte, die Oberseite der Kristalle hingegen weitestgehend kleberfrei blieb.[2] Ein typisches Beispiel ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Um mögliche Verunreinigungen auf der Kristalloberfläche zu entfernen, wurde die Probe nun wenige Minuten mit Isopropanol in einem Ultraschallbad gereinigt. Dieser Schritt stellte darüber hinaus sicher, dass der Kristall den folgenden Prozessschritten standhalten würde, ohne dabei versehentlich entlang der Ebenen zu spalten oder aus dem Kleber zu fallen. Abschließend wurden nochmals 50 nm Silber aufgedampft, um die Probe im REM betrachten zu können.

  Bei der nun folgenden Strukturierung im Rasterelektronenmikroskop wurde der Tatsache Rechnung getragen, dass es aufgrund der

[2] Bei dickeren Kristallen bot es sich an, vor dem Einkleben das mit Epoxidharz bestrichene Substrat für etwa eine Minute bei 110°C auf die Hotplate zu legen. Der Kleber entwickelte dadurch bereits eine relativ feste Oberfläche, die schwerere Kristalle vor dem Einsinken bewahrte. Nach dem Aufsetzen des Kristalls wurde das Substrat dann abermals für 1–2 min auf die Hotplate gelegt.

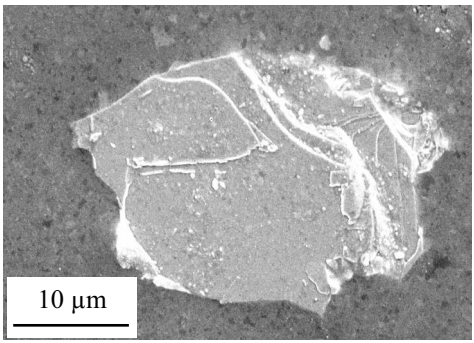

Abbildung 3.7: Ein in Epoxidharz eingeklebter $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristall. Deutlich ist der schichtartige Aufbau des Kristalls zu erkennen. Die *ab*-Oberfläche des Kristalls ist kleberfrei.

geringen Größe der $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristalle nicht möglich war, bei jeder Probe die gleiche Vorlage verwenden zu können. Eine fest vorgegebene Anordnung von Alignment-Marken, wie sie normalerweise bei lithographischen Prozessen üblich ist, kam ebenfalls nicht in Betracht. Vielmehr wurden probenspezifische Besonderheiten (Kristallecken, Lackstrukturen vorangegangener Prozessschritte usw.) zum Ausrichten des Kristalls im REM benutzt und die Mesas gezielt an Stellen platziert, an denen der Kristall möglichst glatt erschien.

- Zunächst wurden REM-Aufnahmen der Probe gemacht, wie sie in den Abbildungen 3.8 a) und b) gezeigt sind. Anhand eines mit einer Kanüle gezogenen Kratzers konnte dabei die Probe im REM ausgerichtet werden (in Abbildung 3.8 beispielsweise wurde die Probe so gedreht, dass die linke Kante der Aufnahme parallel zum Kratzer verläuft).

- Im Anschluss an die REM-Aufnahmen wurde 30 s bei 4000 U min^{-1} Elektronenstrahllack (PMMA Typ *AR-P 671.04*, Fa. Allresist) aufgeschleudert. Dies resultierte in einer Lackdicke von etwa 400 nm. Daraufhin wurde der Lack 60 min bei 160°C im Trockenofen ausgebacken.

- Nun wurde die belackte Probe im REM abermals am Kratzer aus-

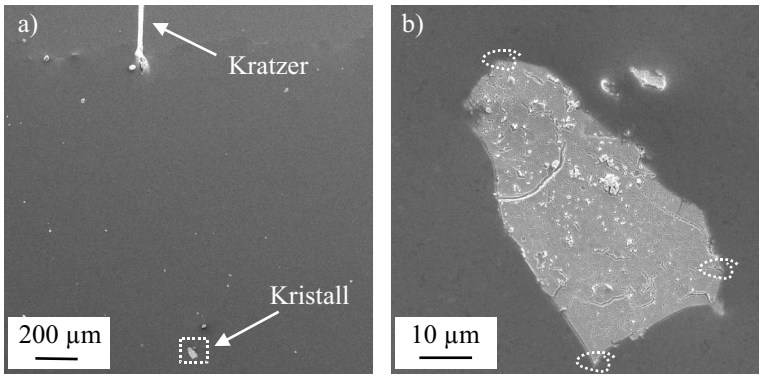

Abbildung 3.8: Typische REM-Aufnahmen, so wie sie zur späteren Orientierung bei der Lithographie nötig waren. Abbildung b) zeigt eine Aufnahme, die den in a) gestrichelt markierten Bereich wiedergibt. Näheres siehe Text.

gerichtet. Dies geschah nun jedoch mit einer deutlich höheren Vergrößerung, so dass der dabei belichtete Bereich lediglich ein Feld von wenigen 100 μm Kantenlänge abdeckte. Der weiter entfernt liegende Kristall wurde somit nicht belichtet.[3] Anhand der vorher erstellten, großräumigen Aufnahme (Abbildung 3.8 a) konnte nun ausgemessen werden, wo sich relativ zum Ende des Kratzers der Kristall befand. Es war anhand dieser Werte möglich, sich mit einem Betrachtungsfeld von nur etwa 30 μm Kantenlänge allmählich an den Kristall „heranzutasten“ (das verwendete Rasterelektronenmikroskop *JEOL 6500F* lässt auch auf größere Distanzen ein exaktes Verfahren der Probe im μm-Bereich zu). Sobald der Rand des Kristalls im REM-Bild sichtbar wurde, wurde die Vergrößerung auf bis zu 100.000fach erhöht und eine besonders markante Struktur (beispielsweise die obere Ecke in Abbildung 3.8 b) in den Mittel-

[3] Bei diesem und allen folgenden Schritten im REM ist zu beachten, dass die Ansicht stets auf „Reduced Image“ eingestellt ist. Bei der Vollbilddarstellung des *JEOL 6500F* wird ein deutlich größerer Bereich abgescannt, als auf dem Bildschirm sichtbar ist. Dadurch könnte der Kristall versehentlich bereits beim nun folgenden „Herantasten“ belichtet werden.

punkt des REM-Bildes gesetzt.

- Nun konnte die Mesastruktur mit Hilfe der am REM angeschlossenen Lithographie-Einheit *Elphy Plus* der Fa. Raith in den Elektronenstrahllack geschrieben werden (Dosis: $120\,\mu\mathrm{C\,cm^{-2}}$). Dabei wurden die Mesas und das Basispad belichtet (Abb. 3.6 a). Da es sich bei dem verwendeten PMMA um einen Positiv-Lack handelt, wird dies später an diesen Stellen zu entsprechenden Löchern im Lack führen.

  Der Alignment-Vorgang, d. h. das exakte Positionieren der Lithographie-Maske, verlief wie folgt: Als Nullpunkt diente die momentane Position des Elektronenstrahls (hier: die obere Ecke des Kristalls). Als zusätzliche Alignment-Marken wurden meist weitere Ecken des Kristalls (siehe untere Kringel in Abbildung 3.8 b) herangezogen. Deren Positionen relativ zum Nullpunkt konnten mit Hilfe der vorher erstellten Nahaufnahme auf besser als $0.5\,\mu$m bestimmt und in das Lithographie-Programm übertragen werden. Die Lage des Mesas (meist als Kreis von 5–$10\,\mu$m Durchmesser realisiert) wurde bei jedem Kristall aufs neue festgelegt, so dass es schließlich mit einer Genauigkeit von etwa einem μm auf einer ebenen Fläche plaziert werden konnte. Der Basiskontakt wurde als möglichst großes Rechteck realisiert.

- Anschließend wurde der Lack entwickelt (90 s, Entwickler: *AR 600–56*, Fa. Allresist). Anders als bei der konventionellen Mesa-Strukturierung [Hei02a] diente der Lack im vorliegenden Verfahren nicht als Ätzmaske, sondern wies nun Löcher an den Stellen auf, an denen die Mesas plaziert werden sollten. Das herkömmliche Verfahren (mit einem entsprechenden Negativ-Lack) konnte auf den $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristallen nicht angewendet werden, da sich die Lackmaske nach dem Ätzen meist nicht vollständig lösen ließ (vgl. Abbildung 3.9). Dies würde unweigerlich zu einem schlechteren elektrischen Kontakt führen.

- Als Ätzmaske wurde stattdessen eine 300 nm dicke Silberschicht

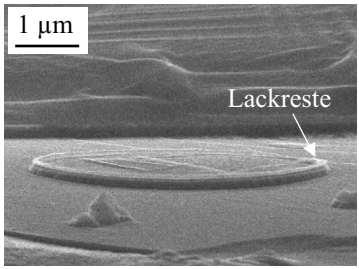

Abbildung 3.9: Ein 5 μm Mesa, wie es im konventionellen Verfahren, d. h. mit Hilfe einer Negativ-Lackmaske, aus einem $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristall geätzt wurde. Es ist eine Art „Zaun“ aus Lackresten auf der Oberseite erkennbar.

aufgedampft (siehe Abb. 3.6 b). Diese wurde anschließend im Lift-Off Verfahren an jenen Stellen entfernt, die nicht belichtet worden waren (speziell rund um die Mesas). Die Probe wurde dazu kurz in ein Acetonbad gegeben. Dort löste sich der Elektronenstrahllack; die darüber liegende Silberschicht wurde vom Kristall gespült.

- Durch Argon-Ionen-Ätzen wurden die Mesas aus dem Kristall herausgeätzt (Ätzrate bei 400 V/20 mA: ca. 0.9 nm/s). Zwar wurde die auf ihnen befindliche Silberschicht ebenfalls rasch abgeätzt (Ätzrate: ca. 2 nm/s). Doch reichte die 300 nm dicke Schicht durchaus, um bis zu 100 nm hohe Mesas auf den $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristallen zu strukturieren (vgl. Abb. 3.6 c). Abbildung 3.10 a) zeigt eine REM-Aufnahme der geätzten Mesas.

- Analog zu den bisher genannten Schritten wurde im Anschluss PMMA als Isolator aufgebracht (Abb. 3.6 d). Dabei wurde eine Eigenschaft des Elektronenstrahllacks ausgenutzt, die als „Quervernetzung“ bezeichnet wird. Bei einer Belichtungsdosis von mehr als 1 mC cm^{-2} wird der Lack teflonartig, er gewinnt sowohl an mechanischer als auch chemischer Stabilitiät und ist hochgradig isolierend. Der Lack wurde daher nach dem Schreiben und Entwickeln der Löcher auf den Mesas nochmals für mehrere Minuten belichtet, so dass der gewünschte Effekt auftrat. Abbildung 3.10 b) zeigt ein typisches Beispiel.

- In einem letzten Schritt wurden (beispielsweise durch optische Li-

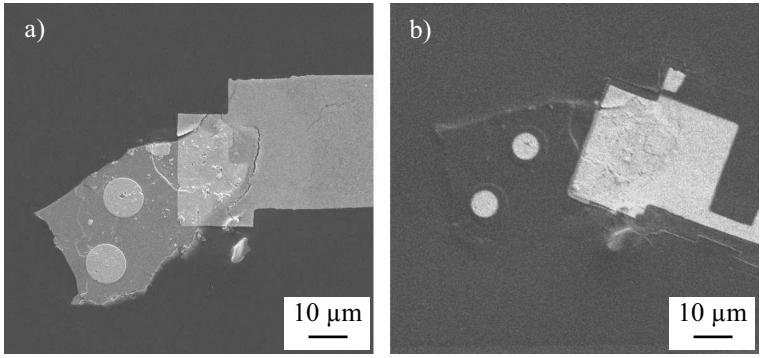

Abbildung 3.10: $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristall aus Abb. 3.8 zu verschiedenen Zeitpunkten: a) Unmittelbar nach dem Ätzen. Die Mesas sowie das Basispad sind mit Silber bedeckt. Der von rechts auf den Kristall ragende Silberstreifen wurde beim „Herantasten“ (siehe Text) belichtet und dient nun zur Erdung des Kristalls bei den REM-Aufnahmen. b) Nach dem Aufbringen von PMMA als Isolator. Nur die Oberseite der Mesas sowie das rechteckige Basispad sind der elektrischen Kontaktierung zugänglich.

thographie) Leiterbahnen zur elektrischen Kontaktierung des Kristalls strukturiert (siehe Abb. 3.6 e).

Die REM-Aufnahmen verdeutlichen, dass es prinzipiell möglich ist, auf kleinsten $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen Mesas zur Vermessung des c-Achsentransports zu strukturieren. Die an den Mesas durchgeführten Transportmessungen zeigten allerdings, dass der Präparationsprozess zu einer Degradation des Kristalls bzw. der Kristalloberfläche führte. Auf *unstrukturierten* Kristallen erbrachte das anfängliche Tempern der Goldschicht eine deutliche Reduzierung des Kontaktwiderstands. Nach Fertigstellung der Mesas hingegen zeigte der Kontaktwiderstand ein ausgeprägt isolierendes/halbleitendes Verhalten. Bei Temperaturen unterhalb 100 K betrug er bereits typischerweise über 10 MΩ. Es wurde daher nach einem Verfahren gesucht, die Kristalle ohne Mesa-Strukturierung entlang ihrer c-Achse zu vermessen.

3.1.4 Stifttechnik

Diese Technik kam bereits bei den ersten Messungen des intrinsischen Josephson-Effekts an $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen [Kle92a, Kle92b] zum Einsatz. Das Prinzip ist in Abbildung 3.11 a) dargestellt: ein wenige 10 μm großes Kristallplättchen der zu untersuchenden Verbindung wird so zwischen zwei Kontaktstifte geklemmt, dass die intrinsischen Kristallebenen parallel zur Oberfläche der Stifte ausgerichtet sind. Die Abbildungen 3.11 b) und c) zeigen die Umsetzung dieses Idee auf die vorliegenden $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristalle. Auf den Stifthalter wird bei den Erläuterungen zum Messaufbau (Abschnitt 3.2.1, Seite 73) näher eingegangen.

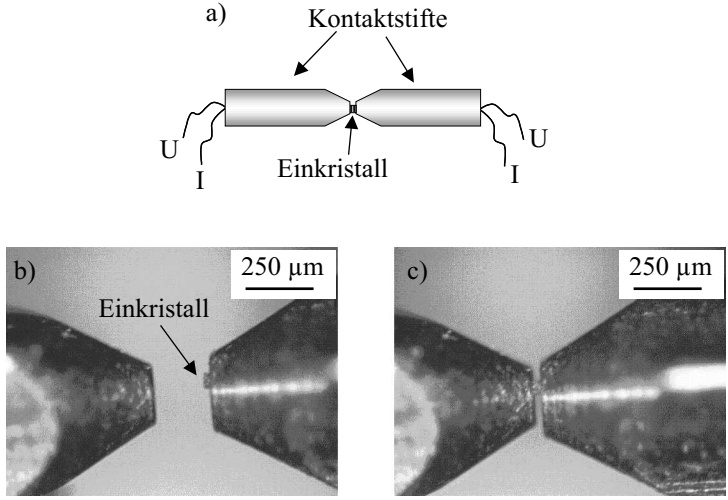

Abbildung 3.11: a) Prinzip einer Transportmessung im Stifthalter. Der Kristall ist zwischen den beiden Stiften eingeklemmt. Die intrinsischen Ebenen liegen parallel zur Oberfläche der Kontaktstifte. b) Ein $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristall zwischen den geöffneten und c) geschlossenen Kontaktstiften.

Vorgehensweise

Die Vorbereitung der Einkristalle (Separation, Aufbringen von Gold, Tempern) erfolgte prinzipiell wie bei der Mesa-Strukturierung (Seite 63) beschrieben. Diesmal war es jedoch wichtig, dass das Kristallplättchen von beiden Seiten kontaktiert werden konnte. Daher wurden nun zusätzlich nach dem ersten Temperschritt die Kristalle gewendet, von der anderen Seite mit Gold bedampft und abermals getempert. Darüber hinaus wurde beim Aufdampfen des Goldes darauf geachtet, dass die Kristalle bis auf die Oberseite vollständig von Fett umgeben waren. So konnte ein Bedampfen der Kristallseiten und ein damit einhergehender metallischer Kurzschluss entlang der c-Achse weitestgehend vermieden werden.

Vor- und Nachteile

Die Vorteile der Messungen im Stifthalter liegen auf der Hand: zum einen konnten relativ schnell neue Kristalle präpariert werden, da auf die aufwendige Elektronenstrahl-Lithographie verzichtet wurde. Darüber hinaus wurde eine Degradation der Oberfläche durch weitere Prozessschritte vermieden, was sich positiv auf den Kontaktwiderstand auswirken sollte. Als Nachteil ist jedoch zu nennen, dass die so erhaltenen Proben keine exakt definierte Geometrie besaßen. Kleinere Stufen auf der Oberfläche der Kristalle konnten eine deutlich geringere Querschnittsfläche aufweisen, was bei der Bestimmung der kritischen Stromdichten, der spezifischen Widerstände etc. nur eine relativ grobe Berechnung zuließ. Auch ein metallischer Kurzschluss entlang der Kristallseiten konnte diese Werte unter Umständen verfälschen.
Trotz dieser Einschränkungen wurden alle in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse durch Messungen mittels Stifttechnik erzielt.

3.1.5 Probengeometrie

Die Proben wurden mit Hilfe eines Auflichtmikroskops vermessen. Die Abmessungen in Tabelle 3.1 sind ca-Angaben (siehe hierzu auch die Fehlerdiskussion auf Seite 80).

Bezeichnung	Länge (μm)	Breite (μm)	Dicke (μm)
st02	75	75	20
st03	120	120	34
st07	120	120	34
st09	60	30	15
st10	120	120	34
st11	100	90	15
st16	83	56	38
st21	60	53	23
st22	53	30	30
st23	53	30	30
st24	45	38	23

Tabelle 3.1: Abmessungen der untersuchten Einkristalle. Weitere Größen (Widerstand, kritischer Strom etc.) sind in den jeweiligen Tabellen in Kapitel 4 aufgelistet.

3.2 Messaufbau

Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen an den $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen handelt es sich ausnahmslos um Messungen des elektrischen Transports. Dieser wurde für verschiedene Temperaturen sowie Magnetfelder untersucht. Die elektrische Kontaktierung ist in Abbildung 3.12 skizziert. In diesem Abschnitt werden die hierfür notwendigen Komponenten des Messaufbaus vorgestellt.

3.2.1 Probenhalter & Probenstab

Um die Kristalle mittels der Stifttechnik-Methode (vgl. Abschnitt 3.1.4) zu vermessen, wurde der in Abbildung 3.13 dargestellte Probenhalter verwendet. Das Kernstück bildete ein Plexiglaskörper, in den eine mehrere Millimeter tiefe und breite Nut eingefräßt wurde. In diese ragten von beiden Seiten vergoldete Kontaktstifte, die in der Mitte des Plexiglaskörpers exakt aufeinander trafen. Einer dieser Stifte war frei beweglich. An seinem äußeren Ende befand sich eine Bronzefeder, die ihn mit

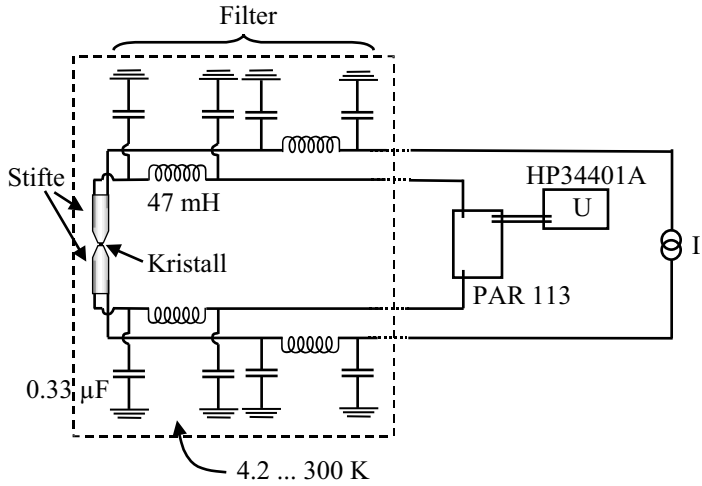

Abbildung 3.12: Schema der elektrischen Kontaktierung der $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalle.

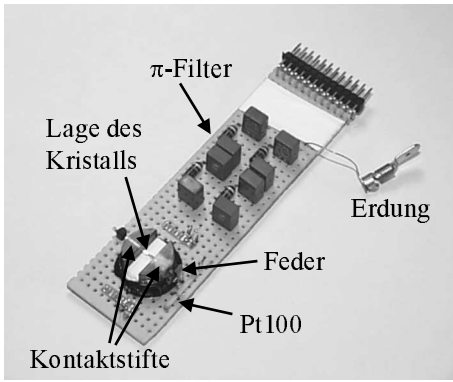

Abbildung 3.13: Aufbau des Probenhalters. Eine Detailaufnahme der Stiftspitzen zeigen die Abbildungen 3.11 b) und c).

geringer Kraft gegen den anderen Stift drückte. Somit war auch während des Abkühlens und der damit verbundenen Längenabnahme der Stifte ein elektrischer Kontakt des dazwischen eingeklemmten Kristalls sichergestellt. Der Anpressdruck konnte über den zweiten, schwergängigen Kontaktstift eingestellt werden.

An den Stiften wurden jeweils zwei Kabel angebracht, so dass bis knapp vor die Probe im 4-Punkt-Verfahren gemessen werden konnte, die Zuleitungswiderstände also nicht mitvermessen wurden. Jede Zuleitung durchlief kurz vor den Stiften einen π-Filter (siehe Abb. 3.13), der, je nach Widerstand der Probe, Frequenzen oberhalb von etwa 10 kHz abschnitt.[4] Auf gleicher vertikaler Höhe war ein Pt100-Temperatursensor angebracht, der mit einem *LakeShore 340*-Temperaturregler ausgelesen werden konnte. Der Pt100 wurde vorher zwischen 4.2 K und 20 K kalibriert, um ihn auch in diesem Temperaturbereich einsetzen zu können (vgl. Abbildung 3.14). Auf die Temperaturregelung wird im Zusammenhang mit dem

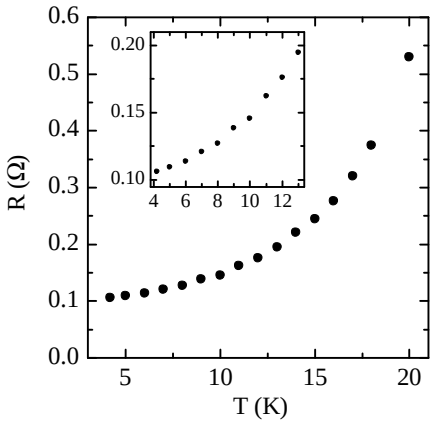

Abbildung 3.14: Temperaturabhängigkeit des verwendeten Pt100-Temperatursensors. Der Inset zeigt eine Vergrößerung des Bereichs tiefer Temperaturen.

Adiabaten im nächsten Abschnitt näher eingegangen.
Zum zügigen Einbau konnte der Probenhalter mittels einer Steckerleiste unten an den Probenstab angesteckt werden. Alle Zuführungen im Inneren des Probenstabs waren paarweise verdrillt, um den Einfluss externer Signale zu minimieren.

3.2.2 Adiabat

Bei den magnetfeldabhängigen Messungen musste sich die Probe zwischen den Magnetfeldspulen, d. h. unterhalb der Oberfläche des flüssigen

[4] Zur Abschätzung wurde ein Gesamtwiderstand von 50 Ω angenommen

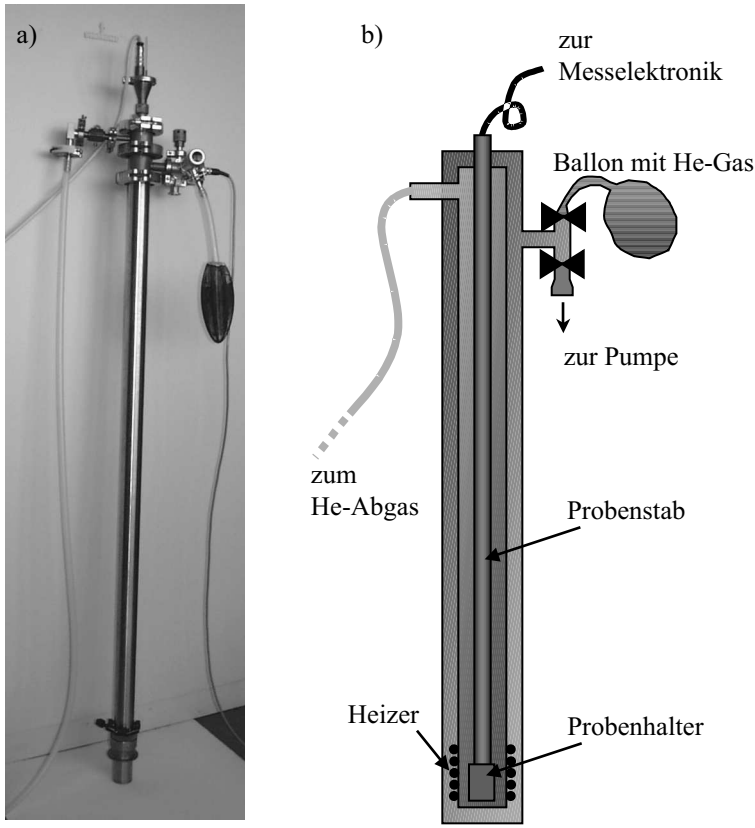

Abbildung 3.15: a) Der Adiabat mit eingeschobenem Probenstab. b) Schematischer Querschnitt. Mit Hilfe des Helium-Ballons kann das Isoliervakuum geflutet, mit einer externen Pumpe evakuiert werden.

Heliums, befinden. Um trotzdem alle Temperaturen zwischen 5 K und Raumtemperatur einstellen zu können, befand sich der Probenstab samt Probenhalter in einen Adiabaten, der in die Bohrung des Magneten eingeführt werden konnte. Der Aufbau des Adiabaten ist in Abbildung 3.15 dargestellt. Der Probenraum (= innerer Bereich) war durch eine Verbindung mit der Helium-Abgasleitung stets mit gasförmigen Helium geflutet. Nur so konnte eine ausreichende thermische Ankopplung des Pt100-

Temperatursensors an den Einkristall sichergestellt werden (da sich die Kontaktstifte in einem Plexiglashalter befanden, konnte über diesen kein signifikanter Wärmeaustausch erfolgen). Die Temperatur wurde auf zwei Wegen reguliert: Je nach He-Restdruck im Isoliervakuum (= äußerer Bereich) des Adiabaten konnte eine mehr oder weniger starke Ankopplung an das Heliumbad erzielt werden. Die genauere Einstellung der Temperatur erfolgte über eine Heizwendel, die an der Außenseite des Probenraums angebracht war (vgl. Abb. 3.15 b) und über den *LakeShore* Temperaturregler betrieben wurde. Da die Ankopplung des Heizers über das Austauschgas im Probenraum erfolgte, reagierte das System relativ träge mit Zeitkonstanten im Minutenbereich (vgl. Abbildung 3.16). Nach etwa 40 Minuten lagen die Schwankungen um den Sollwert aber

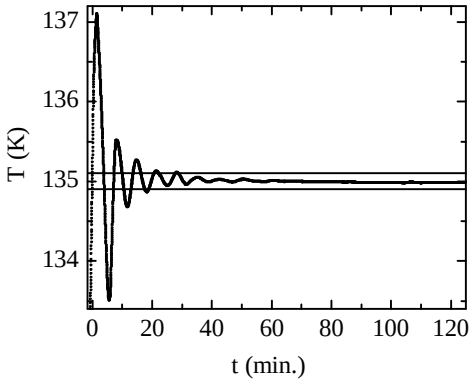

Abbildung 3.16: Zeitlicher Verlauf der Temperatur am Probenhalter, nachdem der Sollwert von 5 K auf 135 K angehoben wurde. Der Bereich zwischen den beiden horizontalen Linien gibt ein Intervall von 135 ± 0.1 K an.

bei weniger als 0.02 K.

3.2.3 Magnetkryostat

Bei dem verwendeten System handelte es sich um einen Split-Coil-Magneten der Fa. Janis mit einer Spulenkonstanten von 902 Gauss/A. Die maximale Feldstärke betrug 7 T. Gespeist wurde der Magnet durch eine Stromquelle der Fa. Cryogenic, Modell *SMS120*.
Der Feldvektor des Magneten war horizontal gerichtet. Dies ermöglichte

ein bequemes Ausrichten der $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristallebenen relativ zum Magnetfeld. Das vertikal in die Bohrung des Magneten eingeschobene Adiabatensystem musste hierzu lediglich um seine Längsachse gedreht werden. Mittels eines elektronischen Drehgebers konnte der entsprechende Winkel über den Messrechner ausgelesen werden.

3.2.4 Messelektronik

Stromquellen: Bei allen Messungen kamen zur Reduzierung externer Störungen batteriebetriebene Stromquellen zum Einsatz. Es standen zwei verschiedene Modelle zur Verfügung. Beide konnten extern angesteuert werden und verfügten über einen internen Rampengenerator. Der erste Typ (entwickelt am Physikalischen Institut der Universität Erlangen-Nürnberg) lieferte Ströme in Bereichen von $0.1\,\mu$A bis 10 mA (Monitorausgang: Maximum des eingestellten Strombereichs = 1 V). Beim zweiten Modell („Urquell“, gebaut an der Universität Tübingen) konnten Strombereiche von $10\,\mu$A bis 1 A eingestellt werden (Monitorausgang: Maximum des eingestellten Strombereichs = 10 V).

Vorverstärker: Das Spannungssignal wurde durch batteriebetriebene Vorverstärker vom Typ 113 der Fa. EG&G/PAR verstärkt. Diese entkoppelten zudem die Probe von den Digitalvoltmetern, was abermals zu einer Reduzierung des Rauschens führte, aber auch Schutz vor netzinternen Spannungsstößen u.ä. bot.

Digitalvoltmeter: Zum Aufzeichnen der Meßgrößen wurden Digitalvoltmeter vom Typ *HP34401A* der Fa. Hewlett-Packard verwendet. Diese konnten über eine IEEE-Verbindung mittels eines *LabView*-Programms am PC ausgelesen werden.

3.2.5 Fehler

Jede Messung bzw. deren Auswertung ist stets zu einem gewissen Grade fehlerbehaftet. Die Fehler können einerseits apparativen Ursprungs sein

(beispielsweise durch ungenaue Aufnahme von Größen wie Strom, Spannung etc.). Sie können aber auch durch mangelnde Information über die Probe (Dimensionen, Zusammensetzung u.ä.) hervorgerufen werden. In diesem Abschnitt sollen daher mögliche Fehlerquellen diskutiert werden.

Temperatur: Der Pt100-Temperatursensor und der Einkristall standen nur über das Austauschgas im Probenraum im thermischen Kontakt. Um Einflüsse des Temperaturgradienten entlang der Stabachse zu minimieren, war der Pt100 deshalb auf gleicher vertikaler Höhe wie der Plexiglashalter angebracht.

Das System reagierte träge auf Temperaturveränderungen (vgl. Abb. 3.16). Daher wurde die Temperatur bei Aufwärm- bzw. Abkühlvorgängen mit Geschwindigkeiten von weniger als 1–2 K/min geregelt. Messungen bei konstanter Temperatur wurden erst durchgeführt, wenn sich ein stabiler Wert (besser als ± 0.1 K) eingestellt hatte.

Im Bereich oberhalb von 12 K konnte der (vorher speziell geeichte) Pt100 mit einer Genauigkeit von besser als 0.1 K ausgelesen werden. Bei tieferen Temperaturen wuchs die Ungenauigkeit hingegen auf Werte von bis zu 1 K.

Bei Messungen mit höheren Strömen bzw. Spannungen (beispielsweise auf äußeren Ästen der hysteretischen Strom-Spannungs-Kennlinien) führte die eingebrachte Leistung zu einer geringen Erwärmung des Kristalls. Die quantitativen Ergebnisse wurden daher anhand der inneren Äste ermittelt (siehe Abschnitt 4.2.2).

Der Widerstand des verwendeten Pt100 wurden durch hohe Magnetfelder geringfügig verfälscht (positiver Magnetowiderstand des Sensors). Die Messungen wurden entsprechend korrigiert.

Magnetfeld: Die Probe konnte mit einer Genauigkeit von ± 0.5 cm im Zentrum des Magneten plaziert werden. Laut Hersteller besaß das Magnetfeld im zentralen Bereich von etwa 1 cm Durchmesser eine Homogenität von ± 0.5 %. Der Fehler am Ort der Probe kann somit auf weniger als 1 % geschätzt werden.

Die Feldorientierung bezüglich der intrinsischen Ebenen der Einkristalle konnte mit Hilfe des Drehgebers und unter Ausnutzung des sogenannten „Lock-In Übergangs“ der Probe (vgl. Abschnitt 4.2.4) auf besser als 0.01° ausgelesen werden.

Strom & Spannung: Die Ungenauigkeit der Digitalvoltmeter belief sich auf weniger als 0.1 % und kann somit vernachlässigt werden. Der Fehler in der Strommessung wurde durch die Ungenauigkeit des internen Referenzwiderstands verursacht und kann mit etwa 1 % angegeben werden.

Der kritische Strom ist sowohl thermischen Fluktuationen als auch externen Störungen unterworfen und variierte zwischen aufeinander folgenden Sweeps um wenige Prozent. Bei der Auswertung wurde stets der höchste erreichbare Wert als kritischer Strom definiert.

Die Genauigkeit der gemessenen Spannungswerte wurde vor allem durch das Rauschen reduziert. Dieses lag typischerweise bei $100\,\mu$V.

Stöchiometrie: Bei den probenspezifischen Fehlerquellen ist zum einen die Zusammensetzung der $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalle zu nennen. Laut Herstellerangaben [Lin01] konnte mittels EDX-Messungen der Anteil der einzelnen Elemente auf besser als 10 % angegeben werden. Es ist jedoch bekannt, dass einige Eigenschaften der Ruthenokuprate (beispielsweise die Höhe der kritischen Temperatur) eine ausgeprägte Abhängigkeit von ihrer Zusammensetzung aufweisen [Kla03]. Auf den Einfluss der Stöchiometrie wird in Abschnitt 4.2.1 detaillierter eingegangen.

Probengeometrie: Bei der Berechnung von Größen wie der kritische Stromdichte oder dem spezifischem Widerstand spielt die Ungenauigkeit in den Probendimensionen die größte Rolle. Da die Kristalle unstrukturiert vermessen wurden, stellen die geometrischen Abmessungen in dieser Arbeit lediglich Abschätzungen dar. Auch kann nicht ausgeschlossen werden, dass beim Bedampfen der Ober- und Unterseite mit Gold ein nicht unerheblicher Teil des Kristalls

seitlich kurzgeschlossen wurde. Der Fehler in den Abmessungen liegt somit bei bis zu 50 %, was für die Ermittlung der eingangs erwähnten physikalischen Größen lediglich Aussagen innerhalb einer Größenordnung zulässt.

Kapitel 4

Ergebnisse & Diskussion

In diesem Kapitel werden die an den $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen erhaltenen Ergebnisse vorgestellt. Wie sich herausstellen wird, zeigen sich hier teilweise deutliche Unterschiede zu den Messungen, die an polykristallinen Proben durchgeführt wurden. Speziell kann erstmals der direkte Nachweis erbracht werden, dass benachbarte CuO_2-Doppelebenen Josephson-gekoppelt sind. Zunächst wird auf die Magnetisierungsmessungen eingegangen (→ 4.1). Abschnitt 4.2 behandelt anschließend die elektrischen Eigenschaften des c-Achsen-Transports. In Abschnitt 4.3 werden die Ergebnisse im Hinblick auf die Möglichkeit eines 0-π-Übergangs der intrinsischen Josephson-Kontakte diskutiert.

4.1 Magnetisierungsmessungen

Alle in bisherigen Arbeiten durchgeführten Magnetisierungsmessungen an $RuSr_2GdCu_2O_8$ waren mit dem Problem behaftet, dass hierfür nur polykristalline Proben zur Verfügung standen [Ber00, But01, Awa03]. Auch für Messungen, die an Kristallen aus der in dieser Arbeit untersuchten Schmelze *LuRu09* durchgeführt wurden, kamen bisher größere Bruchstücke zum Einsatz, die aus einer Vielzahl verkippter Einkristalle zusammengesetzt waren [Lin01]. In den genannten Fällen wurde da-

her vermutlich stets über ein Ensemble aus stochastisch verkippten Kristalliten gemittelt, was direkte Aussagen über mögliche orientierungsabhängige Übergänge (beispielsweise dem in Neutronenstreuexperimenten vorhergesagten Spin-Flop-Verhalten in Feldern senkrecht zu den Ebenen [Lyn00]) unmöglich macht.

Im Folgenden werden daher Magnetisierungsmessungen an einem nur $200 \times 200 \times 100\,\mu\mathrm{m}^3$ großen Kristall vorgestellt. Dieser besaß auf den beiden großen gegenüberliegenden Seiten eine extrem glatte, spiegelnde Oberfläche, so dass davon ausgegangen wurde, dass es sich hierbei um die *ab*-Flächen des Einkristalls handelte. Die im Folgenden verwendeten Bezeichnungen „$H \| ab$“ bzw. „$H \| c$“ beziehen sich auf diese optisch ermittelte Kristallorientierung. Die Messungen wurden in Zusammenarbeit mit dem Physikalischen Institut III der Universität Erlangen durchgeführt.

Abbildung 4.1 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung in unterschiedlich hohen externen Magnetfeldern. Die Daten wurden beim Abkühlen im externen Feld („field cooled“, *fc*) aufgezeichnet. Alle Kurven zeigen ein ähnliches Verhalten, das über weite Teile mit den bekannten Daten übereinstimmt: Ab etwa 140 K kommt es zu einem nennenswerten Anstieg der Magnetisierung, was auf die einsetzende magnetische Ordnung des Ru-Gitters zurückgeführt werden kann. Nahe 100 K zeigt sich hingegen ein ausgeprägter Abfall: Dies ist ein Indiz dafür, dass sich hier die Ru-Ionen antiferromagnetisch zueinander anordnen, so wie es mittels Neutronenstreuung festgestellt wurde. Eine weitere Abnahme ist ab etwa 60 K zu erkennen. Hier kommt es zum supraleitenden Übergang der CuO_2-Ebenen. Wie später in den Transportmessungen gezeigt werden wird, kann bei der gleichen Temperatur das Einsetzen des resistiven Übergangs in den supraleitenden Zustand beobachtet werden. Nach einem Minimum in der Nähe von 20 K zeigt die Magnetisierung mit weiter sinkender Temperatur einen ausgeprägten Anstieg. Dies ist auf die einsetzende Ordnung der Gd-Ionen ($7\mu_B$/Ion!) zurückzuführen, die bei etwa 2.5 K antiferromagnetisch ordnen [Ber99, Lyn00].

Bezüglich der charakteristischen Temperaturen sind die hier vorgestellten Ergebnisse denen von polykristallinen Proben sehr ähnlich und deu-

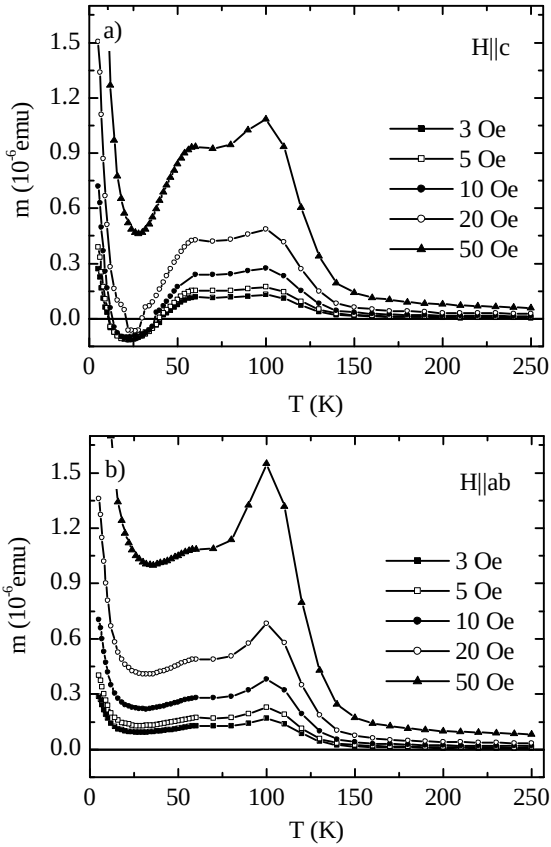

Abbildung 4.1: Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung eines $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalls in unterschiedlichen externen Feldern (field-cooled). a) $H \| c$, b) $H \| ab$.

ten darauf hin, dass der untersuchte Kristall die nominelle Zusammensetzung $RuSr_2GdCu_2O_8$ besitzt. Allerdings zeigen sich deutliche Unterschiede zwischen den Messungen parallel und senkrecht zu den Ebenen, die im Folgenden näher beleuchtet werden sollen:

Diamagnetisches Signal des Supraleiters Wie die Abbildung 4.1 zeigt, ist das diamagnetische Signal der supraleitenden CuO_2-Ebenen

unterhalb 60 K bei einer Feldorientierung senkrecht zu den Ebenen deutlich ausgeprägter als im parallelen Fall. So konnte selbst in Feldern über 20 Oe trotz *fc*-Messung eine negative Gesamtmagnetisierung des Kristalls gemessen werden. Zum Vergleich: Bei polykristallinen Proben war bereits ein Feld von weniger als 5 Oe ausreichend, um eine durchwegs positive Magnetisierung zu erzielen [Ber99, Lin01]. Die $M(H)$-Kurve in Abbildung 4.2 zeigt den Einfluss der Feldorientierung auf das diamagnetische Signal bei 20 K. Während bei einer Feldorientierung $H \| ab$ kein

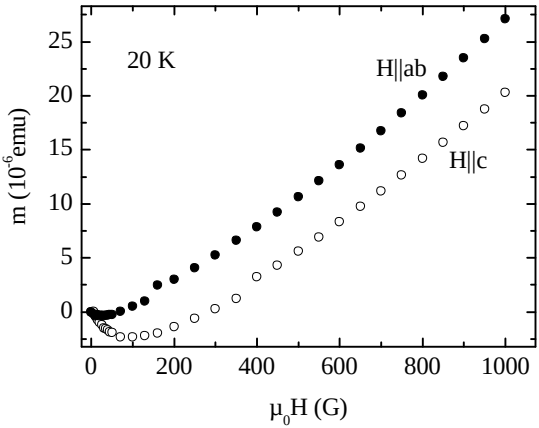

Abbildung 4.2: Feldabhängigkeit der Magnetisierung bei 20 K. Für Felder senkrecht zu den glatten Spaltflächen ($H \| c$) ist ein deutliches diamagnetisches Signal messbar.

nennenswertes diamagnetisches Signal beobachtet werden konnte, zeigte die Probe im Fall $H \| c$ zunächst eine negative Magnetisierung, die erst bei einem Feld von 300 Oe positive Werte annahm.

Dieses Verhalten ist konsistent mit der Vorstellung, dass bei einer Orientierung „$H \| ab$“ das Feld in der Tat parallel zu den 2-dimensionalen supraleitenden Ebenen angelegt ist. In diesem Fall kann das Feld schon bei kleinsten Werten zwischen den CuO_2-Ebenen in Form von Flusswirbeln eindringen. $H_{c1}^{\|}$ ist hier sehr gering. Wird das Feld hingegen senkrecht zur Schichtstruktur angelegt, so wird es zunächst aus den Ebenen ge-

drängt, es ergibt sich ein messbarer diamagnetischer Beitrag.
Die bisherigen Ergebnisse lassen daher die Schlussfolgerungen zu, dass

1. die untersuchte Probe zum überwiegenden Teil einkristallin war. Nur so lassen sich die ausgeprägten Unterschiede zwischen den Feldrichtungen erklären. Entmagnetisierungseffekte spielen hierbei zwar auch eine Rolle, da die Probe geringfügig abgeflacht war. Doch sollten diese in erster Linie zu einer Verzerrung der Feldskala führen (die Unterschiede im Sättigungsfeld bei den 50 und 80 K-Kurven könnten beispielsweise auf solch einen Entmagnetisierungseffekt zurückgeführt werden, siehe Abbildung 4.6).

2. die intrinsischen (supraleitenden) Ebenen so angeordnet waren, wie es von den glatten Spaltflächen erwartet wurde.

Antiferromagnetische Ordnung bei 100 K Deutlich unterschiedlich verhalten sich die Magnetisierungskurven der beiden Orientierungen auch unterhalb der antiferromagnetischen Anordnung des Ru-Gitters. Zur Verdeutlichung wurden in Abbildung 4.3 alle Messkurven auf ihren Peak-Wert bei T_N=100 K normiert. Für Temperaturen oberhalb T_N,

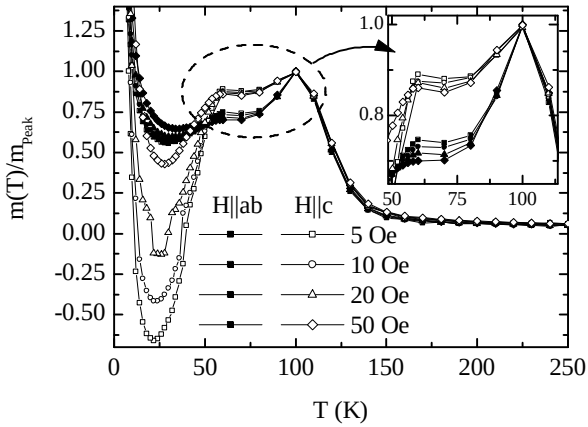

Abbildung 4.3: $M(T)$-Abhängigkeit für unterschiedliche externe Magnetfelder. Die Kurven wurden jeweils auf ihren Wert bei 100 K normiert.

d. h. im paramagnetischen Regime der Ru-Ionen, verlaufen alle Messungen aufeinander. Im antiferromagnetischen Bereich zeigt sich hingegen eine ausgeprägte Anisotropie. Während die Magnetisierung in Feldern parallel zu den Ebenen drastisch abfällt, ist diese Abnahme in senkrechten Feldern deutlich weniger ausgeprägt. Entmagnetisierungseffekte spielen hier keine Rolle, da dieser Einfluss durch die Normierung wegfällt (außerdem sollten diese aufgrund geometrischer Überlegungen wenn überhaupt zu einem umgekehrten Ergebnis führen). Durch das anisotrope Verhalten können möglicherweise Rückschlüsse auf die Ausrichtung (in-plane oder out-of-plane) der magnetischen Momente gezogen werden (=„easy-axis“). Da die vorgestellten Messungen in extrem kleinen Feldern durchgeführt wurden, spiegelt sich hier unmittelbar die Suszeptibilität des Materials wieder. Ein Vergleich mit Abbildung 2.13 legt daher den Schluss nahe, dass die Ru-Momente innerhalb der *ab*-Ebenen liegen sollten. Dies steht im Widerspruch zu den Neutronenstreudaten [Lyn00, Jor01], wäre allerdings verträglich mit einem Typ I-Antiferromagneten (ferromagnetische in-plane-Ordnung innerhalb der RuO_2-Ebenen, benachbarte Ebenen antiferromagnetisch zueinander geordnet), wie er von Butera *et al.* vorgeschlagen wurde [But01]. Auch ein G-Typ-Antiferromagnet (benachbarte Ru-Momente sind bezüglich aller Kristallrichtungen antiparallel ausgerichtet) mit den Momenten in-plane wäre prinzipiell möglich. Eine geringfügige Verkippung senkrecht zur *c*-Achse könnte hierbei die geringe ferromagnetische Komponente erklären, die in Myonenspinresonanz-Messungen beobachtet wurde [Ber99].

Magnetisierungsmessungen in Feldern bis 5.5 T Da es zu einer antiferromagnetischen Ausrichtung der Ru-Ionen kommt, stellt sich die Frage, ob diese nicht in der Form eines Spin-Flop-Übergangs beobachtet werden könnte. Dieser sollte sich entsprechend ab einem Feld H_{sf} (Größenordnung $\sim 0.1\,\mathrm{T}$) parallel zur Magnetisierung des Ru-Gitters in einem sprunghaften Anstieg in der Magnetisierung bemerkbar machen. Abbildung 4.4 zeigt $M(H)$-Kurven bei verschiedenen Temperaturen und senkrechter/paralleler Feldorientierung. Deutlich ist der dominierende

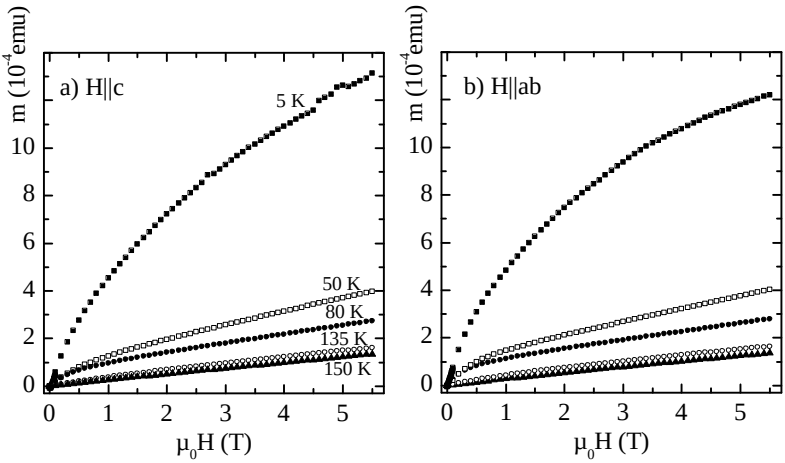

Abbildung 4.4: $M(H)$-Messungen bei verschiedenen Temperaturen. a) $H \| c$, b) $H \| ab$.

paramagnetische Einfluss der Gd-Ionen bei tiefen Temperaturen zu erkennen. Um Aussagen über das Ru-Gitter treffen zu können, müssen zunächst die Messkurven von diesem Untergrund bereinigt werden. Dies ist bei höheren Temperaturen sehr einfach zu bewerkstelligen. Das paramagnetische Signal zeigt eine Feldabhängigkeit gemäß der Brillouin-Funktion (Gleichung 2.43). Für große T ist diese in guter Näherung linear. Abbildung 4.5 zeigt zum Vergleich berechnete Kurven für ein System mit Spin $S{=}\frac{7}{2}$ bei verschiedenen Temperaturen. Bei den in Abbildung 4.6 a gezeigten Messungen bei 50 bzw. 80 K kann daher davon ausgegangen werden, dass der lineare Verlauf bei hohen Feldern exklusiv auf die paramagnetischen Gd-Ionen zurückgeführt werden kann. Das (anti-)ferromagnetische Ru-Gitter wird hier als bereits gesättigt angenommen (zumindest für Felder parallel zu den Ebenen, deren Kurven etwas höher liegen). Abbildung 4.6 b zeigt die korrigierten Messungen, bei denen der (aus den $H \| ab$-Kurven ermittelte) lineare Gd-Anteil abgezogen wurde. Für beide Feldorientierungen ergibt sich eine bereits bei kleinsten Feldern ansteigende Magnetisierungskurve, die in Feldern von einigen Tesla sättigt. Ein Anzeichen für einen Spin-Flop-Übergang

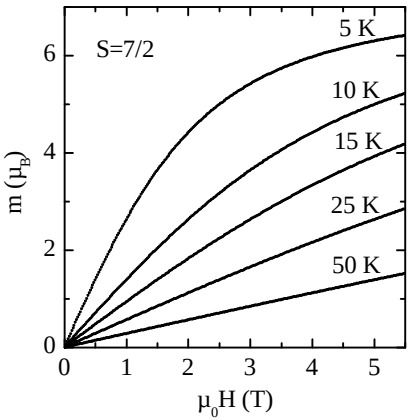

Abbildung 4.5: Mit Hilfe von Gleichung 2.43 berechnete Magnetfeldabhängigkeit der Magnetisierung eines Paramagneten mit $S=\frac{7}{2}$ für verschiedene Temperaturen. Die in realen Systemen vorhandene Anisotropie wurde hier vernachlässigt.

ist nicht zu erkennen. Dass die Kurven im Falle $H \| c$ erst bei höheren Feldern sättigen, kann auf den etwas höheren Entmagnetisierungsfaktor zurückgeführt werden.
Die Abwesenheit eines messbaren Spin-Flop-Signals bedeutet jedoch nicht zwangsläufig, dass es einen solchen Effekt nicht gibt. Möglicherweise ist er aufgrund von magnetischen Domänen mit unterschiedlichem H_{sf} extrem verschmiert. Trotzdem wäre, wenn das kritische Feld in der Größenordnung von 0.1 T läge, eine geringere Steigung bis zu diesem Feld zu erwarten. Daher kann davon ausgegangen werden, dass ein hypothetischer Übergang bei geringeren Feldern liegen müsste.

4.2 Transportmessungen

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der c-Achsen-Transportmessungen vorgestellt, die mit Hilfe des Stifthalters an den $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen durchgeführt wurden. Anhand eines Vergleichs mit einem typischen Hochtemperatursupraleiter, $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$, soll der Frage nachgegangen werden, inwiefern die Ruthenokuprate mit den Kupraten vergleichbar sind bzw. wo charakteristische Unterschiede zu finden sind. Wie sich herausstellen wird, kann auch in $RuSr_2GdCu_2O_8$ ein

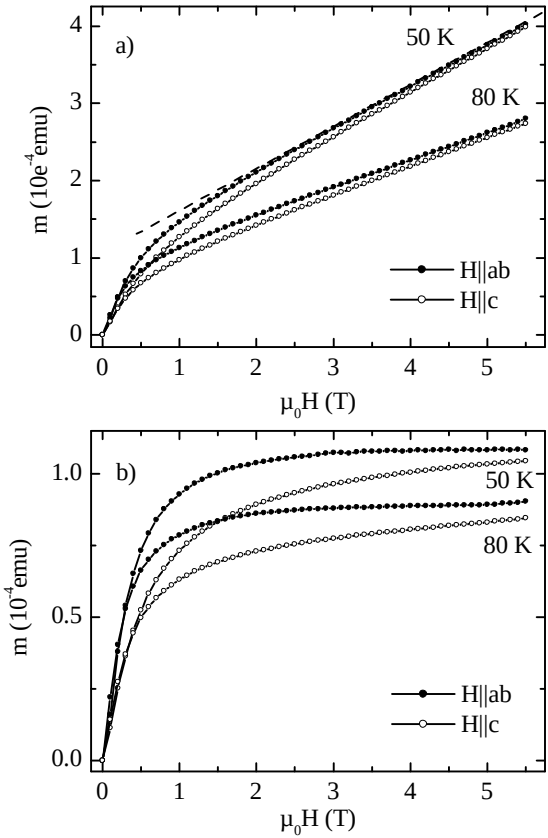

Abbildung 4.6: Magnetfeldabhängigkeit der Magnetisierung bei 50 bzw. 80 K. a) Originaldaten, b) Ohne den Einfluss der paramagnetischen Gd-Ionen.

intrinsischer Josephson-Effekt gemessen werden. Dieser scheint jedoch durch die Anwesenheit der magnetischen RuO_2-Ebenen weitestgehend unbeeinflusst.

Zunächst wird die Temperaturabhängigkeit des c-Achsenwiderstands diskutiert. Anschließend wird auf die Strom-Spannungs-Kennlinien sowie auf den daraus ermittelbaren Temperaturverlauf des kritischen Stroms eingegangen. Beide Abschnitte beschränken sich dabei auf Messungen,

die im Nullfeld durchgeführt wurden. Im Abschnitt 4.2.4 wird schließlich das Transportverhalten in externen Magnetfeldern untersucht.

4.2.1 Temperaturabhängigkeit des Widerstands

Bei den hier vorgestellten $R(T)$-Messungen handelt es sich zum überwiegenden Teil um Aufwärmkurven. Der Grund liegt an der verwendeten Stift-Technik. Beim erstmaligen Abkühlen kam es bis etwa 150 K zu ausgeprägten Sprüngen in den Messkurven. Diese sind hauptsächlich darauf zurückzuführen, dass sich die Stifte beim Abkühlvorgang geringfügig entlang der Kristalloberfläche bewegten. Es kann auch nicht ausgeschlossen werden, dass hierbei kleinste Unebenheiten der Kristalle abgerieben wurden. Diese These scheint dadurch gerechtfertigt, dass bei tieferen Temperaturen, aber auch bei späteren Aufwärm- und Abkühlzyklen, durchwegs stetige und reproduzierbare Temperaturabhängigkeiten gemessen wurden.
Die Kurven wurden aufgezeichnet, in dem ein konstanter Biasstrom von 1–10 μA durch die Probe geschickt und der resultierende Spannungsabfall in Abhängigkeit von der Temperatur aufgezeichnet wurde.

Supraleitender Übergang & Sprungtemperatur

Abbildung 4.7 zeigt eine Auswahl typischer $R(T)$-Kurven. Alle untersuchten Kristalle zeigten ihren supraleitenden Übergang im Temperaturbereich zwischen 45 K und 60 K (vgl. Tabelle 4.1). Dies liegt in guter Übereinstimmung mit den T_c-Werten, wie sie mit Hilfe der Magnetisierungmessungen erhalten wurden. Die Breite des Übergangs lag typischerweise bei etwa 10 K. Das ist ein erstes Indiz dafür, dass innerhalb eines untersuchten Einkristalls nur geringe Variationen in der Zusammensetzung auftraten. In der Literatur finden sich zahlreiche Untersuchungen an polykristallinen Proben [Bra02, Fuj03, Kla01, Kla02, Kla03, Mcl01], die zu dem Schluss kommen, dass bereits geringfügige Änderungen in der Stöchiometrie, beispielsweise eine teilweise Substitution von Ru durch Cu, eine Erhöhung der Sprungtemperatur um mehr als 30 K hervorrufen

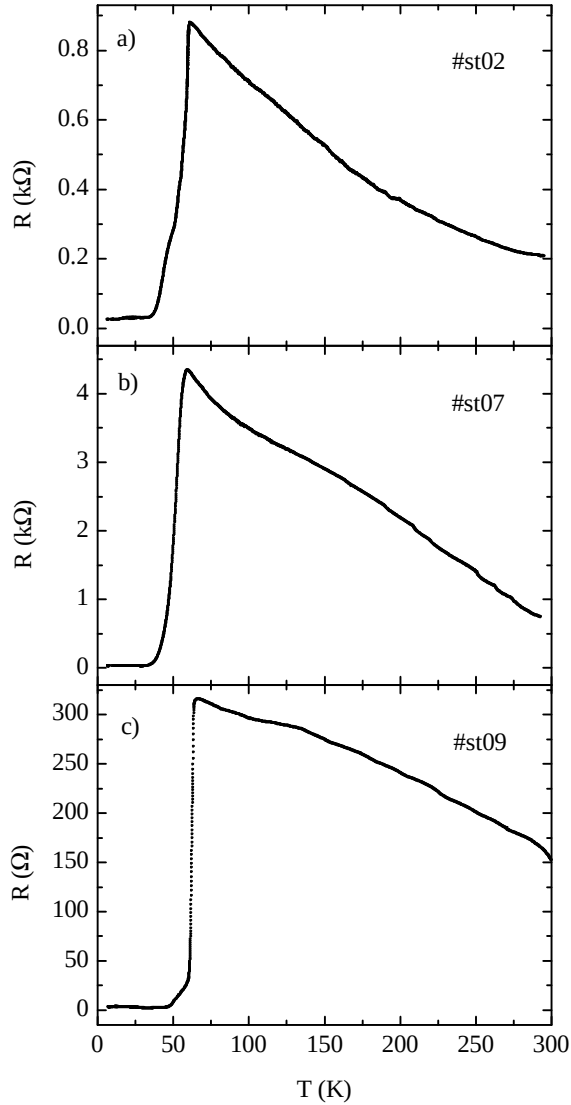

Abbildung 4.7: Temperaturabhängigkeit des Widerstands dreier Proben (*#st02*, *#st07* und *#st09*) im Nullfeld.

Bezeichnung	T_c (K)	ρ_c (293 K) (Ω cm)	ρ_c (T_c) (Ω cm)
st02	55.0	6.3	25
st03	40.0	55.1	890
st07	51.1	43.2	180
st09	60.0	1.8	3.8
st10	52.8	3	4.2
st11	49.0	2.6	4.5
st16	54.0	-	300
st21	54.6	0.38	2.0
st22	54.2	1.79	2.7
st23	45.0	-	18
st24	48.8	-	6.7

Tabelle 4.1: Sprungtemperaturen und spezifische c-Achsen-Widerstände der untersuchten $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalle. Als T_c wurde jene Temperatur definiert, bei der der Widerstand auf die Hälfte abgesunken war.

würden. Zwar zeigten sich im supraleitenden Übergang verschiedener Proben durchaus schulterförmige Stufen (beispielsweise Probe *#st02*, Abb. 4.7 a bzw. Probe *#st16*, Abb. 4.8), die sicherlich zu einem gewissen Teil auf den Einfluss von Fremdphasen zurückführbar sind. So ist von Messungen an $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen [Hei02a] bekannt, dass jene CuO_2-Ebenen, die nahe an der Oberfläche liegen, durch diverse Präparationsschritte (speziell Aufdampfen von Gold im Vakuum u. ä.) eine geringe Sauerstoff-Reduktion erleiden. Abbildung 4.8 zeigt jedoch, dass die Lage und Ausprägung der Widerstandsstufen von der Höhe des Biasstroms abhängig waren, mit dem die $R(T)$-Kurven aufgenommen wurden. Eine weitere Ursache könnte daher auch die Geometrie der untersuchten Kristalle darstellen: Die Querschnittsflächen der Einkristalle variierten geringfügig entlang der c-Achse, da auf eine Strukturierung der Kristalle verzichtet wurde. Dies führt (selbst bei homogener kritischer Stromdichte j_c) lokal zu unterschiedlich hohen Werten für den

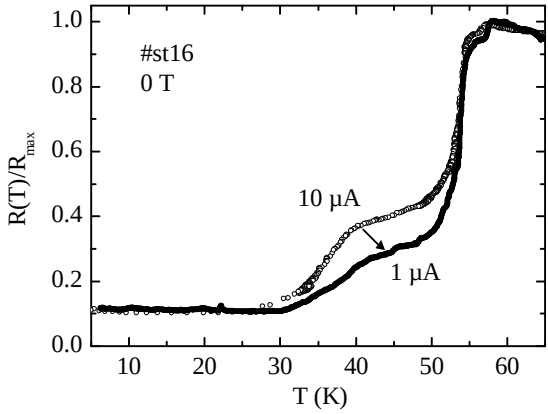

Abbildung 4.8: $R(T)$-Kurve der Probe *#st16* bei Messungen mit unterschiedlichen Biasströmen. Geschlossene (•) Symbole: 1 μA, offene (○) Symbole: 10 μA. Die Stufe, die bei einigen Kristallen in der $R(T)$-Kurve beobachtet werden kann, ist bei geringeren Messströmen deutlich schwächer ausgeprägt.

kritischen Strom. Es muss also davon ausgegangen werden, dass bei gegebenem Biasstrom nahe T_c ein Teil des Kristalls bereits supraleitend ist, während in Bereichen mit geringerer Querschnittsfläche der kritische Strom überschritten wird, und es dort zu einem Spannungsabfall kommt. Ein Plateau in der $R(T)$-Kurve wie in Abb. 4.8 ist die Folge. Da jedoch die kritische Stromdichte j_c speziell nahe T_c eine ausgeprägte Temperaturabhängigkeit aufweist (siehe Abschnitt 4.2.3), genügt bereits ein geringfügiges Absenken der Temperatur, um auch diese Bereiche mit kleinerer Querschnittsfläche in den supraleitenden Zustand zu überführen. Wie in Abbildung 4.8 zu erkennen, führen umgekehrt Messungen mit deutlich geringerem Biasstrom dazu, dass die Bereiche mit kleinem I_c bereits näher bei T_c in den supraleitenden Zustand übergehen, die Schulter wird unterdrückt.

Bei der Diskussion der Strom-Spannungs-Kennlinien wird später gezeigt, dass es durchaus zu einer Streuung in den kritischen Strömen der intrinsischen Josephson-Kontakte kam, was auf die genannten Punkte

zurückgeführt werden könnte.

Widestandsverlauf unterhalb T_c & Kontaktwiderstand

Unterhalb des Übergangs zeigten die Widerstandskurven keine nennenswerte Temperaturabhängigkeit. Der verbleibende Restwiderstand wurde hier durch den stets mitvermessenen Kontaktwiderstand verursacht. Dieser zeigte normalerweise ein ohmsches Verhalten; der Flächenwiderstand lag dabei in der Größenordnung von weniger als $5\,\mathrm{m\Omega\,cm^2}$. Nur in seltenen Fällen (speziell bei Proben, die einen hohen Kontaktwiderstand aufwiesen) kam es in diesem Temperaturbereich zu einem exponentiellen Anstieg des Widerstands mit sinkender Temperatur, der aber exklusiv auf den Kontaktwiderstand zurückgeführt werden kann.

Widerstandsverlauf oberhalb T_c & spezifischer Widerstand

Der Widerstand oberhalb T_c zeigte bei allen untersuchten Proben eine negative Temperaturabhängigkeit, und zwar über den gesamten vermessen Temperaturbereich hinweg bis 300 K (Abb. 4.7). Die absoluten Werte für den spezifischen c-Achsenwiderstand ρ_c, die sich mit Hilfe der Probengeometrien aus Tabelle 3.1 ermitteln lassen, sind in Tabelle 4.1 aufgeführt. Sie lagen zwischen 2 und $890\,\Omega\,\mathrm{cm}$ (nahe T_c, bei Raumtemperatur etwa einen Faktor 2–4 darunter). Die große Streuung kann auf die relativ grobe Abschätzung der Probengeometrie durch die vereinfachte Annahme quaderförmiger Kristalle sowie mögliche Kurzschlüsse durch seitlich aufgedampftes Gold zurückgeführt werden (siehe Fehlerabschätzung auf Seite 80). Trotzdem zeigt sich, dass die im Rahmen dieser Arbeit ermittelten Werte für den spezifischen Widerstand deutlich höher sind als jene, die für polykristallines $RuSr_2GdCu_2O_8$ bestimmt wurden (Größenordnung 1–10 $\mathrm{m\Omega\,cm}$, Seite 56). Darüber hinaus wurde bei polykristallinen Proben im Temperaturbereich zwischen 100 K und 300 K stets ein metallisches Temperaturverhalten festgestellt [Ber99, Hem02, McC99, Sri01]. Allerdings konnte hier ρ_c nicht exklusiv gemessen werden, da entsprechende Bereiche durch ab-orientierte Kristallite kurzgeschlossen wurden. Es kann also angenommen werden, dass

im Falle der polykristallinen Proben die Messungen durch den Stromtransport entlang der (metallischen) CuO_2-Ebenen dominiert wurden. Dies legt nahe, dass in den Ruthenokupraten das Verhältnis ρ_c/ρ_{ab} mehrere Größenordnungen beträgt, eine Eigenschaft, die auch bei anderen Materialien mit intrinsischer Schichtstruktur (etwa den Schichtmanganaten vom Typ $La_{2-2x}Sr_{1+2}Mn_2O_7$ oder den Hochtemperatursupraleitern) beobachtet werden kann [Kim96, Kle92a].
Bei einem Großteil der untersuchten Kristalle kam es im Bereich zwischen 130 K und 140 K zu einer schwach ausgeprägten Schulter in den $R(T)$-Kurven (siehe Abb. 4.7). Solches Verhalten konnte auch in polykristallinen Proben festgestellt werden [Ber99]. Da in diesem Temperaturbereich die magnetische Ordnung der RuO_2-Ebenen einsetzt, wurde dies als ein Hinweis darauf gedeutet, dass hier durch Reduzierung der magnetischen Unordnung die Streuung der Ladungsträger an magnetischen Störstellen unterbunden wird [Che01, McC99]. In Abschnitt 4.2.4 wird dieser Aspekt im Hinblick auf die dort vorgestellten Messungen im Magnetfeld genauer diskutiert.
Abschließend sei angemerkt, dass die Temperaturabhängigkeit von ρ_c der $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalle sowohl vom qualitativen Kurvenverlauf als auch bezüglich ihrer absoluten Werte mit entsprechenden $R(T)$-Kurven optimaler bis unterdotierter $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Kristalle [Hei02a, Kle92a] vergleichbar ist (siehe Abb. 2.7).

4.2.2 Strom-Spannungs-Kennlinien

Eine der hervorstechensten Eigenschaften des intrinsischen Josephsoneffekts in Hochtemperatursupraleitern wie $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ sind die hysteretischen, aus einer Vielzahl von Ästen bestehenden Kennlinien (vgl. Abb. 2.9). Mit ihrer Hilfe können wichtige Größen wie kritischer Strom und charakteristische Spannung bestimmt werden. Im Folgenden werden entsprechende Messungen an den $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen vorgestellt. Die Kennlinien wurden stromgesteuert aufgezeichnet.
In diesem Teil werden die Kennlinien ohne den Einfluss eines externen Magnetfelds diskutiert. Eine „Nullfeld“-Messung im eigentlichen Sinne

ist in den Ruthenokupraten aufgrund ihrer schwachen ferromagnetischen Komponente selbstverständlich nicht möglich. So führt bereits ein effektives ferromagnetisches Moment von $0.1\mu_B$ pro Ru-Ion, wie es sich als Obergrenze aus Neutronenstreuungsexperimenten und Magnetisierungsmessungen ergibt [Lyn00, Jor01], zu einem mittleren magnetischen Feld von etwa 70 G innerhalb des Kristalls. Wie später jedoch gezeigt wird, ist ein zusätzliches Feld von etwa einem halben Tesla nötig, um Effekte der Josephson-Vortex-Dynamik nachweisen zu können.

Kennlinien bei 4.2 K Die Abbildungen 4.9 und 4.10 zeigen eine repräsentative Auswahl an Strom-Spannungs-Kennlinien, wie sie bei 4.2 K gemessen wurden. Da die einzelnen Messungen aufgrund der 2-Punkt-Messung stets mit einem (wenn auch zum überwiegenden Teil äußerst geringen) Kontaktwiderstand behaftet waren, wurde dieser bei den vorgestellten Kurven numerisch abgezogen. Dies vereinfacht den direkten Vergleich zwischen den einzelnen Proben. In Abbildung 4.10 ist das Verfahren am Beispiel der Probe *#st22* dargestellt.

Alle Kennlinien wiesen eine Vielzahl resistiver Äste auf. In Abbildung 4.9 b ist anhand der Pfeile dargestellt, wie die Kurven (stromgesteuert) ausgemessen werden konnten: Bei Null beginnend wurde der Strom allmählich erhöht. Bis zu einem gewissen Wert verblieb die Probe dabei im supraleitenden Zustand. Sobald ein bestimmter Stromwert erreicht wurde, kam es zu einem Sprung auf einen der resistiven Äste. Eine zusätzliche Erhöhung des Stromes führte zu weiteren Sprüngen. Wurde der Strom im resistiven Zustand zurückgefahren, so sprang die Kennlinie auf einen der inneren Äste zurück. Dieser konnte nun ebenfalls wieder bis zu einem maximalen Strom ausgefahren werden. Bei Invertierung der Stromrichtung zeigten die Kristalle ein symmetrisches Verhalten. Die gezeigten Kurven stellen lediglich einen begrenzten Ausschnitt dar. Bei weiterer Erhöhung des Stromes kam es zur Ausbildung vieler weiterer Äste bei noch höheren Spannungen. Doch würde die eingebrachte Leistung in diesem Bereich zu deutlichen Heizeffekten im Kristall führen, so dass zum Schutz der Proben die Messungen auf die inneren Äste beschränkt

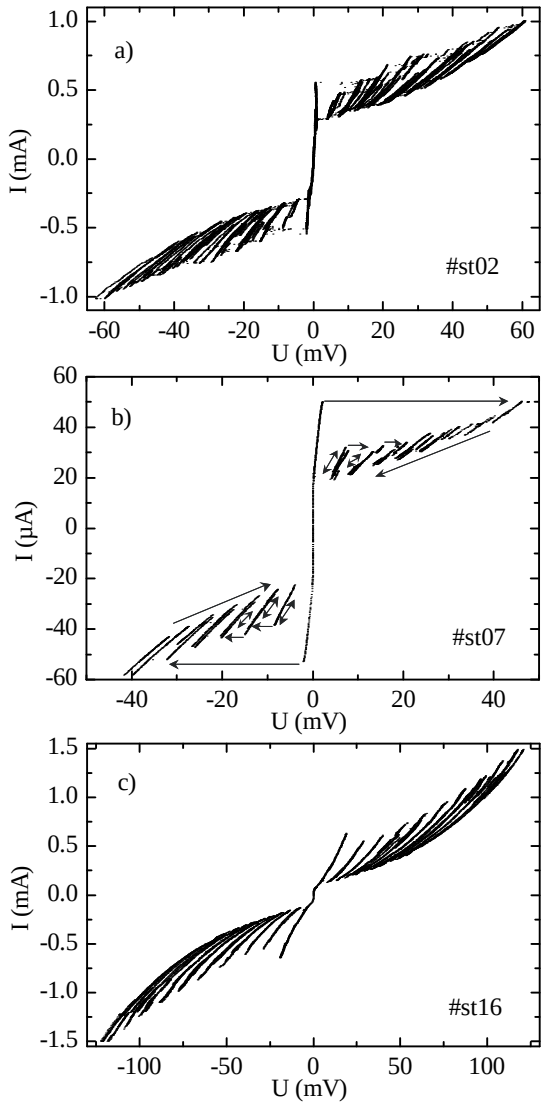

Abbildung 4.9: Strom-Spannungskennlinien der Proben *#st02*, *#st07* und *#st16* bei 4.2 K im Nullfeld. Der Kontaktwiderstand wurde jeweils abgezogen (siehe hierzu auch Abb. 4.10). Die Pfeile in Abbildung b) zeigen, wie die hysteretischen Äste abgefahren werden konnten.

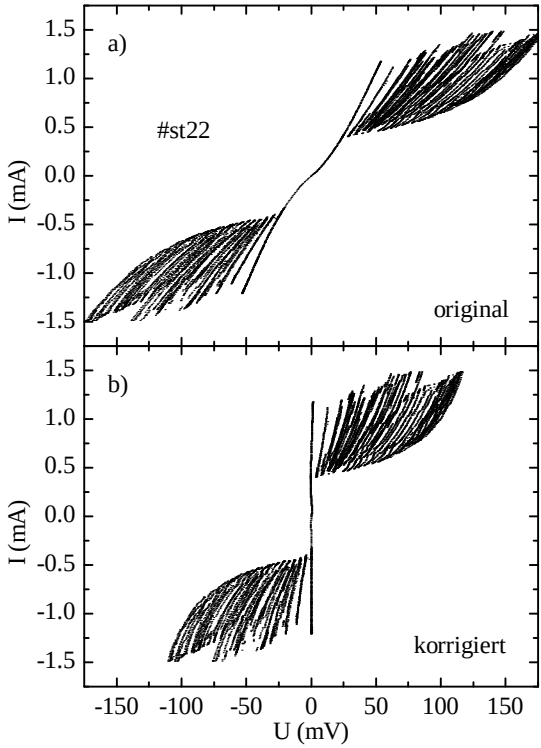

Abbildung 4.10: Strom-Spannungs-Kennlinie der Probe *#st22* bei 4.2 K im Nullfeld. a) Ursprüngliche Messdaten. b) Der Kontaktwiderstand wurde durch einen numerischen Fit abgezogen.

wurden.

Die Strom-Spannungs-Kennlinien zeigen somit ein Verhalten, das dem des intrinsischen Josephson-Effekts in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen sehr ähnlich ist. Jeder der Äste entspricht einem intrinsischen Josephson-Kontakt entlang der c-Achse, der bei Erreichen eines bestimmten kritischen Stroms I_c in den resistiven Zustand schaltet.[1] Da die Ausdeh-

[1] In Abschnitt 4.2.4 wird durch Anlegen eines Magnetfelds der direkte Beweis erbracht werden, dass alle gemessenen Josephson-Kontakte parallel zueinander, d. h. intrinsisch sind.

nung einer $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einheitszelle senkrecht zu den Ebenen lediglich 11–12 Å beträgt, besteht ein untersuchtes Kristallplättchen mit einer durchschnittlichen Dicke von etwa 20 μm aus mehreren Tausend intrinsischen Kontakten. Dies erklärt die große Anzahl an resistiven Ästen, die in den Strom-Spannungs-Kennlinien gemessen werden konnten.

Überhöhtes I_c auf dem innersten Ast Bei einigen Proben konnte ein erhöhter kritischer Strom auf dem innersten Ast beobachtet werden. Bei den unmittelbar darauffolgenden Ästen war I_c hingegen unterdrückt. Ein besonders auffälliges Beispiel hierfür ist die Probe *#st07* (Abb. 4.9 b). Dies deutet auf eine starke Kopplung der intrinsischen Josephson-Kontakte untereinander hin. Eine denkbare Ursache wäre hierfür beispielsweise eine Wechselwirkung durch Josephson-Flusswirbel. Mit einem aus der spontanen Magnetisierung abgeschätzten mittleren Feld von etwa 70 G erhält man für die relativ großen Kristalle mit einer Kantenlänge von durchschnittlich 50 μm und einem Schichtabstand von etwa 12 Å rein rechnerisch etwa 1/5 Flussquant pro Kontakt. In diesem Zusammenhang sei erwähnt, dass ein ähnlich überhöhter innerer Ast auch bei annularen und langen offenen Kontakten in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen gefunden wurde [Cla04] und dort ein Zusammenhang mit Josephson-Fluxonen diskutiert wird.

Charakteristische Spannung & $\Delta(0)$ Die Kennlinien zeigen, dass bei den $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristallen wie bei $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ die intrinsischen Josephson-Kontakte stark unterdämpft sind. Dies spricht für eine relativ hohe Kapazität der Kontakte, was das Modell eines Stapels aus SIS-Kontakten nahelegt. Mit Hilfe der charakteristischen Spannung V_c, d. h. dem Spannungssprung zwischen benachbarten resistiven Ästen (Abb. 4.11), kann die supraleitende Energielücke $\Delta(0)$ für tiefe Temperaturen abgeschätzt werden.

In Tunnelkontakten aus *konventionellen* s-Wellen-Supraleitern entspricht für $T \to 0$ der Spannungssprung ziemlich genau der doppelten Ener-

gielücke,

$$V_{c,s-\text{Welle}} = \frac{2\Delta}{e}. \tag{4.1}$$

Bei diesen Systemen zeigt die Quasiteilchen-Kennlinie auch einen nahezu senkrechten Anstieg bei 2Δ (vgl. Abbildung 2.6). In Hochtemperatursupraleitern wie $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ ist dieser Anstieg jedoch aufgrund der *d*-Wellen-Symmetrie ausgeschmiert [Sch98]. Hier wurde ein Zusammenhang

$$V_{c,d-\text{Welle}} \approx \frac{\Delta}{e} \tag{4.2}$$

festgestellt. Wird davon ausgegangen, dass in den $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristallen die Supraleitung innerhalb der CuO_2-Ebenen stattfindet, so ist es naheliegend, auch hier eine *d*-Wellen-Symmetrie anzunehmen. Gemäß Gleichung 4.2 kann somit die Energielücke abgeschätzt werden.

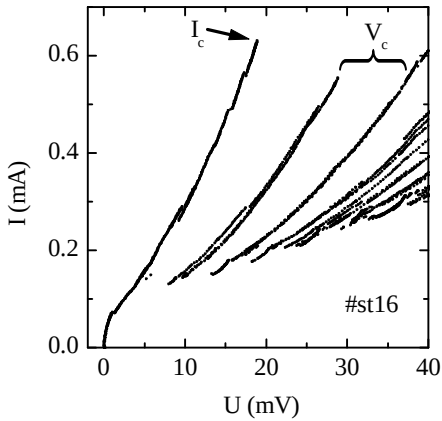

Abbildung 4.11: Definition von I_c und V_c. Zur Berechnung der kritischen Stromdichte wurde jener Strom gewählt, bei dem es erstmals zu einem *ausgeprägten* Sprung kam. Dieses I_c wurde auf den kompletten Kristallquerschnitt zurückgeführt. Die kleineren Sprünge auf dem „Supraast“ könnten durch Unebenheiten auf der Kristalloberfläche verursacht werden.

Wie in den Abbildungen 4.9 und 4.10 zu erkennen, streuen die Werte für V_c allerdings erheblich. Während die inneren Äste relativ konstante Abstände aufweisen, liegen die äußeren Äste deutlich näher zusammen. Die Spannungs*sprünge* hingegen lagen auch dort etwa bei den Werten, die für den inneren Bereich bestimmt wurden. Die geringeren Abstände könnten daher auf die verschiedenen möglichen Kombinationen von resistiven Kontakten mit leicht unterschiedlicher V_c's zurückführbar sein. In

Tabelle 4.2 sind die Werte für verschiedene Proben aufgelistet. Auffällig

Bezeichnung	I_c (μA)	j_c (A cm^{-2})	V_c (mV)
st02	500	8.9	1–2
st03	120	0.8	1
st07	50	0.4	6
st09	3200	178	3–4
st10	5000	35	3
st11	3200	36	2
st16	640	14	9
st21	2500	79	8
st22	1200	75	8
st23	160	10	9
st24	720	42	9

Tabelle 4.2: Kritischer Strom I_c, kritische Stromdichte j_c und charakteristische Spannung V_c verschiedener Proben bei 4.2 K. Die kritische Stromdichte wurde mit Hilfe der Abmessungen aus Tabelle 3.1 berechnet.

ist, dass bei den zuletzt untersuchten Kristallen (*#st16–23*) die höchsten Werte für V_c gemessen wurden. Bei diesen Proben wurde die Präparationsmethode dahingehend verbessert, dass die Einkristalle beim Aufdampfen der Goldschicht deutlich tiefer in Vakuumfett eingebettet waren (siehe hierzu Seite 72). Bei den „älteren“ Proben ist hingegen ein dünner Goldfilm entlang der c-Achse nicht völlig auszuschließen, was zu einem Kurzschluss senkrecht zu den Ebenen und damit zu einem verminderten V_c führen würde. Für die Abschätzung von $\Delta(0)$ wird daher eine charakteristische Spannung von 8–9 mV angenommen. Mit Gleichung 4.2 ergibt sich die Energielücke $\Delta(0)$ daher zu etwa 8–9 meV. Dies stimmt näherungsweise mit dem Wert von 6 meV überein, wie er von Ummarino *et al.* mittels Punkt-Kontakt-Spektroskopie an polykristallinen $RuSr_2GdCu_2O_8$-Proben unter Annahme einer d-Wellen-Symmetrie des Ordnungsparameters ermittelt wurde [Umm03].

Kritische Stromdichte Eine weitere entscheidende Kenngröße ist die kritische Stromdichte j_c der intrinsischen Josephson-Kontakte. Für ih-

re Berechnung muss jedoch festgelegt werden, was genau als kritischer Strom des Kristalls definiert wird: Wie die Abbildung 4.11 zeigt, kam es bei den untersuchten Kristallen bereits bei geringen Strömen zu kleineren Sprüngen in den Kennlinien. Diese werden aber vermutlich durch Kontakte kleinerer Querschnittsfläche (beispielsweise Stufen auf der Oberfläche der Kristalle) bzw. reduziertem T_c verursacht. Für die Berechnung von j_c wurde deshalb jener kritische Strom I_c gewählt, bei dem es erstmalig zu einem ausgeprägten Sprung in der Größenordnung von V_c kam (vgl. Abb. 4.11). Die zur Berechnung der Stromdichte notwendigen lateralen Abmessungen der Proben sind in Tabelle 3.1 aufgeführt. Die so ermittelten Werte für j_c lagen zwischen 0.4 und $80\,\mathrm{A\,cm^{-2}}$ (siehe Tabelle 4.2; die Probe *#st09* war vermutlich durch einen dünnen Goldfilm kurzgeschlossen, was die außergewöhnlich hohen Werte erklären würde). Die extreme Streuung ist hauptsächlich auf die ungenaue Probengeometrie zurückführbar. Trotzdem deuten die Werte in Tabelle 4.2 an, dass die kritische Stromdichte bei *c*-Achsen-Transport in $RuSr_2GdCu_2O_8$ unterhalb der Werte von $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ liegt (je nach Dotierung konnten dort Werte zwischen 10^2 und $10^4\,\mathrm{A\,cm^{-2}}$ gemessen werden [Hei02a]). Die meisten Werte lagen im Bereich zwischen 10 und $80\,\mathrm{A\,cm^{-2}}$, so dass für die Abschätzung weiterer Größen ein Wert von $50\,\mathrm{A\,cm^{-2}}$ angenommen wird. Diese Abschätzung ist jedoch sicherlich als unteres Limit zu betrachten. Zum einen kann nicht völlig ausgeschlossen werden, dass hier lediglich kleinere Erhebungen auf den Kristallen mit deutlich geringerer Querschnittsfläche gemessen wurden (siehe auch die Fehlerabschätzung auf Seite 80). Zum anderen müssen die Messungen im Limit langer Kontakte betrachtet werden (→ Abschnitt „Josephson-Länge“). In diesem Fall führen aber Eigenfeldeffekte des Biasstroms dazu, dass sich einzelne Josephson-Flusswirbel bereits bei kleinen Strömen losreißen können was den gemessenen „kritischen Strom“ deutlich reduzieren kann. So zeigten auch die ersten Messungen des intrinsischen Josephson-Effekts an $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen, die ebenfalls an relativ großen Kristallen durchgeführt wurden, deutlich geringere Werte für j_c [Kle92a].

Josephson-Länge Mit Hilfe der kritischen Stromdichte und der London'schen Eindringtiefe λ_{ab} kann mit Gleichung 2.32 die Josephson-Länge λ_J (d. h. die Ausdehnung eines Josephson-Wirbels) abgeschätzt werden. Aus Suszeptibilitätsmessungen ergibt sich λ_{ab} zu 400–500 nm [Ber00]. Da $RuSr_2GdCu_2O_8$ eine magnetische Komponente enthält, ist es darüber hinaus notwendig, zur Berechnung den entsprechenden Wert für die Permeabilität μ_r zu bestimmen. Dieser lässt sich gemäß

$$\mu_r = 1 + \chi = 1 + \frac{dM}{dH} \tag{4.3}$$

aus den Magnetisierungsmessungen (Abbildung 4.4) ermitteln. Da die $M(H)$-Kurven keine lineare Form besitzen, hängt μ_r vom jeweiligen Feld ab. Im Nullfeld ergibt sich ein Wert $\mu_r \approx 1.35$, d. h. das magnetische System liefert nur einen sehr kleinen Beitrag. In Feldern von einigen Tesla, in denen die $M(H)$-Kurven deutlich flacher verlaufen, ist dieser Effekt sogar noch geringer. Mit einer angenommenen Dicke der supraleitenden Elektroden von 3 Å und einer kritischen Stromdichte $j_c = 50\,\mathrm{A\,cm^{-2}}$ erhält man schließlich einen Wert von $\lambda_J \approx 480$–600 nm. Das bedeutet, dass die untersuchten Kristalle (mit einer Kantenlänge von mehreren $10\,\mu$m) deutlich länger als ein Josephson-Flusswirbel waren. Auf diesen Aspekt wird im Rahmen der Messungen im externen Magnetfeld (Abschnitt 4.2.4) abermals eingegangen.

Kennlinien für verschiedene Temperaturen Zur Ermittlung der Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms (siehe nächster Abschnitt) wurden zwischen 10 K und T_c alle 2.5 K Kennlinien aufgezeichnet, aus denen das jeweilige I_c extrahiert werden konnte. Abbildung 4.12 zeigt eine Auswahl solcher Messungen an der Probe *#st21*. Da primär der kritische Strom von Interesse war, wurden die Hysteresen nicht vollständig ausgefahren. Die charakteristische Spannung nahm etwa linear mit der Temperatur ab (Abb. 4.13), ein Verhalten, dass auch beim intrinsischen Josephsoneffekt in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen beobachtet werden konnte [Kle92a]. Die Hysteresen wurden geringer und verschwanden etwa bei 35 K. Darüber hinaus führten mit zunehmender Temperatur thermische

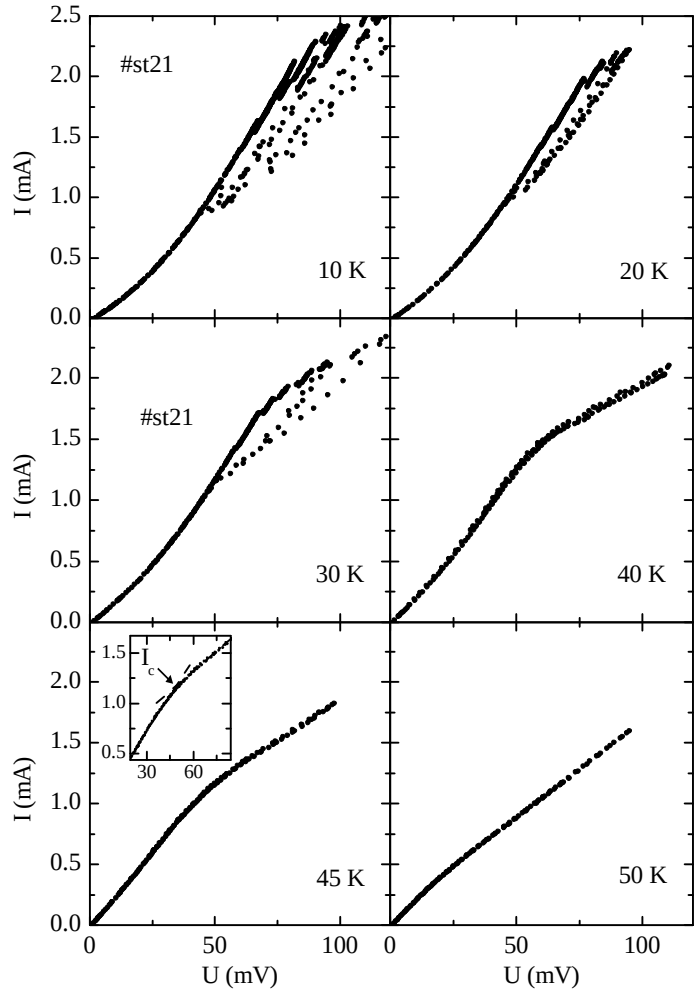

Abbildung 4.12: Strom-Spannungs-Kennlinien der Probe *#st21* für verschiedene Temperaturen. Der Kontaktwiderstand wurde hier nicht abgezogen. Der Inset bei der 45 K-Kurve zeigt, wie bei den abgerundeten Kennlinien der kritische Strom bestimmt wurde.

Fluktuationen zu einer abgerundeten Kennlinie im Bereich des kritischen Stroms. Um trotzdem das jeweilige I_c ermitteln zu können, wurden Gera-

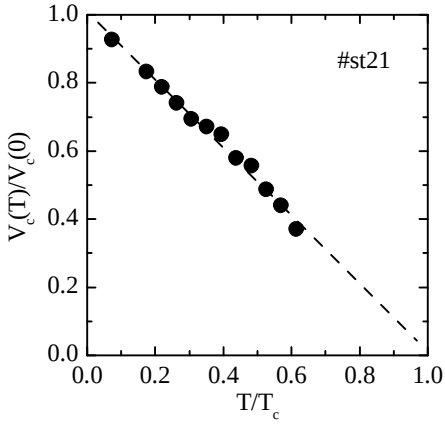

Abbildung 4.13: Temperaturabhängigkeit der charakteristischen Spannung V_c der Probe *#st21* (normiert). Die gestrichelte Linie ist ein linear Fit. Oberhalb von etwa 35 K ($0.6\,T_c$) konnte keine Hysterese mehr gemessen werden.

den (siehe Inset 45 K-Kurve) an die Kennlinie angelegt. Der Schnittpunkt dieser Geraden wurde als kritischer Strom definiert.

4.2.3 Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms

Zentraler Punkt dieser Arbeit ist die Untersuchung, ob es innerhalb der $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalle zur Ausbildung intrinsischer Josephsonkontakte mit einem zusätzlichen Phasensprung von π („π-Kontakt“) kommt. Die Strom-Spannungs-Kennlinien zeigten bereits, dass benachbarte CuO_2-Doppelebenen Josephson-gekoppelt sind. Gemäß den Überlegungen in Abschnitt 2.3.2 gilt es nun zu untersuchen, ob der kritische Strom unter gewissen Umständen sein Vorzeichen wechselt und damit einen messbaren Nulldurchgang erfährt. Hierzu bietet es sich an, das (H_{ex}, T)-Phasendiagramm entweder bei konstanter Temperatur oder konstantem Austauschfeld abzufahren. Ein naheliegender Zugang besteht darin, den Temperaturverlauf des kritischen Stroms $[I_c(T)]$ zu messen.

Abbildung 4.14 zeigt die Temperaturabhängigkeiten der kritischen Ströme der Proben *#st07* und *#st21*, wie sie aus den Kennlinien extrahiert werden konnten. Zum besseren Vergleich wurde I_c jeweils auf seinen Wert bei 4.2 K und die Temperatur auf die Sprungtemperatur der jewei-

ligen Probe (*#st07*: 51 K, *#st21*: 55 K) normiert. Neben der Temperatu-

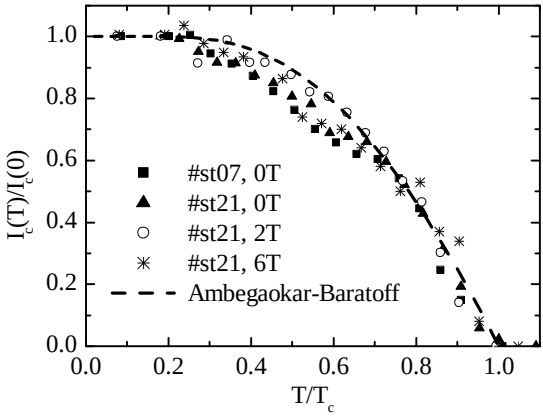

Abbildung 4.14: Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms der Proben *#st07* und *#st21* (normiert). Für *#st21* sind zusätzlich zu den Werten im Nullfeld auch die Ergebnisse für Messungen in Feldern von 2 bzw. 6 T (parallel zu den CuO_2-Ebenen) abgebildet. Die gestrichelte Kurve gibt die Temperaturabhängigkeit gemäß der Ambegaokar-Baratoff-Formel unter Verwendung einer der BCS-Theorie folgenden Energielücke wieder.

rabhängigkeit im Nullfeld sind für die Probe *#st21* auch entsprechende Ergebnisse der Messungen in externen Magnetfeldern von 2 bzw. 6 T (parallel zu den intrinsischen Ebenen) aufgeführt.[2] Beide Kurven wurden dabei ebenfalls auf $T_c = 55$ K (Nullfeld!) normiert.
Alle Proben zeigten (im Rahmen der Messgenauigkeit) eine monotone Abnahme des kritischen Stroms mit der Temperatur. Im Bereich tiefer Temperaturen bis etwa $0.3\,T_c$ konnte nur eine geringe Temperaturabhängigkeit gemessen werden. Nahe T_c fiel der kritische Strom in etwa linear ab.

Monotones Verhalten - kein π-Übergang? Die Tatsache, dass kein Wiedereintritt des kritischen Stroms beobachtet werden kann, wirft

[2] Vor jeder Messung wurde hier die Probe mit Hilfe des Flux-Flow-Peaks (→ Abschnitt 4.2.4) im Feld ausgerichtet.

selbstverständlich umgehend die Frage auf, ob es möglicherweise doch zu keiner Ausbildung von π-Kontakten innerhalb der $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalle kommt. Neben diesem eher materialbezogenen Aspekt muss allerdings auch auf experimenteller Seite geprüft werden, ob die Methode der $I_c(T)$-Abhängigkeit, wie sie Ryazanov *et al.* erfolgreich an einzelnen künstlichen SFS-Strukturen zum Nachweis des Übergangs verwendet haben, überhaupt auf intrinsische Übergitter mit vielen Kontakten übertragen werden kann. In Abschnitt 4.3 wird detailliert auf diese und weitere Punkte eingegangen.

Form der $I_c(T)$-Kurve Im Bereich tiefer Temperaturen zeigt der kritische Strom keine nennenswerte Temperaturabhängigkeit. Dies ist (neben der ausgeprägten Hysterese in den Kennlinien, Abschnitt 4.2.2) ein weiteres Indiz dafür, dass sich die $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristalle als Stapel aus intrinsischen SIS-Kontakten verstehen lassen. In Josephson-Kontakten mit normalleitender Barriere (SNS) ist die Sättigung bei tiefen Temperaturen deutlich schwächer ausgeprägt bis überhaupt nicht vorhanden [Lik79].
Für Josephson-Tunnelkontakte aus *konventionellen* Supraleitern (d. h. mit einer s-Wellen-Symmetrie des supraleitenden Ordnungsparameters) kann die Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms durch die Ambegaokar-Baratoff-Formel [Amb63a, Amb63b] (Gleichung 2.16) angegeben werden. Für ihre Berechnung ist die Energielücke $\Delta(0)$ bei tiefen Temperaturen erforderlich. Gemäß BCS-Theorie besteht der Zusammenhang

$$\Delta(0)_{BCS} = 1.76\, k_B T_c. \tag{4.4}$$

Dies ergäbe im Falle der Proben *#st07* und *#st21* mit einem (mittleren) T_c von 53 K einen Wert von etwa 8 meV, was erstaunlich gut zu der aus den Strom-Spannungs-Kennlinien erhaltenen Abschätzung (8–9 meV) passt. In Abbildung 4.14 ist daher zum Vergleich die $I_c(T)$-Abhängigkeit gemäß der Ambegaokar-Baratoff-Formel eingetragen. Sie liegt nur geringfügig oberhalb der ermittelten Daten aus den Transportmessungen. Dies lässt mehrere Aussagen zu:

1. Die Tatsache, dass die $I_c(T)$-Kurven durch eine dem Ambegaokar-Baratoff-Gesetz ähnliche Abhängigkeit beschrieben werden können, deutet darauf hin, dass der Transport der Cooper-Paare via Tunneln über eine isolierende Barriere erfolgt.

2. Die gute Übereinstimmung der Werte für $\Delta(0)$ aus den Kennlinien und den $I_c(T)$-Messungen führt zu einer inneren Konsistenz der Daten. Es sei hier allerdings angemerkt, dass bei der gestrichtelten Kurve in Abbildung 4.14 eine mögliche *d*-Wellen-Symmetrie des Ordnungsparameters von $RuSr_2GdCu_2O_8$ noch nicht berücksichtigt wurde. Abbildung 4.15 zeigt die oben aufgeführten $I_c(T)$-Kurven daher nochmals im direkten Vergleich mit der berechneten Temperatur-Abhängigkeit für *c*-achsenorientierte Josephson-Kontakte aus *d*-Wellen-Supraleitern (aus [Tan97]). Die Berechnungen wurden da-

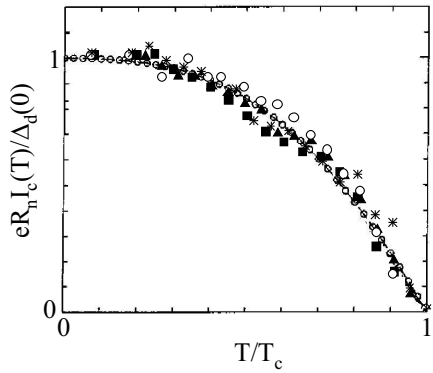

Abbildung 4.15: Temperaturabhängigkeit eines *d*-Wellen-Supraleiters (offene, mit Linie verbundene Symbole); aus [Tan97]. Zusätzlich sind die gemessenen Werte aus Abbildung 4.14 aufgetragen.

bei im Limit quasi 2-dimensionaler Elektroden mit einer BCS-Temperaturabhängigkeit der Energielücke durchgeführt. Die Übereinstimmung ist hervorragend. Allerdings zeigt der Vergleich zwischen Abbildung 4.14 und 4.15 auch, dass alleine aus der $I_c(T)$-Abhängigkeit nicht unmittelbar auf die Symmetrie des supraleitenden Ordnungsparameters geschlossen werden kann.

3. Dass die Temperaturabhängigkeit so gut durch eine (konventionelle) Theorie beschrieben werden kann, stellt abermals das „exotische“ Verhalten eines 0-π-Übergangs in Frage.

Paralleles Magnetfeld und $I_c(T)$ Auch wenn ein Großteil der Messungen im Magnetfeld erst im nächsten Abschnitt diskutiert wird, so soll hier doch kurz auf die Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms in Feldern parallel zu den CuO_2-Ebenen eingegangen werden. Wie eingangs erwähnt, wurden die 2 bzw. 6 T-Messungen in Abbildung 4.14 auf die Sprungtemperatur im Nullfeld normiert. Wie zu erkennen, zeigen die $I_c(T)$-Kurven annähernd die gleiche Temperaturabhängigkeit wie der kritische Strom im Nullfeld. Dies lässt Rückschlüsse auf das kritische Feld $H_{c2}^{\parallel}$ parallel zu den intrinsischen Ebenen, aber auch auf die Kristallqualität und -orientierung zu:
Der Abbildung 4.14 ist zu entnehmen, dass selbst ein externes Feld von bis zu 6 T die Sprungtemperatur um maximal ein 1 K reduziert. Somit liegt $H_{c2}^{\parallel}$ schon sehr nahe bei T_c ($54\,\mathrm{K} \approx 0.98\,T_c$) über 6 T. Von dem strukturell ähnlichen Hochtemperatursupraleiter $YBa_2Cu_3O_7$ ist bekannt, dass er bei $0.98\,T_c$ bereits ein kritisches Feld $H_{c2}^{\parallel}$ von über 7 T besitzt [Nau88].[3] Dieses fällt jedoch bereits bei einer Fehlorientierung von weniger als 10° auf etwa die Hälfte ab. Bei $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$, das nahe T_c vergleichbar hohe Werte für $H_{c2\parallel}$ annimmt, ist dieser Abfall sogar noch ausgeprägter.
Für die $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalle bedeutet dies, dass sie trotz der zusätzlichen magnetischen Komponente, die bei 6 T bereits gesättigt vorliegt, mindestens ähnlich hohe Werte für $H_{c2}^{\parallel}$ besitzen wie die „klassischen“ Kuprate. Dies spricht zum einen für den stark ausgeprägten 2-dimensionalen Charakter der supraleitenden Bereiche, wie er auch für die Kuprate typisch ist. Es bedeutet aber ebenfalls, dass diese Bereiche

[3] In dieser Arbeit wurde genau genommen nur die Feldabhängigkeit der Irreversibilitätslinie gemessen, d. h. derjenigen Temperatur, bei der die Vortizes von einer flüssigen Phase in einen gepinnten Zustand übergehen. Das eigentliche kritische Feld, bei dem die Supraleitung vollständig unterdrückt wird, kann also noch deutlich höher liegen.

innerhalb des Kristalls auf wenige Grad genau parallel angeordnet waren. Polykristalline Kristalle, in denen immer auch Felder senkrecht zu den Ebenen angelegt wurden, zeigten auf deutlich kleineren Feldskalen eine Verschiebung des supraleitenden Übergangs [Che01, Hai01, Kum01]. Schließlich kann hierdurch auch die Fehlorientierung des Kristalls im externen Magnetfeld auf wenige Grad abgeschätzt werden.[4]

4.2.4 Elektrischer Transport im Magnetfeld

In diesem Teil werden Transportmessungen vorgestellt, die in Magnetfeldern bis 7 T durchgeführt wurden. Magnetfeldabhängige Messungen sind von besonderem Interesse, weil ein externes Feld die Ruthenokuprate gleich auf zwei Arten beeinflussen kann: Zum einen kann es eine ferromagnetische Ausrichtung der antiferromagnetisch geordneten RuO_2-Ebenen erzwingen. Zum anderen ist es sehr wahrscheinlich, dass es wie in den herkömlichen Hochtemperatursupraleitern zur Ausbildung eines breiten Spektrums an verschiedenen Vortex-Phasen kommt.
Die Messungen werden anhand unterschiedlicher Temperaturbereiche diskutiert: Zunächst wird auf den Magnetotransport der Kristalle nahe der magnetischen Ordnungstemperatur (130–140 K) eingegangen. Hier kann das magnetische Untersystem, d. h. das Verhalten der RuO_2-Ebenen, unabhängig von der supraleitenden Komponente untersucht werden. Der nächste Abschnitt behandelt die Frage, inwiefern die Sprungtemperatur durch ein externes Magnetfeld beeinflusst wird. In diesem Zusammenhang wird näher auf die Überlegungen zum kritischen Feld eingegangen, die bereits im Zusammenhang mit der Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms (Seite 111) diskutiert wurden. Schließlich werden die magnetfeldabhängigen Messungen im supraleitenden Zustand vorgestellt. Wie sich herausstellen wird, kann in den $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen eine ausgeprägte Josephson-Vortex-Dynamik beobachtet werden, die eine auffallende Ähnlichkeit zu jener im Hochtemperatursupraleiter $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ aufweist.

[4] In Abschnitt 4.2.4 wird gezeigt, dass die parallele Ausrichtung der supraleitenden Ebenen sogar auf deutlich besser als 1° bestimmt werden kann.

Magnetowiderstand oberhalb T_c

Aufgrund der Tatsache, dass die magnetische Ordnung bereits deutlich oberhalb des supraleitenden Übergangs einsetzt, ist es möglich, das Verhalten des magnetischen Untersystems separat zu untersuchen. Die Magnetowiderstandseffekte, wie sie im Folgenden vorgestellt werden, waren äußerst gering (∼1%). Es war daher besonders wichtig, die Temperatur möglichst stabil zu halten. Dazu wurde das Isoliervakuum des Adiabaten gerinfügig geflutet. Dies erhöhte zwar die Ankopplung an das Heliumbad, so dass verstärkt gegengeheizt werden musste. Allerdings reagierte das System so schneller auf Temperaturschwankungen, was eine höhere Temperaturstabilität ermöglichte.
Untersuchungen bei höheren Temperaturen waren immer mit der Gefahr verbunden, dass der Kristall durch Verrutschen der Kontaktstifte aus dem Probenhalter fallen könnte. Daher wurde die Anzahl der Messungen oberhalb der Sprungtemperatur möglichst gering gehalten. Speziell wurde vor allem der Bereich nahe der magnetischen Ordnungstemperatur T_{mag} (130–140 K) untersucht, da hier auch schon in den Abkühlkurven Anzeichen eines Phasenübergangs beobachtet werden konnten (vgl. Seite 97).
Abbildung 4.16 zeigt eine Magnetowiderstandskurve ($R(H)$-Kurve) der Probe *#st16* bei 135 K. Das Feld wurde etwa senkrecht zu den Ebenen angelegt. Bis etwa 70 mA kommt es zu einem geringfügigen Anstieg im Widerstand ($\Delta R/R(0) \approx 1‰$). Danach fällt die Kurve linear mit steigendem Magnetfeld. In einem Feld von 6 T beträgt der Magnetowiderstandseffekt schließlich ein knappes Prozent. Es ist keine nennenswerte Hysterese zu erkennen.

Negativer Magnetowiderstand oberhalb 70 mT Oben genanntes Verhalten ist in Übereinstimmung mit Transportmessungen, wie sie von McCrone *et al.* bzw. Chen *et al.* an polykristallinen Proben durchgeführt wurden [McC99, Che01]. Dort wird der negative Magnetowiderstand allerdings im Rahmen des sogenannten *s-d*-Modells (oder auch Kondo-Modell) diskutiert. Der Magnetowiderstand wird dabei durch Streuung

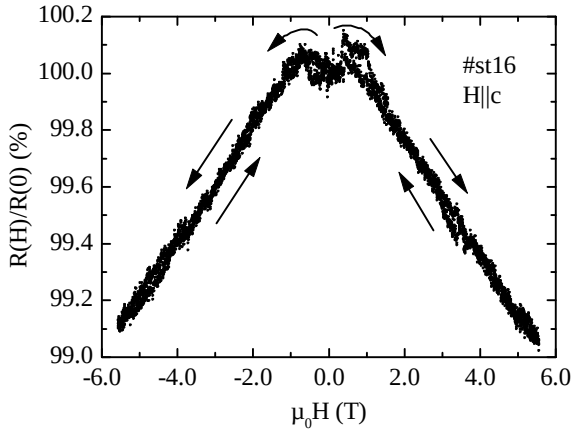

Abbildung 4.16: Magnetowiderstandskurve der Probe *#st16* bei 135 K (normiert). Das Magnetfeld wurde senkrecht zu den CuO_2-Ebenen angelegt.

der itineranten *s*-Elektronen an den lokalen *d*-Elektronen der magnetischen Ru-Ionen hervorgerufen. Durch ein externes Magnetfeld kommt es zu einer Reduzierung der Spin-Unordnung und somit zu einer Abnahme der spinabhängigen Streuprozesse, der Widerstand sinkt. Dabei gilt folgender Zusammenhang zwischen dem magnetfeldabhängigen Widerstand ρ_{mag} und der Magnetisierung M [McC99]:

$$\Delta\rho_{mag} \propto M^2. \tag{4.5}$$

Wie Magnetisierungsmessungen an polykristallinen Proben (Abbildung 4.17) belegen, zeigt $M(H)$ in der Nähe der magnetischen Ordnungstemperatur in der Tat einen wurzelförmigen Verlauf [But01] (bei diesem Material wurde Gd durch Eu ersetzt, um so den paramagnetischen Einfluss der Gd-Ionen mit $7\mu_B$ zu umgehen), was zu der beobachteten linearen Feldabhängigkeit des Magnetowiderstands führen könnte. Allerdings gilt dieses Modell genau genommen nur für den in-plane-Widerstand. Da der Transport senkrecht zu den Ebenen durch Tunnelprozesse stattfindet, sollten Streueffekte nur einen extrem geringen Beitrag leisten.
Auch ohne externes Magnetfeld führt die (in diesem Fall antiferroma-

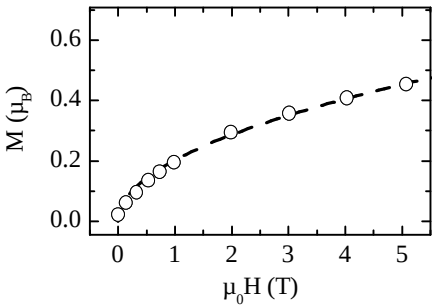

Abbildung 4.17: Magnetisierungskurve einer polykristallinen $RuSr_2EuCu_2O_8$-Probe bei 140 K (aus [But01]). Die gestrichelte Linie gibt den wurzelförmigen Verlauf $M \propto \sqrt{H}$ wieder.

gnetische) Ordnung nahe T_{mag} zu einer geringfügigen Widerstandsabnahme, was die schwach ausgeprägte Schulter in der $R(T)$-Abhängigkeit (Seite 97) erklärt. McCrone *et al.* konnten kürzlich zeigen, dass bei T_{mag} die Leitfähigkeit in den RuO_2-Ebenen von $0.1\sigma_{Cu}$ auf $0.3\sigma_{Cu}$ ansteigt (dabei ist σ_{Cu} die Leitfähigkeit in den CuO_2-Ebenen) [McC03]. Die Autoren führen dies auf eine Delokalisierung der Ladungsträger in den RuO_2-Ebenen zurück. In diesem Zusammenhang wird aufgrund der Mischung aus Ru^{4+} und Ru^{5+}-Ionen auch ein Doppelaustausch-Modell diskutiert. Während die oben genannte Streuung vor allem für den metallischen in-plane-Transport eine Rolle spielt, würde die feldinduzierte Delokalisierung der Ladungsträger auch bei Tunnelprozessen parallel zur c-Achse eine meßbaren Einfluss liefern. Dass nicht nur Mn-Ionen, sondern auch Ru-Ionen prinzipiell zu einem Doppelaustausch fähig sind, konnte anhand von Mn↔Ru-Substitution in CMR-Materialien vom Typ $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ nachgewiesen werden [Kri99].

Positiver Magnetowiderstand unterhalb 70 mT Der positive Magnetowiderstand in Feldern unterhalb 70 mT zeigt eine geringere Magnetfeldabhängigkeit. Er kann vermutlich dem „normalen“ positiven Magnetowiderstand zugeordnet werden. Ursache ist dabei die Lorentzkraft auf die bewegten Ladungsträger, die hierdurch auf Kreisbahnen gezwungen werden, was die effektive freie Weglänge zwischen zwei Streuprozessen verringert.

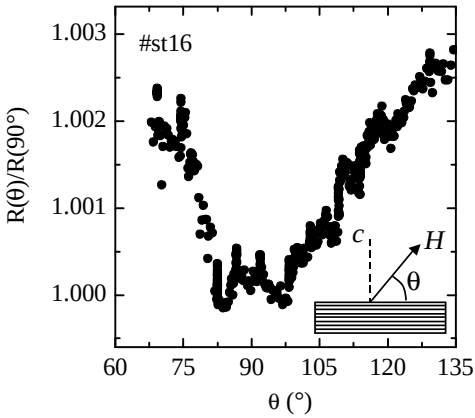

Abbildung 4.18: Winkelabhängigkeit des Widerstands der Probe *#st16* bei 135 K. Das angelegte Magnetfeld betrug 6 T. Die Kurve ist normiert auf den Wert bei Feldern senkrecht zu den Ebenen.

Winkelabhängigkeit des Magnetowiderstands Abbbildung 4.18 zeigt den Widerstand der Probe *#st16* in Abhängigkeit von der Magnetfeldorientierung relativ zu den Ebenen. Die Kurve zeigt eine schwache Modulation mit einem Minimum bei senkrechten Feldern. Da die Probe die Form eines dünnen Plättchens hatte, könnten hierfür Entmagnetisierungseffekte in Frage kommen. Ein dünnes Plättchen weist für Feldorientierungen entlang der Ebenen einen deutlich geringeren Entmagnetisierungsfaktor auf.[5] Sicherlich leistet aber auch der normale Magnetwiderstand ein Beitrag. Dieser ist typischerweise bei Feldern senkrecht zum Stromtransport höher als parallel dazu und verursacht somit im Falle $H \| ab$ einen höheren Widerstand.

Spin-Flop? Dass der negative Magnetowiderstand relativ scharf einsetzt und erst ab einem Feld von etwa 70 mT gemessen werden kann, legt nahe, dass es erst in diesem Bereich schlagartig zu einer Umordnung innerhalb des magnetischen Systems kommt. Hierfür böte sich der für $RuSr_2GdCu_2O_8$ vorhergesagte „Spin-Flop"-Übergang an, bei dem in einem Feld H_{sf} senkrecht zu den Ebenen die antiferromagnetische Ausrichtung benachbarter Ru-Ionen entlang der c-Achse überwunden

[5] Für die Entmagnetisierungsfaktoren einer unendlich ausgedehnten dünnen Schicht gilt: $N_\| = 0$, $N_\perp = 1$

wird [Lyn00]. Der genaue Wert für H_{sf} hängt von diversen Parametern wie beispielsweise den magnetischen Kopplungsstärken zwischen den Ru-Ionen ab. Er könnte nahe der magnetischen Ordnungstemperatur aber durchaus in dem fraglichen Bereich liegen [But01]. Ein solcher Spin-Flop konnte allerdings in den eigenen Magnetisierungsmessungen nicht festgestellt werden.

Supraleitender Übergang im Magnetfeld

Im Folgenden soll untersucht werden, inwiefern ein externes Magnetfeld zu einer Verschiebung von T_c führen kann. Dies lässt Rückschlüsse auf das kritische Feld H_{c2} der $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristalle zu. Mit der in diesem Abschnitt verwendeten Methode, hierzu den resistiven Übergang zu analysieren, kann allerdings lediglich eine untere Grenze für die kritischen Felder angegeben werden. Denn auch im supraleitenden Zustand, also unterhalb $T_c(H)$, kann es durch die Bewegung von Vortizes zu einem Spannungsabfall kommen. Der Zustand $R = 0$ wird daher erst unterhalb der Irreversibilitätslinie zu beobachten sein, wenn alle Flusswirbel gepinnt sind.

Für die Messungen wurden die Proben bei tiefen Temperaturen mit Hilfe des Flux-Flow-Peaks (siehe Seite 125ff) im Feld ausgerichtet und anschließend $R(T)$-Kurven in verschiedenen Magnetfeldern aufgezeichnet. Die Geschwindigkeit, mit der dabei die Temperatur gefahren wurde, betrug weniger als $1\,\mathrm{K\,min^{-1}}$.

Abbildung 4.19 zeigt entsprechende Messungen an den Proben *#st21* und *#st24* in Feldern bis maximal 6 bzw. 5 T. Der Unterschied zwischen den Messungen besteht darin, dass bei der Probe *#st21* das Feld parallel, bei der Probe *#st24* hingegen senkrecht zu den CuO_2-Ebenen angelegt wurde.

Die Probe *#st21* (Abbildung 4.19 a) hatte im Nullfeld ein T_c von etwa 55 K.[6] Die Breite des Übergangs betrug ungefähr 15 K. Durch Anlegen eines Magnetfeldes verschob sich der supraleitende Übergang bereits in

[6] Als Sprungtemperatur T_c wird in dieser Arbeit stets die Temperatur definiert, bei der der Widerstand auf die Hälfte abgesunken ist.

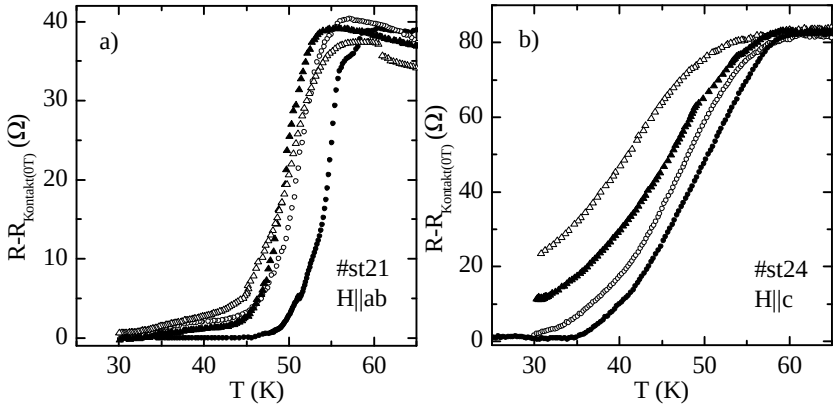

Abbildung 4.19: Supraleitender Übergang im externen Magnetfeld
a) Probe *#st21*, $H\|ab$ (•: 0 T ○: 0.3 T ▲: 2 T, △: 6 T)
b) Probe *#st24*, $H\|c$ (•: 0 T ○: 1 T ▲: 3 T, △: 5 T)

einem Feld von 0.3 T auf etwa 51 K. Eine weitere Erhöhung des Feldes auf bis zu 6 T führte hingegen nur noch zu einer geringfügigen Verschiebung der Sprungtemperatur (siehe auch Abbildung 4.20, ○-Symbole). Die Form des Übergangs wurde kaum durch das Magnetfeld beeinflusst. Lediglich im untersten Teil kam es bereits in einem Feld von 0.3 T zur Ausbildung eines kleinen „Fußes“, so dass hier erst bei etwa 30 K ein vollständig supraleitender Zustand erreicht wurde. Dieser „Fuß“ könnte auf die Bewegung von Vortizes zurückführbar sein.

Anders verhielt sich die Probe *#st24*, bei der das Magnetfeld senkrecht zu den Ebenen angelegt wurde (Abbildung 4.19 b). Diese Probe hatte im Nullfeld einen relativ breiten Übergang von 25 K und ein T_c von etwa 49 K. Die Feldabhängigkeit war hier deutlich ausgeprägter als im Falle $H\|c$. Ein Feld von 1 T verursacht zwar zunächst lediglich eine Verschiebung von T_c um 2 K. Allerdings nimmt dieser Effekt mit zunehmendem Magnetfeld in etwa linear zu (Abbildung 4.20, •-Symbole). Die 5 T-Kurve besitzt bereits ein T_c von weniger als 39 K. Die Messungen konnten aufgrund eines mit sinkender Temperatur ansteigenden Kontaktwiderstands nur bis etwa 30 K ausgewertet werden. Doch zeigt sich hier bereits, dass

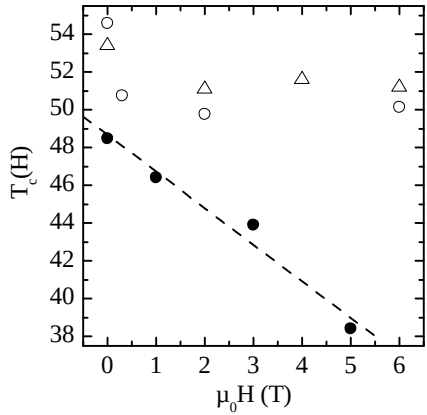

Abbildung 4.20: Magnetfeldabhängigkeit der Temperatur „T_c“, bei der der Widerstand auf die Hälfte abgesunken ist. Bei der durch offene Symbole gekennzeichneten Probe *#st21* ist das Feld parallel, bei der durch „•“ gekennzeichneten Probe *#st24* senkrecht zu den CuO_2-Ebenen angelegt. Die gestrichelte Linie ist ein linearer Fit. Näheres siehe Text.

der vollständig supraleitende Zustand (wenn überhaupt) erst bei sehr tiefen Temperaturen erreicht werden würde.

Die Unterschiede in der Feldabhängigkeit der beiden Orientierungen deuten auf deutlich verschiedene Werte für die kritischen Felder $H_{c2}^{\parallel}$ (parallel) und $H_{c2}^{\perp}$ (senkrecht) zu den Ebenen hin. $H_{c2}^{\parallel}$ wurde bereits eingehender im Zusammenhang mit der Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms diskutiert (Seite 111). Während dort jedoch bei Feldern parallel zu den Ebenen bis 6 T nur ein sehr geringer Einfluss zu verzeichnen war (vergleiche auch Abbildung 4.20, △-Symbole), so deutet die etwas größere T_c-Verschiebung in Abbildung 4.19 a an, dass das Feld bei den nun vorgestellten $R(T)$-Messungen nicht ganz so perfekt ausgerichtet war. Ein möglicher Grund hierfür wäre, dass nun nur einmal die parallele Orientierung eingestellt wurde und die nachfolgende Temperaturänderung unweigerlich zu einer geringfügigen Drehung der Probe führte. Da aufgrund des verwendeten Stifthalters auch eine geringe Verdrehung des Kristalls durch eine externes Magnetfeld nicht ausgeschlossen werden kann (vgl. Abbildung 4.32, Seite 135), lässt sich erklären, weshalb beispielsweise die 6 T-Kurve eine scheinbar etwas höhere Onset-Temperatur besitzt als die 2 T-Messung. Trotzdem zeigt sich auch hier, dass die Werte für das kritische Feld parallel zu den Ebenen (wie bei den stark anisotro-

pen Hochtemperatursupraleitern üblich) bereits nahe T_c sehr hoch sind. Im Falle senkrechter Feldorientierung ist das kritische Feld $H_{c2}^{\perp}$ hingegen deutlich geringer, der supraleitende Übergang wird im externen Magnetfeld zu tieferen Temperaturen verschoben. Dieses Verhalten ist auch von den Hochtemperatursupraleitern wie $YBa_2Cu_3O_7$ und $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ bekannt. Hier ergibt sich nahe T_c ein Verhältnis $H_{c2}^{\parallel}/H_{c2}^{\perp} \approx 10$ [Nau88].[7] Es kann also abermals die Schlussfolgerung gezogen werden, dass trotz der magnetischen RuO_2-Ebenen die $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalle auch bei diesen Messungen eine ausgesprochene Ähnlichkeit zu den gewöhnlichen Kupraten aufweisen.

Kohärenzlänge $\xi_{ab}(0)$ Auch wenn nur wenige Messpunkte vorliegen, so deutet Abbildung 4.20 in etwa einen linearen Verlauf des kritischen Feldes (genauer: der Irreversibilitätslinie) mit der Temperatur an. Dies ist eine direkte Konsequenz aus dem Zusammenhang zwischen H_{c2} und der Kohärenzlänge $\xi(T)$ (vgl. Gleichungen 2.2 und 2.5). Die gestrichelte Linie in Abbildung 4.20 besitzt die Form

$$T_c(H) = 48.7\,\mathrm{K} - 1.94\,\mathrm{K/T} \cdot \mu_0 H. \tag{4.6}$$

Unter Ausnutzung der WHH-Theorie (Gleichung 2.6) kann hiermit das kritische Feld bei tiefen Temperaturen, $H_{c2}^{\perp}(0)$, zu etwa 20 T berechnet werden. Schließlich ergibt sich mit Hilfe von Gleichung 2.5 eine Kohärenzlänge $\xi_{ab}(0)$ in der Ebene von ungefähr 40 Å. Dieser Wert ist mit dem von $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ (23 Å) bzw. $YBa_2Cu_3O_7$ (17 Å) vergleichbar [Kle03]. Der etwas höhere Wert ist einerseits konsistent mit der geringeren Sprungtemperatur. Andererseits kann davon ausgegangen werden, dass das reale kritische Feld $H_{c2}^{\perp}(0)$ höher liegt. Dies würde unmittelbar zu einer Verringerung der Kohärenzlänge führen.

[7] Es sei betont, dass sowohl in der zitierten als auch in der vorliegenden Arbeit genau genommen nur die Feldabhängigkeit der Irreversibilitätslinie, also der Temperatur bei der das Fluxonen-Gitter von der flüssigen in eine gepinnte Phase übergeht, bestimmt wurde. Die Messungen stellen daher eine *Untergrenze* für das wahre kritische Feld H_{c2} dar.

Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stroms

Die nun folgenden $I_c(H)$-Messungen in Feldern parallel zu den CuO_2-Ebenen liefern wichtige Aussagen darüber, auf welchen Feldskalen die Josephson-Kopplung zwischen den Ebenen durch ein externes Magnetfeld beeinflusst wird. Die lateralen Abmessungen der Kristalle (durchschnittlich mehr als 30 μm Kantenlänge) waren deutlich größer als die aus der kritischen Stromdichte berechnete Josephsonlänge λ_J (weniger als 700 nm, vgl. Seite 104). Daher ist davon auszugehen, dass es zur Ausbildung von Josephson-Flusswirbeln in den intrinsischen Kontakten kommt, sobald ein kritisches Feld $H_{c1}^{\parallel}$ überschritten wird. Am Beispiel der im Folgenden vorgestellte Probe *#st16* mit einer durchschnittlichen Kantenlänge $L \approx 70\,\mu$m und einer Kontaktdicke $s \approx 12$ Å reicht bereits ein Feld von knapp 25 mT aus, um pro Kontakt im Schnitt einen Flusswirbel zu erzeugen. Würde es sich bei der Probe um einen kurzen Kontakt handeln, so wäre gemäß dem Fraunhofer-Muster (Gleichung 2.31) auf dieser Feldskala eine deutliche Abnahme im kritischen Strom zu erwarten [Bul92]. Für lange Kontakte hingegen wird nach der Fistul-Giuliani-Theorie [Fis94] ein monotoner Abfall des kritischen Stroms mit zunehmendem Feld vorhergesagt.

Zur Messung der $I_c(H)$-Abhängigkeit wurde für jedes Feld eine Strom-Spannungs-Kennlinie aufgezeichnet, aus der der kritische Strom extrahiert werden konnte. Abbildung 4.21 zeigt den innersten Ast der Kennlinie der Probe *#st16* für eine Auswahl an Magnetfeldern. Wie zu erkennen ist, biegt die Kennlinie in kleinen Feldern nahe I_c zu höheren Spannungen hin ab. Mit steigendem Magnetfeld geschieht dies bei immer kleineren Strömen. Gleichzeitig nimmt dabei die Krümmung der Kurve zu. Der kritische Strom, bei dem es zum Sprung auf einen der resistiven Äste kommt, sinkt annähernd monoton. Bei einem Feld von 1 T beträgt er schließlich nur noch in etwa die Hälfte (siehe auch Abbildung 4.22). An dieser Stelle sei angemerkt, dass die Definition des kritischen Stroms bei Messungen mit gekrümmtem innersten Ast keineswegs eindeutig ist. Möglich wäre auch, denjenigen Strom als I_c zu definieren, bei dem es erstmalig zu einem Spannungsabfall kommt. Er wird im Folgenden als

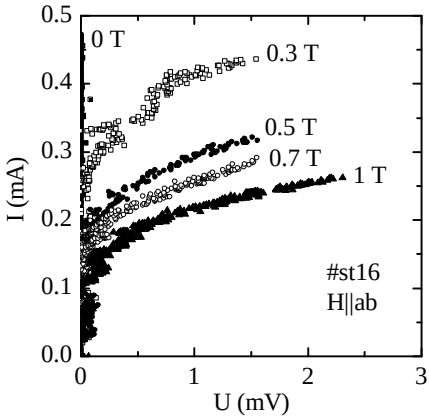

Abbildung 4.21: Innerster Ast der Kennlinie der Probe *#st16* für verschiedene Felder parallel zu den Ebenen. Der Kontakwiderstand im Nullfeld wurde abgezogen. Die Temperatur betrug 4.2 K.

I_c^{0V} bezeichnet. Wie Abbildung 4.21 zu entnehmen ist, spielt dieser Unterschied vor allem bei kleinen Feldern eine Rolle. Auf das Verhalten von I_c^{0V} wird am Ende dieses Abschnitts nochmals eingegangen.

Josephson-Flux-Flow Die Krümmung der Kennlinien ist ein Indiz dafür, dass es in diesem Bereich zu einem Spannungsabfall durch sich bewegende Josephson-Flusswirbel kommt. Da das Feld mit relativ hoher Präzision parallel zu den Ebenen ausgerichtet wurde, ist der Anteil senkrecht zu den Ebenen vermutlich geringer als das kritische Feld $H_{c1}^{\perp}$. Somit kommt es (wenn überhaupt) nur zu einer geringen Ausbildung von Abrikosov-Flusswirbeln senkrecht zu den Schichten, die Josephson-Flusswirbel können zwischen den CuO_2-Ebenen laufen.

$I_c(H)$ Abbildung 4.22 zeigt die aus den Kennlinien extrahierte Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stroms. Auf einer großen Feldskala ist zu erkennen, dass er bis ungefähr 0.2 T geringfügig abnimmt. Im weiteren Verlauf kommt es ab etwa 0.3–0.4 T zu einem zweiten, ausgeprägten Abfall. Der linke Inset zeigt die $I_c(H)$-Kurve im Feldbereich bis 0.1 T. Es ist ein geringfügiger Anstieg bis 0.05 T erkennbar, der daraufhin wieder abnimmt. Dieser Anstieg konnte allerdings bei anderen Proben nicht reproduziert werden, so dass es sich hierbei vermutlich um eine Hyste-

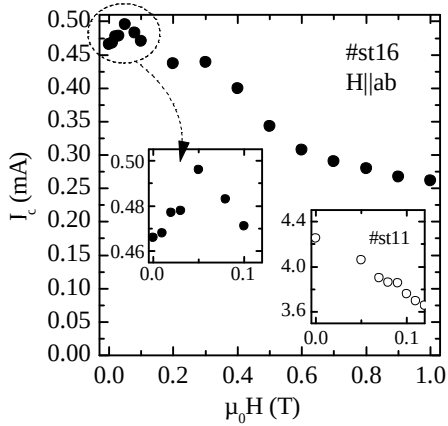

Abbildung 4.22: Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stroms der Probe *#st16* in Feldern parallel zu den Ebenen. Der linke Inset zeigt eine Vergrößerung des Bereichs kleiner Felder. Der rechte Inset zeigt zum Vergleich eine entsprechende Messung im gleichen Feldbereich für die Probe *#st11*.

rese handelt. Bei der Probe *#st11* ergab sich beispielsweise ein in etwa linearer Abfall bis etwa 0.2 T (rechter Inset).

Fistul-Giuliani-Theorie Die $I_c(H)$-Messungen zeigen, dass es auf der Skala eines einzelnen Flussquants pro Kontakt ($\sim 25\,\mathrm{mT}$) zu keiner messbaren Abnahme des kritischen Stroms kommt. Dies deutet neben dem beobachteten Josephson-Flux-Flow darauf hin, dass sich die untersuchten $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristalle wie ein intrinsischer Stapel aus langen Josephson-Kontakten verhalten, d. h. $L \gg \lambda_J$.
Gemäß der Fistul-Giuliani-Theorie sollte der kritische Strom dann den Zusammenhang

$$\frac{I_c(0) - I_c(H)}{I_c(0)} \approx \sqrt{\frac{H}{H_0}} \tag{4.7}$$

erfüllen. Dabei gibt $\mu_0 H_0 = \Phi_0 \lambda_{ab}/(\pi^2 s^2 \lambda_c)$ das Feld vor, bei dem der kritische Strom nahezu auf null abgesunken ist. In Abbildung 4.23 ist der linke Teil der Gleichung 4.7 gegenüber dem Magnetfeld doppeltlogarithmisch aufgetragen. Wie zu erkennen ist, liegen die Messwerte oberhalb von etwa 0.4 T in dieser Darstellung auf einer Geraden. Gestrichelt ist zusätzlich die rechte Seite der Gleichung 4.7 aufgetragen. Für $\mu_0 H_0$ wurde hier ein Wert von 5.1 T eingesetzt. Im Vergleich zu $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ ($\mu_0 H_{0,\mathrm{BSCCO}} \approx 0.1\,\mathrm{T}$) ist dies ein ausgesprochen hoher Wert. Er stünde

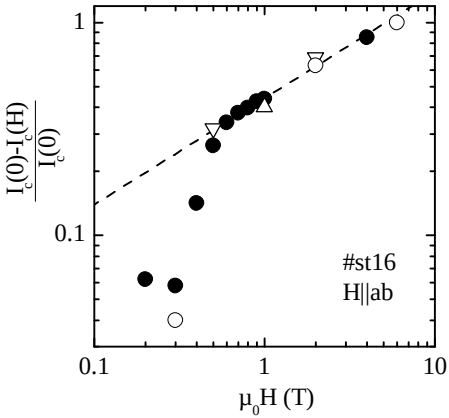

Abbildung 4.23: Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stroms verschiedener Proben gemäß Gleichung 4.7. ▽: *#st12*, •: *#st16*, ○: *#st21*, △: *#st22*. Die gestrichelte Linie gibt den Verlauf $\sqrt{\mu_0 H/5.1\,\mathrm{T}}$ wieder. Näheres siehe Text.

jedoch in Einklang mit den sehr hohen Werten für λ_{ab}, die in AC-Suszeptibilitätsmessungen bestimmt wurden (2.5–6 μm) [Xue01]. Diese gehen linear in die Berechung von H_0 ein. In Gleichung 4.7 tauchen die jeweiligen Probenabmessungen nicht mehr explizit auf. Hier ist das Feld, nicht der magnetische Fluss die entscheidende Größe. Daher folgen alle untersuchten Proben in etwa dem gleichen Kurvenverlauf (Abb. 4.23). Mit der Definition von H_0 ist es möglich, das Anisotropie-Verhältnis λ_c/λ_{ab} zu bestimmen. Es beträgt lediglich 30 (vgl. $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$: $\lambda_c/\lambda_{ab,\mathrm{BSCCO}} \approx 300$ [Lat96]). Mit den oben genannten hohen Werten für λ_{ab} kann λ_c aber durchaus Werte von 100–200 μm annehmen. Dies ergäbe für die kritische Stromdichte einen Wert von etwa $500\,\mathrm{A\,cm^{-1}}$, was in etwa ein Größenordnung höher liegt als die direkte Abschätzung aus dem kritischen Strom und der Querschnittsfläche der Kristalle (vgl. Abschnitt 4.2.2). Dieser Wert wurde dort aber bereits als untere Grenze angenommen.

I_c^{0V} Wie eingangs diskutiert, ist nicht unmittelbar klar, welcher Wert als „kritischer Strom“ herangezogen werden soll. Die obigen Untersuchungen bezogen sich auf den Strom, bei dem es erstmals zu einem Sprung auf einen der resistiven Äste kam. Naheliegend wäre aber auch, denjenigen Stromwert zu ermitteln, bei dem der innerste Ast anfängt

abzuknicken, d. h. es erstmals zu einem Spannungsabfall kommt. Dieser Strom I_c^{0V} nimmt bereits bei etwa 0.05 T ab (Abbildung 4.24). Ab

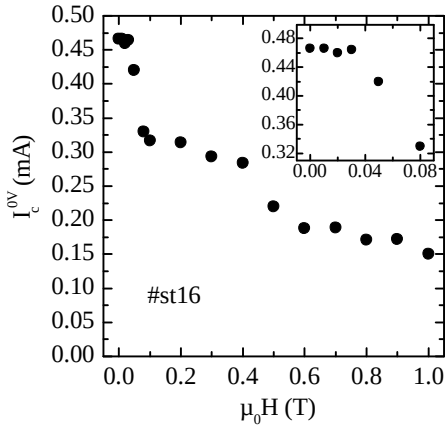

Abbildung 4.24: Magnetfeldabhängigkeit von I_c^{0V}, d. h. dem Strom, bei dem der innerste Ast abknickt, der Probe *#st16*. Der Inset zeigt eine Ausschnittsvergrößerung des Bereichs kleiner Felder.

ungefähr 0.1 T kommt es vorübergehend zur Ausbildung eines Plateaus. Wie I_c, so fällt auch I_c^{0V} bei etwa 0.4 T merklich ab.
I_c^{0V} ist eng mit dem Verhalten der Josephson-Vortizes verknüpft. Die Stufen deuten daher an, dass es bei diesen Feldern zu einer Änderung in der Konfiguration des momentanen Flusswirbelgitters kommen könnte. Ein analoges Verhalten konnte in numerischen Simulationen für intrinsische Josephson-Kontakte im entsprechenden Feldbereich (wenige Flussquanten/Kontakt) beobachtet werden [Kle01].

Josephson-Vortex-Dynamik

Die Kennlinien in externen Magnetfeldern (Abb. 4.21) machen deutlich, dass es bei Feldern parallel zu den Ebenen ab einem gewissen Strom zu einem zusätzlichen Spannungsabfall kommt. Dieser kann der Bewegung von Josephson-Flusswirbeln (Josephson-Flux-Flow) zwischen den CuO_2-Ebenen zugeordnet werden. Zwar lassen die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen noch keine detaillierten Aussagen über die exakte Physik der Flusswirbel (beispielsweise die verschiedenen Vortex-Gitter-Typen) zu.

Doch wird sich zeigen, dass das prinzipielle Verhalten dem der Josephson-Flusswirbel in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen sehr ähnlich ist.

Flux-Flow-Widerstand Wie Abbildung 4.21 zeigt, verläuft der resistive Bereich des innersten Astes über weite Teile annähernd linear.[8] Es ist daher möglich, hier einen durch den Josephson-Flux-Flow hervorgerufenen Widerstand zu definieren. Dazu wurde die Steigung der Kennlinien im linearen Bereich ausgewertet. Abbildung 4.25 zeigt den hiermit erhaltenen differentiellen Widerstand der Probe *#st16*. Bis un-

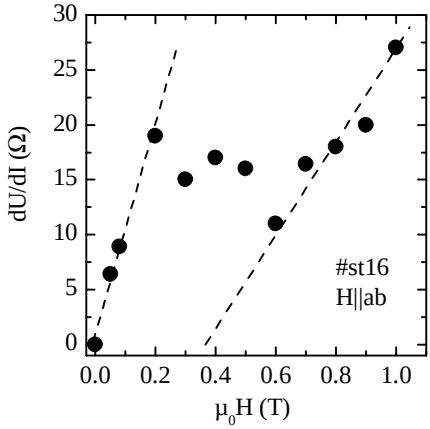

Abbildung 4.25: Differentieller Widerstand des Flux-Flow-Bereichs des innersten Astes der Probe *#st16* für verschiedene Magnetfelder. Das Feld war in etwa parallel zu den CuO_2-Ebenen ausgerichtet. Die gestrichelten Linien deuten den linearen Verlauf an.

gefähr 0.2 T nimmt der differentielle Widerstand im Flux-Flow-Bereich zu, d. h. die Kennlinien werden zunehmend flacher. Dann fällt er geringfügig bis 0.6 T und steigt anschließend wieder.
Dieses Verhalten könnte folgende Ursachen haben:

a) Bis 0.2 T ist die Feldkomponente $H_\perp$ vertikal zu den Ebenen zu gering, um Abrikosov-Vortizes in den CuO_2-Ebenen zu erzeugen (diese Wirbel werden aufgrund ihrer zweidimensionalen Gestalt auch als „Pancake"-Vortizes bezeichnet). Der Spannungsabfall ist

[8] Bei Messungen an $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen konnte ein perfekt linearer Verlauf festgestellt werden, weshalb dieser Bereich dort auch als „displaced linear branch" bezeichnet wurde [Hec97a].

hier in etwa proportional zur Anzahl der laufenden Josephson-Flusswirbel und damit proportional zum externen Feld. Allerdings sind die Josephson-Wirbel durch „Haftzentren“ wie eingefrorene Abrikosov-Vortizes in den Ebenen, Randeffekte u. ä., zunächst gepinnt. Es ist eine genügend hohe Kraft ($\propto I$) nötig, um sie loszureißen. Das erklärt, weshalb die Kennlinien erst ab einer bestimmten Stromstärke abknicken.

b) Da die Probe leicht verkippt war (für die o. g. Messungen wurde die Probe nur einmal justiert und anschließend sämtliche Kennlinien aufgezeichnet) können Abrikosov-Flusswirbel in die Ebenen eindringen, sobald der Anteil $H_\perp$ des externen Feldes größer als das kritische Feld $H_{c1}^\perp$ senkrecht zu den Ebenen ist. Dies geschieht in Abb. 4.25 etwa ab 0.2 T. Die Josephson-Wirbel werden zunehmend durch die Abrikosov-Wirbel gepinnt (vgl. Abb. 4.26 b), der Flux-Flow-Widerstand nimmt ab. Dieses und das in a) beschriebene Verhalten ist vom intrinsischen Josephson-Effekt in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen wohlbekannt [Hec97a, Hec97b].

c) Der erneute Anstieg bei etwa 0.6 T ist zunächst verwunderlich. Zwei Möglichkeiten wären als Ursache denkbar:

Die **erste Möglichkeit** betrachtet lediglich das supraleitende Gitter. So wäre es denkbar, dass es bis zu einem gewissen Feldwert (hier etwa einem halben Tesla) nur in einer begrenzten Anzahl der intrinsischen Josephson-Kontakte zu einer Bewegung der Flusswirbel kommt. Wird das Magnetfeld jedoch weiter erhöht, so beginnen weitere Reihen des Wirbelgitters zu laufen, der in Serie gemessene Flux-Flow-Widerstand nimmt zu. Dieser Effekt wird als „Row-Switching“ bezeichnet. Es sei angemerkt, dass bei dem gleichen Feldwert ein deutlicher Abfall des Depinning-Stroms I_c^{0V} beobachtet wurde (Seite 125), was diese These unterstützt.

Die **zweite Möglichkeit** berücksichtigt hingegen auch das magnetische Untergitter. In diesem Szenario wird der Anstieg des Flux-Flow-Widerstands auf eine kontinuierliche Zunahme der ferroma-

gnetischen Komponente innerhalb der RuO_2-Ebenen zurückgeführt. Dies wäre konsistent mit dem Anwachsen des ferromagnetischen Signals in diesem Feldbereich ($\sim 0.4\,\mathrm{T}$), das in Neutronenstreuexperimenten beobachtet wurde [Lyn00]. Bis ungefähr 1 T nimmt die Magnetisierung M_{ind} parallel zu den Ebenen dabei in etwa linear zu ($\sim 0.6\mu_B/\mathrm{T}$ pro Einheitszelle) [But01]. Das Dipolfeld der lokalen magnetischen Momente würde also das externe Feld ergänzen. Es kommt abermals zu einer etwa linearen Feldabhängigkeit der Flux-Flow-Spannung, diesmal jedoch schwächer, da deutlich mehr Pinningzentren vorhanden sind. Die gestrichelte Linie in Abbildung 4.25 deutet an, dass der erneute Anstieg in der Tat auf ein „Nullfeld“ nahe 0.4 T extrapoliert werden kann.

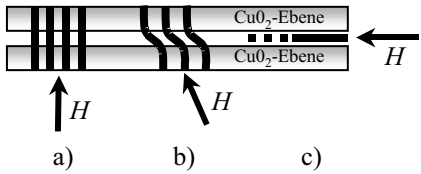

Abbildung 4.26: Je nach Feldorientierung kommt es zu unterschiedlichen Vortizes in den $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen. a) $\sphericalangle(H, ab) = 90°$: Der Magnetische Fluss durchdringt senkrecht die Ebenen, es kommt zur Ausbildung 2-dim. Abrikosov-Flusswirbel; b) $0° < \sphericalangle(H, ab) < 90°$: Es bilden sich Josephson-Flusswirbel zwischen den CuO_2-Ebenen, die mit den Abrikosov-Flusswirbeln verbunden sind; c) $\sphericalangle(H, ab) = 0°$: Es liegen (fast) nur Josephson-Wirbel vor.

Abbildung 4.27 zeigt den innersten Ast der Kennlinie der Probe *#st16* in einem Feld von 1 T und verschiedenen Feldrichtungen bezüglich der Ebenen. Hier war die Probe präziser im externen Feld ausgerichtet. Auch fanden die Messungen bei einer höheren Temperatur statt. Die Flusswirbel können sich daher bei paralleler Feldausrichtung (0°) bereits bei einem Strom von weniger als 0.1 mA losreißen. Bereits eine Verkippung von 5° verursacht jedoch so viele Pancake-Vortizes, dass sich das Losreißen der Josephson-Flusswirbel und damit das Einsetzen eines nennenswer-

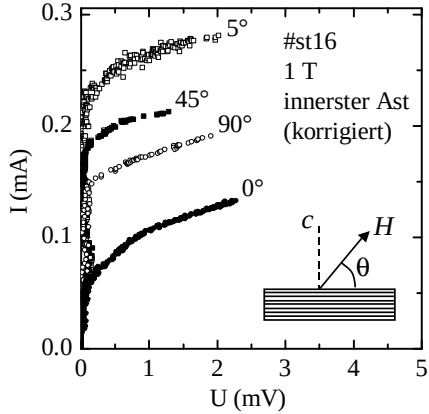

Abbildung 4.27: Innerster Ast der Kennlinie der Probe *#st16* bei verschiedenen Feldrichtungen. Das angelegte Feld betrug 1 T, die Temperatur 20 K. Der Kontaktwiderstand im Nullfeld wurde abgezogen.

ten Spannungsabfalls zu deutlich höheren Strömen verschiebt (vgl. auch Abb. 4.26). Durch weiteres Verkippen der Probe dringen schließlich so viele Abrikosov-Wirbel in die Ebenen ein, dass der kritische Strom I_c der Probe merklich unterdrückt wird. Daher setzt der resistive Zustand mit zunehmenden Winkeln (45° und 90°) bereits wieder bei geringeren Strömen ein.

Flux-Flow-Peak Letztgenanntes Verhalten wird seit langem bei magnetfeldabhängigen Messungen an $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen eingesetzt, um die Probe im Feld auszurichten [Hec97a, Sch99, Hei02a]. In Abbildung 4.28 ist eine entsprechende Messung an einem $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristall dargestellt. Es wurde ein konstanter Biasstrom von 0.15 mA an die Probe angelegt. Anschließend wurde sie in einem externen Magnetfeld gedreht und der Spannungsabfall gegenüber dem Winkel aufgetragen. Deutlich zeigt sich der zusätzliche Beitrag durch Josephson-Flux-Flow nahe paralleler Feldorientierung, der sogenannte „Flux-Flow-Peak“.[9] Dieser Peak ist relativ scharf. Auf halber Höhe betrug seine Brei-

[9]Normalerweise ist dieser Peak nicht ganz so ausgeprägt. Bei der hier vorgestellten Messung lag der Biasstrom jedoch etwas oberhalb des kritischen Stroms nahe paralleler Orientierung (vgl. 0°-Inset), so dass es hier vermutlich zusätzlich zur Flux-Flow-Spannung noch zu einem Sprung auf einen der resistiven Äste kam. Abbildung

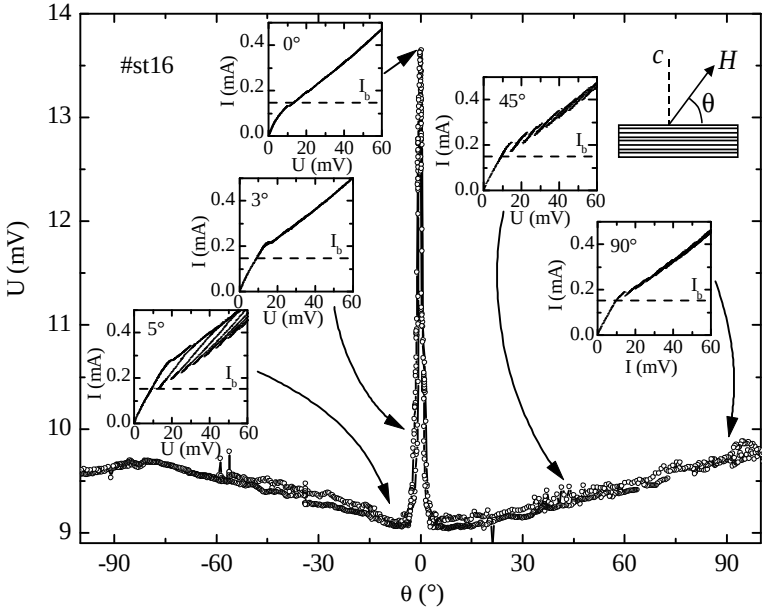

Abbildung 4.28: Winkelabhängigkeit des Widerstands der Probe *#st16* in einem Feld von 1 T. Die Temperatur betrug 20 K, der Biasstrom 0.15 mA. Die Insets zeigen Strom-Spannungskennlinien für ausgewählte Feldorientierungen. Der Kontaktwiderstand wurde hier nicht abgezogen.

te typischerweise um die 3°. Deshalb war es möglich, in hohen Feldern, in denen der Flux-Flow-Peak noch ausgeprägter ist, die Probe auf bis zu ±0.01° im Magnetfeld zu justieren. Der deutlich breitere Widerstandsanstieg bei senkrechter Feldorientierung ist auf die Abnahme des kritischen Stroms durch Pancake-Vortizes in den Ebenen zurückführbar. Dieser Beitrag sollte bei exakt paralleler Feldorientierung gegen null gehen, da die CuO_2-Ebenen als quasi 2-dimensional angesehen werden können.

Magnetfeldabhängigkeit des Flux-Flow-Peaks Die Abbildungen 4.29 und 4.30 zeigen die Winkelabhängigkeit des Widerstands der Pro-

4.29 zeigt eine Messung an der Probe *#st21*, bei der der Biasstrom geringer gewählt wurde.

be *#st21* für Felder bis 4 T. Sowohl die Höhe des Flux-Flow-Peaks

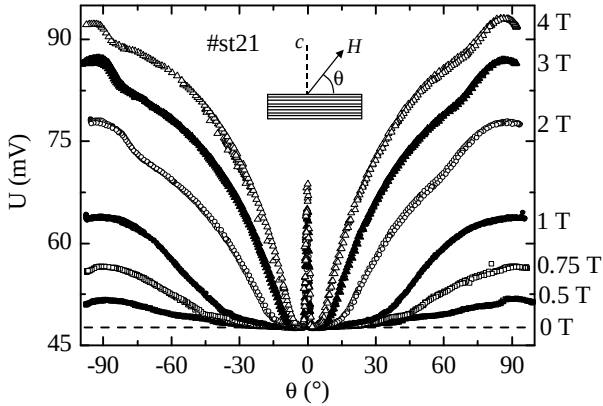

Abbildung 4.29: Winkelabhängigkeit des Widerstands der Probe *#st21* in verschiedenen Magnetfeldern. Die Temperatur betrug 25 K, der Biasstrom 1 mA.

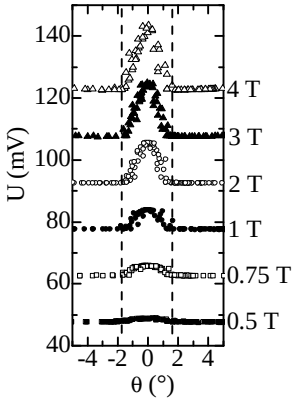

Abbildung 4.30: Vergrößerung der Abbildung 4.29 im Bereich nahe paralleler Feldorientierung. Zum Zwecke der Übersichtlichkeit wurden die Kurven oberhalb 0.5 T in Schritten von 15 mV verschoben. Die gestrichelten Linien deuten an, dass die Peakbreite nahezu unabhängig vom Feld ist.

als auch der Effekt des reduzierten kritischen Stroms nahe ±90° nehmen mit steigendem Magnetfeld immer mehr zu. Dieses Verhalten ist auch von entsprechenden Messungen an $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen bekannt [Hec97a]. Es kann zum Teil mit der zunehmenden Anzahl an

Josephson- bzw. Abrikosov-Flusswirbeln im Einkristall erklärt werden. Auf die Peakhöhe wird weiter unten detaillierter eingegangen.

Breite des Flux-Flow-Peaks Die gestrichelten Linien in Abbildung 4.30 zeigen, ab welcher Feldorientierung die Josephson-Wirbel in der Probe *#st21* zu laufen beginnen. Zunächst einmal widersprüchlich ist dabei die Feststellung, dass die Peakbreite unabhängig vom jeweiligen Magnetfeld zu sein scheint (Abbildung 4.31, „○"-Symbole). Theoretisch wäre eine H^{-1}-Abhängigkeit zu erwarten [Tin96]. An $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$

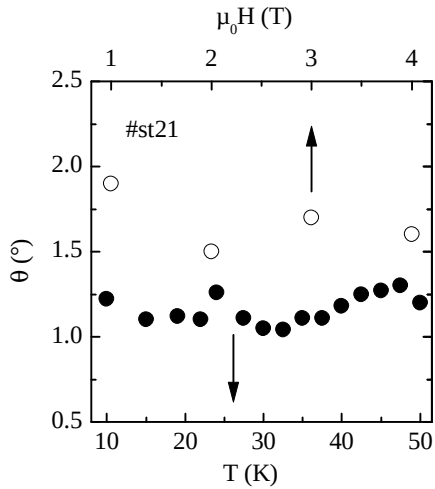

Abbildung 4.31: Halbwertsbreite des Flux-Flow-Peaks der Probe *#st21*.
●: in einem Feld von 2 T für verschiedene Temperaturen;
○: bei 25 K in verschiedenen Feldern. Die beiden Messreihen wurden an unterschiedlichen Tagen aufgenommen.

konnte beispielsweise beobachtet werden, dass die Breite in der Tat mit steigendem Magnetfeld abnimmt [Hec97a]. Es zeigte sich dort, dass die Josephson-Flusswirbel immer dann zu laufen anfingen, wenn die senkrechte Komponente $H_\perp = H_{ext} \sin\theta$ des externen Magnetfelds einen kritischen Wert unterschritten hatte. Dann konnten keine Abrikosov-Wirbel mehr in die CuO_2-Ebenen eindringen, das Pinning nahm schlagartig ab. Es kann zum jetzigen Zeitpunkt nur spekuliert werden, weshalb ein solches Verhalten nicht auch bei den $RuSr_2GdCu_2O_8$-Proben beobachtet wird. Tabelle 4.3 ist zu entnehmen, dass die Peakbreite zwischen den untersuchten Proben nur um wenige Grad variiert. Auch bezüglich der Temperatur ist bis nahe T_c kaum eine Änderung erkennbar (Abbildung

Bezeichnung	Peakbreite (°)
st12	2–4
st16	2–4
st21	1–2
st22	2–4
st23	5

Tabelle 4.3: Halbwertsbreite des Flux-Flow-Peaks verschiedener Proben.

4.31, „•"-Symbole).
Es bieten sich drei Erklärungsmöglichkeiten:

1. *Die konstante Peakbreite ist keine Eigenschaft der supraleitenden Ebenen sondern des magnetischen Untergitters*: Immerhin ist die Existenz einer magnetischen Komponente der Hauptunterschied zwischen $RuSr_2GdCu_2O_8$ und „konventionellen" Hochtemperatursupraleitern. Die externen Felder, die angelegt werden mussten, um ein messbares Flux-Flow-Signal zu erhalten, waren höher als 0.4 T. Damit wären sie aber hinreichend stark, um den in Neutronenstreuexperimenten beobachteten Spin-Flop-Übergang der Ru-Ionen auslösen zu können. Dieser führt zu einem sprunghaften Anwachsen des Feldes entlang der *c*-Achse und damit zu einer Zunahme der Pancake-Wirbel in den CuO_2-Ebenen. Die Josephson-Vortizes werden schlagartig gepinnt. Allerdings findet sich in der Literatur kein Beispiel, in dem der Spin-Flop-Übergang lediglich eine Winkelabhängigkeit und keine Abhängigkeit vom jeweiligen Feldwert aufweist. Somit kann dieser Effekt zwar für die konstante Peakbreite bei verschiedenen Temperaturen (alle Messungen fanden deutlich unterhalb T_N statt), nicht jedoch in unterschiedlichen Magnetfeldern verantwortlich sein.

2. *Die konstante Peakbreite wird durch eine Hintereinanderschaltung geringfügig verkippter Josephson-Kontakte verursacht*: Durch Fehler in der Kristallstruktur der $RuSr_2GdCu_2O_8$-Proben könnte es zu

einer Abweichung in der parallelen Anordnung der CuO_2-Ebenen kommen. Der Einfluss auf den über alle Kontakte summierten Flux-Flow-Peak kann dabei wiefolgt abgeschätzt werden: Die Streuung bezüglich des Kippwinkels θ werde als gaussförmig angenommen,

$$p(\theta) = \frac{1}{b\sqrt{2\pi}} \cdot \exp\left(\frac{-\theta^2}{2b^2}\right). \tag{4.8}$$

Dabei gibt b die Breite der Streuung vor. Jeder Kontakt liefert einen Beitrag zur Gesamtspannung. Der jeweilige Flux-Flow-Peak sei dabei als einfaches Rechteck der Form

$$U(\theta - \theta_0) = \begin{cases} f(H) & \text{wenn } H_{ext}\sin(\theta - \theta_0) < H_{c1} \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \tag{4.9}$$

idealisiert. Die genaue Form ist allerdings für die Überlegungen irrelevant. Die über alle Kontakte summierte und entsprechend gewichtete Spannung U_{ges} eines solchen Stapels würde sich schließlich zu

$$U_{ges}(\theta) \propto \int_{-\theta_{max}}^{+\theta_{max}} p(\theta_0)U(\theta - \theta_0)\, d\theta_0 \tag{4.10}$$

ergeben. Da alle Messungen typischerweise im Bereich ab einem halben Tesla durchgeführt wurden, gilt $H_{ext} \gg H_{c1}$ (H_{c1}=80–120 Oe [Ber00]). Das bedeutet aber, dass die Flux-Flow-Peaks in diesen hohen Feldern extrem schmal sind. Sie können daher als δ-Funktionen der Form

$$U(\theta - \theta_0) \to U(H) \cdot \delta(\theta - \theta_0) \tag{4.11}$$

approximiert werden. Wird dieser Ansatz in Gleichung 4.10 eingesetzt, ergibt sich einfach eine gaussförmige Winkelabhängigkeit der Flux-Flow-Spannung

$$U_{ges}(\theta) \propto \frac{1}{b\sqrt{2\pi}} \cdot \exp\left(\frac{-\theta^2}{2b^2}\right) \tag{4.12}$$

In der Tat könnte es sich bei dem beobachteten Peak um eine Verteilungsfunktion handeln. Die Breite würde gemäß den obigen

Überlegungen unmittelbare Aussagen darüber zulassen, wie sehr die intrinsischen Kontakte zueinander verkippt sind. 3–4° scheinen hierfür jedoch ein sehr hoher Wert zu sein. Zumindest zeigen die Röntgenstrukturanalysen an den Einkristallen deutlich geringere Peakbreiten [Lin01]. Eine intrinsische Verkippung der Kontakte scheint auch dadurch in Frage gestellt, dass nach mehrmaligen Aufwärm- und Abkühlzyklen leicht unterschiedliche Peakbreiten ermittelt werden konnten (vgl. die beiden Messreihen in Abb. 4.31, die an verschiedenen Tagen aufgezeichnet wurden).

3. *Die konstante Peakbreite wird durch eine geringfügige Bewegung der Kontaktstifte bzw. des Kristalls im Magnetfeld verursacht*: In diesem Szenario wird berücksichtigt, dass der Stifthalter eine begrenzte Bewegung der Kristalle zulässt. Abbildung 4.32 zeigt den Vorgang schematisch. Die eigentliche Ursache ist dabei die Ten-

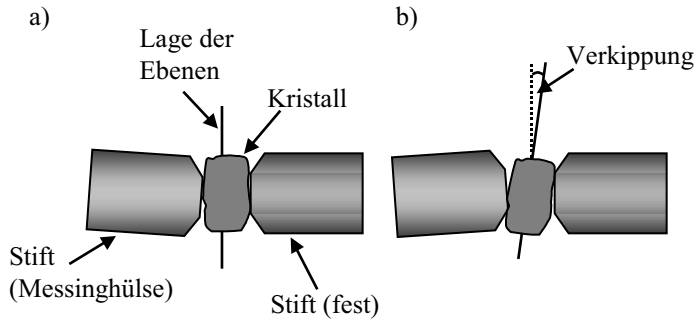

Abbildung 4.32: Zur Verkippung des Kristalls im Stifthalter. Näheres siehe Text.

denz des Kristalls, sich entlang des externen Feldes auszurichten: Aufgrund des relativ hohen magnetischen Feldes kommt es zu einer Ausrichtung des magnetischen Ruthenium-Untergitters. Wegen des starken Anisotropieterms ist diese bei Feldern nahe paralleler Ausrichtung hauptsächlich entlang der Ebenen orientiert. Magnetisch betrachtet verhält sich der Kristall hier also wie ein kleiner

Stabmagnet mit einem magnetischen Moment m. Gemäß

$$\vec{\tau} = \mu_0 \vec{m} \times \vec{H} \tag{4.13}$$

wirkt somit ein Drehmoment auf den Kristall. Für einen Kristall mit den typischen Abmessungen $50 \times 50 \times 20\,\mu\mathrm{m}^3$ ergibt sich bei einem vollständig ausgerichteten Ru-Gitter ($M \approx 1\mu_B$/Einheitszelle) ein magnetisches Moment $m \approx 3 \cdot 10^{14}\mu_B$. Das daraus resultierende Drehmoment τ liegt in einem Feld von 1 T damit in der Größenordnung von 10^{-9} Nm. Da der frei bewegliche (mit der Anpressfeder versehene) Kontaktstift extrem leicht bewegt werden kann, können die resultierenden Kräfte durchaus hinreichend sein, diesen geringfügig zu verkippen. Das ausgemessene Spiel des Kontaktstifts in der Messinghülse beträgt in etwa 2°. Da auch die Kristalle keine perfekt ebene Oberfläche besitzen (vgl. Abbildung 3.7), führt dies zu einer Drehung des Kristalls wie in Abbildung 4.32 stark übertrieben dargestellt. Wie groß dieser Verkippungswinkel letztlich ist hängt von der genauen Form und Größe des jeweiligen Kristalls ab. Daher kommt es zu einer geringfügigen Streuung.

Wird die wahre Breite des Flux-Flow-Peaks nun wiederum als deutlich kleiner angenommen, wird die vermeintliche, in den Messungen beobachtbare Peakbreite durch den maximalen Kippwinkel bestimmt. Dieser ist durch den Stifthalter und die Geometrie des Kristalls vorgegeben und damit feld- und temperaturunabhängig, wie in den Experimenten beobachtet.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass das in 3. genannte Verhalten am wahrscheinlichsten für die konstante Peakbreite in Frage kommt. Leider fehlt hier der unmittelbare Vergleich mit dem Hochtemperatursupraleiter $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$. Dort wurden alle winkelabhängigen Feldmessungen an Mesa-Strukturen durchgeführt [Hec97a, Sch99, Hei02a]. Ein mechanisches Verkippen ist in diesem Fall selbstverständlich nicht möglich.

Höhe des Flux-Flow-Peaks Aus Abbildung 4.30 ist bereits ersichtlich, dass die Höhe des durch die Bewegung der Josephson-Flusswirbel

verursachten Peaks mit zunehmendem Feld ansteigt. Die Abbildungen 4.33 a) und b) zeigen die Peakhöhen ΔU_{ff} der Proben *#st21* bzw. *#st16* gegenüber dem externen Magnetfeld aufgetragen. Das Verhalten war bei

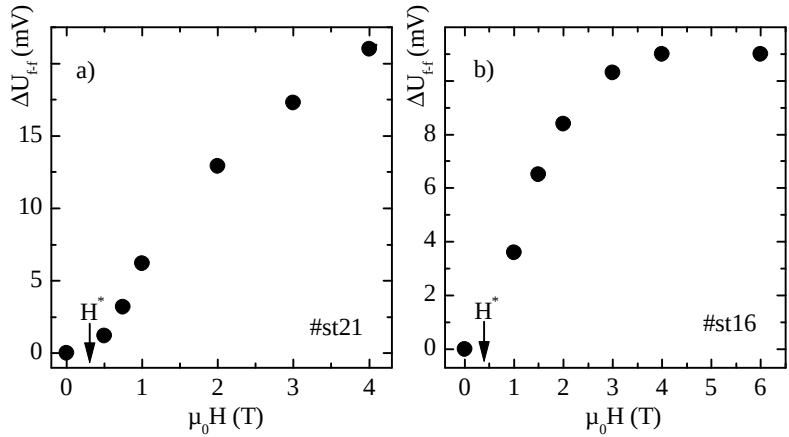

Abbildung 4.33: Magnetfeldabhängigkeit der Flux-Flow-Peakhöhe.
a) Probe *#st21*: I_b=1 mA, T=25 K; b) Probe *#st16*: I_b=0.2 mA, T=4.2 K

allen Proben ähnlich: Zunächst nimmt die Höhe ab einem bestimmten Feldwert H^* in etwa linear zu. Mit weiter anwachsendem Magnetfeld flacht die Kurve schließlich ab. Bei einigen Proben (vgl. beispielsweise *#st16*, Abb. 4.33 b) konnte sogar eine Sättigung beobachtet werden.

Die anfänglich lineare Zunahme der Flux-Flow-Spannung mit dem Feld kann auf die wachsende Anzahl an Josephson-Wirbeln in den Kontakten zurückgeführt werden. Ein entsprechender Zusammenhang wurde bereits bei der Diskussion des differentiellen Widerstands des Flux-Flow-Astes (Seite 126) festgestellt. Dort nahm der Flux-Flow aufgrund einer geringen Fehlorientierung ab einem gewissen Feld wieder ab. Diese Fehlorientierung ist bei den nun vorgestellten Messungen *per se* ausgeschlossen, da hier jeder Punkt dem maximalen Spannungsabfall (= exakt parallele Feldorientierung) entspricht. Die Sättigung von ΔU_{ff} in Feldern von einigen Tesla könnte gemäß Gleichung 2.29 erklärt werden, wenn das Produkt aus der Anzahl N der Josephson-Wirbel und deren Geschwin-

digkeit v gegen einen konstanten Wert ginge. Mit den im Labor realisierbaren Feldern ist keine Sättigung bezüglich der Anzahl der Vortizes in den Kontakten möglich. Sie nimmt weiterhin monoton mit dem externen Magnetfeld zu. Zwar kann mit der typischen Ausdehnung eines Josephson-Wirbels, λ_J, und der Höhe der Einheitszelle s ein Feld

$$\mu_0 H' \approx \Phi_0/(s \cdot \lambda_J) \tag{4.14}$$

definiert werden,[10] bei dem die Kontakte rein geometrisch betrachtet vollständig mit Flusswirbeln aufgefüllt sind. In der Realität kommt es in diesem Feldbereich allerdings lediglich zum Übergang von einem lockeren zu einem dichten Vortex-Gitter. Um also eine Sättigung der Flux-Flow-Spannung zu erreichen, müsste ab einem gewissen Feld die Geschwindigkeit der Vortizes abnehmen. Dies erscheint zunächst widersprüchlich, da ja aufgrund der sehr präzisen Ausrichtung im Magnetfeld davon ausgegangen werden kann, dass kaum Pinning durch Abrikosov-Flusswirbel zu erwarten ist. Im Gegenteil zeigt sich, dass durch das Magnetfeld das Pinning *abgesenkt* wird (vgl. Abbildung 4.21). Die Vortizes können bei immer kleineren Strömen loslaufen. Dies führt dazu, dass sie bei gegebenem Strom auf immer höhere Geschwindigkeiten beschleunigt werden können, bis sie schließlich (als relativistische Teilchen) ihre Grenzgeschwindigkeit erreichen (für einen Stapel aus sehr vielen Josephson-Kontakten ergibt sich die langsamste Modengeschwindigkeit mit Hilfe von Gleichung 2.33 zu $c_\infty \approx \bar{c}/\sqrt{2}$). Eine *Sättigung* der Vortex-Geschwindigkeit ist nach den obigen Überlegungen aber nicht ausreichend, um auch eine Sättigung der Flux-Flow-Spannung zu erzielen.

Die Vermutung, die Grenzspannung alleine durch eine Eigenschaft der Vortex-Bewegung beschreiben zu können, ist also nicht haltbar. Vielmehr würde der Spannungsabfall durch Flux-Flow mit wachsendem Magnetfeld immer mehr zunehmen. Der daraus resultierende Widerstand $R_{ff} = U_{ff}/I$ kann jedoch nicht den Subgap-Widerstand übersteigen (vgl. Abbildung 2.6 b). In $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen konnte anhand eines Stapels mit begrenzter Anzahl an intrinsischen Josephson-Kontakten beobachtet werden, dass das Abknicken des Flux-Flow-Astes in der Tat

[10] Im Falle von $RuSr_2GdCu_2O_8$ beträgt $\mu_0 H'$ etwa 3 T

maximal bis zum höchsten Quasiteilchenast möglich ist [Hec97c]. An den in dieser Arbeit untersuchten $RuSr_2GdCu_2O_8$-Proben kann dieses Verhalten zum jetzigen Zeitpunkt allerdings nicht bestätigt werden. Aufgrund der enormen Anzahl an intrinsischen Josephson-Kontakten in diesen Proben ist es nicht möglich, die Kennlinien bis zur Gap-Spannung auszufahren.

Grenzgeschwindigkeit und Aufsteilen der Kennlinie Theoretisch sollte die oben beschriebene Grenzgeschwindigkeit c_∞ in den Strom-Spannungs-Kennlinien als Aufsteilen der Kurve erkennbar sein. Die bisher vorgestellten Kennlinien zeigten jedoch lediglich einen negativ gekrümmten Flux-Flow-Ast. Eine Erklärung hierfür könnte sein, dass bei den bisherigen Kennlinien zum einen keine absolut exakte Ausrichtung der Probe sichergestellt war, zum anderen die Felder zu gering waren, um das Pinning ausreichend zu unterdrücken. Abbildung 4.34 zeigt daher eine Messung an der Probe *#st22*, bei der die Magnetfeldabhängigkeit des Flux-Flow-Peaks für verschiedene Biasströme in Feldern bis 7 T ermittelt wurde. Der kritische Strom der Probe betrug im Nullfeld etwa 1.2 mA.

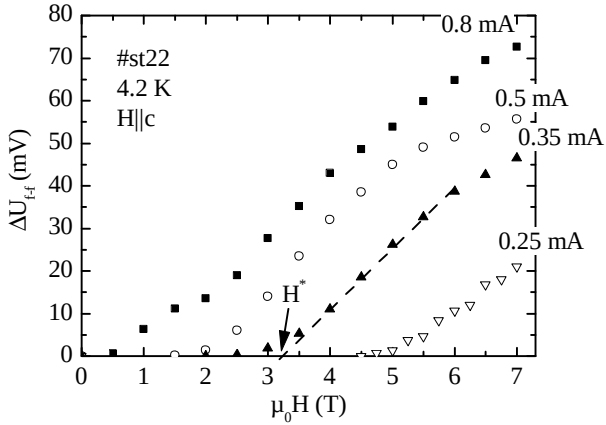

Abbildung 4.34: Magnetfeldabhängigkeit der Flux-Flow-Peakhöhe der Probe *#st22* für verschiedene Biasströme I_b. Das Feld H^* gibt in etwa an, ab wann die Josephson-Flusswirbel zu laufen beginnen.

Alle Kurven zeigen das oben dikutierte Verhalten eines linearen Anstiegs in kleinen Feldern und einer Sättigung in hohen Feldern. Auch das durch Feldeinwirkung reduzierte Pinning ist deutlich zu erkennen. Zur Verdeutlichung ist in Abbildung 4.35 das Feld H^* in Abhängigkeit vom Biasstrom aufgetragen, ab dem sich die Flusswirbel losreißen können.

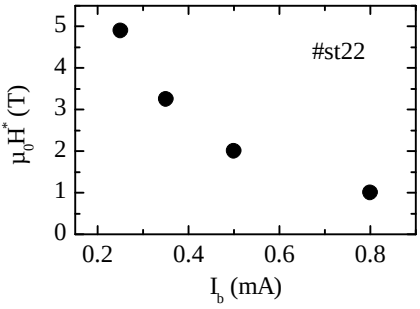

Abbildung 4.35: Biasstromabhängigkeit des Magnetfelds H^* (Definition siehe Abb. 4.34) der Probe *#st22*.

Aus den Datenpunkten der Abbildung 4.34 kann die Kennlinie der Probe *#st22* für verschiedene Magnetfelder rekonstruiert werden. Dieses Verfahren führt zwar zu keiner kontinuierlichen I-V-Kurve. Doch ist so zum einen die exakte Feldausrichtung sichergestellt, zum anderen wird ausschließlich der durch die Bewegung der Josephson-Wirbel verursachte Spannungsabfall aufgetragen. Extrinsische Einflüsse, speziell der Kontaktwiderstand der Probe, tauchen hier nicht auf. Abbildung 4.36 zeigt die entsprechende Auftragung. Die zu einem Feld gehörenden Punkte der „Kennlinie“ wurden zum Zwecke der Übersichtlichkeit mit Linien verbunden. Es zeigen sich nahezu alle oben diskutierten Eigenschaften, die größtenteils auch von magnetfeldabhängigen Kennlinien an $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$-Einkristallen bekannt sind [Hec97a]:

- Der Strom, bei dem der Flux-Flow einsetzt, sinkt mit steigendem Feld.

- Bei kleinen Feldern und Strömen ergibt sich eine lineare Kennlinie, vergleichbar mit dem „displaced linear branch“ in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$.

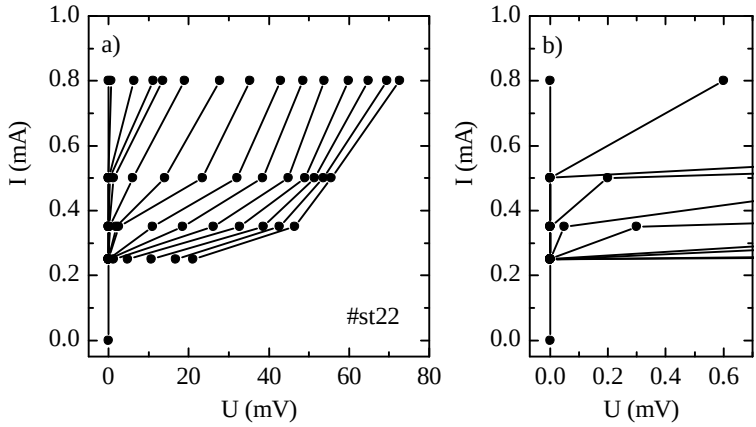

Abbildung 4.36: Aus den Werten aus Abbildung 4.34 extrahierte Strom-Spannungs-Kennlinien in verschiedenen Magnetfeldern parallel zu den CuO_2-Ebenen (0 bis 7 T in 0.5 T-Schritten). Die Abbildung b) zeigt eine Vergrößerung des Bereichs kleiner Spannungen.

- Bei höheren Strömen und Feldern steilt die Kennlinie allmählich auf. Die Flusswirbel nähern sich hier ihrer maximalen Geschwindigkeit $c_\infty \approx \bar{c}/\sqrt{2}$.

- Ab etwa 4.5 T rutschen die Kennlinien immer näher zusammen. Es kommt mit weiter ansteigendem Feld zu einer Sättigung in der Spannung, da sich die Kennlinie allmählich an ihren Grenzfall (Subgap-Widerstand) anschmiegt.

0-π-Übergang? Die Diskussion der Josephson-Vortex-Dynamik macht abermals deutlich, dass sich $RuSr_2GdCu_2O_8$ im Modell eines typischen Hochtemperatursupraleiters wie beispielsweise $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ verstehen lässt. Es scheint bis auf wenige Ausnahmen kein sonderlich exotisches Verhalten erkennbar. Konnte in Abschnitt 4.2.3 bereits der Beweis erbracht werden, dass der kritische Strom keinerlei Anzeichen für einen 0-π-Phasenübergang liefert, so kann nun auch der Flux-Flow-Peak als Indikator herangezogen werden. Die Idee ist dabei die Folgende: Würde

bei irgendeinem Punkt im (H_{ex}, T)-Parameterraum der kritische Strom aufgrund eines Phasenübergangs einen Nulldurchgang erfahren, so hätte dies an jener Stelle eine verschwindende Josephson-Kopplung zwischen den CuO_2-Ebenen zur Folge. Da der Flux-Flow-Peak eine Eigenschaft des Josephson-Regimes ist, müßte auch er an dieser Stelle verschwinden. Vorteil dieses Verfahrens: Während es teilweise problematisch war, den kritischen Strom in hohen Feldern zu ermitteln (abgesehen davon, dass dieser im Falle eines langen Kontakts nicht eindeutig definiert werden kann), so ist der Flux-Flow-Peak hier das geeignete Instrument.

Selbstverständlich kann unabhängig von der Methodik immer nur ein beschränkter Teil des (H_{ex}, T)-Parameterraums abgedecket werden. Dazu gibt es zwei Möglichkeiten:

a) $T = const$: Abbildung 2.23 macht deutlich, dass neben einer Veränderung der Temperatur auch das Austauschfeld H_{ex} auf der Suche nach einem Phasenübergang abgefahren werden kann. Im Prinzip wurde aber genau das bereits mit der Auftragung in Abbildung 4.34 getan. Ein Magnetfeld entlang der Ebenen erhöht die Magnetisierung innerhalb der RuO_2-Ebenen und damit H_{ex}. Die monotone Zunahme des Flux-Flow-Peaks deutet auf keinen messbaren 0-π-Phasenübergang hin.

b) $H = const$: Anstelle wie in Abschnitt 4.2.3 die Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms zu analysieren, ist es auch möglich, hierfür den Flux-Flow-Peak heranzuziehen. Abbildung 4.37 zeigt die Höhe des Flux-Flow-Peaks ΔU_{ff} der Probe *#st21* für verschiedene Felder in Abhängigkeit von der Temperatur. Für $T < T_c$ lässt sich über den gesamten vermessenen Temperaturbereich hinweg ein endlicher Wert für die Peakhöhe ermitteln. Erst nahe T_c fällt ΔU_{ff} auf null ab. Genau wie die Messungen des kritischen Stroms so legen auch diese Ergebnisse nahe, dass es zumindest im Bereich von 4.2 K bis knapp unterhalb der Sprungtemperatur zu keinem 0-π-Übergang kommt.

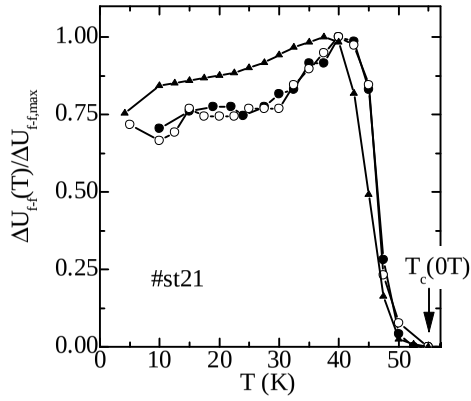

Abbildung 4.37: Temperaturabhängigkeit der Flux-Flow-Peakhöhe der Probe *#st21* (normiert). •: 2 T, ○: 4 T, ▲: 6 T

4.3 Die Abwesenheit des 0-π-Übergangs

Wie die Ergebnisse der vorangegangen Abschnitte zeigten, verhält sich $RuSr_2GdCu_2O_8$ dem Hochtemperatursupraleiter $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ gegenüber sehr ähnlich. Insbesondere wurde deutlich, dass im Rahmen der vorgestellten Arbeit kein 0-π-Übergang in der Strom-Phasen-Relation der intrinsischen Josephson-Kontakte beobachtet werden konnte. Die entsprechenden Messungen hierzu waren:

- $I_c(T)$-Messungen, sowohl im Nullfeld als auch in Feldern bis 6 T (Seite 107 ff)
- $\Delta U_{ff}(H)$-Messungen bis 6 T bei 4.2 K ($\approx 0.08T_c$), 20 K ($\approx 0.4T_c$) und 25 K ($\approx 0.5T_c$) (Seite 136 ff)
- $\Delta U_{ff}(T)$-Abhängigkeit in Feldern bis 6 T (Seite 141 ff).

Zur Übersicht wurden in Abbildung 4.38 alle (T, H)-Positionen eingezeichnet, bei denen Messungen durchgeführt wurden. Hiermit sollte bereits ein nennenswerter Ausschnitt des (H_{ex}, T)-Parameterraums abgedeckt worden sein. In Abbildung 4.39 ist dieser in das theoretische Phasendiagramm eingetragen. Die jeweiligen Werte für h wurden dabei mit

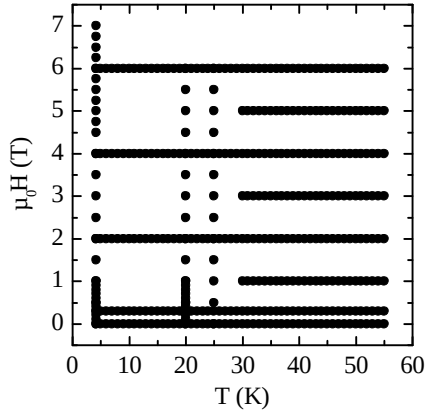

Abbildung 4.38: Temperaturen und externe Magnetfelder, bei denen im Rahmen dieser Arbeit Messungen durchgeführt wurden.

Hilfe der Molekularfeldnäherung (Gleichung 2.47) ermittelt und stellen vermutlich eher eine untere Grenze dar.

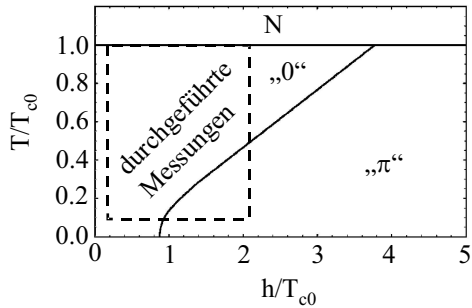

Abbildung 4.39: (h, T)-Phasendiagramm (vgl. Abbildung 2.23). Innerhalb des gestrichelten Bereichs konnte kein 0-π-Übergang beobachtet werden.

Allerdings ist der genaue Zusammenhang zwischen dem Austauschfeld und der magnetischen Ordnungstemperatur zum momentanen Zeitpunkt noch nicht näher bekannt [Hou01]. Trotzdem könnte gemäß Abbildung 4.39 im Bereich tiefer Temperaturen das maximal erzielbare Austauschfeld (d. h. bei vollständiger Sättigung der Magnetisierung) durchaus hinreichend für einen Phasenübergang sein. Auf die Abschätzungen im Rah-

men der Molekularfeldnäherung wird weiter unten nochmals detaillierter eingegangen.
Im Falle eines 0-π-Übergangs wäre bei den genannten Messungen eine deutliche Abnahme und ein anschließender Wiederanstieg in der Intensität der jeweiligen Messgröße zu erwarten gewesen. Stattdessen zeigten sie im Rahmen der Messgenauigkeit ein monotones Verhalten.
Die Frage, weshalb kein 0-π-Übergang beobachtet werden konnte, lässt prinzipiell mehrere Antworten zu:

In den Messungen kam es zu einem Übergang, der aber mit der verwendeten Methodik nicht nachgewiesen werden konnte Wie die theoretischen Überlegungen (vgl. beispielsweise Abbildung 2.24) zeigen, ist der Übergang von der 0- zur π-Phase relativ scharf. Da sowohl bei den temperatur- als auch den feldabhängigen Messungen der kritische Strom bzw. die Höhe des Flux-Flow-Peaks nur für diskrete Werte ermittelt wurde, könnte der Nulldurchgang dabei einfach übergangen worden sein. Auch zeigen die Berechnungen für künstliche SIFIS-Kontakte, dass es gar nicht zu einem vollständigen Nulldurchgang kommen muss (Abbildung 2.22)[Rad03]. Allerdings sollte trotzdem eine nennenswerte Modulation auf den jeweiligen Messkurven erkennbar sein. Darüber hinaus folgt die Temperaturabhängigkeit des kritischen Stroms erstaunlich genau dem Ambegaokar-Baratoff-Gesetz. Im Falle eines Übergangs wären hier sicherlich Abweichungen zu erwarten.

Es kommt zu einem Übergang, allerdings verteilt über alle intrinsischen Kontakte Dies entspricht einem dem FFLO-Zustand in 3-dimensionalen Supraleitern ähnlichen Verhalten. Das Austauschfeld in den Ebenen würde zu einer Modulation des Ordnungsparameters führen, allerdings wäre diese nun über eine große Anzahl ($\sim 10^3$) an intrinsischen Kontakten ausgedehnt. Dieser Zustand wäre gemäß Berechnungen von Houzet *et al.* für den Fall eines erhöhten Hoppingparameters t in der Größenordnung von T_{c0} (bzw. $s \leq \xi_c$) denkbar [Hou02] und wird dort als IC-Zustand („incommensurate phase“) bezeichnet. Als Randbedingung müsste lediglich gewährleiset sein, dass die aufsummierte Phasen-

differenz entweder 0 oder π entspricht. Alle anderen Lösungen würden gemäß der 1. Josephson-Gleichung einen extern angelegten Suprastrom durch den Stapel erzwingen.

Ein solches Modell impliziert, dass die Phasendifferenzen der einzelnen intrinsischen Kontakte relativ stark miteinander gekoppelt sind. Die hysteretischen Strom-Spannungs-Kennlinien legen jedoch nahe, dass die Kontakte getrennt voneinander geschalten werden können und weitgehend unabhängig voneinander agieren. Daher kommt auch diese Möglichkeit nicht weiter in Betracht.

Die intrinsischen Kontakte sind im untersuchten (H_{ex}, T)-Bereich exklusiv im 0- bzw. π-Zustand Da durch die obigen Überlegungen ein 0-π-Übergang mit großer Wahrscheinlichkeit ausgeschlossen werden kann, ist dies die einzig verbleibende Möglichkeit. Es schließt sich natürlich sofort die Frage an, in welchem Zustand (0 oder π) sich die Josephson-Kontakte befinden. Dies ist alleine anhand der Messungen nicht eindeutig zu beantworten, da bei einzelnen Kontakten der 0-Zustand dem π-Zustand physikalisch nahezu völlig äquivalent ist. So zeigt beispielsweise die Feldabhängigkeit des kritischen Stroms kurzer π-Kontakte das gewöhnliche Fraunhofer-Muster [Rya01b]. Erst durch die Parallelschaltung zweier Kontakte (je ein 0- und π-Kontakt), also durch eine dc-SQUID-Anordnung, kann der Phasensprung direkt nachgewiesen werden [Rya01a]. Im Falle der intrinsischen Kontakte in $RuSr_2GdCu_2O_8$ kommt jedoch das Problem hinzu, dass bei einer Serienschaltung aus π-Kontakten die komplette Phasendifferenz über den Stapel letztlich auch von der Anzahl der Einheitszellen (gerade oder ungerade) abhängt. Diese lässt sich mit der momentanen Probenpräparation nicht beeinflussen.

Ein Indiz für einen 0-Zustand liefert die Form der ermittelten $I_c(T)$-Abhängigkeit. Es zeigte sich, dass diese einem Ambegaokar-Baratoff-Verhalten sehr ähnlich ist, speziell dass sie bei tiefen Temperaturen flach verläuft (Seite 107 ff). Wie die Berechnungen für *künstliche* SIFIS-Strukturen (Abbildung 2.22) zeigen, ist dieses Plateau charakteristisch für die 0-Phase. Allerdings zeigen Messungen an SIFS-Strukturen (also

mit einer isolierenden Barriere), dass es zumindest in diesem System keinen nennenswerten Unterschied zwischen den Temperaturabhängigkeiten im 0- und π-Zustand gibt [Kon02].
Wie eingangs erwähnt, kann im Moment nur grob abgeschätzt werden, wo genau die Messungen im (H_{ex}, T)-Phasendiagramm angesiedelt sind. Sollte die Molekularfeldnäherung anwendbar sein, dann wäre die untere Grenze durch die spontane ferromagnetische Komponente der $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristalle auf etwa $0.14\,T_{c0}$ festgelegt. Dies läge aber deutlich im 0-Bereich (vgl. Abbildung 4.39). Selbst wenn dieses h in der Realität über einen Faktor 20 höher wäre, so sollte bei Temperaturen oberhalb von etwa $0.8T_{c0}$ ($\approx 44\,\mathrm{K}$) immer noch ein 0-Zustand auftreten, der bei Abkühlung in den π-Übergang übergehen müsste. Dieses Verhalten konnte aber nicht beobachtet werden. Das Austauschfeld aufgrund der spontanen Magnetisierung liegt hier daher sicherlich unterhalb $0.8T_{c0}$ (in diesem Bereich schneidet eine Messung bei variabler Temperatur niemals die Phasengrenze, vgl. Abbildung 4.39). Für d-Wellen-Supraleiter liegt dieser Wert sogar nur bei $0.6T_{c0}$. Da auch in keiner Messung bei variablem Magnetfeld (Erhöhung von M und damit von h) ein 0-π-Übergang festgestellt wurde, scheint es daher plausibel, davon auszugehen, dass zumindest in den Größenordnungen, die die Molekularfeldnäherung zulässt, alle Messungen im 0-Zustand durchgeführt wurden.

Kapitel 5

Schlussdiskussion

Wie die vorgestellten Ergebnisse zeigen, kann der elektrische Transport entlang der c-Achse (senkrecht zu den CuO_2-Ebenen) der untersuchten $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalle im Modell eines intrinsischen Stapels aus Josephson-Kontakten verstanden werden. Ein direkter Vergleich mit dem bereits seit vielen Jahren bekannten und daher ausführlichst untersuchten Referenzsystem $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ belegte dabei in vielen Punkten (hysteretische Kennlinien, Effekte der Josephson-Vortex-Dynamik u. ä.) die ausgesprochene Ähnlichkeit zu den stark anisotropen Hoch-T_c-Kupraten. Der überwiegende Teil der Beobachtungen lässt sich somit bestens mit den etablierten Theorien für intrinsische Supraleiter-Isolator-Supraleiter-Übergitter beschreiben [Nac04]. Dies ist ein recht überraschendes Ergebnis, handelt es sich doch bei dem untersuchten Ruthenokuprat um eine der wenigen Verbindungen, die eine Koexistenz von magnetischer Ordnung und Supraleitung aufweisen.[1] Es lässt sich somit die Schlussfolgerung ziehen, dass, wenn es überhaupt zu einer im elektrischen Transport nachweisbaren Signatur des magnetischen Untergitters kommen sollte, diese zumindest bezüglich der supraleitenden Eigenschaften nur einen

[1] In der Tat bestätigen die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Magnetisierungsmessungen, dass es innerhalb der verwendeten Einkristalle zur Ausbildung einer (antiferro-)magnetischen Ordnung und *zusätzlich* zu einem Übergang in den supraleitenden Zustand kommt.

vernachlässigbaren Beitrag leistet.

Es lohnt daher, die beiden Bereiche (normalleitend und supraleitend) nochmals getrennt voneinander zu betrachten:

Im **normalleitenden Zustand** zeigte sich ein sehr geringer (1%) negativer Magnetwiderstand nahe der magnetischen Ordnungstemperatur (der unterhalb des supraleitenden Übergangs aufgrund des deutlich größeren positiven Magnetwiderstands des Josephson-Regimes nicht nachgewiesen werden konnte). Ob es sich hierbei um den Einfluss eines Doppelaustauschs zwischen den Ru-Ionen unterschiedlicher Valenzen bzw. einen schwachen Spin-Ventil-Effekt zwischen benachbarten RuO_6-Ebenen handelt, kann derzeit nicht zweifelsfrei beantwortet werden. Naheliegend erscheint jedoch in jedem Fall, diesen Effekt auf die Existenz einer magnetischen Ordnung innerhalb der Einkristalle zurückzuführen.

Ein Einfluss des magnetischen Gitters auf den **supraleitenden Zustand** konnte alleine mit Hilfe der in dieser Arbeit vorgestellten Untersuchungen des *c*-Achsen-Transports nicht nachgewiesen werden. So ist beispielsweise die Möglichkeit, dass es aufgrund einer ferromagnetischen Komponente innerhalb der intrinsischen Tunnelbarrieren zur Ausbildung von π-Kontakten kommen könnte, aufgrund der Abwesenheit eines messbaren 0-π-Übergangs in Frage gestellt.[2]

Während die π-Phase einer Modulation des supraleitenden Ordnungsparameters *entlang der c-Achse* entspricht, wäre prinzipiell auch eine dem FFLO-Zustand entsprechende Modulation *entlang der Ebenen* denkbar. Zwei mögliche Szenarien hierzu sind in Abbildung 5.1 dargestellt. Beide zeigen einen *in-plane* FFLO-Zustand. Während in Abbildung 5.1 a dieser jedoch einer 0-Phase für den Transport senkrecht zu den Ebenen überlagert ist, kommt es in Abbildung 5.1 b zusätzlich zur Ausbildung von π-Kontakten. In der Tat zeigen theoretische Überlegungen, dass sol-

[2] Die π-Phase kann allerdings nicht vollständig ausgeschlossen werden. Die Diskussion in Abschnitt 4.3 wurde bezüglich eines mittels Molekularfeldnäherung berechneten Austauschfeldes geführt. Die Austauschenergien liegen in vielen Materialien (beispielsweise Fe) deutlich oberhalb dieses Wertes [Kit96, Sch04], so dass prinzipiell auch ein für alle Temperaturen und externen Magnetfelder vorhandener π-Zustand denkbar wäre.

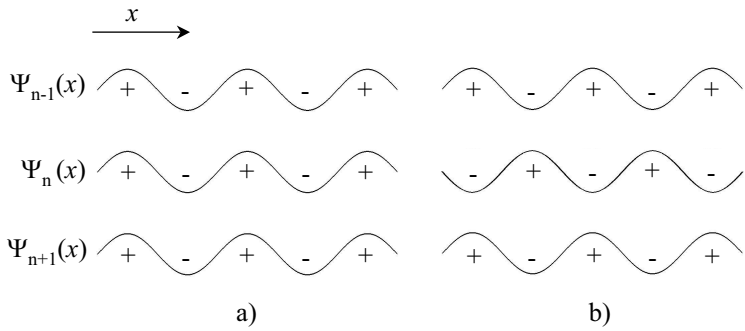

Abbildung 5.1: Schema der Koexistenz eines *in-plane*-FFLO-Zustands mit a) 0-Phase, b) π-Phase bezüglich des Transports zwischen den supraleitenden Ebenen.

che Konfigurationen für $RuSr_2GdCu_2O_8$ in Betracht gezogen werden können [Pic99]. Houzet *et al.* kommen jedoch zu dem Schluss, dass es keine Koexistenz von FFLO-Zustand mit π-Phase (Szenario in Abbildung 5.1 b) geben kann. Darüber hinaus zeigen die Berechnungen erst bei stark gekoppelten ($s \leq \xi_c \ll \xi_{ab}$) supraleitenden Ebenen eine *in-plane*-Modulation des Ordnungsparameters [Hou02]. Da jedoch die in dieser Arbeit vorgestellten Transportmessungen auf eine schwache Kopplung der Ebenen hindeuten, kann ein FFLO-ähnlicher Zustand innerhalb der Ebenen ausgeschlossen werden.

Ausblick Im Rahmen dieser Arbeit war es erstmals möglich, den elektronischen Transport von $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristallen exklusiv entlang der *c*-Achse zu vermessen. Zwar konnte dabei kein direkter Nachweis für einen exotischen Zustand aufgrund der Wechselwirkung zwischen magnetischem und supraleitenden Untergitter erbracht werden. Allerdings ist die Tatsache, dass ein intrinsischer Josephson-Effekt nachgewiesen wurde, nicht unerheblich. Sie gewährleistet einerseits, dass prinzipiell in den Ruthenokupraten intrinsische Tunnelspektroskopie anwendbar ist. Sollte es doch früher oder später gelingen, wenige Einheitszellen hohe Mesa-Strukturen auf den Einkristallen anzubringen, so wäre es möglich, bei-

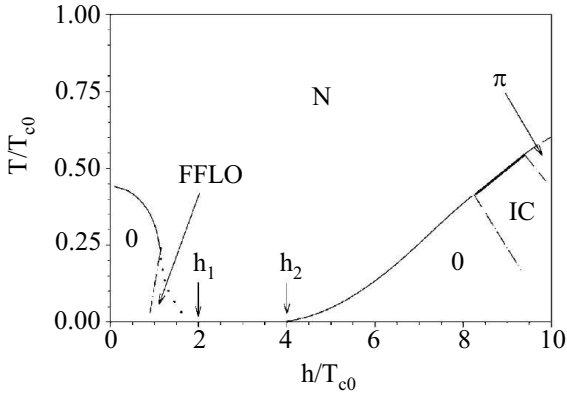

Abbildung 5.2: (h, T)-Phasendiagramm für stark gekoppelte Ebenen mit t=2.0T_{c0}, N: Normalleitender Zustand, 0 bzw. π: 0- bzw. π-Phase (Modulation des supraleitenden Ordnungsparameters entlang der c-Achse), FFLO: FFLO-Zustand (Modulation in-plane), IC: „incommensurate"-Phase (Modulation entlang der c-Achse, wobei die Phasendifferenz zwischen benachbarten supraleitenden Ebenen *nicht* 0 oder π entspricht). Für $T = 0$ kann die Supraleitung für Felder größer h_1 verschwinden um für Felder ab h_2 wieder einzusetzen (aus [Hou02]).

spielsweise das Quasiteilchen-Spektrum dieser Supraleiter-Ferromagnet-Hybride auf intrinsischem Wege genauer zu untersuchen. Es kann andererseits zum momentanen Zeitpunkt auch nicht ausgeschlossen werden, dass es in Systemen mit gegenüber den untersuchten Proben abweichender Stöchiometrie nicht doch zur Ausbildung von π-Kontakten kommen könnte. Eine entscheidende Voraussetzung hierfür, nämlich dass es sich bei den Ruthenokupraten um einen Stapel intrinsischer Josephson-Kontakte handelt, konnte in dieser Arbeit direkt bestätigt werden.
Die hier vorgestellten Ergebnisse bilden daher möglicherweise den Grundstein für eine Reihe weiterer aufregender Untersuchungen an verschiedensten Vertretern der Klasse der Ruthenokuprate.

Kapitel 6

Zusammenfassung

Ziel der vorliegenden Arbeit war es, die elektrischen Transporteigenschaften des Ruthenokuprats $RuSr_2GdCu_2O_8$ erstmalig anhand von wenigen zehn Mikrometern großen Einkristallen zu untersuchen. Die Kristallstruktur dieser Verbindung zeigt eine alternierende Abfolge von CuO_2-Doppelebenen und RuO_2-Ebenen, die durch isolierende SrO-Schichten voneinander getrennt sind. Die RuO_2-Ebenen ordnen oberhalb von 100 K gekippt antiferromagnetisch mit einer kleinen ferromagnetischen Komponente in der Ebene, während für Temperaturen kleiner 60 K die CuO_2-Doppelebenen zusätzlich supraleitend werden. Senkrecht zu den Ebenen (entlang der c-Achse) ergibt sich damit bei tiefen Temperaturen intrinsisch die Abfolge Supraleiter/Isolator/Ferromagnet/Isolator/Supraleiter... Es gab bereits Hinweise, dass es zu einer Josephson-artigen Kopplung zwischen benachbarten supraleitenden Doppelschichten kommen könnte. Aufgrund der magnetischen Komponente wurde hierbei die Existenz sogenannter π-Kontakte diskutiert. In dieser Arbeit galt es daher, mittels exklusiven c-Achsen-Transportmessungen einerseits die Existenz der intrinsischen Josephson-Kontakte nachzuweisen, andererseits die mögliche Wechselwirkung zwischen magnetischem und supraleitendem Untergitter zu studieren.

Zur Bestätigung der Koexistenz von magnetischer Ordnung und Su-

praleitung wurden zunächst Magnetisierungsmessungen durchgeführt. Aufgrund der Verwendung einzelner $RuSr_2GdCu_2O_8$-Einkristalle waren diese erstmals orientierungsabhängig bezüglich der intrinsischen Ebenen möglich. Die Messungen zeigten eine überwiegend antiferromagnetische Ordnung des Ru-Gitters bei etwa 100 K sowie einen supraleitenden Übergang der CuO_2-Ebenen nahe 55 K. Das unterschiedliche Verhalten in Feldern parallel bzw. senkrecht zu den Ebenen bestätigte dabei den 2-dimensionalen Charakter der supraleitenden Schichten und ließ Aussagen über die Orientierung der magnetischen Momente (in-plane bzw. out-of-plane) zu.

Neuland wurde auch mit den Transportmessungen betreten. Während bisherige Untersuchungen stets die integralen Eigenschaften polykristalliner $RuSr_2GdCu_2O_8$-Proben wiedergaben, gelang es im Rahmen dieser Arbeit durch eine geeignete Probenpräparations- und Messtechnik, einzelne Einkristalle gezielt entlang ihrer c-Achse zu vermessen. Als Nebenprodukt wurde dabei eine neue Methode zur Herstellung von Mesa-Strukturen auf wenigen μm großen Kristallen entwickelt.

In der Temperaturabhängigkeit des c-Achsen-Widerstands zeigte sich oberhalb der Sprungtemperatur der jeweiligen Proben ein halbleitendes Verhalten mit einem supraleitenden Übergang zwischen 40 und 60 K. Im supraleitenden Zustand konnte die Existenz eines intrinsischen Josephson-Effekts durch elektrische Transportmessungen erstmals direkt nachgewiesen werden. Die Strom-Spannungs-Kennlinien zeigten eine Vielzahl hysteretischer Äste, so wie sie von den stark anisotropen Hochtemperatursupraleitern wie $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ bekannt sind. In den magnetfeldabhängigen Messungen war die Beobachtung einer Josephson-Vortex-Dynamik analog zu der in den Hoch-T_c-Kupraten möglich.

Ein signifikanter Einfluss des magnetischen Untergitters auf den supraleitenden Zustand konnte hingegen nicht nachgewiesen werden. Alle beobachteten Effekte ließen sich meist im Rahmen eines gewöhnlichen intrinsischen Josephson-Effekts mit unmagnetischen Barrieren erklären. Speziell ergaben sich keine Hinweise auf einen 0-π-Phasenübergang der Josephson-Kontakte.

Literaturverzeichnis

[Amb63a] V. Ambegaokar und A. Baratoff. *Tunneling Between Superconductors.* Phys. Rev. Lett., **10**, 486 (**1963**)

[Amb63b] V. Ambegaokar und A. Baratoff. *Tunneling Between Superconductors (Errata).* Phys. Rev. Lett., **11**, 104 (**1963**)

[And55] P. W. Anderson und H. Hasegawa. *Considerations on Double Exchange.* Phys. Rev., **100**, 675 – 681 (**1955**)

[And91] A. V. Andreev, A. I. Buzdin, und R. M. O. III. *π phase in magnetic-layered superconductors.* Phys. Rev. B, **43**, 10 124 (**1991**)

[Awa03] V. Awana, M. Karppinen, und H. Yamauchi. *Magneto-superconductivity in rutheno-cuprates $RuSr_2GdCu_2O_{8-\delta}$ (Ru-1212) and $RuSr_2(Gd_{0.75}Ce_{0.25})_2Cu_2O_{10-\delta}$ (Ru-1222): a critical review.* In A. Narlikar, Herausgeber, *International Book Series: Studies of High Temperature Superconductors*, Band 46, 77–98. Nova Science Publishers, New York (**2003**)

[Bar57] J. Bardeen, L. N. Cooper, und J. R. Schrieffer. *Theory of Superconductivity.* Phys. Rev., **108**, 1175 (**1957**)

[Bar02] R. Bargsten und L. Voßschmidt. *Hei Suomi! Finnisch für Anfänger*, Band 1. Nordis, Monheim, 3. Auflage (**2002**)

[Bau95] L. Bauernfeind, W. Widder, und H. F. Braun. *Ruthenium-Based Layered Cuprates $RuSr_2Cu_2O_8$ and*

$RuSr_2(Ln_{1+x}Ce_{1-x})Cu_2O_{10}$ (Ln=Sm, Eu, Gd). Physica C, **254**, 151 (**1995**)

[Bau96] L. Bauernfeind, W. Widder, und H. F. Braun. *Superconductors consisting of CuO_2 and RuO_2 layers.* J. Low. Temp. Phys., **105**, 1605 (**1996**)

[Bed86] G. Bednorz und K. A. Müller. *Possible High T_c Superconductivity in the Ba–La–Cu–O System.* Z. Phys., **B64**, 189 (**1986**)

[Ber99] C. Bernhard, J. L. Tallon, C. Niedermayer, T. Blasius, A. Golnik, E. Brücher, R. K. Kremer, D. R. Noakes, C. E. Stronach, und E. J. Ansaldo. *Coexistence of Ferromagnetism and Superconductivity in the Hybrid Ruthenate-Cuprate Compound $RuSr_2GdCu_2O_8$ Studied by Muon Spin Rotation and Dc Magnetization.* Phys Rev. B, **59**, 14 099 (**1999**)

[Ber00] C. Bernhard, J. L. Tallon, E. Brücher, und R. K. Kremer. *Evidence for a bulk Meissner state in the ferromagnetic superconductor $RuSr_2GdCu_2O_8$ from dc magnetization.* Phys. Rev. B, **61**, R14 960–R14 963 (**2000**)

[Bra02] H. Braun, L. Bauernfeind, O. Korf, und T. Papageorgiou. *A Phase Diagram Approach to Superconductivity and Magnetism in Rutheno-Cuprates.* In C. Noce, A. Veccione, M. Cuoco, und A. Romano, Herausgeber, *Ruthenate and Rutheno-Cuprate Materials*, Band 603 von *Lecture Notes in Physics*, 142–159. Springer, Berlin (**2002**)

[Buc04] W. Buckel und R. Kleiner. *Supraleitung – Grundlagen und Anwendungen.* WILEY-VCH, Weinheim, 6. Auflage (**2004**)

[Bul92] L. Bulaevskii, J. Clem, und L. Glazman. *Fraunhofer Oscillations in a Multilayer System with Josephson Coupling of Layers.* Phys. Rev. B, **46**, 350–355 (**1992**)

[But01] A. Butera, A. Fainstein, E. Winkler, und J. Tallon. *Ferromagnetic Correlations and Mixed Ru Valence in the Magnetic Superconductor $RuSr_2(Eu,Gd)Cu_2O_8$.* Phys. Rev. B, **63**, 054 442 (**2001**)

[Buz83] A. I. Buzdin, L. N. Bulaevskii, und S. S. Krotov. *Magnetic structures in the superconductivity–weak-ferromagnetism coexistence phase.* Sov. Phys. JETP, **58**, 395 (**1983**)

[Che01] X. H. Chen, Z. Sun, K. Q. Wang, S. Y. Li, Y. M. Xiong, M. Yu, und L. Z. Cao. *Transport properties and specific heat of $RuSr_2GdCu_2O_8$ and $RuSr_2Gd_{1.4}Ce_{0.6}Cu_2O_y$ in magnetic fields.* Phys. Rev. B, **63**, 64 506 (**2001**)

[Chm00] O. Chmaissem, J. D. Jorgensen, H. Shaked, P. Dollar, und J. L. Tallon. *Crystal and Magnetic Structure of Ferromagnetic Cuperconducting $RuSr_2GdCu_2O_8$.* Phys. Rev. B, **61**, 6401 (**2000**)

[Cla02] T. Clauss, V. Oehmichen, M. Mößle, A. Müller, A. Weber, D. Koelle, und R. Kleiner. *Fluxons in Long and Annular Intrinsic Josephson Junction Stacks.* Supercond. Sci. Technol., **15**, 1651 (**2002**)

[Cla04] T. Clauss. *Kollektive Fluxonmoden in intrinsischen Josephson-Kontakten unter Mikrowelleneinstrahlung.* Dissertation, Universität Tübingen (**2004**)

[Cra77] J. Crangle. *The Magnetic Properties of Solids.* Edward Arnold, London (**1977**)

[Dem97] E. A. Demler, G. B. Arnold, und M. R. Beasley. *Superconducting Proximity Effects in Magnetic Metals.* Phys. Rev. B, **55**, 15 174 (**1997**)

[Eit03] H. Eitel. *c-Achsentransport in strukturierten $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$-Einkristallen.* Diplomarbeit, Universität Tübingen (**2003**)

[Fai99] A. Fainstein, E. Winkler, A. Butera, und J. Tallon. *Magnetic interactions and magnon gap in the ferromagnetic superconductor $RuSr_2GdCu_2O_8$.* Phys. Rev. B, **60**, R12 597 (**1999**)

[Fis94] M. V. Fistul und G. F. Giuliani. *Magnetic Field Dependence of the Critical Current of a Layered Superconductor.* Physica C, **230**, 9 (**1994**)

[Fro04] S. Frolov, D. V. Harlingen, V. Oboznov, V. Bolginov, und V. Ryazanov. *Measurement of the Current-Phase Relation of SFS Pi-Josephson Junctions.* cond-mat/0402434 (**2004**)

[Fuj03] H. Fujishiro, M. Ikebe, und T. Takahashi. *Preparation of $RuSr_2GdCu_2O_8$ Compounds with Enhanced Superconducting Transition Temperature.* JLTP, **131**, 589–593 (**2003**)

[Ful64] P. Fulde und R. A. Ferrell. *Superconductivity in a Strong Spin-Exchange Field.* Phys. Rev., **135**, A550 (**1964**)

[Gar03] S. García und L. Ghivelder. *I-V curves and intergranular flux creep activation energy in the magnetic superconductor $RuSr_2GdCu_2O_8$.* cond-mat/0311515 (**2003**)

[Gin50] V. L. Ginzburg und L. D. Landau. *On the Theory of Superconductivity.* Sov. Phys. JETP, **20**, 1064 (**1950**)

[Gin57] V. L. Ginzburg. *Ferromagnetic Superconductors.* Sov. Phys. JETP, **4**, 153 (**1957**)

[Hab01] H. U. Habermeier, G. Cristiani, R. K. Kremer, O. Lebedev, und G. V. Tendeloo. *Cuprate/Manganite Superlattices - A Model System for a Bulk Ferromagnetic Superconductor.* Physica C, **364-365**, 647–651 (**2001**)

[Hai01] D. P. Hai, S. Kamisawa, I. Kakeya, M. Furuyama, T. Mochiku, und K. Kadowaki. *Ferromagnetism and superconductivity in $RuSr_2RCu_2O_8$ (R=Sm, Eu, Gd).* Physica C, **357-360**, 406–409 (**2001**)

[Hec97a] G. Hechtfischer. *Fluxonendynamik in intrinsischen Josephson-Kontakten.* Dissertation, Universität Erlangen-Nürnberg (**1997**)

[Hec97b] G. Hechtfischer, R. Kleiner, K. Schlenga, W. Walkenhorst, und P. Müller. *Collective Motion of Josephson Vortices in Intrinsic Josephson Junctions in* $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+y}$. Phys. Rev. B, **55**, 14 638 (**1997**)

[Hec97c] G. Hechtfischer, R. Kleiner, A. Ustinov, und P. Müller. *Non-Josephson Emission from Intrinsic Junctions in* $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+y}$*: Cherenkov Radiation by Josephson Vortices.* Phys. Rev.Lett., **79**, 1365 (**1997**)

[Hei02a] S. Heim. *Fluxonen und Quasiteilchen in mikroskopischen intrinsischen Josephson-Kontakten auf* $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$*-Einkristallen.* Dissertation, Universität Tübingen (**2002**)

[Hei02b] S. Heim, M. Mößle, T. Clauß, und R. Kleiner. *Fluxon Modes in Intrinsic Josephson Junctions in* $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ *Single Crystals.* Supercond. Sci. Technol., **15**, 1226 (**2002**)

[Hel66] E. Helfand und N. R. Werthamer. *Temperature and Purity Dependence of the Superconducting Critical Field,* H_{c2}. Phys. Rev., **147**, 288 (**1966**)

[Hem02] J. Hemberger, A. Hassen, A. Krimmel, P. Mandal, und A. Loidl. *Ferromagnetism and superconductivity in pure and doped* $RuSr_2GdCu_2O_8$. Physica C, **312-313**, 805–807 (**2002**)

[Hou01] M. Houzet, A. Buzdin, und M. Kulić. *Decoupling of superconducting layers in the magnetic superconductor* $RuSr_2GdCu_2O_8$. Phys. Rev. B, **64**, 184 501 (**2001**)

[Hou02] M. Houzet und A. Buzdin. *Nonuniform superconducting phases in a layered ferromagnetic superconductor.* Europhys. Lett., **58**, 596–602 (**2002**)

[Iba95] H. Ibach und H. Lüth. *Festkörperphysik*. Springer, Berlin Heidelberg, 4. Auflage (**1995**)

[Ish77] M. Ishikawa und O. Fisher. *Destruction of superconductivity by magnetic ordering in* $Ho_{1.2}Mo_6S_8$. Solid State Commun., **23**, 37 (**1977**)

[Ish98] K. Ishida, H. Mukuda, Y. Kitaoka, K. Asayama, Z. Q. Mao, Y. Mori, und Y. Maeno. *Spin-triplet superconductivity in* Sr_2RuO_4 *identified by* ^{17}O *Knight shift*. Nature, **396**, 658 (**1998**)

[Jak95] G. Jakob, V. V. Moshchalkov, und Y. Bruynseraede. *Superconductivity and gaint negative magnetoresistance in* $YBa_2Cu_3O_7/La_{0.67}Ba_{0.33}MnO_3$ *superlattices*. Appl. Phys. Lett., **66**, 2564 (**1995**)

[Jor01] J. D. Jorgensen, O. Chmaissem, H. Shaked, S. Short, P. W. Klamut, B. Dabrowski, und J. L. Tallon. *Magnetic Ordering in the Superconduting Weak Ferromagnetis* $RuSr_2GdCu_2O_8$ *and* $RuSr_2EuCu_2O_8$. Phys. Rev. B, **63**, 054 440 (**2001**)

[Jos62] B. D. Josephson. *Possible new effects in superconductive tunneling*. Phys. Lett., **1**, 251 (**1962**)

[Joy02] R. Joynt und L. Taillefer. *The Superconducting Phases of* UPt_3. Rev. Mod. Phys., **74**, 235 (**2002**)

[Jul75] M. Julliere. *Tunneling Between Ferromagnetic Films*. Phys. Lett., **54A**, 225 (**1975**)

[Kim96] T. Kimura, Y. Tomioka, H. Kuwahara, A. Asamitsu, M. Tamura, und Y. Tokura. *Interplane Tunneling Magnetoresistance in a Layered Manganite Crystal*. Science, **274**, 1698 – 1701 (**1996**)

[Kit96] C. Kittel. *Introduction to Solid State Physics*. J. Wiley & Sons, New York, 7. Auflage (**1996**)

[Kla01] P. W. Klamut, B. Dabrowski, S. Kolesnik, M. Maxwell, und J. Mais. *Superconductivity in $Ru_{1-x}Sr_2GdCu_{2+x}O_{8-y}$ compounds.* Phys. Rev. B, **63**, 224512 (**2001**)

[Kla02] P. Klamut, B. Dabrowski, S. Mini, S. Kolesnik, M. Maxwell, J. Mais, A. Shengelaya, R. Khasanov, I. Savic, H. Keller, C. Sulkowski, D. Wlosewicz, M. Matusiak, A. Wisniewski, R. Puzniak, und I. Fita. *Magnetism and Superconductivity in $Ru_{1-x}Sr_2RECu_{2+x}O_{8-d}$ (RE=Gd, Eu) and $RuSr_2Gd_{1-y}Ce_yCu_2O_8$ Compounds.* In C. Noce, A. Vecchione, M. Cuoco, und A. Romano, Herausgeber, *Ruthenate and Rutheno- Cuprate Materials*, Band 603, 176–193. Springer, Berlin (**2002**)

[Kla03] P. W. Klamut, B. Dabrowski, S. M. Mini, M. Maxwell, J. Mais, I. Felner, U. Asaf, F. Ritter, A. Shengelaya, R. Khasanov, I. M. Savic, H. Keller, A. Wisniewski, R. Puzniak, I. M. Fita, C. Sulkowski, und M. Matusiak. *On the effect of heterovalent substitutions in ruthenocuprates.* Physica C, **387**, 33–39 (**2003**)

[Kle92a] R. Kleiner. *Intrinsische Josephsoneffekte in Bi–2212 Einkristallen.* Dissertation, Universität München (**1992**)

[Kle92b] R. Kleiner, F. Steinmeyer, G. Kunkel, und P. Müller. *Intrinsic Josephson Effects in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ Single Crystals.* Phys. Rev. Lett., **68**, 2394–2397 (**1992**)

[Kle94] R. Kleiner und P. Müller. *Dynamic Behaviour of Josephson-Coupled Layered Structures.* Phys. Rev. B, **50**, 3942 (**1994**)

[Kle01] R. Kleiner, T. Gaber, und G. Hechtfischer. *Stacked Long Josephson Junctions in External Magnetic Fields - a Numerical Study of Coupled One-Dimensional Sine-Gordon Equations.* Physica C, **362**, 30 (**2001**)

[Kle03] R. Kleiner. *Layered Superconductors.* Springer (to be published) (**2003**)

[Kon02] T. Kontos, M. Aprili, J. Lesueur, F. Genêt, B. Stephanidis, und R. Boursier. *Josephson Junction through a Thin Ferromagnetic Layer: Negative Coupling.* Phys. Rev. Lett., **89**, 137 007 (**2002**)

[Kri99] K. M. Krishnan und H. L. Ju. *Role of stoichiometry and structure in colossal magnetoresistive* $La_{1-x}Sr_xMn_{1-y}Ru_yO_{3+\delta}$. Phys. Rev. B, **60**, 14 793–14 803 (**1999**)

[Kum01] K. Kumagai, S. Takada, und Y. Furukawa. *Charge and spin states of Ru and Cu in magnetic superconductor* $RuSr_2GdCu_2O_8$ *studied by NMR.* Phys. Rev. B, **63**, 180 509 (**2001**)

[Lar65] A. I. Larkin und Y. N. Ovchinnikov. *Inhomogeneous State of Superconductors.* Sov. Phys. JETP, **20**, 762 (**1965**)

[Lat96] Y. I. Latyshev, J. E. Nevelskaya, und P. Monceau. *Dimensional Crossover for Intrinsic dc Josephson Effect in* $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$ *2212 Single Crystal Whiskers.* Phys. Rev. Lett., **77**, 932 (**1996**)

[Leb67] P. Lebwohl und M. J. Stephen. *Propetries of Vortex Lines in Superconducting Barriers.* Phys. Rev., **163**, 376 (**1967**)

[Lik79] K. K. Likharev. *Superconducting weak links.* Rev. Mod. Phys., **51**, 101 (**1979**)

[Lin01] C. T. Lin, B. Liang, C. Ulrich, und C. Bernhard. *Single Crystals of* $RuSr_2GdCu_2O_{8-\delta}$. Physica C, **364-365**, 373–375 (**2001**)

[Liu01] R. S. Liu, L.-Y. Jang, H.-H. Hung, und J. L. Tallon. *Determination of Ru valence from x-ray absorption near-edge structure in* $RuSr_2GdCu_2O_8$*-type superconductors.* Phys. Rev. B, **63**, 212 507 (**2001**)

[Lor02] B. Lorenz, Y. Y. Xue, R. L. Meng, und C. W. Chu. *Field dependence of the intragrain superconductive transition in* $RuSr_2EuCu_2O_8$. Phys. Rev. B, **65**, 174 503 (**2002**)

[Lou98] D. Louca, G. H. Kwei, und J. F. Mitchell. *Local Lattice Effects in the Layered Manganite* $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$. Phys. Rev. Lett., **80**, 3811 (**1998**)

[Lyn00] J. W. Lynn, B. Keimer, C. Ulrich, C. Bernhard, und J. L. Tallon. *Antiferromagnetic Ordering in Superconducting* $RuSr_2GdCu_2O_8$. Phys. Rev. B, **61**, R14 964 (**2000**)

[Mar88] S. Martin, A. T. Fiori, R. M. Fleming, L. F. Schneemeyer, und J. V. Waszczak. *Temperature Dependence of the Resistivity Tensor in Superconducting* $Bi_2Sr_{2.2}Ca_{0.8}Cu_2O_8$ *Crystals.* Phys. Rev. Lett., **60**, 2194 (**1988**)

[Mat58] B. T. Matthias, H. Suhl, und E. Corenzwit. *Spin Exchange in Superconductors.* Phys. Rev. Lett., **1**, 92 (**1958**)

[McC68] D. E. McCumber. *Effect of ac impedance on dc voltage-current characteristics of superconductor weak-link junctions.* J. Appl. Phys., **39**, 3113 (**1968**)

[McC99] J. E. McCrone, J. R. Cooper, und J. L. Tallon. *Magneto-Transport Properties of the Rutheno-Cuprate* $RuSr_2GdCu_2O_8$. J. Low Temp. Phys., **117**, 1199–1203 (**1999**)

[McC03] J. E. McCrone, J. L. Tallon, J. R. Cooper, A. C. MacLaughlin, J. P. Attfield, und C. Bernhard. *Magnetotransport properties of doped* $RuSr_2GdCu_2O_8$. Phys. Rev. B, **68**, 064 514 (**2003**)

[McL99] A. C. McLaughlin, W. Zhou, , J. P. Attfield, A. N. Fitch, und J. L. Tallon. *Structure and microstructure of the ferromagnetic superconductor* $RuSr_2GdCu_2O_8$. Phys. Rev. B, **60**, 7512 (**1999**)

[Mcl01] A. C. Mclaughin, V. Janowitz, J. A. McAllister, und J. P. Attfield. *Doping studies in the ferromagnetic superconductor* $RuSr_2GdCu_2O_8$. J. Mater. Chem., **11**, 173–178 (**2001**)

[Mei33] W. Meißner und R. Ochsenfeld. *Ein neuer Effekt bei Eintritt der Supraleitfähigkeit.* Naturwissenschaften, **21**, 787–788 (**1933**)

[Müh97] T. Mühge, K. Westerholt, und H. Zabel. *Magnetism and Superconductivity of Fe/Nb/Fe.* Phys. Rev. B, **55**, 8945 (**1997**)

[Mor96] Y. Moritomo, A. Asamitsu, H. Kuwahara, und Y. Tokura. *Giant Magnetoresistance of Manganese Oxides with a Layered Perovskite Structure.* Nature, **380**, 141 (**1996**)

[Nac00] T. Nachtrab. *Transporteigenschaften der magnetischen Schichtverbindung* $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$. Diplomarbeit, Universität Erlangen (**2000**)

[Nac02] T. Nachtrab, S. Heim, M. Mößle, R. Kleiner, O. Waldmann, R. Koch, P. Müller, T. Kimura, und Y. Tokura. *Intrinsic Spin Valves in the Layered Manganite* $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$. Phys. Rev. B, **65**, 012 410 (**2002**)

[Nac04] T. Nachtrab, D. Koelle, R. Kleiner, C. Bernhard, und C. T. Lin. *Intrinsic Josephson Effects in the Magnetic Superconductor* $RuSr_2GdCu_2O_8$. Phys. Rev. Lett., **92**, 117 001 (**2004**)

[Nak01] K. Nakamura, K. T. Park, und A. J. Freeman. *Magnetic and electronic structures of superconducting* $RuSr_2GdCu_2O_8$. Phys. Rev. B, **63**, 024 507 (**2001**)

[Nak02] K. Nakamura und A. J. Freeman. *Canted ferromagnetism in* $RuSr_2GdCu_2O_8$. Phys. Rev. B, **66**, 140 405 (**2002**)

[Nau88] M. J. Naughton, R. C.Yu, P. K.Davies, J. Fischer, R. V. Chamberlin, Z. Z. Whang, T. W. Jing, N. P. Ong, und P. M. Chaikin. *Orientational Anisotropy of the Upper Critical Field*

in Single-Crystal $YBa_2Cu_3O_7$ and $Bi_{2.2}CaSr_{1.8}Cu_2O_{8+x}$. Phys. Rev. B, **38**, 9280 (**1988**)

[Nol86a] W. Nolting. *Quantentheorie des Magnetismus*, Band 1 (Grundlagen). Teubner, Stuttgart (**1986**)

[Nol86b] W. Nolting. *Quantentheorie des Magnetismus*, Band 2 (Modelle). Teubner, Stuttgart (**1986**)

[Onn11] H. K. Onnes. Comm. Leiden, **120b**, 124 (**1911**)

[Per98] T. G. Perring, G. Aeppli, T. Kimura, Y. Tokura, und M. A. Adams. *Ordered Stack of Spin Valves in a Layered Magnetoresistive Perovskite.* Phys. Rev. B, **58**, 14 693 – 14 696 (**1998**)

[Pic99] W. E. Pickett, R. Weht, und A. B. Shick. *Superconductivity in Ferromagnetic $RuSr_2GdCu_2O_8$.* Phys. Rev. Lett., **83**, 3713 (**1999**)

[Pro99a] V. Prokić, A. I. Buzdin, und L. Dobrosavljević-Grujić. *Theory of the π junctions formed in atomic-scale superconductor/ferromagnet superlattices.* Phys. Rev. B, **59**, 587 (**1999**)

[Pro99b] V. Prokić und L. Dobrosavljević-Grujić. *Zero-energy bound states in superconductor/ferromagnet superlattices.* Physica C, **320**, 259–266 (**1999**)

[Rad03] Z. Radović, N. Lazarides, und N. Flytzanis. *Josephson effect in double-barrier superconductor-ferromagnet junctions.* Phys. Rev. B, **68**, 014 501 (**2003**)

[Rya01a] V. V. Ryazanov, V. A.Oboznov, A. V. Veretennikov, und A. Y. Rusanov. *Intrinsically Frustrated Superconducting Array of Superconductor-Ferromagneti-Superconductor π Junctions.* Phys. Rev. B, **65**, 20 501 (**2001**)

[Rya01b] V. V. Ryazanov, V. A. Obozov, A. Y. Rusanov, A. V. Veretennikov, A. A. Golubov, und J. Aarts. *Coupling of Two*

Superconductors Through a Ferromagnet: Evidence for a π-Junction. Phys. Rev. Lett., **86**, 2427 (**2001**)

[Sak93] S. Sakai, P. Bodin, und N. F. Pedersen. *Fluxons in Thin Film Superconductor-Insulator Superlattices.* J. Appl. Phys., **73**, 2411 (**1993**)

[Sch97] V. V. Schmidt. *The Physics of Superconductors.* Springer-Verlag, Berlin Heidelberg (**1997**)

[Sch98] K. Schlenga, R. Kleiner, G. Hechtfischer, M. Mößle, S. Schmitt, und P. Müller. *Tunneling Spectroscopy with Intrinsic Josephson Junctions in $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$ and $Tl_2Ba_2Ca_2Cu_3O_{10+\delta}$.* Phys. Rev. B, **57**, 14 518 (**1998**)

[Sch99] S. Schromm. *Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stroms von kleinen intrinsischen Josephson-Kontakten aus $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+x}$-Einkristallen.* Diplomarbeit, Universität Erlangen-Nürnberg (**1999**)

[Sch02] T. Schwarz. *Tieftemperatur-Laserrastermikroskopie in starken Magnetfeldern.* Diplomarbeit, Universität Tübingen (**2002**)

[Sch04] *Gespräch mit Prof. Dr. N. Schopohl, Universität Tübingen* (**2004**)

[Shi02] H. Shibata. *Josephson plasma in $RuSr_2GdCu_2O_8$.* Phys. Rev. B, **65**, 180 507 (**2002**)

[Shi03] H. Shibata. *Josephson plasma in Ru- and Fe-cuprates.* Physica C, **388–389**, 459 (**2003**)

[Sig97] M. Sigrist, D. Agterberg, T. M. Rice, und M. E. Zhitomirsky. *Sr_2RuO_4 - a realization of spin triplet pairing?* Physica C, **282-287**, 214 (**1997**)

[SJ69] D. Saint-James, G. Sarma, und E. J. Thomas. *Type II Superconductivity.* Pergamon Press, Oxford (**1969**)

[Sri01] H. Srikanth, L. Spinu, T. Kodenkandath, J. B. Wiley, und J. Tallon. *Vortex dynamics and magnetic anisotropy in* $RuSr_2GdCu_2O_8$. J. Appl. Phys., **89**, 7487–7489 (**2001**)

[Ste68] W. C. Stewart. *Current-voltage characteristics of Josephson junctions.* Appl. Phys. Lett., **12**, 277 (**1968**)

[Tak01] H. Takagiwa, J. Akimitsu, H. Kawono-Furukawa, und H. Yoshizawa. *Coexistence of Superconductivity and (Anti-)Ferromagnetism in* $RuSr_2YCu_2O_8$. J. Phys. Soc. Jap., **70**, 333 (**2001**)

[Tal99] J. L. Tallon, C. Bernhard, M. Bowden, P. Gilberd, T. Stoto, und D. Pringle. *Coexisting Ferromagnetism and Superconductivity in Hybrid Rutheno-Cuprate Superconductors.* IEEE Trans. Appl. Supercond., **9**, 1696 (**1999**)

[Tal00] J. L. Tallon, J. W. Loram, G. V. M. Williams, und C. Bernhard. *Heat capacity and transport studies of the ferromagnetic superconductor* $RuSr_2GdCu_2O_8$. Phys. Rev. B, **61**, R6471 (**2000**)

[Tan97] Y. Tanaka und S. Kashiwaya. *Theory of Josephson Effects in Anisotropic Superconductors.* Phys. Rev. B, **56**, 892 (**1997**)

[Tin96] M. Tinkham. *Introduction to Superconductivity.* McGraw–Hill, Singapore (**1996**)

[Tok01] Y. Tokunaga, H. Kotegawa, K. Ishida, Y. Kitaoka, H. Takagiwa, und J. Akimitsu. *NMR Evidence for Coexistence of Superconductivity and Ferromagnetic Component in Magnetic Superconductor* $RuSr_2YCu_2O_8$*:* $^{99,101}Ru$ *and* ^{63}Cu *NMR.* Phys. Rev. Lett., **86**, 5767 (**2001**)

[Tsu00] C. C. Tsuei und J. R. Kirtley. *Pairing symmetry in cuprate superconductors.* Rev. Mod. Phys., **72**, 969–1016 (**2000**)

[Uem89] Y. J. Uemura, G. M. Luke, B. J. Sternlieb, J. H. Brewer, J. F. Carolan, W. N. Hardy, R. Kadono, J. R. Kempton, R. F. Kiefl, S. R. Kreitzman, P. Mulhern, T. M. Riseman, D. L. Williams, B. X. Yang, S. Uchida, H. Takagi, J. Gopalakrishnan, A. W. Sleight, M. A. Subramanian, C. L. Chien, M. Z. Cieplak, G. Xiao, V. Y. Lee, B. W. Statt, C. E. Stronach, W. J. Kossler, und X. H. Yu. *Universal Correlations between T_c and n_s/m^* (Carrier Density over Effective Mass) in High-T_c Cuprate Superconductors.* Phys. Rev. Lett., **62**, 2317 (**1989**)

[Umm03] G. Ummarino, A. Calzolari, D. Daghero, R. Gonnelli, V. Stepanov, R.Masini, und M. Cimberle. *Point-contact study of gap amplitude and symmetry in $RuSr_2GdCu_2O_8$.* cond-mat/0309553 (**2003**). Proceedings of the 6th EUCAS Conference (14–18 Sep. 2003, Sorrento, Italy)

[Ver98] G. Verbank, C. D. Potter, V. Metlushko, R. Schad, V. V. Moshchalkov, und Y. Bruynseraede. *Coupling Phenomena in Nb/Fe Multilayers.* Phys. Rev. B, **57**, 6029 (**1998**)

[Wag04] M. Wagenknecht. *Abbildung magnetischer Domänen im Laser-Raster-Mikroskop.* Diplomarbeit, Universität Tübingen (**2004**)

[Wyb00] B. G. Wybourne. *At the Start of a New Golden Age of Physics.* Rede auf der SSPCM'2000, Myczkowce, Poland (http://www.phys.uni.torun.pl/ bgw/golden.ps) (**2000**)

[Xue01] Y. Y. Xue, B. Lorenz, R. L. Meng, A. Baikalove, und C. W. Chu. *Granularity and intragrain penetration depth in $RuSr_2GdCu_2O_8$.* Physica C, **364-365**, 251–253 (**2001**)

[Yur00] A. Yurgens. *Intrinsic Josephson Junctions: Recent Developments.* Supercond. Sci. Technol., **13**, R85 (**2000**)

[Zen51] C. Zener. *Interaction Between the d-Shells in the Transition Metals. II. Ferromagnetic Compounds of Manganese with Perovskite Structure.* Phys. Rev., **82**, 403 – 405 (**1951**)

❀ Danksagung ❀

Spätsommer 2004. Die Doktorarbeit liegt schon ein gutes Stück zurück. Timo N. sitzt in einem kleinen Strandcafé. Da kommt ein alter Bekannter vorbei.

Alter Bekannter: Mensch, Timo. Du hier? Hast du deine Doktorarbeit denn schon fertig?

Timo: Ja, alter Bekannter. Aber um es genau zu sagen: Es ist nicht nur *meine* Doktorarbeit. Vielmehr haben dabei so viele Leute mitgewirkt, denen ich einfach mal meinen Dank aussprechen möchte. Da ist natürlich zuallererst **Prof. Dr. Reinhold Kleiner**. Ihm danke ich dafür, dass er mir die Möglichkeit gegeben hat, an seinem Lehrstuhl zu arbeiten. Seinen Sachverstand und die hervorragende Betreuung kannte ich ja schon von der Erlanger Zeit und haben mir die Entscheidung leicht gemacht, zur Promotion nach Tübingen zu wechseln. Darüber hinaus konnte ich auch stets **Prof. Dr. Dieter Kölle** um Rat fragen. Meist ging es um technische Dinge, speziell Fragen des Magnetismus. Manchmal waren es aber auch einfach menschliche Wehwehchen. Seine motivierende Art hat mir mehr als einmal den nötigen Schub für meine Arbeit gegeben.

A.B.: Woher hattest du eigentlich die $RuSr_2GdCu_2O_8$-Kristalle?

Timo: Die Einkristalle wurden uns freundlicherweise von **Dr. Christian Bernhard** und **Dr. Chengtian Lin** vom Max-Planck-Institut für Festkörperforschung in Stuttgart zur Verfügung gestellt. Dafür möchte ich mich auch nochmals ganz herzlich bedanken. Genauso gilt mein Dank auch **Prof. Dr. Paul Müller** und **Dr. Robert Koch** von der Universität Erlangen, ohne die ich auf die wertvollen Magnetisierungsmessungen sowie deren Interpretation hätte verzichten müssen.

A.B.: Man hört, du hast insgesamt drei Diplomanden betreut?

Timo: Ja, **Thorsten Schwarz**, **Heiko Eitel** und **Michael Wagenknecht**. Ihre Arbeiten findest du im Literaturverzeichnis aufgelistet. War echt klasse mit denen zusammenzuarbeiten. Da alle drei jetzt ebenfalls ihre Doktorarbeit anfertigen wünsche ich ihnen, dass sie ebenfalls das Glück haben, so gute und motivierte Diplomanden zu bekommen. Wenn ich etwas mit ihnen besprochen hatte, so habe ich auf meinem Rückweg vom Diplomandenzimmer fast immer einen Abstecher ins Sekretariat gemacht, zu **Marie-Annick Paquier** und **Marie-Luise Fenske**. Egal ob es um finanzielle Dinge, Büro-Krimskrams oder einfach einen netten Plausch ging - wir können uns glücklich schätzen, dass wir die beiden bei uns am Lehrstuhl haben. Dank ihnen läuft der Laden wie geschmiert.

A.B.: Moment mal, das Gleiche trifft doch wohl auch auf...

Timo: ...**Hans Wener** zu. Da hast du recht, ohne den wäre ich wohl schon längst an allen möglichen technischen Dingen verzweifelt. Ob Vakuumsysteme, Schweißarbeiten, oder Ersatzteile für's REM...

A.B.: REM? Was ist denn das?

Timo: Das ist eine Abkürzung und steht für **R**echt **e**igenwillige **M**aschine. Auf alle Fälle war Hans immer ein Retter in der Not. Auch wenn es darum ging, technische Zeichnungen für die Werkstatt anzufertigen. A propos Werkstatt: Ohne die Spitzenarbeit von **K.-H. Freudenmann** und **M. Kleinmann** hätte ich mir meinen Messaufbau wohl selbst schnitzen müssen. Abgesehen davon, dass es ohne ihre Fingerfertigkeit kein Laser-Raster-Mikroskop gegeben hätte.

A.B.: Woher hattest du eigentlich das Helium für deine Messungen?

Timo: Na, aus den Heliumkannen natürlich. Und dass davon nahezu immer welche gut gefüllt bereitstanden, dafür bedanke ich mich ganz herzlich bei **Herrn Baur**. Manchmal gab's die Kannen auch von **Herrn Ruland**, der mich jedoch normalerweise im Materiallager mit Blechen, Rohren etc. versorgte.

A.B.: Was macht man denn so nach der Promotion?

Timo: Tja, man wird beispielsweise Assistent am Lehrstuhl. Mit **Edward Goldobin**, **Boris Chesca** und **Michael Mößle**, der allerdings gerade als Post-Doc in Berkeley verweilt, haben wir sogar drei Stück davon. Bei allen drei bedanke ich mich, dass ich mich stets mit tausend Fragen an sie wenden konnte. Michael gebührt ein großes Dankeschön dafür, dass er den 7 T-Messplatz mit allem Drum-und-Dran aufgebaut hat.

A.B.: Hey, an *dem* Lehrstuhl wäre ich auch gerne Doktorand...

Timo: ...und genau deshalb haben wir auch so viele. Bei **Tobias Gaber** und **Albert Sterck** bedanke ich mich für das ausgesprochen gute Arbeitsklima, das die beiden in der Gruppe versprühen. **Christoph Back** half mir durch die jährlichen Anmeldungen für den 100 km-Lauf, meine Figur so là là zu halten. Mit **Matthias Kemmler** verbindet mich das gemeinsame Leid der Rechenübungen sowie der Eskapaden des REMs. Schön, dass er sich um die Elektronenstrahllithographie kümmert. Ohne **Virginia Oehmichen** wäre soziales Engagement vielleicht nicht gleich ein völliges Fremdwort, aber Virginia ist definitiv das, was man eine gute Seele nennen könnte. Ich drücke ihr die Daumen, dass ihr der Magnetkryo auch so viel Glück bringt wie mir. Bei meinem ehemaligen Zimmerkollegen **Dietmar Dönitz** bedanke ich mich für die nette Zeit im D6P22 und ziehe meinen Hut vor seinen Leistungen als Systemadministrator. Gerade, wo doch in letzter Zeit öfters mal der Wurm drin war... Bleibt noch **Tobias Clauss** zu nennen, mit dem ich in den Wochen und Monaten des Zusammenschreibens am Rande des Wahnsinns gestanden und mir die Nächte im Institut um die Ohren gehauen habe. Von ihm stammen auch die Pläne für den Adiabateneinsatz.

A.B.: Als gebürdiger Badenser und waschechter Franke hast du dich scheinbar sehr wohl bei den Schwaben gefühlt.

Timo: Allerdings. Und deshalb möchte ich mich auch nochmals bei allen hier nicht extra namentlich erwähnten **Angehörigen des Physikalischen Instituts** bedanken, die mir mit Rat und Tat zur Seite standen.

A.B.: Bleiben die zwei wichtigsten Dinge: Das Geld und die Frauen!

Timo: Was das Finanzielle betrifft, so hatte ich das große Glück, vom **Evangelischen Studienwerk e.V. Villigst** ein Promotionsstipendium zu erhalten, wofür ich mich nochmals ausdrücklich bedanken möchte. Darüber hinaus konnte ich dank des Studienwerks auch an zwei Promotionstreffen, einer Sommeruni im Haus Villigst sowie einer vierwöchigen Sommerschule in Boulder/Colorado teilnehmen.

Als alter Bekannter weißt du, dass ich alles andere als ein reiner Kopfmensch bin. Daher war mir der Rückhalt, den mir meine Freundin **Judith Pfeiffer** gegeben hat, stets sehr wichtig. Dank ihrer unermüdlichen Unterstützung, ihren Glauben in das, was ich tue, konnte ich so manche Durststrecke leichter verdauen. Ich bedanke mich für ihre Geduld, ihr Verständnis und - ganz klar - auch für das Korrekturlesen dieser Arbeit.

Aber ganz ehrlich: Ohne die unendliche Unterstützung, die ich seitens **meiner Mutter** zeitlebens erhalten habe, wäre ich wohl nie so weit gekommen, irgendwann mal eine Dissertation zu schreiben. Ihre Förderung ging weit über die materiellen Belange hinaus. Wenn ich heute auf Studium und Promotion zurückblicken kann, dann habe ich das vor allem ihr zu verdanken. Liebe Mama, danke für alles!!!

❀ ❀ ❀

Lebenslauf

Persönliches:

Timo Nachtrab
geboren am 6. September 1974 in Bruchsal
Eltern: Gerhard und Ingeborg Nachtrab, geb. Schneidratus
ledig; deutsche Staatsangehörigkeit

Ausbildung:

Sept. 1981 – Juli 1985	Grundschule Eichstätter Straße, Nürnberg
Sept. 1985 – Juli 1994	Sigmund-Schuckert-Gymnasium, Nürnberg Zeugnis der Allg. Hochschulreife am 1. Juli 1994
Nov. 1995 – Nov. 2000	Studium der Physik and der Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg (Vordiplom am 15. Juli 1997) WS 1997/98: Auslandssemester an der Universität von Joensuu/Finnland Diplomarbeit bei Prof. Dr. P. Müller mit dem Thema: „Transporteigenschaften der magnetischen Schichtverbindung $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$“ (Diplom am 13. November 2000)
Dez. 2000 – Juni 2003	Anfertigung der Dissertation am Physikalischen Institut der Eberhard-Karls-Universität zu Tübingen unter Anleitung von Prof. Dr. R. Kleiner mit dem Thema: „*c*-Achsen-Transporteigenschaften des intrinsischen Supraleiter-Ferromagnet-Hybrids $RuSr_2GdCu_2O_8$“

Beschäftigungen:

Dez. 2000 – Juli 2004	Wissenschaftlicher Angestellter am Physikalischen Institut der Eberhard-Karls-Universität zu Tübingen

Sonstiges:

Aug. 1994 – Okt. 1995	Zivildienst bei der Evangelischen Jugend in Nürnberg
Aug. 2002 – Juli 2004	Promotionsstipendiat des Evangelischen Studienwerks e.V. Villigst

Akademische Lehrer:

G. Anton, H. Berens, J. Burkhard, G. Döhler, R. v. Eldik, W. Eyrich, Th. Fauster, O. Gerstner, W.-D. Geyer, M. Hämäläinen, B. Hensel, H. Hofmann, A. Hüller, P. Ketolainen, R. Kleiner, F. Lenz, G. Leuchs, H. Leutwiler, P. Müller, G. Pensl, V. Prokofiev, P.-G. Reinhard, K. Rith, T. Sauer, M. Schulz, D. Sellmann, R. Silvennoinen, E. Steffens, M. Thies, C. Toepffer

Index

0-π-Übergang, 43
  bei atomar dünnen Barrieren, 47
  Ergebnisse, 108, 141
  in Barrieren mit endlicher Dicke, 43

Abkühlen, 92
Adiabat, 75
Ätzen, 69
Alignment-Marken, 66
Ambegaokar-Baratoff-Gesetz, 14, 109
Antiferromagnet
  gekippter, 50
  Suszeptibilität, 34
Antiferromagnetische Ordnung
  Magnetisierungsmessungen, 84
Aufdampfen
  von Gold/Silber, 65
Aufwärmen, 92
Ausbacken, 66
Austausch
  -feld, 31
    Antiferromagnet, 34
  -integral, 32, 33
  -parameter, 31, 33
Austauschfeld, 147

BCS-Theorie, 8
β_c, *siehe* McCumber-Parameter
$Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$, 24
$Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$, 23
Brillouin-Funktion, 33, 89

Charakteristische Spannung, 101
  Tabelle, 103
Cleaven der Kristalle, 63
CMR, *siehe* Kolossaler Magnetwiderstand
Cooper-Paar, 8
Cross-Linken, *siehe* Quervernetzen
Curie-Temperatur, 27

Danksagung, 173
Diamagnetismus, 85
Dipol-Dipol-Wechselwirkung, 29
Dipolfeld, 31
Direkter Austausch, 29
Displaced linear branch, 126
Domänen, magnetische, 28
Doppelaustausch, 30, 115
d-Welle, *siehe* Ordnungsparametersymmetrie

easy axis, *siehe* leichte Achse
eichinvariante Phasendifferenz γ, 11
Einkristalle
  Eigenschaften der, 59
Elektronenstrahllack, 66
Elphy Plus, 68
Energielücke Δ, 9
  in $RuSr_2GdCu_2O_8$, 101
Entwickeln
  PMMA, 68
Epoxidkleber, 65

Fehler, 78
FFLO-Zustand, 50, 145
Field cooled, 84

Filter, 75
Fistul-Giuliani-Theorie, 123
Flussquantisierung, 8
Flux-Flow, 20, 122
    -Peak, 129
        Breite, 132
        Höhe, 136
    -Widerstand, 126
Fraunhofer-Muster, 121
Fremdphasen, 61

Geometrie, 72
    Fehler, 80
Ginzburg-Landau-Parameter, 9
Ginzburg-Landau-Theorie, 7

H_{ex}, *siehe* Austauschfeld
Hotplate, 65

I_c, *siehe* kritischer Strom
Irreversibilitätslinie, 111, 117
Isolator, 69

JEOL 6500F, 67
Josephson
    -eindringtiefe, 17
        in $RuSr_2GdCu_2O_8$, 104
    -flusswirbel, 20
    -gleichung (1.), 12
    -gleichung (2.), 13
    -kontakt, 11
        kurz, 14
        lang, 16
    -vortex, *siehe* -flusswirbel
Jullière-Modell, 37

Kennlinien
    von $RuSr_2GdCu_2O_8$, 97
Kleber, *siehe* Epoxidkleber
Kohärenzlänge
    BCS, 9
    Ginzburg-Landau, 8
    von $RuSr_2GdCu_2O_8$, 120
Kolossaler Magnetwiderstand, 40
Kontaktstifte, 71
Kontaktwiderstand, 70, 96
    Korrektur, 100
Kristallfeld, 29
Kristallstruktur
    $Bi_2Sr_2CaCu_2O_8$, 25
    $La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$, 39
    $RuSr_2GdCu_2O_8$, 52
Kritische Temperatur
    Magnetisierungsmessungen, 84
    Tabelle, 94
    Verschiebung im Magnetfeld, 117
Kritischer Strom, 101, 103
    Magnetfeldabhängigkeit, 121
        kurzer Kontakt, 20
    Tabelle, 103
    Temperaturabhängigkeit, 107, 109, *siehe auch* Ambegaokar-Baratoff-Gesetz
Kritisches Magnetfeld H_{c2}
    Ginzburg-Landau, 10
    von $RuSr_2GdCu_2O_8$, 111, 117
Kurzschluss, 72

$La_{1.4}Sr_{1.6}Mn_2O_7$, 38
Lackdicke, 66
λ_c, 124
Lebenslauf, 174
Leichte Achse, 34
Leiterbahnen, 70
Lift-Off, 69
Literaturverzeichnis, 169
Lithographie
    Elektronenstrahllith., 65
    optische, 70
LOFF-Zustand, *siehe* FFLO-Zustand
London'sche Eindringtiefe, 9

Magnet, 77
Magnetfeldabhängige Messungen, 112
Magnetisierungsmessungen, 83
Magnetowiderstand oberhalb T_c, 113
McCumber-Parameter, 15

Meißner-Ochsenfeld, 7
Mesa, 62
Messaufbau, 73
Messelektronik, 78
Molekularfeld-Näherung, 31

Néel-Temperatur, 84

Orbital quenching, 29
Ordnungsparameter, 8
    Symmetrie, 21

Pendel-Modell, 16
Phasendiagramm
    gemessen, 144
    theoretisch, 48
π-Kontakt, *siehe* 0-π-Übergang
Plasma
    -frequenz, 17
    -wellen, 18
PMMA, *siehe* Elektronenstrahllack
Probenhalter, 73
Probenpräparation, 59
    Überblick, 64
Probenstab, 73
Pt100, 75

Quasiteilchen, 9
Quervernetzen, 69

$R(T)$, *siehe* Widerstand
Raith, 68
Rasterelektronenmikroskop, 65
RCSJ-Modell, 14
Reentrante Supraleitung, 42
REM, *siehe* Rasterelektronenmikroskop
$RuSr_2GdCu_2O_8$
    Eigenschaften, 51
        elektronische, 57
        magnetische, 53
        supraleitende, 55
        Tabelle, 56
    Kristallstruktur, 51

Schmelze, 61
SFS-Strukturen
    künstliche, 46
SIFIS-Strukturen, 46
SIFS-Strukturen, 46
Sine-Gordon-Gleichung, 17
    gekoppelte, 26
Solitonen, 18
Spin-Flip, 40
Spin-Flop, 34, 88, 116, 127
Spinpolarisiertes Tunneln, 36
Sprungtemperatur, *siehe* kritische Temperatur
Stöchiometrie
    Einfluss der, 92
    Fehler, 80
Stifttechnik, 71
Streuung
    spinabhängig, 114
Superaustausch, 30
Suprastromdichte, 11
s-Welle, *siehe* Ordnungsparametersymmetrie
Swihart-Geschwindigkeit, 19

Temperatursensor, 75
Tempern, 65
TMR, *siehe* Spinpolarisiertes Tunneln
Transportmessungen, 90
Trocknen, *siehe* Ausbacken
Typ I/II-Supraleiter, 9

Vakuumfett, 65
V_c, *siehe* charakteristische Spannung
Verunreinigungen, 65
Vortex-Dynamik, 18
    in $RuSr_2GdCu_2O_8$, 125

Wellenfunktion, 8
WHH-Theorie, 10, 120
Widerstand
    spezifischer (Tabelle), 94
    Temperaturabhängigkeit, 92

ξ, *siehe* Kohärenzlänge

Zahnstocher, 64