

# **Mikrowellen-Charakterisierung von Hochtemperatursupraleitern**

**Klaus R. Irgmaier**

Technische Universität München  
Physik-Department E10

Univ.-Prof. Dr. H. Kinder

## **Mikrowellen-Charakterisierung von Hochtemperatursupraleitern**

Klaus Irgmaier

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

Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

genehmigten Dissertation.

Vorsitzender: Univ.-Prof. Dr. M. Kleber

Prüfer der Dissertation:

1. Univ.-Prof. Dr. H. Kinder
2. Univ.-Prof. F. Koch, Ph.D.

Die Dissertation wurde am 11.04.2002 bei der Technischen Universität München eingereicht  
und durch die Fakultät für Physik am 13.11.2002 angenommen.

Meinen Eltern

# Inhaltsverzeichnis

|          |  |           |
|----------|--|-----------|
| <b>1</b> | <b>Einleitung</b>  | <b>1</b>  |
| <b>2</b> | <b>Grundlagen</b>  | <b>3</b>  |
| 2.1      | Theorie der Oberflächenimpedanz . . . . .                                | 3         |
| 2.1.1    | Elektromagnetische Wellen im verlustbehafteten<br>Medium . . . . .       | 3         |
| 2.1.2    | Elektromagnetische Wellen an der Metall-Vakuum-<br>Grenzfläche . . . . . | 4         |
| 2.1.3    | Oberflächenimpedanz von Normalleitern . . . . .                          | 6         |
| 2.1.4    | Oberflächenimpedanz von Supraleitern . . . . .                           | 7         |
| 2.1.5    | Weiterführende Theorien . . . . .  | 9         |
| 2.1.6    | Elektromagnetische Wellen an dünnen Filmen . . . . .                     | 10        |
| 2.2      | Theorie der Mikrowellenresonatoren . . . . .                             | 12        |
| 2.2.1    | Dielektrische Resonatoren . . . . .                                      | 12        |
| 2.2.2    | Kopplung an das Mikrowellenfeld . . . . .                                | 14        |
| 2.3      | YBCO- und RE-BCO-Dünnschichten . . . . .                                 | 16        |
| 2.3.1    | Eigenschaften . . . . .  | 16        |
| 2.3.2    | Substitutionsreihen . . . . .  | 17        |
| 2.3.3    | Herstellung . . . . .  | 18        |
| 2.3.4    | Rissbildung durch thermische Ausdehnung . . . . .                        | 19        |
| 2.3.5    | Substratmaterialien . . . . .  | 21        |
| <b>3</b> | <b>Aufbau der <math>R_s</math>-Messsysteme</b>                           | <b>24</b> |
| 3.1      | Bestimmung der Temperaturabhängigkeit . . . . .                          | 24        |
| 3.1.1    | Messprinzip . . . . .  | 24        |
| 3.1.2    | Komponenten des Messsystems . . . . .                                    | 26        |
| 3.1.3    | Hochfrequenzkenngrößen des Resonators . . . . .                          | 28        |
| 3.2      | Skalarer Messplatz . . . . .   | 29        |
| 3.3      | Bestimmung der Leistungsabhängigkeit . . . . .                           | 29        |
| 3.3.1    | Messprinzip . . . . .  | 29        |
| 3.3.2    | In-situ HF-Kopplungseinstellung . . . . .                                | 32        |
| 3.3.3    | Berechnung des Oberflächenmagnetfeldes . . . . .                         | 32        |
| 3.4      | Ortsaufgelöste Messung . . . . .   | 33        |
| 3.4.1    | Übersicht verschiedener Techniken . . . . .                              | 34        |
| 3.4.2    | Saphirresonator für ortsauflösende Messungen . . . . .                   | 35        |

|          |  |           |
|----------|--|-----------|
| 3.4.3    | Frequenzstabilität . . . . .                                     | 37        |
| 3.4.4    | Erhöhung der Ortsauflösung . . . . .                             | 38        |
| 3.5      | Messfehler . . . . .   | 40        |
| <b>4</b> | <b>Messergebnisse und Diskussion</b>                             | <b>41</b> |
| 4.1      | YBCO-Filme auf Saphir . . . . .                                  | 41        |
| 4.1.1    | Einsatz von HTSL-Filmen für Filteranwendungen . . . . .          | 41        |
| 4.1.2    | Herstellung der YBCO-Filme auf Saphir . . . . .                  | 42        |
| 4.1.3    | Temperaturabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes . . . . .     | 43        |
| 4.1.4    | Leistungsabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes . . . . .      | 44        |
| 4.1.5    | Ortsaufgelöster Oberflächenwiderstand . . . . .                  | 46        |
| 4.2      | Substitutionsreihe Seltene Erden . . . . .                       | 49        |
| 4.2.1    | Allgemeine Eigenschaften . . . . .                               | 49        |
| 4.2.2    | Seltene Erden mit größeren Ionenradien als Y (La, Nd) . . . . .  | 49        |
| 4.2.3    | Seltene Erden mit kleineren Ionenradien als Y (Yb, Lu) . . . . . | 49        |
| 4.2.4    | Seltene Erden mit ähnlichen Ionenradien als Y (Er, Dy) . . . . . | 50        |
| 4.3      | DyBCO-Filme auf Einkristallsubstraten . . . . .                  | 50        |
| 4.3.1    | DyBCO-Filme auf Saphir . . . . .                                 | 50        |
| 4.3.2    | Leistungsverträglichkeit von DyBCO-Filmen auf Saphir . . . . .   | 51        |
| 4.3.3    | Filme auf $\text{LaAlO}_3$ . . . . .                             | 53        |
| 4.3.4    | Filme auf $\text{YAlO}_3$ . . . . .                              | 53        |
| 4.4      | Porenreiche Filme auf Einkristallsubstraten . . . . .            | 55        |
| 4.4.1    | Erhöhung der Schichtdicke . . . . .                              | 55        |
| 4.4.2    | Einfluss der Oberflächenmorphologie . . . . .                    | 57        |
| 4.5      | YBCO-Filme auf technischem Substrat . . . . .                    | 58        |
| 4.5.1    | YBCO-Filme mit IBAD-YSZ-Puffer auf Keramik SM210 . . . . .       | 58        |
| 4.5.2    | Supraleitende Eigenschaften . . . . .                            | 59        |
| 4.5.3    | Ortsaufgelöster Oberflächenwiderstand . . . . .                  | 61        |
| 4.5.4    | Mikrowellenverluste im Substrat . . . . .                        | 61        |
| 4.6      | Ca-dotierte YBCO-Filme . . . . .                                 | 64        |
| 4.6.1    | Einfluss der Dotierung . . . . .                                 | 64        |
| 4.6.2    | Vergleich mit Modellergebnissen . . . . .                        | 65        |
| <b>5</b> | <b>Zusammenfassung</b>   | <b>68</b> |
|          | <b>Literaturverzeichnis</b>                                      | <b>71</b> |
|          | <b>Danksagung</b>  | <b>77</b> |

# Kapitel 1

## Einleitung

In Zeiten von Internet und drahtloser Datenkommunikation werden das Verlangen nach immer schnelleren Übertragungstechnologien fortwährend stärker und die Anforderungen an Hochfrequenzbauelemente entsprechend hoch. Eine zentrale Rolle spielen dabei satellitengestützte Kommunikationssysteme, die in Zukunft neben den gewöhnlichen Telefon- und Televisionsprogrammen auch große Datenmengen für Mobilfunk- und Multimediaanwendungen übertragen müssen. Auch wenn in den letzten Jahren in der Hochfrequenztechnik (HF-Technik) große Fortschritte erzielt wurden, beispielsweise in der Mobilfunktechnik, lassen sich aktive und passive HF-Komponenten nicht beliebig durch neue Designs optimieren. Neuartige Materialien mit geringerem Absorptionsvermögen gewinnen zunehmend an Bedeutung. Mit der 1986 von Bednorz und Müller entdeckten Klasse der Hochtemperatursupraleiter (HTSL) [Bed86] stehen supraleitende Materialien zur Verfügung, deren Sprungtemperaturen über der des Siedepunktes von flüssigem Stickstoff liegen und die kommerzielle Anwendungen mit breitem wirtschaftlichen Nutzen versprechen. 1988 haben erste Messungen der Mikrowelleneigenschaften an Einkristallen und epitaktischen HTSL-Dünnschichten von Klein et al. [Kln89] gezeigt, dass der Oberflächenwiderstand deutlich kleiner als von Normalleitern ist. Dieser Sachverhalt und die hohe kritische Temperatur machen das Material für Hochfrequenzbauteile interessant und in verschiedenen Forschungsprojekten (ComDev in Kanada [Man98], Bosch SatCom in Deutschland [Käs98]) wird zur Zeit intensiv an supraleitenden Subsystemen für Satelliten gearbeitet. Das Ziel ist die in Satelliten integrierten konventionellen Hohlraumresonatoren durch Resonatoren aus supraleitenden Mikrostreifenleitungen zu ersetzen und neben einem entscheidenden Performancegewinn (Schmalbandigkeit, Flankensteilheit) eine deutliche Gewichtsreduzierung zu erreichen bei eingerechneter, zusätzlicher Kühlertechnologie. Denn die Wirtschaftlichkeit eines Satelliten errechnet sich heutzutage nicht nur aus einer zu erreichenden Betriebsdauer, sondern auch aus den anfallenden Startkosten, die im Schnitt mit rund 50000 US\$ pro Kilogramm Startgewicht zu Buche schlagen.

Im Hinblick auf den kommerziellen Einsatz wurde in den letzten Jahren die Qualität sowohl bei Einkristallen als auch bei Dünnschichten von gebräuchlichen HTSL, wie beispielsweise  $YBa_2Cu_3O_7$ , erheblich verbessert. Passive Bauelemente, wie Hochfrequenzfilter, benötigen HTSL-Filme, die eine Reihe von Anforderungen erfüllen müssen: Der Oberflächenwiderstand sollte in einem Temperaturbereich von 50 K bis 80 K nied-

rig sein und die Linearität des Leistungsverhaltens bis etwa 10 mT gewährleistet sein. Für planare Bauelementstrukturen benötigt man homogene Filme mit zeitlich stabilen Eigenschaften auf möglichst großen Substraten.

Bei der Entwicklung und Herstellung dieser Materialien müssen Systeme zur Verfügung stehen, die die Hochfrequenzeigenschaften im Hinblick auf aktuelle und zukünftige technische Anwendungen bestimmen. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden unterschiedliche Messsysteme entwickelt, die es erlauben die Temperatur- und Leistungsabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes und den Oberflächenwiderstand orts aufgelöst zu messen. Hierbei wird ein System vorgestellt, das erstmals die orts aufgelöste Messung des Oberflächenwiderstandes bei Frequenzen unter 20 GHz im  $\mu\Omega$ - bis m $\Omega$ -Bereich erlaubt. Der Oberflächenwiderstand ist ein Maß für die Höhe der Hochfrequenzverluste. Die vorgestellte Arbeit ist Teil eines deutschen Verbundprojektes, das zum Ziel hat, oxydische Keramiken für die Anwendung in Hochfrequenzbauelementen in der Satellitenkommunikation zu entwickeln und zu charakterisieren. Entsprechend liegen die Charakterisierungsfrequenzen der Messsysteme zwischen 5 GHz und 20 GHz. Der temperaturabhängige Oberflächenwiderstand einer HTSL-Schicht ist ein wesentlicher Parameter für den Vergleich verschiedener Materialien. Da hochfrequente Magnetfelder zu Nichtlinearitäten führen können, muss die Leistungsabhängigkeit des Oberflächenwiderstands bestimmt werden. Für die Herstellung großflächiger HTSL-Strukturen ist die räumliche Homogenität der HTSL-Schicht zur Verwendung in einzelnen Bauteilen wichtig. Die entwickelten Systeme werden eingesetzt um alternative Film- und Substratmaterialien zu charakterisieren. Hierbei steht das Ziel im Vordergrund Materialien zu identifizieren, die verbesserte Hochfrequenzeigenschaften aufweisen. Neben YBCO-Filmen auf Saphir wird eine Substitutionsreihe der RE-BCO-Filme (RE, engl. rare earth, Seltene Erden) untersucht, wobei DyBCO-Filme einer weitergehenden Analyse unterzogen werden. Weiterhin werden die hochfrequenten Verluste in porenreichen YBCO-Filmen auf Saphir und in YBCO-Filmen auf einer technischen Keramik bestimmt. Abschließend wird der Einfluss der Dotierung mit Ca-Ionen auf die Mikrowelleneigenschaften von YBCO-Filmen betrachtet.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich mit der Einleitung in fünf Kapitel. In Kapitel 2 werden Grundlagen zur Theorie des Oberflächenwiderstandes und abgeschirmter, dielektrischer Resonatoren dargestellt. Die Herstellung und die Eigenschaften von HTSL-Schichten werden kurz erläutert. Die vier zur Materialcharakterisierung entwickelten Messsysteme werden in Kapitel 3 vorgestellt. In Kapitel 4 werden die für die HTSL-Filme erhaltenen Messergebnisse gezeigt und in Kapitel 5 zusammengefasst.

# Kapitel 2

## Grundlagen

### 2.1 Theorie der Oberflächenimpedanz

Das vollständige Verschwinden des elektrischen Widerstandes von Supraleitern unterhalb der Sprungtemperatur  $T_c$  gilt nur im Falle von Gleichstrom. Bei Anlegen eines Hochfrequenzfeldes treten hingegen dissipative Verluste durch einen nicht verschwindenden Oberflächenwiderstand auf. Zum besseren Verständnis dieses Mechanismus wird zunächst allgemein auf die Definition der Oberflächenimpedanz eingegangen und danach eine Darstellung für Normal- und Supraleiter gegeben.

#### 2.1.1 Elektromagnetische Wellen im verlustbehafteten Medium

Bei hohen Frequenzen<sup>1</sup> können auftretende Ströme und Spannungen nicht mehr als konstante Felder angesehen werden, sondern sind zusätzlich Funktionen des Ortes. Strom und Spannung werden allgemein in magnetisches bzw. elektrisches Feld transformiert. Die Wechselwirkung zwischen einem hochfrequenten, elektromagnetischen Wechselfeld (HF-Feld) und einem metallischen Leiter wird durch die Maxwell'schen Gleichungen beschrieben [Jac62]

$$\operatorname{rot}\vec{E} = -\frac{\partial\vec{B}}{\partial t}, \quad \operatorname{rot}\vec{H} = \vec{j} + \frac{\partial\vec{D}}{\partial t}, \quad \operatorname{div}\vec{D} = \rho, \quad \operatorname{div}\vec{B} = 0 \quad (2.1)$$

Zur Lösung dieses Gleichungssystems sind Materialgleichungen notwendig, welche die obigen Felder in Beziehung setzen:

$$\vec{D} = \epsilon\vec{E}, \quad \vec{B} = \mu\vec{H}, \quad \vec{j} = \sigma\vec{E} \quad (2.2)$$

Die durch diese Gleichungen definierte elektrische Permittivität  $\epsilon$ , magnetische Permeabilität  $\mu$  und Leitfähigkeit  $\sigma$  sind im allgemeinen komplexe Tensoren. Für isotrope Medien können sie als skalare Größen angenommen werden. Zur weiteren Vereinfachung wird im Folgenden eine senkrecht auf eine Oberfläche einfallende ebene harmonische Welle betrachtet, die sich in einem nicht magnetischen Medium in  $z$ -Richtung

---

<sup>1</sup>Frequenzen mit Wellenlängen in der Größenordnung der Materie mit der sie wechselwirken.

fortbewegt und deren elektrisches Feld parallel zur x-Achse orientiert ist (magnetisches Feld parallel zur y-Achse) Das Medium füllt den Halbraum  $z \geq 0$  aus und besitzt bei  $z = 0$  eine ebene Oberfläche. Die Kombination der Gleichungen (2.1) und (2.2) ergibt die bekannte Helmholtz Wellengleichung

$$-\frac{\partial^2 E}{\partial z^2} = i\omega\mu_0(\sigma - i\omega\epsilon)E. \quad (2.3)$$

Um die Lösung der Maxwell'schen Gleichungen zu vereinfachen wird hier in kartesischen Koordinaten gerechnet und als Lösung eine harmonische, ebene Wellen angesetzt:

$$E(z, t) = E_x e^{-\gamma z - i\omega t}, \quad H(z, t) = H_y e^{-\gamma z - i\omega t} \quad (2.4)$$

Die Ausbreitungskonstante  $\gamma$  erhält man durch Einsetzen von Gleichung (2.4) in (2.3):

$$\gamma = \sqrt{(i\omega\mu_0(\sigma + i\omega\epsilon))} = \alpha + i\beta \quad (2.5)$$

Der Realteil  $\alpha$  beschreibt hierbei die Dämpfung der fortlaufenden Welle, der Imaginärteil  $\beta$  die Phase. Aus dem Faradayschen Gesetz ergibt sich folgender Zusammenhang zwischen E- und H-Feld:

$$-i\omega\mu_0 H_y = \frac{\partial E_x}{\partial z} \quad (2.6)$$

Die Felder stehen zueinander senkrecht und sind voneinander abhängig. Das Verhältnis von elektrischer und magnetischer Feldstärke definiert die intrinsische Impedanz  $Z$ , oft auch als Feldwellenwiderstand bezeichnet, für das Medium in dem sich die Welle bewegt [Lan97]:

$$\frac{E(z, t)}{H(z, t)} = \frac{E_x}{H_y} = \frac{i\omega\mu_0}{\gamma} = \sqrt{\left(\frac{i\omega\mu_0}{\sigma + i\omega\epsilon}\right)} \equiv Z \quad (2.7)$$

Die Wellenwiderstand wird zur Lösung vieler Problemstellungen benutzt, so z.B. zur Berechnung der Reflexionskoeffizienten von Wellen zwischen verschiedenen Medien. Im folgenden Abschnitt soll damit die Impedanz an der Oberfläche eines leitenden Mediums berechnet werden.

### 2.1.2 Elektromagnetische Wellen an der Metall-Vakuum-Grenzfläche

Das Konzept der Oberflächenimpedanz wird häufig benutzt, wenn zur Lösung elektromagnetischer Probleme komplizierte Geometrien des Mediums auf eine einzige Grenzfläche mit einer normalerweise frequenzabhängigen Grenzflächenimpedanz reduziert werden können. Eine Lösung ist ausschließlich mit Kenntnis dieser Oberflächenimpedanz möglich und die Geometrie jenseits der Grenzfläche muss nicht bekannt sein. Man definiert daher als Oberflächenimpedanz das Verhältnis der Tangentialkomponenten des elektrischen zu der des magnetischen Feldes:

$$Z_s \equiv \frac{E_{\parallel}}{H_{\parallel}} \quad (2.8)$$

Die Oberflächenimpedanz  $Z_s$  soll an einer Halbebene mit Normalenvektor in  $z$ -Richtung diskutiert werden. Dazu betrachtet man eine ebene Welle, die von einem Medium mit  $Z_2$  kommend sich auf ein Medium mit  $Z_1$  zubewegt. Wenn man die Zeitabhängigkeit ignoriert, gilt für die einfallende Welle:

$$E_i = E_{0i}e^{-\gamma_1 z}, \quad H_i = \frac{E_{0i}}{Z_1}e^{-\gamma_1 z} \quad (2.9)$$

Ein Teil der Welle wird an der Grenzfläche reflektiert:

$$E_r = E_{0r}e^{\gamma_1 z}, \quad H_r = -\frac{E_{0r}}{Z_1}e^{\gamma_1 z} \quad (2.10)$$

Der Exponent ist positiv, da sich die Welle in die entgegengesetzte Richtung bewegt. Ein Teil geht durch die Grenzfläche bei  $z = 0$  und transmittiert in das Medium mit der Impedanz  $Z_2$ :

$$E_t = E_{0t}e^{-\gamma_2 z}, \quad H_t = \frac{E_{0t}}{Z_2}e^{-\gamma_2 z} \quad (2.11)$$

An der Grenzfläche bei  $z = 0$  muss die Summe der einfallenden und reflektierten Welle gleich dem transmittierten Anteil sein:

$$E_i + E_r = E_t, \quad H_i + H_r = H_t \quad (2.12)$$

An der Oberfläche entspricht dies den Tangentialkomponenten des Feldes, so dass man mit der Definition der Oberflächenimpedanz folgenden Ausdruck erhält:

$$Z_s = \frac{E_{\parallel}}{H_{\parallel}} = \frac{E_i + E_r}{H_i + H_r} \quad (2.13)$$

Setzt man die Gleichungen (2.9), (2.10) und (2.11) für  $z = 0$  in Gleichung (2.13) ein, so bekommt man für die Oberflächenimpedanz schließlich:

$$Z_s = Z_2 = Z_1 \frac{E_{0i} + E_{0r}}{E_{0i} - E_{0r}} \quad (2.14)$$

Die Oberflächenimpedanz  $Z_s$  des Leiters ist also gleich seiner intrinsischen Impedanz  $Z_2$ . Der Realteil  $R_s$  und der Imaginärteil  $X_s$  der komplexen Oberflächenimpedanz,

$$Z_s = R_s + iX_s \quad (2.15)$$

können zur Berechnung weiterer Größen verwendet werden. Die an der Oberfläche absorbierte mittlere Leistung  $P_{diss}$  pro Flächeneinheit ergibt sich aus dem zeitlich gemittelten Realteil des Poynting-Vektors und ist somit proportional zum Realteil von  $Z_s$  [Lan67]:

$$P_{diss} = \frac{1}{2} \operatorname{Re} [E(z=0) H^*(z=0)] = \frac{1}{2} R_s |H(z=0)|^2 \quad (2.16)$$

$R_s$  bezeichnet demnach die Mikrowellenverluste in Normal und Supraleitern und wird als Oberflächenwiderstand bezeichnet.

Die Oberflächenreaktanz  $X_s$  ist eine Funktion der Eindringtiefe<sup>2</sup>  $\lambda$ , bei der die Einhüllende der Amplitude des elektromagnetischen Feldes im Leiter auf  $\frac{1}{e}$  exponentiell abgefallen ist (Gleichungen (2.4) und (2.5)):

$$X_s = \omega\mu_0\lambda \quad (2.17)$$

### Bemerkung zur Wellensymmetrie

Die bisherigen Betrachtungen wurden an ebenen Wellen durchgeführt. Das Verhältnis von elektrischer Feldstärke und magnetischer Feldstärke ist immer bestimmt durch den Feldwellenwiderstand  $Z$  und gilt für beliebige Arten von elektromagnetischen Wellen (z.B. mit zylindrischer Symmetrie). Dies ist durch die Tatsache bedingt, dass die elektrische und die magnetische Energiedichte in jedem Volumenelement gleich groß sein müssen.

### 2.1.3 Oberflächenimpedanz von Normalleitern

In diesem Kapitel steht die Diskussion der Mikrowellenverluste in supraleitenden Materialien im Vordergrund. Zum leichteren Verständnis werden zunächst die Mikrowelleneigenschaften von Normalleitern betrachtet. Die Mikrowellenleitfähigkeit von Metallen oder hochtemperatursupraleitenden Materialien unterscheidet sich bei Raumtemperatur nicht von der Gleichstromleitfähigkeit  $\sigma_0$ , die nach Drude durch [Ash76]

$$\sigma_0 = \frac{ne^2}{m}\tau = \frac{l}{\mu_0 v_F \lambda_p^2} \quad (2.18)$$

gegeben ist. Hier steht  $n$  für die Ladungsträgerkonzentration der Elektronen und  $m$  kennzeichnet die effektive Masse der Ladungsträger.  $\tau$  ist die Relaxationszeit. Anschaulich ist dies die mittlere Zeit, die zwischen zwei Streuprozessen vergeht (kurz: Streuzeit). Die freie Weglänge  $l$  gibt die Strecke an, die ein Ladungsträger im Mittel zurücklegt, ohne gestreut zu werden. Mögliche Streuprozesse sind z.B. die Streuung von Elektronen an Phononen, Elektronen und Störstellen.  $\lambda_p$  sowie  $v_F$  bezeichnen die Plasmawellenlänge bzw. die Fermigeschwindigkeit.

Setzt man die Gleichstromleitfähigkeit aus Gleichung (2.18) in den Ausdruck für die Oberflächenimpedanz (2.7), so erhält man für die Oberflächenimpedanz eines Normalleiters:

$$Z_s = (1 + i)\sqrt{\frac{\omega\mu_0}{2\sigma_0}} \quad (2.19)$$

Oberflächenwiderstand und Oberflächenreaktanz sind nach dem normalen Skineneffekt betragsmäßig gleich. Dies gilt jedoch nur, wenn die freie Weglänge kleiner als die Eindringtiefe ist und der Strom in jedem Punkt vollständig durch das lokale, elektrische

<sup>2</sup>Bei Normalleitern wird für die Eindringtiefe häufig die klassische Skintiefe  $\delta$  benutzt.

Feld erfasst werden kann. Aus der Oberflächenreaktanz und Gleichung (2.17) lässt sich die Eindringtiefe  $\delta_{skin}$  eines Normalleiters berechnen und man erhält:

$$\delta_{skin} = \sqrt{\frac{2}{\mu_0 \omega \sigma_0}} \quad (2.20)$$

Durch Temperaturerniedrigung bzw. Erhöhung der Relaxationszeit kommt man in den Bereich des anormalen Skineffektes, in dem die freie Weglänge größer als die Skintiefe ist. Kühlt man gute Leiter, wie z.B. Kupfer ab, so erreicht man schon bei kleineren Frequenzen ( $f < 10 \text{ GHz}$ ) den Bereich des anormalen Skineffekts. Reuter und Sondheimer [Reu48] berechneten für den Fall der spiegelnden Reflexion und der diffusen Streuung von Ladungsträgern an der Oberfläche eine integrale Lösung. Für den Grenzfall ( $l \gg \delta_{skin}$ ) existiert wieder eine geschlossene Darstellung. Für die Oberflächenimpedanz  $Z_s^\infty$  gilt dann:

$$Z_s^\infty = \frac{4}{9} \left[ \frac{\sqrt{3} m^* v_F \omega^2}{2\pi \mu_0 n e^2} \right]^{\frac{1}{3}} (1 + \sqrt{3}i) \quad (2.21)$$

Im folgenden Abschnitt wird ein Modell der Mikrowellenabsorption in Supraleitern erläutert. Im Vordergrund stehen dabei die linearen Mikrowelleneigenschaften von Supraleitern, d.h. das Verhalten im Falle verschwindender, elektrischer und magnetischer Felder.

### 2.1.4 Oberflächenimpedanz von Supraleitern

Seit der Entdeckung der Supraleiter sind eine Vielzahl phänomenologischer Modelle zur Beschreibung thermischer und elektromagnetischer Eigenschaften supraleitender Materialien vorgeschlagen worden. Diese Modelle haben schließlich zur Entwicklung der BCS-Theorie geführt. Noch heute werden phänomenologische Modelle auf Grund ihrer Einfachheit zur Interpretation von Messungen an HTSL verwendet. An dieser Stelle soll eine auf den Londonschen Gleichungen [Lon35] und dem Zwei-Flüssigkeiten-Modell (2F-Modell) von Gorter und Casimir [Gor34] basierende Theorie vorgestellt werden, die ein phänomenologisches Verständnis des supraleitenden Zustandes unterhalb der Sprungtemperatur  $T_c$  liefert.

Die Londonschen Gleichungen setzen die Stromdichte  $\vec{j}$  und die elektromagnetischen Felder in einem Supraleiter in Relation zueinander und beschreiben die Feldverdrängung aus dem Inneren eines in den supraleitenden Zustand übergehenden Metalls (Meissner-Ochsenfeld-Effekt):

$$\frac{\partial \vec{j}}{\partial t} = \frac{\vec{E}}{\mu_0 \lambda_L}, \quad \text{rot} \vec{j} = -\frac{\vec{H}}{\lambda_L^2}, \quad \text{mit } \lambda_L^2 = \frac{m}{\mu_0 n_s e^2} \quad (2.22)$$

Hierbei ist  $n_s$  ist die Konzentration der supraleitenden Elektronen.

### Zwei-Flüssigkeiten-Modell

Nach dem Zwei-Flüssigkeiten-Modell von Gorter und Casimir besteht die supraleitende Phase aus zwei Anteilen: Ein Bruchteil der Ladungsträger  $x(T)$  befindet sich in der "Gasphase", die man sich als klassisches Elektronengas vorstellen könnte (normal leitende Elektronen), und ein Bruchteil  $1 - x(T)$  in der "Kristallphase" (supraleitende Elektronen). Die Funktion  $x(T)$  kann so gewählt werden, dass Messungen thermodynamischer Eigenschaften von Supraleitern, wie z.B. die Temperaturabhängigkeit des kritischen Feldes, richtig wieder gegeben werden. Für konventionelle Supraleiter erhält man näherungsweise  $x(T) = \left(\frac{T}{T_c}\right)^4$ .

In Verbindung mit der Londonschen Theorie macht das 2F-Modell Aussagen über die Mikrowellenabsorption in Supraleitern. Der Gesamtstrom<sup>3</sup>  $j$  im Supraleiter setzt sich aus dem Strom  $j_s$  der supraleitenden Ladungsträger und dem Strom  $j_n$  der normalleitenden Elektronen zusammen:

$$j = j_s + j_n \quad (2.23)$$

Für die Temperaturabhängigkeit der Londonschen Eindringtiefe gilt:

$$\lambda_L^2 = \frac{1}{1-x} \frac{m}{\mu_0 n e^2}, \quad (2.24)$$

mit  $n$  der Ladungsträgerkonzentration im normalleitenden (NL) Zustand. Mit der Londonschen Gleichung (2.22) ergibt sich dann für den Suprastrom

$$j_s = i \frac{(1-x) \sigma_0}{\omega \tau} E. \quad (2.25)$$

Unter der Annahme, dass sich die normalleitenden Elektronen wie in einem Normalleiter verhalten, erhält man für den Beitrag zum Gesamtstrom bei Vernachlässigung nichtlokaler Effekte

$$j_n = \frac{x \sigma_0}{1 - i \omega \tau} E. \quad (2.26)$$

Die Gleichungen (2.23), (2.25) und (2.26) liefern die resultierende Leitfähigkeit im supraleitenden (SL) Zustand:

$$\sigma = \frac{x \sigma_0}{1 - i \omega \tau} + i \frac{(1-x) \sigma_0}{\omega \tau} = \sigma_1 + i \sigma_2 \quad (2.27)$$

Für  $\omega \tau \ll 1$  folgt hieraus  $\sigma_1 \ll \sigma_2$ , vorausgesetzt die Temperatur unterscheidet sich ausreichend von der kritischen Temperatur, so dass  $\frac{x}{1-x} \ll \frac{1}{\omega \tau}$ . Mit Hilfe der Ungleichung  $\sigma_1 \ll \sigma_2$  lässt sich der Ausdruck (2.7) für die Oberflächenimpedanz vereinfachen. Im Rahmen dieser Näherung ergibt sich für den Oberflächenwiderstand und die Eindringtiefe [Lan97]:

---

<sup>3</sup>Der Strom kann hier als skalare Größe dargestellt werden, da elektromagnetische Felder keine Komponente senkrecht zur Oberfläche besitzen.

$$R_s = \frac{1}{2} \mu_0^2 \omega^2 \lambda^3 \sigma_1, \quad \lambda = \frac{1}{\sqrt{\mu_0 \omega \sigma_2}} \quad (2.28)$$

Im Zwei-Flüssigkeiten-Modell ergeben sich für die Oberflächenimpedanz damit folgende Eigenschaften:

- Für  $\omega\tau \ll 1$  wächst  $R_s$  quadratisch mit steigender Frequenz (die experimentell beobachtete Frequenzabhängigkeit beträgt  $R_s \sim \omega^{1.8}$  und ist somit etwas niedriger als im Zwei-Flüssigkeiten-Modell [Sch99]). Der Oberflächenwiderstand wird nur durch die Leitfähigkeit der normalleitenden Elektronen bestimmt. Im Grenzfall  $\omega = 0$  schließen die supraleitenden Ladungsträger die normalleitenden Elektronen kurz und der Oberflächenwiderstand verschwindet.
- Für  $\omega\tau \ll 1$  werden der Imaginärteil der Leitfähigkeit und die Eindringtiefe nur durch die supraleitenden Ladungsträger bestimmt. Die Eindringtiefe ist gleich der Londonschen Eindringtiefe  $\lambda_L$  und hängt nur von der Temperatur aber nicht von der Frequenz ab.

Der lokale Grenzfall  $\omega\tau \ll 1$  ist für Frequenzen unterhalb der Energielücke des Supraleiters  $f = \frac{2\Delta}{h}$  erfüllt.

Für den Grenzfall  $\sigma_1 \ll \sigma_2$  ergibt sich nach Gleichung (2.28) für die erwartete Temperaturabhängigkeit von  $R_s$  nach dem 2F-Modell ein für  $T \rightarrow 0$  K verschwindender Restwiderstand. In Experimenten zeigt sich hingegen, dass alle HTSL einen im Vergleich zu klassischen Supraleitern hohen Restwiderstand besitzen. Man kann dieses Verhalten beschreiben, indem man zusätzlich zu der normal- und supraleitenden Komponente nicht-paarende Ladungsträger einführt [Mül90]. Im mittleren Temperaturbereich beschreibt das 2F-Modell gut das  $R_s(T)$ -Verhalten klassischer Supraleiter und liefert hingegen keine genaue Beschreibung der Temperaturabhängigkeit bei HTSL.

### 2.1.5 Weiterführende Theorien

Eine Theorie zur Absorption hochfrequenter Felder in Supraleitern auf Grundlage der BCS-Theorie [Bar57] wurde 1958 von Mattis und Bardeen sowie Abrikosov et al. entwickelt [Abr59]. Numerische Berechnungen des Oberflächenwiderstandes [Hal70] im Rahmen dieser erweiterten Theorie stimmen mit experimentellen Ergebnissen klassischer Supraleiter sehr gut überein [Kle89] und geben das exponentielle  $R_s(T)$ -Verhalten wieder. Ein umfassendes Verständnis für die Hochfrequenzverluste oxydischer HTSL fehlt hingegen bis heute. Einen Überblick über die teilweise komplementären Ansätze, die gegenwärtig diskutiert werden, findet man z.B. in [Hei99].

Bedingt durch die hohe Sprungtemperatur der HTSL ist die mittlere freie Weglänge unterhalb der Sprungtemperatur temperaturabhängig. Dies führt im mittleren Temperaturbereich zu einem  $R_s(T)$ -Verhalten, das stark von dem klassischer Supraleiter abweicht. Im Rahmen eines kombinierten Drude/Zwei-Flüssigkeiten-Modells kann man folgende Beziehung zwischen Streuzzeit und dem Realteil der Leitfähigkeit angeben ((2.18) in (2.27)) [Orb94]:

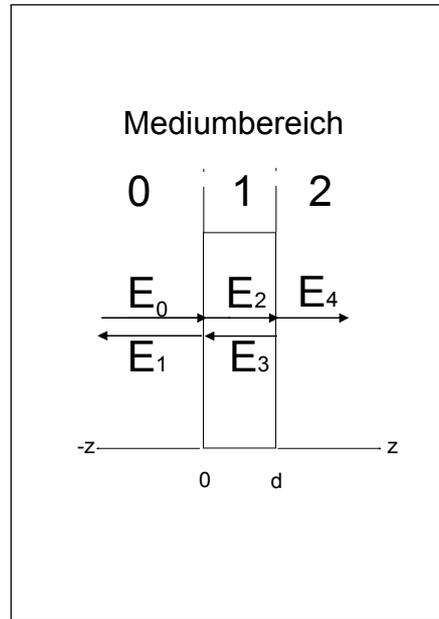


Abbildung 2.1: Darstellung der transmittierten und reflektierten Anteile der elektrischen Feldstärke einer Welle, die sich in positiver  $z$ -Richtung ausbreitet.

$$\sigma_1(\omega, T) \sim \frac{n(T) \cdot \tau(T)}{1 + \omega^2 \tau^2(T)} \quad (2.29)$$

Im Wesentlichen wird  $\sigma_1$  durch das Produkt aus der Dichte der ungepaarten Ladungsträger  $n$ , sogenannte Quasiteilchen, und der Streuzzeit  $\tau$  bestimmt ( $\omega\tau \ll 1$  für  $f < 100$  GHz). Die Abnahme von  $\sigma_1$  kann im supraleitenden Bereich, der bei klassischen Supraleitern durch die kleiner werdende Dichte  $n$  bestimmt wird, durch eine unter der Sprungtemperatur stark ansteigende Streuzzeit der thermisch aktivierten Quasiteilchen kompensiert werden. Eine solche  $\sigma_1(T)$ -Abhängigkeit kann als Erklärung für ein auftretendes Plateau oder Maximum in  $R_s(T)$  von HTSL dienen.

### 2.1.6 Elektromagnetische Wellen an dünnen Filmen

Im vorhergehenden Abschnitt wurde die Ausbreitung von elektromagnetischen Wellen in leitenden Medien behandelt, die eine ebene Oberfläche bei  $z = 0$  besitzen und den gesamten Halbraum füllen ( $z > 0$ ). Damit verbunden ist eine exponentiell gedämpfte Welle im leitenden Medium. Hat die leitende Schicht eine endliche Dicke  $d$ , so wirken sich beide Oberflächen auf die Feldverteilung aus. Kommt die Schichtdicke in die Größenordnung der Eindringtiefe, so führt die Überlagerungen mit den reflektierten Anteilen zu Feldverzerrungen und die Feldstärke nimmt nicht mehr exponentiell mit der Tiefe ab.

Zur Berechnung des Einflusses der Schichtdicke wird im Folgenden angenommen, dass eine leitende, dünne Schicht mit  $Z_1 = R_s + iX_s$  und ein verlustfreies Dielektrikum (Substrat) mit  $Z_2 = Z_0/\sqrt{\varepsilon_0}$  die Bereiche 1 bzw. 2 in Abbildung 2.1 ausfüllen.

$Z_0$  ist der Wellenwiderstand des Vakuums im Bereich 0 ( $Z_0 = 377 \Omega$ ). Eine sich in  $z$ -Richtung ausbreitende Welle wird an beiden Grenzschichten teilweise transmittiert bzw. reflektiert und lässt sich in den jeweiligen Bereichen durch folgende Ansätze beschreiben:

$$E = E_0 e^{\gamma_0 z} + E_1 e^{-\gamma_0 z}, \quad H = \frac{E_0}{Z_0} e^{\gamma_0 z} - \frac{E_1}{Z_0} e^{-\gamma_0 z} \quad (\text{Bereich 0, } z < d) \quad (2.30)$$

$$E = E_2 e^{\gamma_1 z} + E_3 e^{-\gamma_1 z}, \quad H = \frac{E_2}{Z_1} e^{\gamma_1 z} - \frac{E_3}{Z_1} e^{-\gamma_1 z} \quad (\text{Bereich 1, } 0 < z < d) \quad (2.31)$$

$$E = E_4 e^{\gamma_2 z}, \quad H = \frac{E_4}{Z_2} e^{\gamma_2 z} \quad (\text{Bereich 2, } z > d) \quad (2.32)$$

Die Ausbreitungskonstanten  $\gamma_i$  werden nach Gleichung (2.7) durch die Impedanzen  $Z_i$  bestimmt ( $\gamma_i = \frac{i\omega\mu_0}{Z_i}$ ). Aus der Forderung, dass die Amplituden der elektrischen und magnetischen Feldverteilung bei  $z = 0$  und  $z = d$  stetig sind, erhält man für die Feldverteilung im Leiter:

$$E(z) = Z_1 H(z) = 2E_0 \frac{(Z_1 + Z_2)Z_1 e^{i\alpha_1(z-2d)} e^{2\beta_1(d-z)} + (Z_1 - Z_2)Z_1 e^{-i\alpha_1 z} e^{\beta_1 z}}{(Z_1 + Z_2)(Z_0 + Z_1) e^{-2i\alpha_1 d} e^{2\beta_1 d} + (Z_1 - Z_2)(Z_0 - Z_1)} \quad (2.33)$$

$\alpha_1$  und  $\beta_1$  bezeichnen den Real- bzw. den Imaginärteil der Ausbreitungskonstante im Leiter. Der Oberflächenwiderstand der gesamten Schicht lässt sich mit Gleichung (2.33) aus der pro Volumeneinheit dissipierten Energie bestimmen (vgl. Gleichung (2.16), mittlere Leistung pro Flächeneinheit):

$$W(z) = \frac{1}{2} \sigma_1 |E(z)|^2 \quad (2.34)$$

Der Ausdruck für  $W(z)$  ist äußerst komplex, lässt sich jedoch für Temperaturen weit unter der Sprungtemperatur vereinfachen [Bau97]. Die an der Oberfläche (bei  $z = 0$ ) absorbierte Leistung erhält man schließlich durch Integration von  $z = 0$  bis  $z = d$ :

$$P_{diss} = \frac{1}{2} R_s |H(z=0)|^2 \left[ \coth\left(\frac{d}{\lambda}\right) + \frac{\frac{d}{\lambda}}{\sinh^2\left(\frac{d}{\lambda}\right)} \right] \quad (2.35)$$

Vergleicht man die dissipierte Leistung mit Gleichung (2.16), so ist es naheliegend einen effektiven Oberflächenwiderstand  $R_s$  einzuführen, der die Verluste in einer dünnen Schicht beschreibt und einen intrinsischen Oberflächenwiderstand  $R_s^{intr}$ , den eine unendlich dicke Schicht besitzt:

$$R_s = R_s^{intr} \left( \coth\left(\frac{d}{\lambda}\right) + \frac{\frac{d}{\lambda}}{\sinh^2\left(\frac{d}{\lambda}\right)} \right) \quad (2.36)$$

Bei sehr dünnen Filmen ( $d < \lambda$ ) ist zusätzlich zu berücksichtigen, dass ein Teil der elektromagnetischen Wellen in das Substrat abgestrahlt wird. Die auftretenden Substratverluste erhöhen den vermeintlichen, effektiven Oberflächenwiderstand und müssen bei Bedarf zusätzlich korrigiert werden [Kle90].

## 2.2 Theorie der Mikrowellenresonatoren

Die in dieser Arbeit verwendeten Messsysteme basieren auf der zerstörungsfreien Messung von Hochfrequenzverlusten an normal- und supraleitenden Oberflächen. Eine etablierte und hier benutzte Methode zur Bestimmung von Verlusten ist der Einsatz von zylindersymmetrischen Resonatoren, die in den zu messenden Proben hochfrequente Oberflächenströme erzeugen und über deren Schwingungsgüte man auf den Oberflächenwiderstand schließen kann. In der Mikrowellentechnik werden unter anderem Hohlraum- und dielektrische Resonatoren verwendet. Sie dienen als frequenzselektive Bauelemente in Filtern und Verstärkern. Die hier vorgestellten, dielektrischen Resonatoren nutzen als Resonatorvolumen Dielektrika und erlauben eine starke Konzentration des HF-Feldes an der zu messenden Probe.

### 2.2.1 Dielektrische Resonatoren

Füllt man den Hohlraum des Resonators vollständig aus, so kann man die Resonanzfrequenzen um einen Faktor  $\sqrt{\epsilon}$  erniedrigen. Somit ist es möglich, die gleiche Resonanzfrequenz bei kleinerem Resonatorvolumen zu erhalten. Wird nur ein Teil des Resonatorvolumens mit einem Dielektrikum gefüllt, so ändert sich die Feldverteilung im Resonator entscheidend. Beim Übergang vom Dielektrikum zum Vakuum müssen die Tangentialkomponenten von  $\vec{E}$  und  $\vec{H}$  und die Normalkomponenten von  $\vec{D} = \epsilon_r \epsilon_0 \vec{E}$  und  $\vec{B} = \mu_r \mu_0 \vec{H}$  stetig sein. Der Wellenvektor außerhalb des Dielektrikums wird komplex und die Feldstärke klingt exponentiell ab. Die Randbedingungen werden durch die abschirmenden Wände festgelegt. Für zylindersymmetrische Geometrie lassen sich die Lösungen der Maxwell-Gleichungen in transversal elektrische (TE)- und transversal magnetische (TM)-Moden einteilen. Bei TE-Moden ist die Komponente des elektrischen Feldes  $E_z$  parallel zur Resonatorachse gleich Null (Für TM-Moden verschwindet  $H_z$ ). Die Eigenlösungen geben darüber Auskunft wieviele Wellenlängen in azimuthaler, radialer oder axialer Richtung existieren und werden mit drei Indizes ( $m, n, p$ ) spezifiziert. Die in der vorliegenden Arbeit benutzte  $TE_{011}$ -Mode ist rotationssymmetrisch, wodurch die azimuthale Lage der Felder eindeutig ist und definierte Koppelbedingungen an den Erregerantennen des Resonators vorliegen.

Der Einfluss der Absorption auf die Resonatormoden lässt sich durch den Gütefaktor  $Q_0$  charakterisieren. Die unbelastete Güte  $Q_0$  einer Mode ist durch das Verhältnis der gespeicherten Feldenergie  $W_0$  zur Verlustleistung  $P_{diss}$  im Resonator, normiert auf eine Schwingungsperiode, definiert [Jac62]:

$$Q_0 = \omega \cdot \frac{\text{gespeicherte Energie}}{\text{dissipierte Leistung}} = \omega \cdot \frac{W_0}{P_{diss}} \quad (2.37)$$

Der Zusammenhang zwischen der unbelasteten Güte und den Verlusten in den verschiedenen Materialien wird durch mehrere Füllfaktoren  $w_i$  und Geometriefaktoren  $G_i$  hergestellt [Kaj86]:

$$\frac{1}{Q_0} = \sum_i w_i \tan \delta_i + \sum_i \frac{R_s^i}{G_i} \quad (2.38)$$

Die erste Summe berücksichtigt dabei die Verluste der dielektrischen Körper im Resonator und die zweite Summe die verlustbehafteten Endflächen des abschirmenden Gehäuses. Der dimensionslose Füllfaktor  $w_i$  gibt das Verhältnis der im  $i$ -ten Dielektrikum gespeicherten Energie des elektrischen Feldes zu der im gesamten Resonator gespeicherten Energie an. Dielektrische Verluste werden durch den Verlustwinkel  $\delta$  quantifiziert:

$$\tan \delta = \frac{\varepsilon_1}{\varepsilon_2} = \frac{\omega \varepsilon_1 \varepsilon_0}{\sigma} \quad (2.39)$$

Der Imaginärteil  $\varepsilon_2$  der komplexen Permittivität  $\bar{\varepsilon}$  beschreibt die Verluste, die im Wesentlichen aus oszillierenden Dipolen und Verschiebungsströmen resultieren. Der Beitrag durch freie Ladungsträger kann im allgemeinen vernachlässigt werden [Zuc97].

Für den Geometriefaktor  $G_i$  gilt:

$$G_i = \frac{\omega \mu \int |H|^2 dV}{\int |H|^2 dA_{\text{Deckflächen}}} \quad (2.40)$$

Die Geometrie- und Füllfaktoren hängen ausschließlich von der Geometrie des Resonators und der angeregten Mode ab. Beide Größen lassen sich aus der Feldverteilung der betrachteten Mode ermitteln. Auch wenn die in dieser Arbeit verwendeten Resonatoren Zylindersymmetrie besitzen, ist die Lösung der Maxwell-Gleichungen schwieriger als bei Hohlraumresonatoren. Aus diesem Grund kann eine geschlossene Lösung für die Feldverteilung oder die Resonanzfrequenz nicht dargestellt werden. Kajfez und Guillon haben verschiedene semi-analytische Verfahren zur Berechnung der Feldverteilung in dielektrischen Resonatoren entwickelt [Kaj86]. Solche Verfahren können in der Regel nur für bestimmte Geometrien und Moden angewandt werden. Fast beliebig einsetzbar sind dagegen numerische Finite-Elemente-Methoden. Im Rahmen dieser Arbeit wurden die Feldverteilungen, Resonanzfrequenzen, Geometrie- und Füllfaktoren mit dem Finite-Integrations-Programm MAFIA<sup>4</sup> ermittelt. Das Programmpaket MAFIA basiert auf der finiten Integration der Maxwell Gleichungen und der Simulation von elektromagnetischen Feldern in einer vorgegebenen Struktur [Deh90].

Die Abbildungen 2.2 und 2.3 zeigen die Verteilung des magnetischen und elektrischen Feldes in einem dielektrischen Saphir-Resonator für die TE<sub>011</sub>-Mode. Die Felder sind auf Grund der etwa 10-fach höheren Permittivität von Saphir stark im Inneren des Saphirzylinders konzentriert. Das Magnetfeld ist parallel zur Symmetrieachse des Resonators ausgerichtet und nimmt außerhalb des Dielektrikums in radialer Richtung exponentiell ab. Dadurch fließen verlustbehaftete Oberflächenströme vor allem in den unteren und oberen Deckelflächen des Resonators und Ströme über Kanten werden

<sup>4</sup>Maxwell Equation by Finite Integration Algorithm

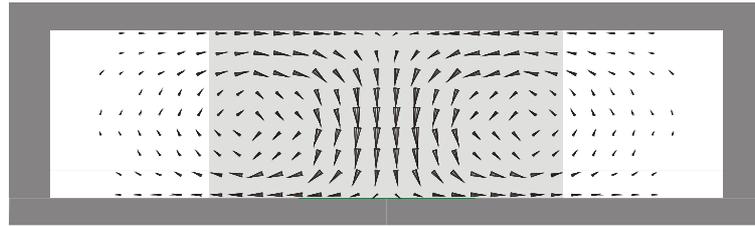


Abbildung 2.2: Mit MAFIA berechnete Magnetfeldverteilung der  $TE_{011}$ -Mode in einem dielektrischen Resonator.

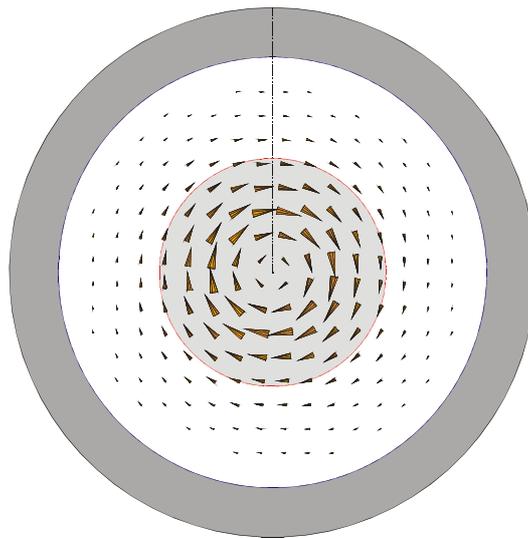


Abbildung 2.3: Mit MAFIA berechnete Verteilung der elektrischen Feldstärke in einem dielektrischen Resonator ( $TE_{011}$ -Mode).

vermieden. Die Geometriefaktoren der Deckelflächen sind im Vergleich zu den Geometriefaktoren der Mantelfläche entsprechend klein und eignen sich daher zur Bestimmung des Oberflächenwiderstandes mit ausreichender Messgenauigkeit (vgl. Gl. (2.38)).

### 2.2.2 Kopplung an das Mikrowellenfeld

Zur Anregung einer Resonatormode sowie zur Messung der reflektierten und transmittierten Feldanteile sind Erregerantennen erforderlich. Das Ankoppeln an eine  $TE_{011}$ -Mode kann mit seitlich am Resonator angebrachten Koppelschleifen über das Magnetfeld erfolgen (vgl. Abbildung 2.2). Die Flächennormale der Schleifen muss dazu axial ausgerichtet sein.

Zur gesamten Verlustleistung  $P_{diss}^{ges}$  tragen dann zusätzlich die an beiden Antennen abgegebenen Leistungen  $P_1$  und  $P_2$  bei:

$$P_{diss}^{ges} = P_{diss} + P_1 + P_2 \quad (2.41)$$

Analog zu Gleichung (2.37) kann man die an die Koppelschleifen abgegebene Leis-

tung durch Koppelgüten  $Q_i^k$  ("externe Güten") beschreiben und bezeichnet die aus den Gesamtverlusten resultierende Güte als belastete Güte  $Q_L$ :

$$\frac{1}{Q_L} = \frac{P_{diss}^{ges}}{\omega_0 W_0} = \frac{1}{Q_0} + \frac{1}{Q_1^k} + \frac{1}{Q_2^k} \quad (2.42)$$

$Q_L$  hängt mit der Halbwertsbreite  $\Delta f$  und der Mittenfrequenz  $f_{res}$  der Resonanzkurve der transmittierten (durch den Resonator hindurchtretenden) Leistung nach

$$Q_L = \frac{f_{res}}{\Delta f} \quad (2.43)$$

zusammen.

Die Koppelgüten beschreiben das Verhalten der in Resonanz an der jeweiligen Antenne reflektierten und transmittierten Welle und können aus den Reflexions- und Transmissionskoeffizienten der einfallenden, elektromagnetischen Welle bestimmt werden. In der Praxis werden diese Koeffizienten mit Netzwerkanalysatoren bestimmt und durch sogenannte Streuparameter beschrieben. Bei den hier behandelten Resonatortypen handelt es sich um Netzwerke, die mit 2 Toren (4-Polen) und 4 Streuparameter (vgl. Abbildung 2.4) vollständig beschrieben werden können [Peh89]:

$$\text{Reflexion: } |S_{ii}|^2 = \frac{\text{reflektierte Leistung an Anschluss } i}{\text{vorlaufende Leistung an Anschluss } i} = \frac{P_R}{P_E} \quad (2.44)$$

$$\text{Transmission: } |S_{ij}|^2 = \frac{\text{transmittierte Leistung an Anschluss } i}{\text{vorlaufende Leistung an Anschluss } j} = \frac{P_T}{P_E} \quad (2.45)$$

Hierbei gelten für die Indices  $i, j$  die Bedingungen  $i = 1, 2; j = 1, 2; i \neq j$ . Die Berechnung der unbelasteten Güte  $Q_0$  aus der gemessenen Güte  $Q_L$  ist mit Hilfe der Koppelfaktoren  $\beta_1$  und  $\beta_2$  möglich, die die Stärke der Ankopplung und damit der externen Verluste berücksichtigen:

$$Q_L = Q_0(1 + \beta_1 + \beta_2), \quad \text{mit } \beta_i = \frac{Q_i}{Q_0} \quad (2.46)$$

Die Koppelfaktoren können aus den Streuparametern bestimmt werden [Len97]:

$$\beta_1 = \frac{1 - |S_{11}|}{|S_{11}| + |S_{22}|}, \quad \beta_2 = \frac{1 - |S_{22}|}{|S_{11}| + |S_{22}|} \quad (2.47)$$

Bei schwacher und symmetrischer Ankopplung ( $\beta_1 = \beta_2 \ll 1$ ) kann  $Q_0$  näherungsweise auch mit  $|S_{ij}|$  berechnet werden [Mei92]:

$$Q_0 = \frac{Q_L}{1 - |S_{ij}|} \quad (2.48)$$

$|S_{21}|^2$  entspricht der Durchgangsdämpfung des Resonators bei  $f_0$ . Ist die Dämpfung größer als -40 dB, so kann die externe Belastung vernachlässigt werden:

$$Q_0 = Q_L / (1 - \sqrt{10^{-40/10}}) = Q_L / 0,99 \approx Q_L.$$

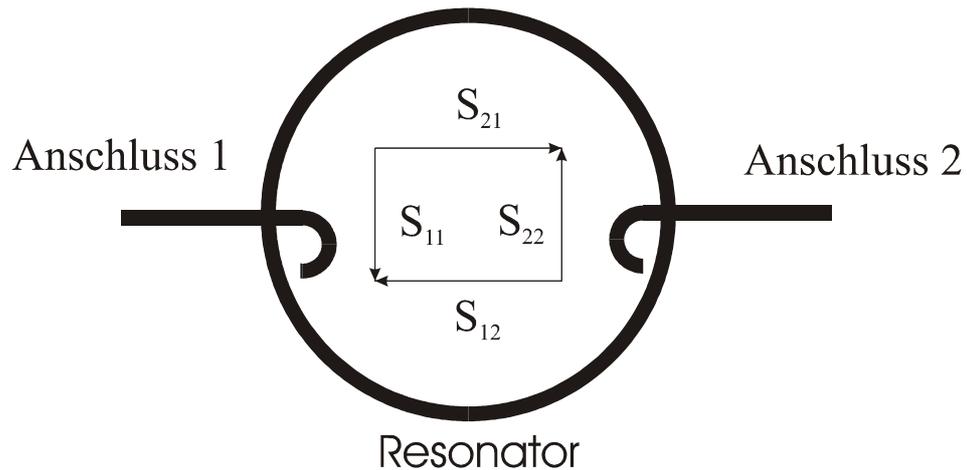


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der Streuparameter eines 2-Tor Resonators.

## 2.3 YBCO- und RE-BCO-Dünnschichten

### 2.3.1 Eigenschaften

In der vorliegenden Arbeit werden Mikrowellenmessungen an oxydischen Hochtemperatursupraleitern (HTSL) vorgestellt. Im Vergleich zu klassischen Supraleitern (z.B. Nb) weisen diese einige spezifische Besonderheiten auf, die sich auf die Hochfrequenzeigenschaften auswirken. Bei den untersuchten Materialien handelt es sich um  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  Dünnschichten (YBCO) bzw. RE- $\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ -Filme<sup>5</sup>, bei denen das Y-Ion durch ein Seltene Erden Ion substituiert wurde (RE-BCO).

Die Kristallstruktur supraleitender YBCO-Verbindungen lässt sich aus drei übereinanderstehenden perowskitähnlichen Einheitszellen ableiten, in deren Zentren abwechselnd ein Ba- und ein Y-Atom sitzt (s. Abbildung 2.5). Ein Teil der Kupferionen befindet sich auf den Grundflächen von vierseitigen Pyramiden, die in der a-b-Ebene  $\text{CuO}_2$ -Ebenen bilden. Das Y-Ion in der Mitte der orthorhombischen Struktur trennt die beiden Ebenen voneinander (sogenannter Spacer). In b-Richtung fügen sich die übrigen Kupferionen zu CuO-Ketten zusammen.

Die entstehende Schichtstruktur bewirkt eine starke Anisotropie der supra- und normalleitenden Eigenschaften. Die Leitfähigkeit wird hauptsächlich durch den Transport von Löchern bewirkt und ist im Wesentlichen auf die  $\text{CuO}_2$ -Ebenen beschränkt. Aus diesem Grund können verlustarme Abschirmströme nur in a-b-Richtung fließen. Die Dotierung zum Lochleiter erfolgt durch den Einbau von Sauerstoff in die CuO-Ketten.

Die für die Supraleitung charakteristische Sprungtemperatur  $T_c$  hängt empfindlich von der Sauerstoffdefizienz  $\delta$  ab. Mit zunehmendem  $\delta$  steigt  $T_c$  auf etwa 93 K ( $\delta \approx 0.1$ ) und durchläuft dann ein Plateau mit  $T_c \approx 60$  K ( $0.4 \leq \delta \leq 0.5$ ) [Rao91]. Für  $\delta > 0.6$  wird die Supraleitung zerstört und YBCO wird zu einem antiferromagnetischen Isolator.

<sup>5</sup>RE, engl. rare earth

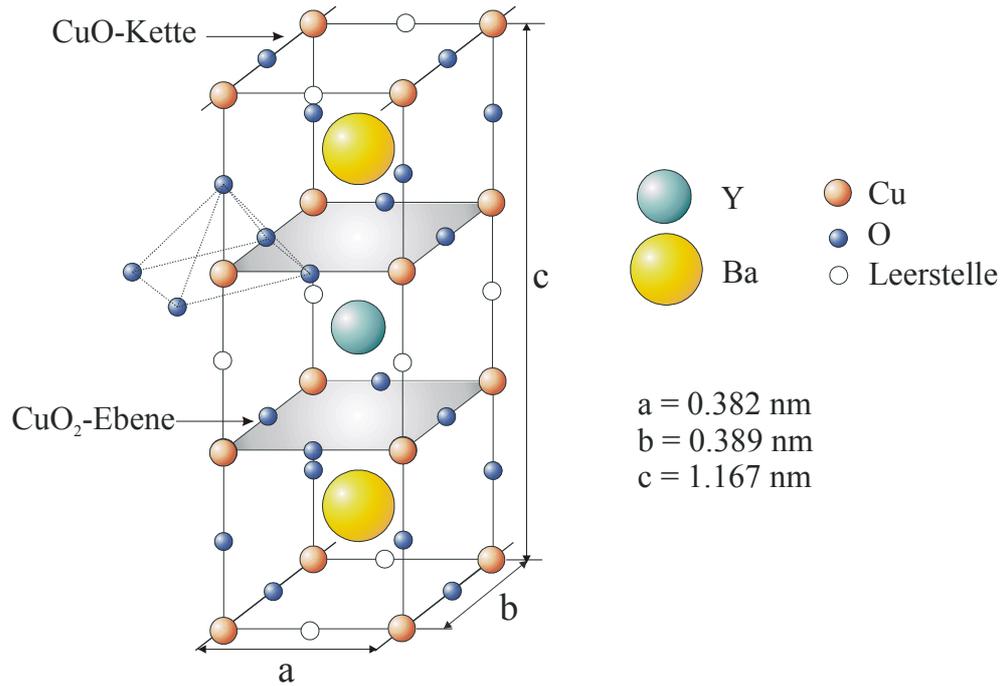


Abbildung 2.5: Systematische Darstellung der kristallographischen Einheitszelle von  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .

### 2.3.2 Substitutionsreihen

Die Sprungtemperatur von HTSL lässt sich wie bei den klassischen Supraleitern durch Druckänderung und der damit einhergehenden Gitterverzerrung beeinflussen. So steigt die Sprungtemperatur von YBCO beim Anlegen eines externen Druckes von 1 GPa um etwa 0.5 K [Neu93].

Die Substitution des im Zentrum sitzenden Yttriumions durch ein Ion mit der gleichen Elektronenkonfiguration, jedoch abweichendem Ionenradius, führt zu einer intrinsischen Druckänderung in der Einheitszelle und bewirkt ebenfalls eine Änderung der Gitterverzerrung. Der Einfluss des Spacerradius auf die Sprungtemperatur wurde von mehreren Gruppen systematisch untersucht und ist in Tabelle 2.1 für einige RE-Ionen mit zugehöriger Sprungtemperatur zusammengestellt [Lin95][Wil96]. Hier zeigt sich, dass eine Korrelation zwischen Spacerradius und Sprungtemperatur besteht.  $T_c$  steigt mit größer werdendem Ionenradius an.

| Ion        | Yb   | Tm   | Ho   | Y     | Dy   | Gd   | Sm   | Nd   |
|------------|------|------|------|-------|------|------|------|------|
| Radius [Å] | 0.98 | 0.99 | 1.02 | 1.025 | 1.03 | 1.06 | 1.10 | 1.12 |
| $T_c$ [K]  | ≈ 88 | ≈ 90 | ≈ 91 | ≈ 93  | ≈ 93 | ≈ 94 | ≈ 94 | ≈ 94 |

Tabelle 2.1: Ionenradien der Seltenen Erden und Yttrium; Sprungtemperatur von RE-BCO und YBCO.

Ein wichtiger Parameter von HTSL sind die im Vergleich zu klassischen Supraleitern kleinen Kohärenzlängen. Die Kohärenzlänge  $\xi_{ab}$  in Richtung der a-b-Ebenen ist etwa

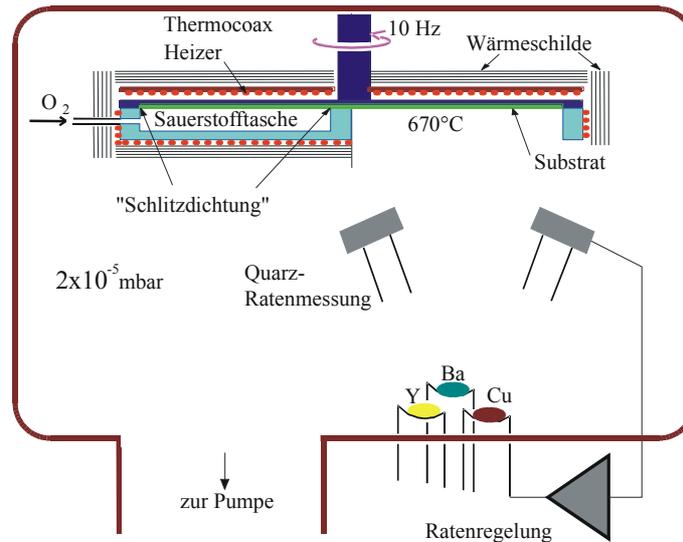


Abbildung 2.6: Schematische Darstellung der Aufdampfkammer mit Drehteller und Aufdampfschiffchen.

um den Faktor 20 kleiner als für den klassischen Supraleiter Nb. Auf Grund dieser kleinen Kohärenzlänge können sich Defekte und Kristallfehler auf atomarer Skala in einer Verschlechterung der Ladungstransporteigenschaften bemerkbar machen. Die Empfindlichkeit gegenüber solchen Einflüsse verlangt nach der Herstellung einkristalliner Proben. Da Hochfrequenzanwendungen Probengrößen benötigen, die mit Einkristallen nicht hergestellt werden können, sind ausschließlich epitaktisch aufgewachsene Filme von Bedeutung, die auf geeignete, dielektrische Substrate, *c*-Achsen orientiert, abgeschieden werden (*a*-*b*-Ebenen liegen parallel zum Substrat). Für YBCO-Filme sind dazu in den letzten Jahren verschiedene Verfahren entwickelt und optimiert worden. Eine Möglichkeit großflächige Substrate zu beschichten besteht darin, die abzuscheidenden Metalle thermisch zu verdampfen. Dieses Verfahren wird im nächsten Abschnitt vorgestellt.

### 2.3.3 Herstellung

Beim reaktiven, thermischen Koverdampfen werden Metallatome in einem Hochvakuum ( $2 \cdot 10^{-5}$  mbar) simultan aus den Verdampferquellen (sog. "Schiffchen") auf dem geheizten Substrat abgeschieden und oxidiert. Um den für das Wachstum notwendigen, homogenen Sauerstoffdruck zu erhalten, wurde am Lehrstuhl E10 ein Drehtellerverfahren entwickelt, in dem Deposition und Oxidation räumlich getrennt werden [Kin97]. In Abbildung 2.6 ist es schematisch dargestellt. Die zu bedampfenen Substrate sind auf einem drehbaren Teller über den Schiffchen montiert und können mittels eines Thermocoax-Heizleiters auf 670 °C geheizt werden. Durch Rotation (7 Hz) der Drehtellereinheit werden die Substrate abwechselnd durch Metalldampf und Sauerstoffzone geführt, in der sich bei einem Sauerstoffdruck von etwa  $5 \cdot 10^{-3}$  mbar die gewünschte Phase ausbildet. Hierbei wird darauf geachtet, dass nicht mehr als eine Metallmonola-

ge deponiert wird, bevor es zu einer erneuten Oxidation kommt. Die Drucküberhöhung in der Sauerstoffdose gegenüber dem Hochvakuum erreicht man, indem der Abstand zwischen Sauerstoffdose und Substrathalter auf ca. 0.3 mm eingestellt wird ("Knudsen-Dichtung").

Nach der Bedampfung befindet sich die Schicht im allgemeinen in einer tetragonalen Phase, die anschließend unter einem Sauerstoffpartialdruck von 200 mbar abgekühlt und in die supraleitende, orthorhombische  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ -Phase überführt wird.

Die erreichbaren Schichtdicken sind abhängig vom verwendeten Substrat und werden im folgenden Abschnitt diskutiert.

### 2.3.4 Rissbildung durch thermische Ausdehnung

#### Theoretische Betrachtungen

Nach der Herstellung stehen epitaktische RE- $\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filme unter beträchtlichen, mechanischen Spannungen. Ursache hierfür ist vor allem die unterschiedliche, thermische Ausdehnung von Film und Substrat. Beim Abkühlen auf Raumtemperatur bestimmt das dickere Substrat die thermische Gesamtkontraktion. Fehlanpassungen können durch den Einbau von Versetzungen ausgeglichen werden. Da die Ausdehnungskoeffizienten der meisten Substrate kleiner sind als der von RE- $\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ , kommt es beim Abkühlen zu einer starken Dehnung des Filmes. Die Dehnung  $u_{11}$  ist proportional zur Temperaturdifferenz  $\Delta T$  zwischen Depositions- und Raumtemperatur und kann mit folgender Formel bestimmt werden:

$$u_{11} = (\alpha_{RE-BCO} - \alpha_{Sub}) \cdot \Delta T \quad (2.49)$$

$\alpha$  bezeichnet den jeweiligen Wärmeausdehnungskoeffizienten. Dieser Effekt tritt bei allen Substratmaterialien auf, wenn der Film nicht abgleiten kann. Eine Reduzierung der Spannungen ist damit durch eine Zwischenschicht mit geringerer Ausdehnung nicht möglich. Die Schichtdicken-Limitierung von etwa 330 nm ist vor allem bei den verwendeten Saphirsubstraten ausgeprägt:  $\alpha_{YBCO} = 16 \cdot 10^{-6} \frac{1}{K}$  [Käs95],  $\alpha_{Al_2O_3} = 7 \cdot 10^{-6} \frac{1}{K}$  [Kaw98].

Eine Dehnung in der a-b-Ebene macht sich über die Querkontraktion in einer Längänderung der c-Achse bemerkbar [Pru94]:

$$u_{33} = -2 \frac{c_{13}}{c_{33}} u_{11} \quad (2.50)$$

Die Spannung  $\sigma_{11}$  in a-b-Ebene lässt mit sechs unabhängigen, elastischen Konstanten ( $c_{11}, c_{12}, c_{33}, c_{13}, c_{44}, c_{66}$ ) bestimmen:

$$\sigma_{11} = \left( c_{11} + c_{12} - 2 \frac{c_{13}^2}{c_{33}} \right) \cdot u_{11} \quad (2.51)$$

Diese Spannungen können durch Rissbildung abgebaut werden. Die dadurch freige-wordene Energie (Elastizität) steht einer aufzubringenden Oberflächenenergie entgegen. Das Verhältnis dieser Energien bestimmt nach [Tho90] die sog. kritische Filmdicke, ab der Rissbildung möglich wird:

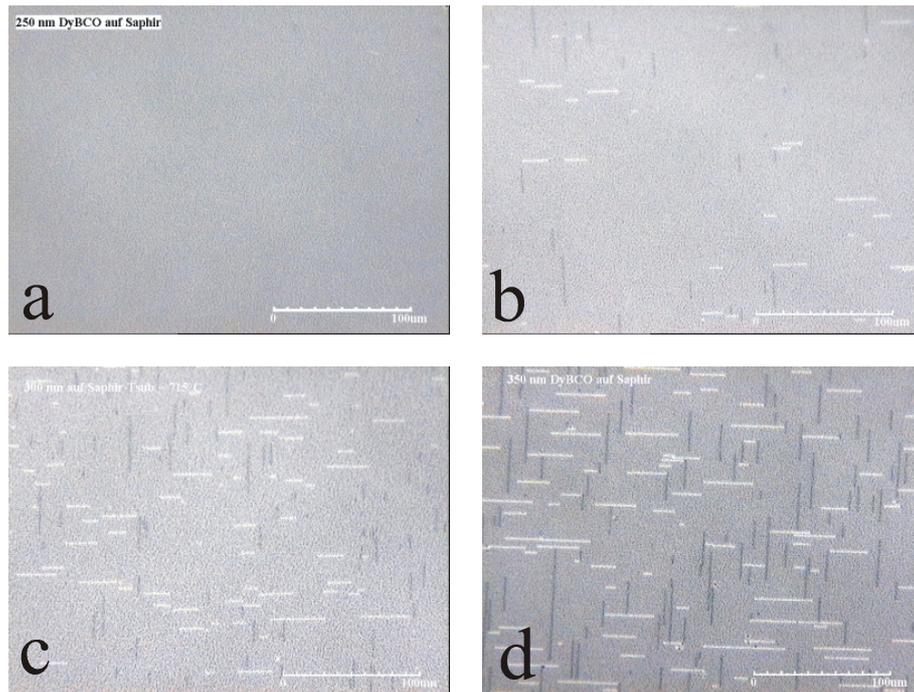


Abbildung 2.7: Lichtmikroskopaufnahmen der Oberflächen von DyBCO-Filmen unterschiedlicher Dicke. Film (a) zeigt mit einer Schichtdicke von 250 nm noch keine Risse. Bei Überschreiten der kritischen Schichtdicke (Filme b, c, d) relaxieren die Filme Zugspannungen durch Risse parallel zur  $\langle 100 \rangle$ -Richtung.

$$d_{krit} = \left( \frac{K}{\sigma_{11}} \right)^2 \quad (2.52)$$

Dabei bezeichnet  $K$  die Zugfestigkeit des Materials. Durch Härtemessungen an YBCO-Einkristallen erhält man für YBCO einen Wert von  $0.7 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ . Die elastischen Konstanten lassen sich z.B. durch Brillouin-Streuung ermitteln und erlauben eine Abschätzung der Elastizitätsmodule nach dem Verfahren von Ledbetter et al. [Led91].

Wie sich durch Messung der  $c$ -Achsenlänge mittels Röntgenbeugung zeigt [Pru94], ist die Ausdehnung  $u_{33}$  um den Faktor 2 geringer als theoretisch vorhergesagt. Nach Formel (2.51) halbiert sich damit die Spannung in  $a$ - $b$ -Richtung und die kritische Schichtdicke wird um einen Faktor vier höher. Die experimentell bestimmte Schichtdicke stimmt mit den aus Formel (2.52) berechneten Werten überein. Diese Diskrepanz bei der Ausdehnung  $u_{33}$  zeigt, dass die Mechanismen der Rissbildung letztendlich nicht vollständig geklärt sind. Unsicherheiten in der Bestimmung der Elastizitätsmodule und der Zugfestigkeit erklären ebenfalls Abweichungen.

### Erscheinungsbild und Oberflächenmorphologie

Bei Überschreiten der kritischen Schichtdicke relaxieren die Filme einen Teil der Zugspannungen durch geradlinige Risse entlang der Spaltebenen parallel zu den  $\langle 100 \rangle$

Richtungen. REM-Messungen [Pru94] zeigen, dass sich der Film an der Oberfläche um etwa 5 nm bis 10 nm öffnet.

Bei ausreichend hoher Rissdichte lassen sich bereits mit dem optischen Mikroskop bei polarisiertem Durchlicht Risse deutlich erkennen. In Abbildung 2.7 erkennt man den rechtwinklichen Verlauf der Risse eines DyBCO-Filmes entlang der Spaltebenen. Ausgangspunkte der meisten Risse sind Oberflächendefekte wie z.B. Kupferausscheidungen. Der mittlere Abstand beträgt einige Nanometer. Die Länge der Risse variiert zwischen 5  $\mu\text{m}$  und 100  $\mu\text{m}$ .

Senkrecht aufeinander treffende Risse bilden dünne Stege von einigen 100 nm. Durch diese Stege ist es möglich, dass ein supraleitender Bereich auf dem Film noch existiert und gemessen werden kann. Die Einengung des Strompfades ist für den Anstieg des Oberflächenwiderstandes, die reduzierte kritische Stromdichte und das verringerte kritische Hochfrequenz-Magnetfeld verantwortlich.

### Vermeidung der Rissbildung

Da lokale Schwachstellen im Film als Auslöser von Rissen fungieren, ist eine optimale Oberflächenqualität und Homogenität des Films von großer Bedeutung. Um Risse zu vermeiden, stellen Substrate mit größerer Wärmeausdehnung eine Alternative für technische Anwendungen dar. So erreicht man auf  $\text{LaAlO}_3$  und  $\text{MgO}$  Schichtdicken größer als 800 nm und liegt damit bei 77 K um den Faktor 3 über der Londonschen-Eindringtiefe.

Eine weitere Möglichkeit besteht darin, den Dünnsfilm so aufwachsen zu lassen, dass Poren entstehen, die die Spannungen abbauen können bevor es zur Rissbildung kommt. Durch Y-reiche Filme können solche Poren gezielt in den Film eingebracht werden und die kritische Schichtdicke um ca. 100 nm erhöht werden. Technische Substrate, wie sie in Abschnitt 4.5 vorgestellt werden, wurden nicht speziell auf ihre kritische Schichtdicke hin untersucht. Hier Substrathersteller bieten Materialien an, die eine ausgezeichnete Wärmeausdehnung in Bezug auf  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  bzw. RE-BCO besitzen.

### 2.3.5 Substratmaterialien

Um epitaktisches Wachstum von HTSL-Schichten zu erreichen, müssen die Substratmaterialien u.a. eine dem Supraleiter ähnliche Gitterstruktur sowie ähnliche, thermische Ausdehnungskoeffizienten aufweisen. Weiterhin dürfen sie bei den hohen Depositionstemperaturen keine chemischen Reaktionen mit dem Supraleiter eingehen. Für Hochfrequenzanwendungen sind zusätzlich geringe dielektrische Verluste, sowie eine hohe thermische Leitfähigkeit von großer Bedeutung. Typische Substratmaterialien sind Saphir,  $\text{LaAlO}_3$  und  $\text{MgO}$ , teilweise mit aufgetragenen Pufferschichten. Diese Puffer unterbinden die Wechselwirkung zwischen HTSL und Substrat und können das Wachstum verbessern.

Im Folgenden werden die in dieser Arbeit benutzten Substrate Saphir ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ),  $\text{LaAlO}_3$  und  $\text{YAlO}_3$  betrachtet. In Tabelle 2.2 sind die für Mikrowellenanwendungen wichtigen Parameter, die Permittivität  $\epsilon_r^{ab}$  mit zugehörigen Temperaturkoeffizienten  $\tau_\epsilon$  und der Verlusttangens  $\tan\delta$  bei 77 K und 290 K zusammengefasst[Zuc97].

|  | $Al_2O_3$            | $LaAlO_3$            | $YAlO_3$            |
|--|----------------------|----------------------|---------------------|
| $\epsilon_r^{ab}$ (290 K)                  | 9.4                  | 24                   | 15.8                |
| $\epsilon_r^{ab}$ (77 K)                   | 9.3                  | 23.6                 | 15.4                |
| $\tau_\epsilon$ (290 K) [K <sup>-1</sup> ] | $5 \cdot 10^{-5}$    | $9 \cdot 10^{-5}$    | $1.5 \cdot 10^{-4}$ |
| $\tau_\epsilon$ (77 K) [K <sup>-1</sup> ]  | $2 \cdot 10^{-5}$    | $2 \cdot 10^{-5}$    | $2 \cdot 10^{-5}$   |
| $\tan \delta$ (290 K)                      | $6-15 \cdot 10^{-6}$ | $2 \cdot 10^{-5}$    | $7 \cdot 10^{-5}$   |
| $\tan \delta$ (77 K)                       | $1-5 \cdot 10^{-8}$  | $1-15 \cdot 10^{-6}$ | $4 \cdot 10^{-6}$   |

Tabelle 2.2: Permittivität  $\epsilon_r$ , Temperaturkoeffizient  $\tau_\epsilon$  ( $\frac{d\epsilon_r}{dT}$ ) und Verlusttangens  $\tan\delta$  der in dieser Arbeit benutzten Substrate bei Raumtemperatur und 77 K für  $f=10$  GHz. Im Fall von Saphir gelten die angegebenen Werte nur für die Komponenten senkrecht zur optischen Achse.

### Saphir ( $Al_2O_3$ )

Bisher ist kein Dielektrikum bekannt, das kleinere dielektrische Verlusttangenswerte besitzt als einkristalliner Saphir. Aus diesem Grund wird Saphir als bevorzugtes Material für Resonatoren hoher Güte eingesetzt. Der Kristall hat trigonalen Charakter, wobei die Sauerstoffatome entsprechend der hexagonalen Kugelpackung angeordnet sind und die Aluminiumatome  $\frac{2}{3}$  der Oktaederlücken ausfüllen [Jac91]. Die Permittivität ist aufgrund der Kristallstruktur anisotrop und besitzt parallel zur optischen Achse einen kleineren Wert als senkrecht dazu ( $\epsilon_r^c(77\text{ K})=11.4$ ) [Zuc97]. Da sich die Kristallstruktur grundlegend von der Perowskitstruktur der HTSL-Materialien unterscheidet, ist Saphir schlecht an die RE-BCO Verbindungen angepasst. Die Fehlanpassungen können mit einem etwa 30 nm dicken  $CeO_2$ -Puffer reduziert werden. Durch den im Vergleich zu HTSL niedrigen thermischen Ausdehnungskoeffizienten (s. 2.3.4) ist die maximale Schichtdicke für YBCO auf 330 nm begrenzt und liegt damit im Bereich der Londonschen Eindringtiefe.

Zur Beschichtung mit HTSL werden fast ausschließlich (1102)-orientierte Substrate verwendet (sog. "r-cut"). Da Saphirsubstrate auch in der Halbleiterindustrie Anwendung finden, sind diese mit großen Durchmessern und zu geringen Preisen erhältlich.

### Lanthanaluminat ( $LaAlO_3$ )

$LaAlO_3$  wird häufig als Substrat für HTSL-Filme eingesetzt, da seine Gitterstruktur sehr gut mit der der HTSL übereinstimmt (im Falle von YBCO beträgt die Gitterfehlanpassung nur 2%) und es konnten Filme mit einer Dicke von bis zu 1.2  $\mu\text{m}$  auf  $LaAlO_3$ -Substraten hergestellt werden. Im Vergleich zu Saphir besitzt der Kristall eine recht hohe Permittivität von etwa 24 und ermöglicht als Material für HF-Anwendungen eine Miniaturisierung von Bauteilen. Obwohl das Material sehr zerbrechlich ist, lassen sich Substrate mit einem Durchmesser von bis 4 Zoll herstellen. Oberhalb von 500 °C kristallisiert  $LaAlO_3$  in der kubischen Perowskitstruktur. Bei Temperaturen unterhalb 500 °C geht die kubische Phase in eine rhomboedische Phase über, in der Zwillingsgrenzen vorliegen. Die einzelnen Zwillingsebenen sind Spiegelebenen senkrecht zu den  $\langle 100 \rangle$  und  $\langle 110 \rangle$  Richtungen und kann mit einer strukturellen Transformation erklärt

werden [Dan96]. Die Anwesenheit von Zwillingsgrenzen in diesem Material ist der Grund dafür, dass die Dielektrizitätskonstante über den Ort variiert und sich von Substrat zu Substrat unterscheidet. Die Perowskitstruktur wirkt sich nachteilig auf das Filmwachstum<sup>6</sup> aus und YBCO-Filme, die direkt auf ein Substrat aufgedampft werden weisen eine hohe Anzahl von a-Achsen auf. Mit der Abscheidung einer 30 nm dicken Pufferschicht können solche Fehlorientierungen vermieden werden und man erhält Filme mit den üblichen guten supraleitenden Eigenschaften.

Die dielektrischen Verluste in  $LaAlO_3$  können sich herstellungsbedingt um bis zu 2 Größenordnungen unterscheiden [Kru94][Zuc97]. Für technische Anwendungen gibt mittlerweile Substrate, die für Temperaturen unter 90 K  $\tan\delta$  Werte im Bereich von  $10^{-6}$  aufweisen.

### Yttriumaluminat ( $YAlO_3$ )

Im Gegensatz zu  $LaAlO_3$  ist  $YAlO_3$  stets unverzwilligt und zeigt eine orthorhombische Perowskitstruktur. Die Permittivität beträgt etwa 16 und liegt damit zwischen den Werten von Saphir und  $LaAlO_3$ . Als Substratmaterial ist einkristallines  $YAlO_3$  demnach eine mögliche Alternative zu  $LaAlO_3$ . Wie Messungen an Scheibenresonatoren gezeigt haben [Bau99], liegen die dielektrischen Verluste mit  $4 \cdot 10^{-6}$  im Bereich der Verluste von  $LaAlO_3$ .

Als großer Nachteil hat sich der geringe thermische Ausdehnungskoeffizient herausgestellt [Sem00] und es konnten nicht die gleichen Schichtdicken wie auf  $LaAlO_3$ -Substraten erreicht werden (Abschnitt 4.3.4). Zusätzlich erweist sich die Herstellung von Substraten mit einem Durchmesser größer als 1 Zoll als schwierig, da  $YAlO_3$  noch brüchiger als  $LaAlO_3$  ist und im Rahmen dieser Arbeit konnten nur zwei 2 Zoll große Wafer bezogen werden.

---

<sup>6</sup>Das gilt für Filme, die mittels thermischer Verdampfung hergestellt wurden, da mit anderen Beschichtungsverfahren keine Fehlorientierung beobachtet wird.

# Kapitel 3

## Aufbau der $R_s$ -Messsysteme

In diesem Kapitel werden die im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelten vier Messsysteme zur Untersuchung der Hochfrequenzeigenschaften von HTSL-Filmen vorgestellt. Für die Bestimmung der Temperatur-, Feldstärke- und Ortsabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes  $R_s(T, B_{hf}, \vec{r})$  werden dielektrische Resonatoren bei verschiedenen Frequenzen eingesetzt. Die physikalischen Grundlagen und das Resonatorprinzip sind bereits in Abschnitt 2.2 diskutiert worden. Zunächst wird das Messsystem vorgestellt, das eine Bestimmung der Temperaturabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes von HTSL-Filmen erlaubt. In diesem Zusammenhang wird gezeigt, wie aus den Hochfrequenzfeldgrößen der Oberflächenwiderstand bestimmt werden kann. Ein skalarer Messplatz<sup>1</sup> für  $R_s$  wird anschließend kurz dargestellt. Als nächstes wird das System zur Bestimmung der Leistungsabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes vorgestellt, das die Bestimmung von Nichtlinearitäten im Leistungsverhalten erlaubt. Schließlich wird das Messsystem gezeigt, das für eine orts aufgelöste Bestimmung des Oberflächenwiderstandes von HTSL-Filmen entwickelt wurde. Dieses erlaubt die Untersuchung lokal induzierter Feldbegrenzungen und ortsabhängiger Defekte und Gradienten in großflächigen Filmen.

### 3.1 Bestimmung der Temperaturabhängigkeit

#### 3.1.1 Messprinzip

Eine zentrale Anforderung war, eine Messung der Temperaturabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes von HTSL-Filmen zerstörungsfrei durchzuführen. Zu diesem Zweck wurde ein dielektrischer Parallel-Platten-Resonator entwickelt, der als Platten die zu untersuchenden HTSL-Filme verwendet, die das zylinderförmige Dielektrikum einschließen [Dre99]. Das Resonatorgehäuse besteht aus einem zylindrischen, sauerstofffreien Kupferzylinder und den beiden Proben, die die untere und obere Platte des Resonators ersetzen. Als Dielektrikum wurde Saphir wegen seines geringen Verlustfaktors gewählt. Die Resonanzfrequenz des dielektrischen Resonators bei 77 K beträgt bei den gewählten Abmessungen in der  $TE_{011}$ -Mode 10.9 GHz. Es können ein- oder

---

<sup>1</sup>Messung des Transmissionsfaktors ohne Phaseninformation.

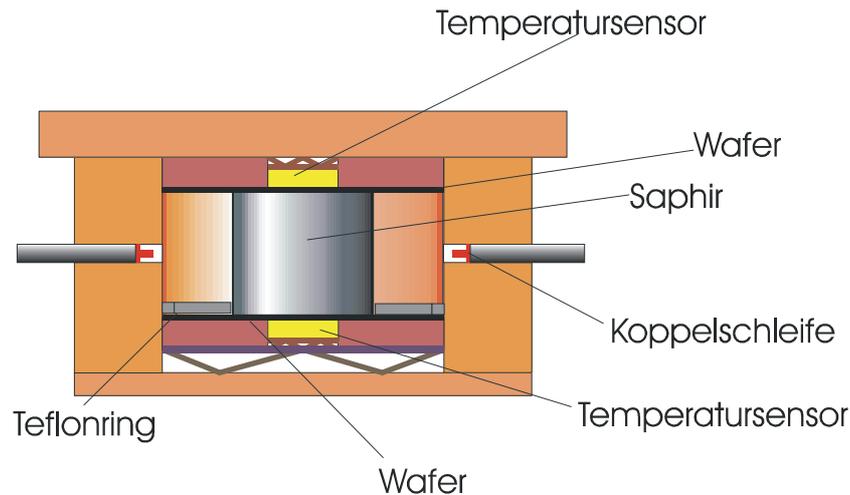


Abbildung 3.1: Querschnitt durch den 10.9 GHz Resonator zur Messung der Temperaturabhängigkeit von  $R_s$ .

doppelseitige Wafer mit einem Zoll Durchmesser untersucht werden, wobei jeweils die an das Dielektrikum grenzenden Filme charakterisiert werden. Die Abbildungen 3.1 und 3.2 zeigen einen Querschnitt durch bzw. eine Aufsicht auf den Saphirresonator.

Eine Fixierung des Dielektrikums mit Klebstoff auf dem HTSL-Film ist aus dem oben genannten Grund nicht möglich. Um ein Verrutschen des Saphirkristalls beim Einbau zu vermeiden, umschließt ein dünner Teflonring an der Unterseite den Kristall. Auf Grund der niedrigen Permittivität von 2.1 und des niedrigen Verlustwinkels [Mei92][Gey95] beeinflusst der Teflonring das Mikrowellenfeld im Inneren des Resonators nur sehr wenig. Der Einfluss des Teflonringes wird dennoch bei der Berechnung der Feldverteilung im Simulationsprogramm berücksichtigt.

Die Proben werden elastisch mit zwei CuBe-Federn gegeneinander gedrückt und fixieren so bei thermisch bedingten Ausdehnungen den Saphirkristall im gesamten Temperaturbereich an ihren Oberflächen. Dies verhindert Beschädigungen an der Filmoberfläche und erhöht die Reproduzierbarkeit der Messung, da bereits geringe Abstandsvariationen die Hochfrequenzeigenschaften verändern.

Die Koppelstärke des Resonators kann nur ex-situ verändert werden. Bei den Koppelantennen handelt es sich um Schleifen, die aus dünnen Kupferfolienstreifen angefertigt sind und den Innenleiter eines Semi-Rigid-Kabels mit seinem Außenleiter verbinden. Beide Antennen können in der Kupferabschirmung axial verfahren und fixiert werden.

Die Bestimmung der Proben temperatur erfolgt mit zwei kalibrierten Halbleiterdioden als Temperatursensoren, die mit Hilfe kleiner Tellerfedern auf die Rückseite der Substrate gepresst werden. So können die Temperatur des oberen und des unteren Films separat ermittelt werden und auftretende Temperaturgradienten im Resonator detektiert werden.

Für die Kühlung des Resonators steht ein 4.2 K Helium-Durchflusskryostat zur Verfügung, dessen Kaltfinger an der Oberseite des Kupferzylinders befestigt ist. Um einen

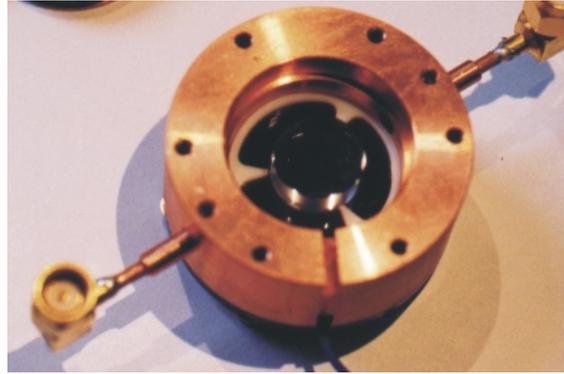


Abbildung 3.2: Fotografie des Messresonators in geöffnetem Zustand. Der Teflonring (helle Struktur am Innenrand der Kupferwandung) fixiert den Saphirkristall in der Mitte.

möglichen Temperaturgradienten zu minimieren und die Wärmeleitung zu verbessern, wurden zwischen den Kupferdeckeln Indiumdichtungen angebracht.

Die Temperatur des Kaltfingers wird mit einer Diode überprüft und steuert die Regeleinheit des Heizers, der sich ebenfalls am Kaltfinger befindet. Der vorgestellte Aufbau erlaubt die Messung des temperaturabhängigen Oberflächenwiderstandes in einem Temperaturintervall von 10 K bis 100 K.

Der gesamte Resonator ist in eine Vakuumkammer integriert. Vor Beginn einer Messung wird die Vakuumkammer bis auf einen Enddruck von etwa  $10^{-3}$  mbar evakuiert, um Eiskristallbildung auf den Filmoberflächen zu vermeiden. Erst dann wird der Resonator und mit ihm die Proben auf eine Starttemperatur von üblicherweise 15 K abgekühlt und ins Gleichgewicht gebracht. Der Heizer erwärmt während der Messung den Resonator in festen Temperaturschritten (z.B. 0.1 K) bis zu einer wählbaren Endtemperatur. Zwischen den Aufwärmphasen misst der Netzwerkanalysator alle notwendigen Mikrowellenparameter und wartet bis die Frequenz konstant ist, bevor er die entsprechende Bestimmung des Oberflächenwiderstandes startet. Dies ist notwendig, da die Eindringtiefe von HTSL mit steigender Temperatur stark zunimmt und entsprechend die Mittenfrequenz der  $TE_{011}$ -Mode verstimmt wird. Eine konstante Frequenz ist somit das Zeichen für eine konstante Temperatur des Resonators. Die mit dem Messsystem erreichte Genauigkeit der Bestimmung des Oberflächenwiderstandes wird in Abschnitt 3.5 diskutiert.

### 3.1.2 Komponenten des Messsystems

Der Messaufbau besteht aus dem bereits erwähnten dielektrischen Resonators, dem Durchflusskryostaten und drei unabhängigen Mess- und Regelkomponenten (s. Abbildung 3.3). Der Netzwerkanalysator dient gleichzeitig als Mikrowellen-Quelle und -Detektor. Er eignet sich für frequenzabhängige Messungen in Transmission und Reflexion. Zur Bestimmung der belasteten Güte des Resonators wird die Resonanzkurve in Transmission gemessen (vgl. Formel (2.43)). Aus der Bandbreite der Resonanzkurve wird die Güte der Schwingung des Saphirkristalls berechnet und damit der mittlere

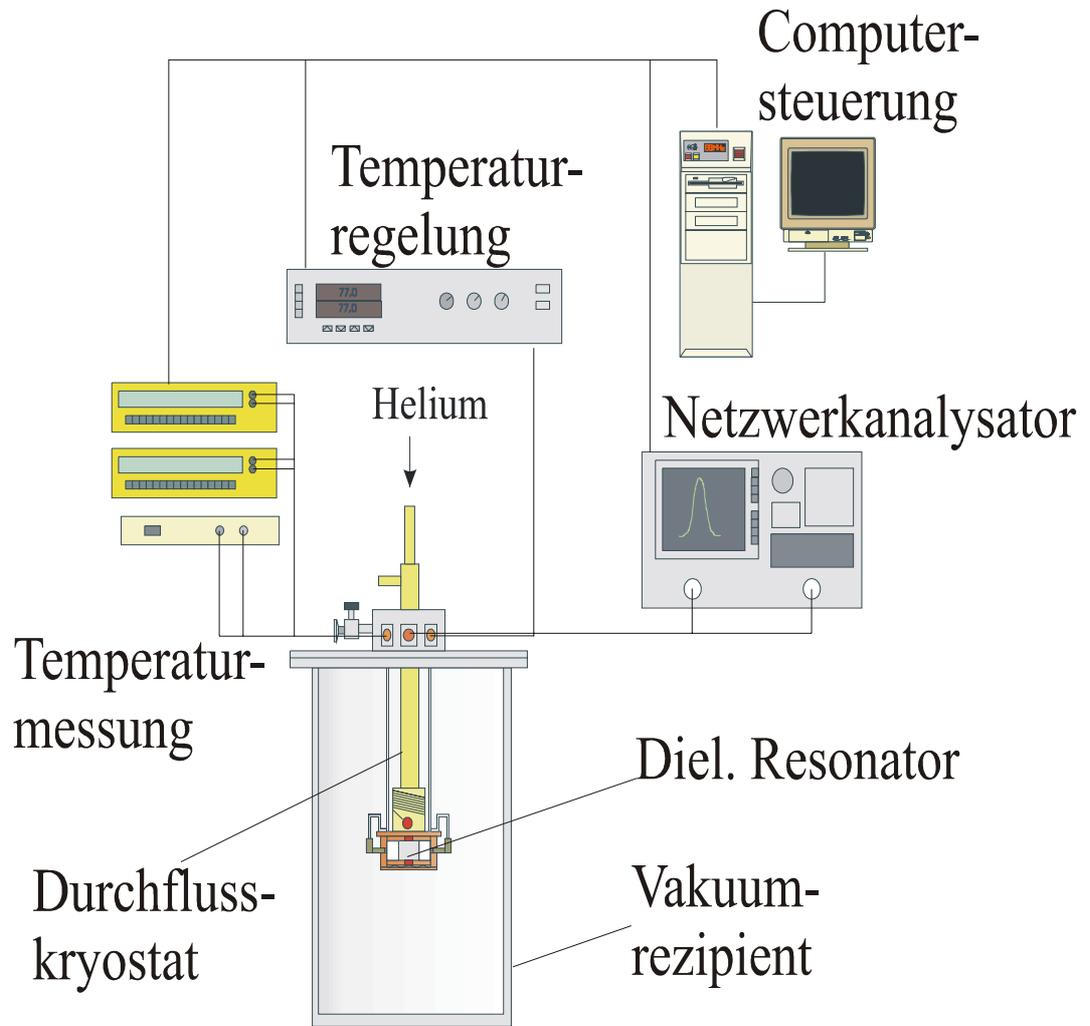


Abbildung 3.3: Komponenten des Messsystems zur Bestimmung des temperaturabhängigen Oberflächenwiderstandes.

Oberflächenwiderstand der HTSL-Filme bestimmt. Mittels Reflexionsmessungen werden die Streuparameter zur Berechnung der Koppelfaktoren ermittelt. Um die externe Belastung durch den Netzwerkanalysator zu minimieren, wird mit schwacher Kopplung gemessen, d.h. nur ein Bruchteil der Mikrowellenleistung wird in den Resonator eingestrahlt. Zur Speicherung der Messdaten und für die automatische Messung werden alle Mess- und Regelinstrumente mit Hilfe eines Computers ausgelesen und gesteuert.

### 3.1.3 Hochfrequenzkenngrößen des Resonators

Die Messungen erfolgen, wie bereits erwähnt in der  $TE_{011}$  Mode. Dennoch können infolge des innenliegenden Teflonringes und den nicht zu vernachlässigenden Wandverlusten die relevanten Parameter, wie Resonanzfrequenz, Geometriefaktoren und Füllfaktoren nicht analytisch berechnet werden. Um einen möglichst großen Modenabstand benachbarter Resonanzfrequenzen zu erreichen, sollte der Radius des Dielektrikums etwa seiner Höhe entsprechen [Mei92].

Die Bestimmung des Oberflächenwiderstandes erfolgt aus der dissipierten Leistung nach Gleichung (2.37). Der mittlere, temperaturabhängige Oberflächenwiderstand beider HTSL-Filme berechnet sich nach Gleichung (2.38) mit folgender Formel:

$$R_s^{HTS}(T) = \frac{G_F}{2} \left( \frac{1}{Q_0(T)} - w_D \tan \delta_D(T) - w_T \tan \delta_T(T) - \frac{R_s^{Cu}(T)}{G_M} \right) \quad (3.1)$$

$G_F, G_M$  und  $w_D, w_T$  sind Geometrie- und Füllfaktoren und wurden mit *MAFIA* berechnet. Sie werden als temperaturunabhängig angesehen. In Tabelle 3.1 sind die Parameter des Resonators zusammengefasst:

| $f_0$    | $h_{Saphir}$ | $\emptyset_{Saphir}$ | $\epsilon_r$ | $G_F$        | $G_M$          | $w_D$ | $w_T$                |
|----------|--------------|----------------------|--------------|--------------|----------------|-------|----------------------|
| 10,9 GHz | 6,15 mm      | 12,8 mm              | 9,4          | 640 $\Omega$ | 69200 $\Omega$ | 0,88  | $8,8 \times 10^{-4}$ |

Tabelle 3.1: Parameter des 10.9 GHz Hochfrequenzresonators.

Die Terme  $\tan \delta_D$  und  $\tan \delta_T$  sind die temperaturabhängigen Verlustfaktoren von Saphir bzw. von Teflon.  $R_s^{Cu}(T)$  ist der temperaturabhängige Oberflächenwiderstand der Kupferwandung. Bei der Konstruktion des Resonators wurde darauf geachtet, dass diese Verlustmechanismen klein gegenüber den für die  $R_s$ -Bestimmung verwendeten Verlusten in den HTSL-Filmen sind. Trotzdem werden sie bei der Berechnung des Oberflächenwiderstandes berücksichtigt. Die temperaturabhängigen Verlustwinkel wurden experimentell durch Vergleichsmessungen bestimmt [Bra85][Bra87].

Da sich die HF-Kopplung während einer Messung nicht verstellen lässt, wird bei einer Temperatur von 77 K eine Kopplung vorgewählt, die bei tiefen Temperaturen nicht zu starke HF-Belastungen mit sich zieht und bei hohen Temperaturen dem Netzwerkanalysator ausreichend Signal zur Verfügung stellt. Eine Korrektur auf die unbelastete Güte  $Q_0(T)$  wird im gesamten Temperaturintervall durchgeführt.

Infolge der Heliumkühlung sind Untersuchungen mit dieser Apparatur somit sehr zeit- und kostenaufwendig. Eine Messung zwischen 10 K und 90 K und einem Temperaturschritt von 0.1 K benötigt inklusive Einbau der Proben etwa 15 Stunden. Für einen schnellen Qualitätscheck ist dieses Verfahren nicht geeignet.

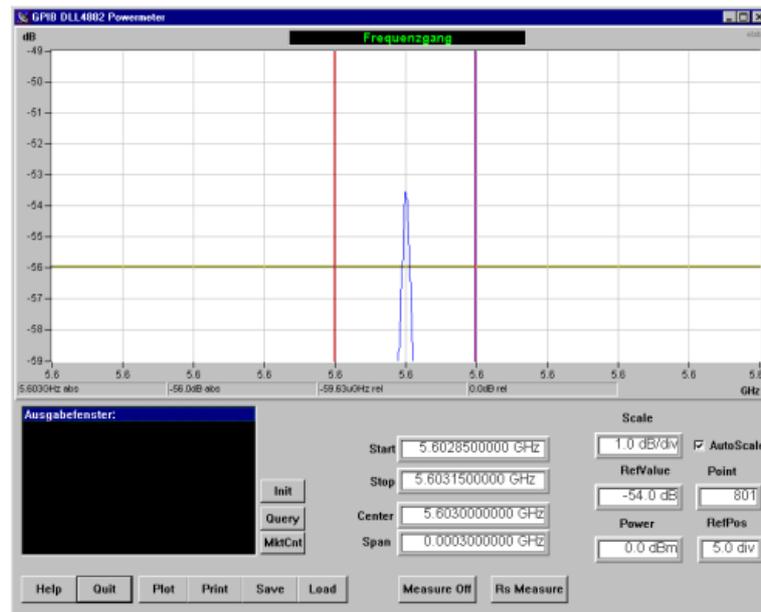


Abbildung 3.4: Bildschirmausdruck der entwickelten Steuer- und Analyse-Software des skalaren Messplatzes für 77 K und 5.6 GHz.

## 3.2 Skalärer Messplatz

Um gleichzeitig zur temperaturabhängigen Messung Mikrowellencharakterisierungen durchführen zu können, wurde ein weiteres System entwickelt, das ohne vektoriellen Netzwerkanalysator arbeitet. Es kommt ein Stickstoff gekühlter dielektrischer 5.6 GHz Resonator zum Einsatz, mit dem der Oberflächenwiderstand von 2 Zoll großen HTSL-Filmen gemessen werden kann. Die Quelle des Netzwerkanalysators wurde durch einen externen Synthesizer ersetzt. Die skalare Analyse der vor- und durchlaufenden Leistung übernehmen zwei Präzisions-Mikrowellendetektoren in Verbindung mit einem externen Richtkoppler, der vor den Resonator geschaltet ist (ähnlicher Aufbau wie in Abbildung 3.5). Die Steuerung der Messgeräte und die Auswertung des Oberflächenwiderstandes erfolgt Rechner-gestützt (s. 3.4). Mit diesem Messplatz wurde eine kostengünstigere Variante für die Bestimmung des Oberflächenwiderstandes bei kleinen Leistungen und einer Temperatur von 77 K entwickelt, der hinsichtlich der Genauigkeit bei der Bestimmung des Oberflächenwiderstandes gleichwertig zu Messungen mit dem vektoriellen Netzwerkanalysator ist.

## 3.3 Bestimmung der Leistungsabhängigkeit

### 3.3.1 Messprinzip

Im Hinblick auf den technischen Einsatz der hergestellten Filme, stellte sich schnell heraus, dass eine Charakterisierung bei kleinen Leistungen ( $< 1 \mu\text{W}$ ) nicht ausreicht, um auftretende Nichtlinearitäten zu messen. Um diese Lücke zu schließen, wurde ein di-

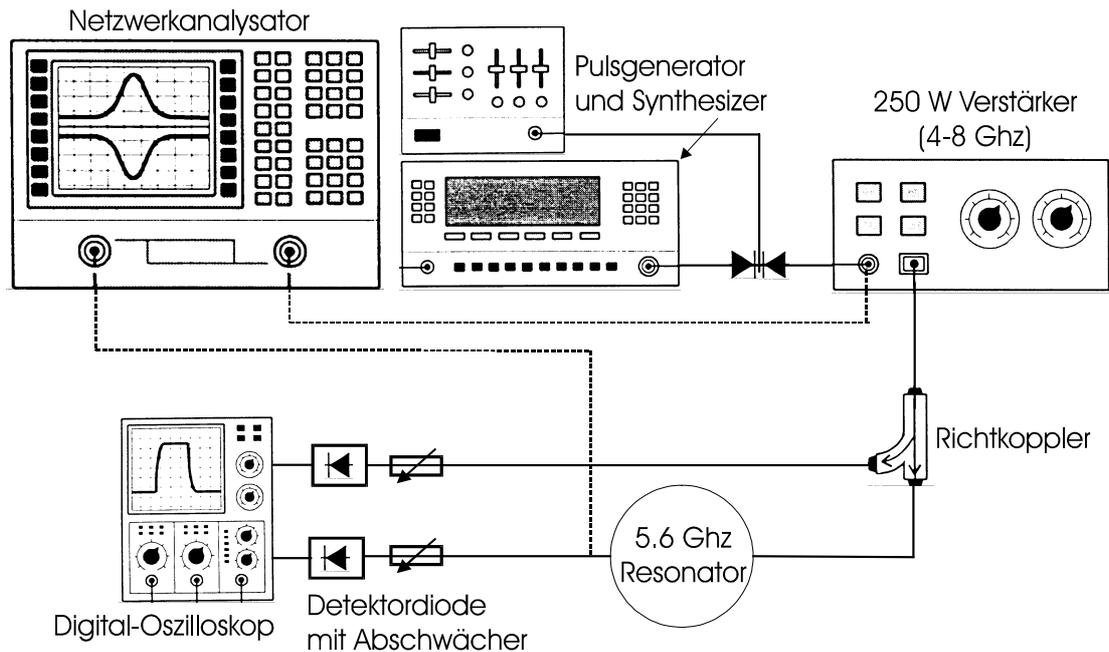


Abbildung 3.5: Aufbau des Systems zur Messung des leistungsabhängigen Oberflächenwiderstandes im CW- und Puls-Betrieb.

elektrischer Resonator für 2 Zoll große Filme konstruiert, der in der  $TE_{011}$  Mode eine Resonanzfrequenz von 5.6 GHz bei 77 K besitzt. Um an der Einkoppelantenne Leistungsniveaus bis zu einigen Watt erreichen zu können, wird ein TWT<sup>2</sup>-Verstärker eingesetzt. Der Verstärker arbeitet im C-Band (4 GHz – 8 GHz) und liefert maximal 250 W. Die vom Netzwerkanalysator erzeugte Mikrowelle wird vor dem Einspeisen in den Resonator verstärkt und erhöht so das im Resonator gespeicherte HF-Oberflächenmagnetfeld (s. Abbildung 3.5).

Nichtlineare Effekte können dazu führen, dass die Resonanzkurve im transmittierten Signal nicht die Lorentz-Form besitzt (s. Abbildung 3.6). In diesem Fall kann die Güte nicht mehr aus der Halbwertsbreite bestimmt werden. Im CW<sup>3</sup>-Betrieb erhöht sich zusätzlich die Temperatur im Resonator, was zu einer Frequenzverschiebung führt und eine Auswertung der Messung erschwert.

Daher wurde der Messaufbau modifiziert und ein nicht kontinuierliches Mikrowellensignal verwendet. Eine externe Mikrowellenquelle (Synthesizer) wird hierzu von einem Pulsgeber getriggert. Der so erzeugte Mikrowellenpuls wird im TWT-Verstärker verstärkt und in den Resonator geleitet (s. Abbildung 3.5). Die vorlaufende und transmittierte Pulsleistung wird mit Mikrowellen-Schottky-Dioden detektiert und der zeitliche Verlauf der so gewonnenen Spannungspulse mit einem digitalen Oszilloskop aufgezeichnet (s. Abbildung 3.7). Die Güte der Resonanzschwingung kann aus der vorlaufenden und transmittierten Pulsleistung (dissipierte Energie pro Zeit) oder aus der Abklingzeit  $\tau_{dec}$  eines Pulses bestimmt werden. Diese beschreibt den zeitlichen

<sup>2</sup>Traveling Wave Tube

<sup>3</sup>Continuous Wave

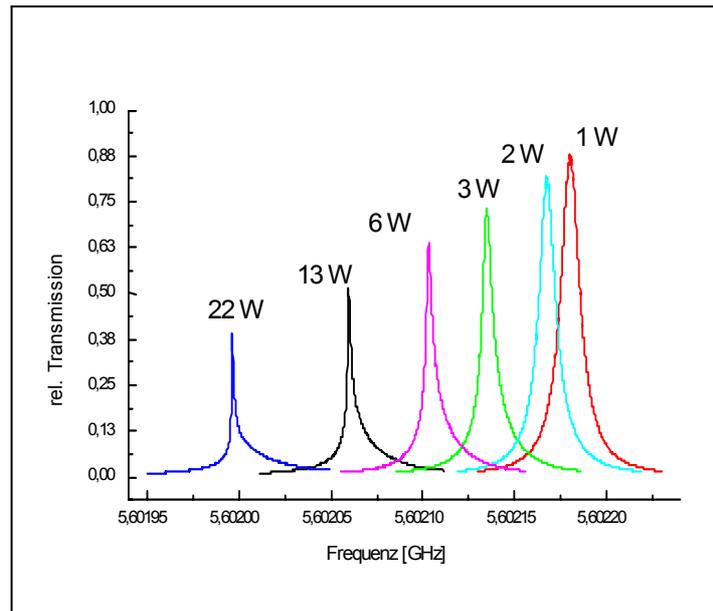


Abbildung 3.6: Resonanzkurven des 5.6 GHz-Resonators bei verschiedenen Leistungen. Bei CW-Betrieb erhöht sich die Temperatur im Resonatorinneren und die Resonanzfrequenz verschiebt sich zu niedrigeren Werten. Durch das Auftreten von Nichtlinearitäten bei höheren Leistungen werden die Kurven zusätzlich unsymmetrisch. Eine Auswertung der Güte über die Halbwertsbreite ist nicht mehr möglich.

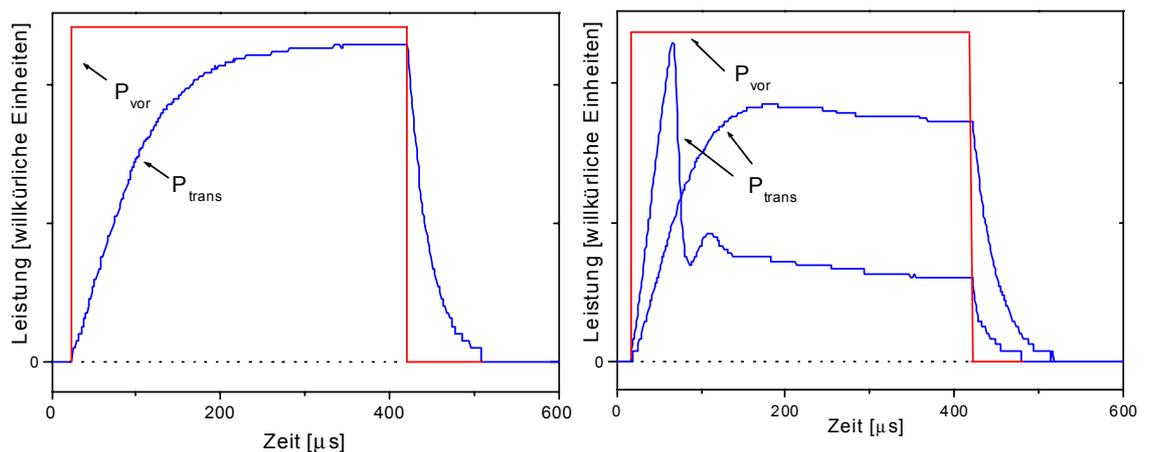


Abbildung 3.7: Vorlaufende Leistung  $P_{vor}$  (Rechteckpuls) und transmittierte Leistung  $P_{trans}$  als Funktion der Zeit bei niedrigen (links) und hohen Leistungsniveaus (rechts).

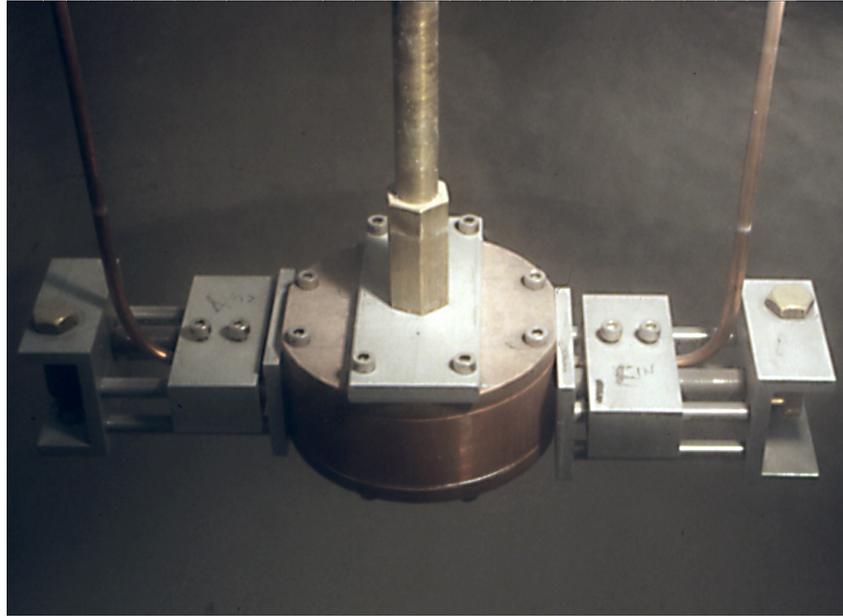


Abbildung 3.8: Schlittenkonstruktion für die in-situ verstellbare Mikrowellenkopplung.

Abfall der Feldenergie im Resonator gemäß  $e^{-\frac{t}{\tau_{dec}}}$  nach Abschalten der HF-Leistung zum Zeitpunkt  $t = 0$ . Die Pulslänge muss so gewählt werden, dass sich das elektromagnetische Feld vollständig aufbauen kann. Nur für Pulslängen  $\tau_{Puls} > \frac{Q_L}{\omega}$  kann sich ein statischer Zustand einstellen und die transmittierte Leistung kann zur Auswertung herangezogen werden. Leistungsniveaus sind absolut zu messen, um Absolutwerte für den Oberflächenwiderstand und das Oberflächenmagnetfeld zu erhalten. Um hohe Leistungen bzw. Feldstärken im Resonator zu erreichen wird die HF-Einkopplung kritisch und die HF-Auskopplung schwach eingestellt.

### 3.3.2 In-situ HF-Kopplungseinstellung

Als schwierig erwies sich zunächst die Ankopplung der Mikrowellen an den Resonator. Um bei Leistungsmessungen die gesamte Energie in den Resonator zu deponieren, muss mit Anpassung gearbeitet werden. Es wurde daher eine Mechanik entwickelt, die es gestattet die Koppelschleifen im Kalten zu verfahren und die bereits erwähnten Kopplungsbedingungen zu erhalten (s. Abbildung 3.8). Diese Einstellmöglichkeit hat sich als sehr vorteilhaft erwiesen, da der Resonator nicht aus dem Kühlsystem (flüssiger Stickstoff) ausgebaut werden muss. Dies reduziert die Charakterisierungszeiten und schont die HTSL-Schichten.

### 3.3.3 Berechnung des Oberflächenmagnetfeldes

Sind die Koppelgüten  $\beta_i$  bekannt (Gl. (2.47)), kann die unbelastete Güte  $Q_0$  und damit der Oberflächenwiderstand  $R_s$  ausschließlich aus dem Verhältnis der transmittierten zur vorlaufenden Leistung berechnet werden [Kai98]:

$$\frac{1}{Q_0} = \sqrt{\frac{P_{trans}}{P_{vor}} \frac{4}{Q_1 Q_2}} - \frac{1}{Q_1} - \frac{1}{Q_2} \quad \text{mit } Q_i = \frac{Q_o}{\beta_i} \quad (3.2)$$

Die im Resonator dissipierte Leistung  $P_{diss}$  errechnet sich aus der vorlaufenden Leistung und den Koppelfaktoren:

$$P_{diss} = P_{vor} \frac{4\beta_1}{(1 + \beta_1 + \beta_2)} \quad (3.3)$$

Zur Untersuchung der Feldabhängigkeit  $R_s(B)$  muss die maximale Amplitude des Oberflächenmagnetfeldes  $B_{\max}$  berechnet werden, für die gilt:

$$|B_{\max}| = c_B \sqrt{\omega W} = c_B \sqrt{Q_o P_{diss}} \quad (3.4)$$

Dabei bezeichnet  $c_B$  den sogenannten Feldeichfaktor, der mit Hilfe von *MAFIA* numerisch berechnet wurde:

$$c_B^2 = \frac{2\mu_0}{\omega} \frac{|\vec{B}_{\max}^{Oberfläche}|^2}{\iiint |\vec{B}^{Oberfläche}|^2 d^3\vec{r}} \quad (3.5)$$

Der Netzwerkanalysator dient zur Bestimmung der Koppelfaktoren und damit der Koppelgüten als Funktion der Frequenz bei kleiner Leistung. Zu einer Messung wird die Leistung der Mikrowellenpulse und damit das Oberflächenmagnetfeld im Resonator schrittweise erhöht. Mit YBCO-Filmen hoher Qualität erreicht man unbelastete Güten in der Größenordnung  $10^6$  bei 77 K und somit Feldstärken von bis zu 20 mT. Da die Feldstärke eine Funktion der Zeit ist, treten Nichtlinearitäten nicht gleich nach Anlegen einer Leistung auf.

Ein entwickeltes Computerprogramm übernimmt die Bestimmung des leistungsabhängigen Oberflächenwiderstandes  $R_s(B)$ , die Kalibrierung der Dioden und die Steuerung der Messgeräte. In Tabelle 3.2 sind die Parameter des 5.6 GHz-Resonators zusammengestellt.

| $f_0$   | $h_{Saphir}$ | $\emptyset_{Saphir}$ | $\epsilon_r$ | $G_F$        | $G_M$          | $c_B$                        | $w_{Saphir}$ | $\tan \delta_{Saphir}$ |
|---------|--------------|----------------------|--------------|--------------|----------------|------------------------------|--------------|------------------------|
| 5.6 GHz | 12 mm        | 25 mm                | 9,4          | 439 $\Omega$ | 79733 $\Omega$ | $4.6 \frac{\mu T}{\sqrt{W}}$ | 0.98         | $10^{-8}$              |

Tabelle 3.2: Parameter des 5.6 GHz-Scanners. Geometriefaktoren, Füll- und Feldeichfaktor wurden mit *MAFIA* berechnet.

### 3.4 Ortsaufgelöste Messung

Mit den bisher vorgestellten drei Charakterisierungssystemen können integrale Messungen des Oberflächenwiderstandes an einer Position der Probe vorgenommen werden. Möchte man lokale Defekte oder Gradienten analysieren, sind ortsauflösende Messverfahren erforderlich. Diese sollten im Idealfall eine hohe Ortsauflösung und  $R_s$ -Auflösung besitzen und Messungen bei hohen Feldstärken zulassen.

### 3.4.1 Übersicht verschiedener Techniken

Infolge der Relevanz ortsauflösender Messverfahren haben verschiedene Arbeitsgruppen mit der Entwicklung oder dem Aufbau der entsprechenden Apparaturen begonnen. Eine Übersicht dieser Aktivitäten wird beispielsweise in [Hei99] gegeben. Entsprechende Systeme können mit dielektrischen, konfokalen- oder Hohlraum-Resonatoren realisiert werden. Konfokale Resonatoren erlauben die Messung des Oberflächenwiderstands nur im Bereich  $m\Omega$  bis  $\Omega$ , während mit dem dielektrischen Resonator  $R_s$  im  $\mu\Omega$ - bis  $m\Omega$ -Bereich bestimmt werden kann. Die Ortsauflösung der konfokalen Resonatoren ist auf mehrere Millimeter begrenzt. Der dielektrische Resonator besitzt eine höhere, effektive Auflösung von 1 mm (vgl. Abschnitt 3.4.4).

Eine alternative Methode besteht in der Messung der komplexen Leitfähigkeit einer Probe mittels Nahfeldmikroskopie. Eine Antenne, die beispielsweise aus dem Innenleiter einer Koaxialleitung bestehen kann und gleichzeitig als Sende- und Empfangseinheit arbeitet, wird hierbei über die Probe gerastert, um die Reflektivität zu messen. Hieraus kann die Leitfähigkeit und der Oberflächenwiderstand bestimmt werden. Die Ortsauflösung eines solchen Messverfahrens liegt bei einigen Mikrometern. Demgegenüber steht allerdings eine sehr geringe  $R_s$ -Auflösung im  $m\Omega$ - bis  $\Omega$ -Bereich. In Tabelle 3.3 sind die verschiedenen Methoden zur Bestimmung des orts aufgelösten Oberflächenwiderstandes noch einmal gegenübergestellt.

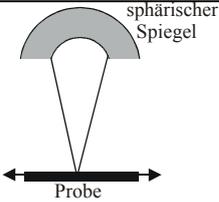
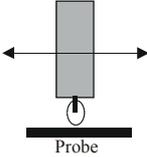
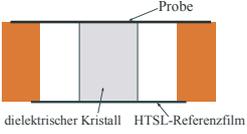
| Methode        | konfokaler Resonator  | Nahfeldmikroskop   | dielektrischer Resonator  |
|----------------|---|--|---|
| Prinzipskizze  |  |  |  |
| Frequenz       | 145 GHz   | 80 GHz   | 20 GHz  |
| Temperatur     | 10 – 300 K  | > 80 K   | 76 K  |
| Auflösung      | $\approx 3$ mm  | 20 – 100 $\mu\text{m}$   | 1 mm  |
| Genauigkeit    | < 15 %  | keine Angabe   | < 15 %  |
| $R_s$ -Bereich | $m\Omega$ bis $\Omega$  | $m\Omega$ bis $\Omega$   | $\mu\Omega$ bis $m\Omega$   |
| Vorteile       | - Messung bei verschiedenen Temperaturen  | - hohe Ortsauflösung<br>- Rand der Probe erfassbar                                   | - niedrige Frequenz<br>- höhere Leistungen  |
| Nachteile      | - hohe Frequenz<br>- kleine Leistungen<br>- Rand der Probe nicht erfassbar          | - hohe Frequenz<br>- kleine Leistungen   | - Rand der Probe nicht erfassbar  |
| Literatur      | [Sch99][Mar91]  | [Go96][Lan99]  | vorliegende Arbeit  |

Tabelle 3.3: Vergleich der Messsysteme zur ortsauflösenden Messung des Oberflächenwiderstandes.

### 3.4.2 Saphirresonator für ortsauflösende Messungen

Motivation für die Entwicklung eines ortsauflösenden Messverfahrens zur Bestimmung des Oberflächenwiderstandes war es, auf großflächigen HTSL-Filmen, die im Verbundprojekt für Filterbauelemente eingesetzt werden, Defekte und Gradienten zu finden. Da diese Filter bei Frequenzen unter 20 GHz betrieben werden, verbot sich für eine realitätsnahe Charakterisierung eine zu hohe Arbeitsfrequenz, wie sie bei konfokalen Resonatoren zu finden ist ( $f > 80$  GHz). Um eine Aussage über die Homogenität der Schichten machen zu können, sollte die Ortsauflösung im Millimeter-Bereich liegen bei einer  $R_s$ -Unsicherheit unter 20 %. Um die genannten Vorgaben zu erfüllen, wurde ein Saphirresonator entwickelt, der es gestattet den Oberflächenwiderstand einer HTSL-Probe bei 77 K zerstörungsfrei mit einer Ortsauflösung von einem Millimeter zu messen.

Geeignete in-situ Scanning-Techniken auf Basis dielektrischer Resonatoren zur ortsauflösenden Messung großflächiger Proben müssen ein Verfahren der Probe oder des Resonators erlauben. Um ortsaufgelöst messen zu können, muss der bisher vorgestellte Resonatortyp dahingehend modifiziert werden, dass eine Seite durch einen beweglichen Resonatordeckel ersetzt wird. Zahlreiche Experimente mit einem beweglichen Resonator haben gezeigt, dass ein Aufsetzen des Resonators im Kalten (77 K) aufgrund der steifen Mikrowellenleitungen technisch schwer zu realisieren ist und die Reproduzierbarkeit der Messungen nicht gegeben waren. Deswegen wurde ein mechanisches System entwickelt, das bei kryogenen Temperaturen die Bewegung der Probe selbst gegenüber dem Resonator in drei Raumrichtungen erlaubt.

Im Zeitraum dieser Arbeit wurden zwei Messsysteme entwickelt, die bei unterschiedlichen Frequenzen arbeiten. Das erste System, arbeitet bei 10.5 GHz und erlaubt, aufgrund des Frequenzbereiches bei etwas höheren Leistungen zu arbeiten. Mit diesem System konnten lokale Nichtlinearitäten bei HTSL-Schichten gefunden werden [Irg00]. Das zweite System ist eine konsequente Weiterentwicklung des 10.5 GHz Messstandes und arbeitet bei 19.7 GHz [Lud01]. Im Folgenden wird dieser Messstand 20 GHz  $R_s$ -Scanner genannt. Durch die Weiterentwicklung konnte zum einen die Ortsauflösung fast verdoppelt werden (Faktor 1.8) und zum anderen der maximale für die Messung zugängliche Bereich vergrößert werden. Ferner wurde die variable Mikrowellenkopplung aus dem Leistungsmessstand übernommen und ein aktives Kühlsystem integriert. Im weiteren Verlauf wird nur der 20 GHz-Messstand detailliert dargestellt. In Tabelle 3.4 sind die Parameter des 20 GHz  $R_s$ -Scanners zusammengestellt. Der Außendurchmesser des 20 GHz Resonators ist so groß gewählt, dass größere Proben (2-3 Zoll) bei der Messung sicher auf dem Resonator aufliegen.

| $f_0$    | $h_{Saphir}$ | $\varnothing_{Saphir}$ | $\epsilon_r$ | $G_{Probe}$  | $G_{Ref}$    | $G_M$         | $w_{Saphir}$ | $w_{N_2}$ | $\tan \delta_{N_2}$ |
|----------|--------------|------------------------|--------------|--------------|--------------|---------------|--------------|-----------|---------------------|
| 19.7 GHz | 5 mm         | 5 mm                   | 9,4          | 659 $\Omega$ | 657 $\Omega$ | 2613 $\Omega$ | 0.79         | 0.2       | $5 \cdot 10^{-8}$   |

Tabelle 3.4: Parameter des 20 GHz-Scanners. Die Geometrie- und Füllfaktoren wurden mit MAFIA berechnet.

In Abbildung 3.9 ist der Querschnitt des  $R_s$ -Scanners dargestellt. Dem Resonator fehlt der obere, verschraubbare Kupferdeckel. An dessen Stelle befindet sich nun der in alle drei Raumrichtungen bewegliche Probenhalter ( $Cu$ ) mit der zu untersuchenden

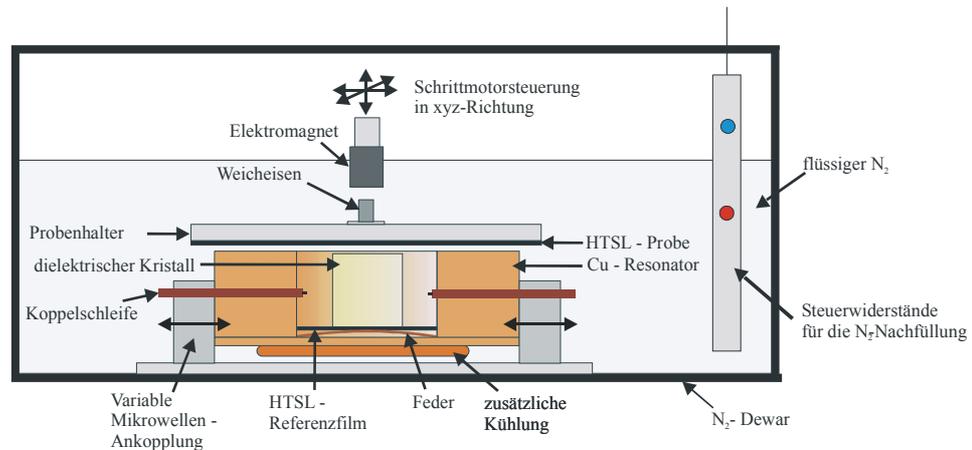


Abbildung 3.9: Querschnitt des 20-GHz Scanner-Resonators für die ortsaufgelöste Messung. Der Resonator-Innendurchmesser beträgt 10 mm.

HTSL-Schicht. Damit ist es nun möglich die Probe an eine beliebige Position zu fahren und den Oberflächenwiderstand zu messen. Es ist jedoch darauf zu achten, dass der Resonator nach dem Aufsetzen geschlossen ist, um Verluste durch Abstrahlung zu vermeiden. Durch diese Forderung kann ein 3 mm breiter Außenrand der Probe nicht angefahren und nicht charakterisiert werden.

Der untere Film wird durch einen HTSL-Referenzfilm mit bekanntem Oberflächenwiderstand ersetzt, in dessen Zentrum der Saphir-Kristall mit einem Polymerkleber fixiert wird, damit er nicht aus seiner zentralen Position verrutschen kann. Der Polymerkleber führt zu keinen merklichen Hochfrequenzverlusten und bleibt auch bei der Temperatur von flüssigem Stickstoff elastisch. Prinzipiell wäre auch eine Kupferscheibe als Referenzfilm denkbar. Dann steigen aufgrund des höheren Oberflächenwiderstandes von Normalleitern die HF-Verluste im Resonator, was zu einer ungenaueren Bestimmung der geringen Verluste in der supraleitenden Probe führt.

Um zu vermeiden, dass die zu messende Probe beim Aufsetzen auf den Resonator durch den Kristall beschädigt wird oder nicht plan auf dem Resonator aufliegt, ist dessen Höhe  $100 \mu\text{m}$  geringer als die der Zylinderinnenwandung. Der entstandene Spalt führt zu keinen größeren Einbußen in der Empfindlichkeit der Messung auf die Probe. Die Kupferwandung, auf der die Probe aufliegt, ist poliert, sodass keine Beschädigung durch sie möglich ist.

Für eine Messung wird die Probe mit dem Polymerkleber auf den Cu-Probenhalter aufgeklebt. Damit erreicht man einen guten Wärmekontakt und vermeidet mechanische Spannungen im Substrat beim Aufsetzen auf den Resonator. Um mechanische Schwingungen auf den Resonator zu minimieren, wird der Probenhalter nicht wie beim 10 GHz-Scanner mittels eines gefederten Haltearms montiert, sondern an einen Topfmagneten angeschlossen, der es erlaubt die Probe nach dem Absetzen wieder loszulassen. Ein Schrittmotor hebt und senkt den Magneten und sorgt dafür, dass vor dem Anfahr-

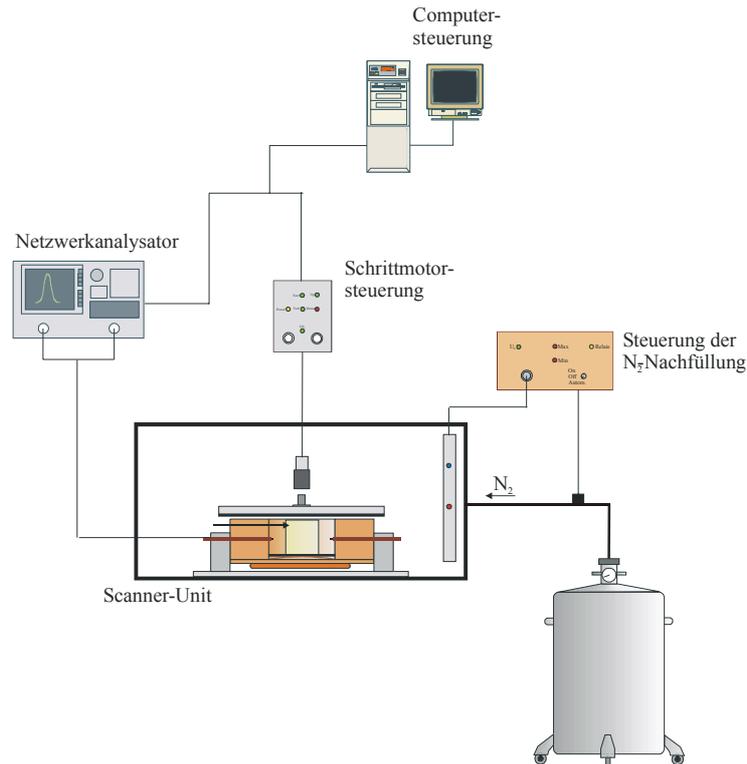


Abbildung 3.10: Komponenten des Messsystems für die ortsaufgelöste Messung, 20-GHz-Scanner.

ren einer neuen Position die Probe vom Resonator abgehoben wird. Damit vermeidet man die sonst auftretenden Kratzer in der Filmoberfläche.

Der Komponenten des Messsystems sind in Abbildung 3.10 dargestellt. Nach dem Einbau der Probe wird der gesamte Resonator in einem Dewar mit flüssigem Stickstoff auf 77 K abgekühlt und an den Netzwerkanalysator angeschlossen. Bei einer automatisierten Messung sorgt eine externe Regelung dafür, dass der Stickstoffpegel nicht unter ein einstellbares Niveau sinkt. Die HF-Einspeisung erfolgt über zwei in-situ einstellbare Schleifenantennen (Abschnitt 3.3), die im Normalfall schwach an das Magnetfeld ankoppeln. Die Messung der Güte erfolgt wiederum in der  $TE_{011}$ -Mode. Die Berechnung des Oberflächenwiderstands erfolgt nach dem in Abschnitt 3.1.3 vorgestellten Prinzip. Sowohl die Datenaufnahme als auch die Steuerung der Schrittmotoren erfolgt PC-gestützt. Die so gewonnenen  $R_s$ -Daten werden mit einer geeigneten Visualisierungs-Software zu 2-dimensionalen  $R_s$ -Karten aufbereitet.

### 3.4.3 Frequenzstabilität

Wenn die Probe während einer Messung an eine Neue Position gefahren wird, wird der Resonator kurzzeitig geöffnet und flüssiger Stickstoff dringt ein. Schon kleinste Wärmeeinträge, z.B. durch die Koppelschleifen, führen dazu, dass Gasbläschen entstehen. Gasförmiger Stickstoff steigt im Inneren des Resonators auf und füllt den mittlerwei-

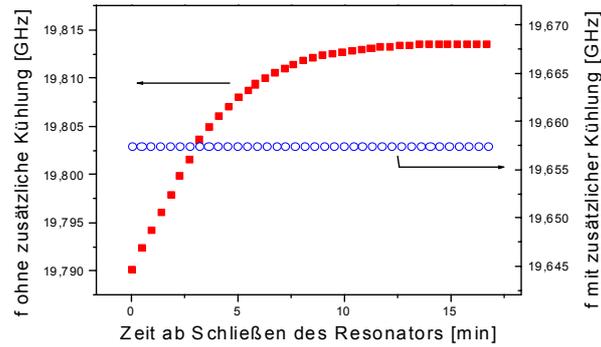


Abbildung 3.11: Resonanzfrequenz als Funktion der Zeit mit (offene Symbole) und ohne (geschlossene Symbole) zusätzliche, aktive Kühlung.

le wieder geschlossenen Resonator langsam auf. Während dieser Zeit ändert sich die effektive Dielektrizitätskonstante und damit die zu detektierende Resonanzfrequenz (geschlossene Symbole in Abbildung 3.11).

Für die Messung ist eine Frequenzstabilität von  $\Delta f \lesssim 100$  kHz erforderlich, was durch die Blasenbildung erst nach 15 Minuten erfüllt ist, wenn der gesamte Resonatorinnenraum mit gasförmigem Stickstoff gefüllt ist. Bei einer ortsauflösenden Messung einer 2-Zoll Probe mit einem Abstand der Messpunkte von 5 mm führt dies zu einer Messzeit von ca. 20 Stunden.

Um die Messzeiten zu verringern, muss die Blasenbildung im Inneren des Resonators vermieden werden. Hierzu wird der Resonator an der Unterseite mit einer Kühlschlange aktiv gekühlt. Dazu ist das eine Ende der Kühlschlange mit einer Kapillare verschlossen, das andere mit einer Vakuumpumpe verbunden. Durch Abpumpen und Dampfdruckerniedrigung erreicht man so eine Temperaturreduzierung von etwa 0.2 K. Der Effekt der Kühlung ist in Abbildung 3.11 zu sehen. Die Resonanzfrequenz stellt sich bei einer um 250 MHz verringerten Frequenz instantan ein. Die automatisierte Messung benötigt hierdurch für die vollständige Charakterisierung eines 2-Zoll Films mit einer Auflösung von 5 mm etwa 3 Stunden.

### 3.4.4 Erhöhung der Ortsauflösung

Der Netzwerkanalysator, der auch als Mikrowellenquelle dient, limitiert die maximale Messfrequenz auf 20 GHz und setzt somit auch eine untere Grenze für die Abmessungen des Resonators und des Dielektrikums, da bei kleiner werdenden Saphirabmessungen die Resonanzfrequenz steigt. Die primäre Ortsauflösung bei 19.7 GHz beträgt 5 mm und entspricht dem Durchmesser des Kristalles. Eine Erhöhung der Ortsauflösung setzt somit einen Kristall mit kleinerem Durchmesser voraus. Dieses Problem kann umgangen werden, wenn man einen Kristall mit höherer Dielektrizitätskonstante benutzt. Rutil ( $TiO_2$ ) beispielsweise besitzt eine Permittivität von etwa 110 und lässt bei gleichbleibender Frequenz eine Verkleinerung der Abmessungen zu. Leider besitzt

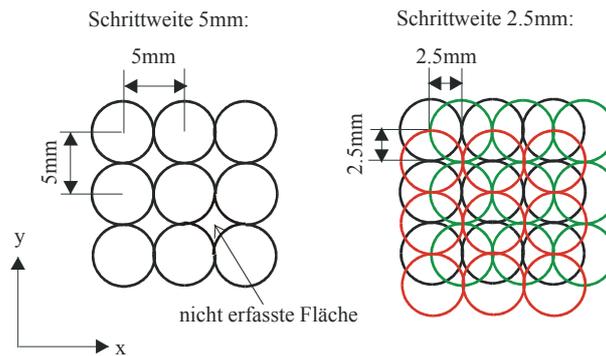


Abbildung 3.12: Darstellung der Messpunkte bei verschiedenen Schrittweiten.

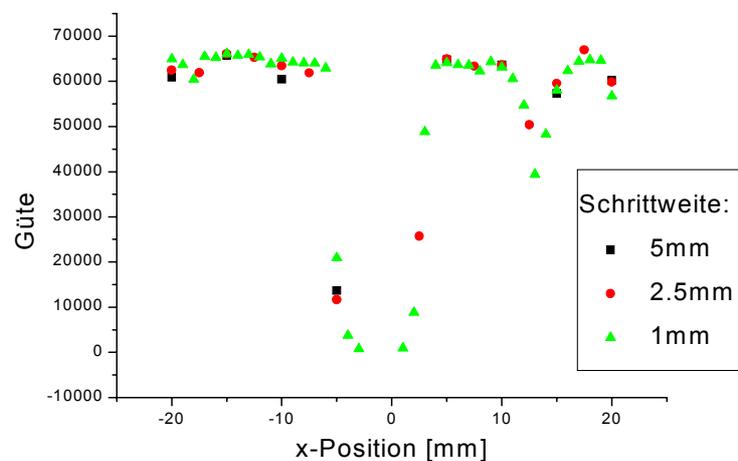


Abbildung 3.13: Line-Scan über eine Bruchkante mit verschiedenen Schrittweiten.

$TiO_2$  sehr hohe intrinsische Verluste, die vermutlich auf Farbzentren zurückzuführen sind. Bei Experimenten mit diesem Material wurden auch nichtlineare Effekte beobachtet, die schon bei Leistungen im Milliwatt-Bereich auftraten. Auf den Einsatz eines  $TiO_2$ -Kristalles wurde daher verzichtet.

Die runde Form des Kristalls bedingt eine kurze Diskussion der effektiven Auflösung. Versetzt man die Probe beim Scannen jeweils um den Durchmesser des Kristalls, wird nicht die gesamte Fläche des HTSL-Filmes abgedeckt. Abbildung 3.12 zeigt, dass hierfür eine Überlappung von 50%, also eine Schrittweite von 2.5 mm notwendig ist.

Zur experimentellen Bestimmung der Ortsauflösung wurde eine Probe mit künstlichen Defekten charakterisiert. Dazu wurde ein Line-Scan aufgenommen, der mit unterschiedlichen Schrittweiten entlang der x-Achse durchgeführt wurde.

In Abbildung 3.13 ist deutlich zu erkennen, dass die Messinformation mit kleiner werdender Schrittweite zunimmt. An der Position  $x = 13$  mm wird bei einer Schrittweite von kleiner als 5 mm ein Defekt sichtbar, der bei 5 mm Schrittweite nicht erkennbar

ist. Bei Schrittweiten kleiner als 1 mm ist keine weitere Detailverbesserung beobachtbar. Somit wird 1 mm als effektive Ortsauflösung angegeben.

### 3.5 Messfehler

In diesem Abschnitt werden die Messfehler erläutert. Die Geometrie der Resonatoren spielt für das Hochfrequenzfeld eine entscheidende Rolle. Infolge des komplexen Aufbaus der Saphirresonatoren, sowie deren Halterungen und der Vielzahl der verwendeten Materialien, führt thermische Expansion zu analytisch nicht berechenbaren Frequenzverschiebungen während einer  $R_S$ -Messung. Darüber hinaus erweisen sich Einflüsse als nicht reproduzierbar, die von der jeweiligen Montage abhängen. Dazu gehört die Justierung der CuBe-Federn, die in allen genannten Resonatoren Anwendung finden, die Lage des Teflonringes, die Verklebung des Saphirs und das Auf- und Absetzen des Probehalters beim  $R_S$ -Scanner. Diese Einflüsse führen zu statistischen Fehlern in der Angabe der Geometrie- und Verlustfaktoren und damit zu Fehlern bei der Angabe des Oberflächenwiderstandes. Aus den fehlerbehafteten Koppelgüten resultiert ein Absolutfehler für die Felder  $B_S$  von 20%. Die Unsicherheit bei der Bestimmung der Proben temperatur ist durch den montageabhängigen Wärmewiderstand zwischen Diodesensor und Substrat gegeben. In Tabelle 3.5 sind die auftretenden, maximalen Messfehler zusammengestellt.

| Messgröße                         | Maximaler Fehler   |
|-----------------------------------|--|
| Oberflächenwiderstand $R_s(T)$    | 10 %   |
| Oberflächenwiderstand $R_s(B)$    | 5 % ( $B_S < 1 \text{ mT}$ )<br>15 % ( $B_S \geq 1 \text{ mT}$ ) |
| Oberflächenwiderstand $R_s(x, y)$ | 15 %   |
| Oberflächenmagnetfeld $B_S$       | 20 %   |
| Temperatur $T$                    | 0.2 K  |
| Ort $(x, y)$                      | 0.1 mm   |

Tabelle 3.5: Zusammenstellung der Messfehler.

# Kapitel 4

## Messergebnisse und Diskussion

Im Rahmen dieser Arbeit wurden epitaktische YBCO-Filme auf ihre Mikrowelleneigenschaften untersucht und auf ihre Tauglichkeit als HF-Bauelemente überprüft. Hierzu wurden die in Kapitel 3 vorgestellten Messsysteme eingesetzt, um die Temperaturabhängigkeit, die Leistungsabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes und den Oberflächenwiderstand orts aufgelöst verschiedener HTSL-Substrat-Kombinationen zu untersuchen. Zentrale Anforderungen an HTSL-Filme für den Einsatz in Hochfrequenzbauelementen sind der einleitend erwähnte, niedrige Oberflächenwiderstand, mit einem linearen Leistungsverhalten bis 10 mT. Weiterhin sollen die Filme in großflächigen Strukturen räumlich homogen hergestellt und mit geeigneten Beschichtungen versehen werden können.

Zunächst wurde im Hinblick auf eine Verwendung von HTSL-Filmen in Hochfrequenzfilterbauelementen YBCO mit unterschiedlichen Schichtdicken auf Saphirsubstraten charakterisiert. Weiterhin wurden Substitutionsreihen für YBCO in der Gruppe der Seltenen Erden hinsichtlich einer möglichen Erhöhung der Sprungtemperatur untersucht. Als aussichtsreicher Kandidat wurden DyBCO-Filme eingehend charakterisiert. Um eine weitere Absenkung des effektiven Oberflächenwiderstandes zu erreichen, wurden alternative Substratmaterialien untersucht und porenreiche YBCO-Schichten auf Saphir analysiert. Technische Substrate in Verbindung mit einer Pufferschicht wurden ebenfalls auf ihr Potenzial für Hochfrequenzanwendungen untersucht. Schließlich wurden Ca-dotierte YBCO-Filme charakterisiert und mit Messwerten zur kritischen Stromdichte bei tiefen Temperaturen verglichen. Neben den hier vorgestellten Mikrowellencharakterisierungen wurden die Filme zusätzlich mit der optischen und Rasterelektronenmikroskopie (REM) untersucht. Die kritische Temperatur  $T_c$  und die kritische Stromdichte  $j_c$  sind induktiv gemessen worden [Cla91].

### 4.1 YBCO-Filme auf Saphir

#### 4.1.1 Einsatz von HTSL-Filmen für Filteranwendungen

Motivation für die Messaufbauten und die Charakterisierung der HTSL-Schichten war ein Industrieprojekt mit der Firma Bosch und zahlreichen Universitäten, das zum Ziel hatte HTSL-Filme in Hochfrequenzbauelementen für die Satellitenkommunikation ein-

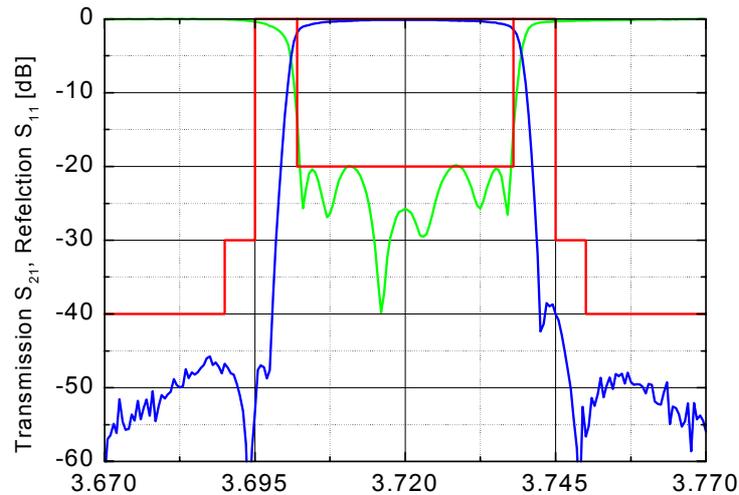


Abbildung 4.1: Filtercharakteristik eines 8-kreisigen Mikrostreifenfilters und die Spezifikationen für die Außerbanddämpfung ( $S_{21}$ ) und Reflexionsdämpfung ( $S_{11}$ ), Messung: [Käs99], Bosch SatCom.

zusetzen [Käs98]. Die in dieser Arbeit vorgestellten Messsysteme und Ergebnisse sind Teil des vom BMBF geförderten und vom VDI getragenen deutschen Verbundprojektes "Hochtemperatursupraleiter in der Satellitenkommunikation" (FKZ 13N6827/1) [Irg98]. Ziel war die Prototypen-Entwicklung eines Satellitentransponders (Demonstrators), dessen Kanalfilter auf Basis supraleitender Dünnschichten gefertigt sind.

Ein Vorteil der HTSL-Schichten ist, dass durch den niedrigen Oberflächenwiderstand supraleitende Mikrostreifenfilter [Cha96][Käs99] in sehr kompakter Form aufgebaut werden können. Dielektrische Filter, die abschirmende Wände zum Erreichen hoher Güten benötigen, können so in kleinerer und damit leichter Form realisiert werden [Sho98]. Die Integrationsdichte dieser Bauelemente spielt hier eine untergeordnete Rolle. Entscheidend ist das Gewicht der Bauelemente, da jedes Kilogramm Nutzlast des Satelliten Kosten von etwa \$ 50.000 verursacht, die von den Betreibern der Kommunikationssysteme getragen werden. Darüber hinaus besitzen HTSL-Bandpassfilter steilere Filterflanken und geringere Einfügungsdämpfungen (s. Abbildung 4.1) und erreichen dadurch eine höhere Selektivität als konventionelle Filter.

#### 4.1.2 Herstellung der YBCO-Filme auf Saphir

Die hier charakterisierten YBCO-Filme auf Saphir wurden mit dem in Abschnitt 2.3.3 beschriebenen Drehtellerverfahren hergestellt. Als Substrate sind (1102) (r-Schnitt) Saphirscheiben des Durchmessers 1 und 2 Zoll mit einer Dicke von 0.5 mm verwendet worden. Bei der gewählten Orientierung ist der Unterschied zwischen der Kristallstruktur von Saphir und der Perowskitstruktur von YBCO am geringsten (r-Ebene des Saphirs ist um  $57.6^\circ$  zur a-b-Ebene verdreht). Dennoch ist eine Pufferschicht zwischen Substrat und YBCO-Film notwendig, um die Gitterfehlanpassung auszuglei-

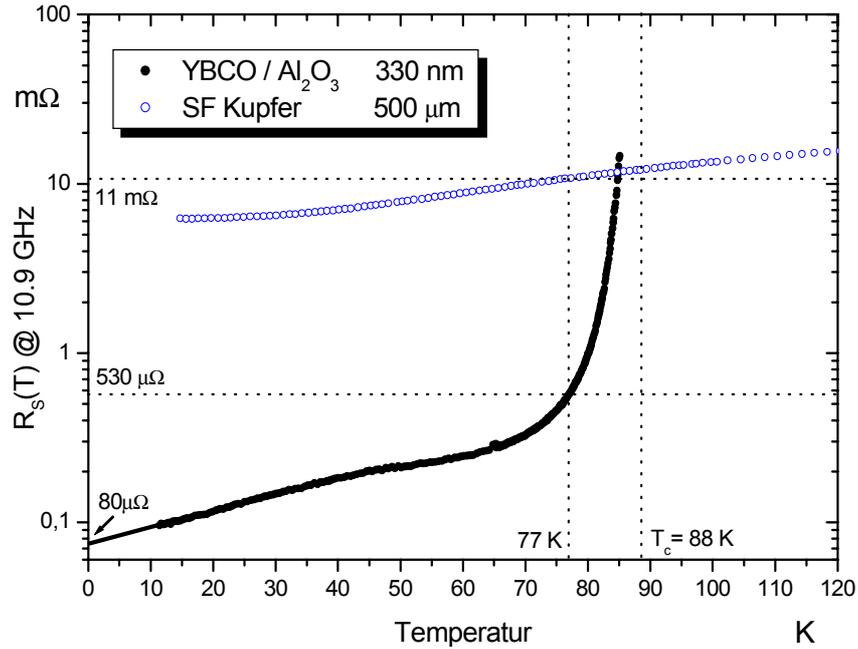


Abbildung 4.2: Effektiver Oberflächenwiderstand eines 330 nm dicken  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filmes auf Saphir und einer 500  $\mu\text{m}$  dicken Kupferscheibe.

chen. Die Pufferschicht dient zudem als Barriere und verhindert die Diffusion von Al-Atomen bei den hohen Prozesstemperaturen von bis zu 670 °C aus dem Substrat in das supraleitende Material. Als Pufferschicht wurde standardmäßig eine 30 nm dicke  $\text{CeO}_2$ -Pufferschicht mit Hilfe des auch zur YBCO-Deposition eingesetzten Verfahrens aufgebracht.

### 4.1.3 Temperaturabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes

Abbildung 4.2 zeigt den temperaturabhängigen Verlauf des Oberflächenwiderstandes eines 1 Zoll großen  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filmes auf Saphir bei zu vernachlässigender Feldstärke. Die dargestellten Daten wurden mit dem in Abschnitt 3.1 erläuterten Helium gekühlten Saphir-Resonator durch Anregen der  $\text{TE}_{011}$ -Mode bei 10,9 GHz gewonnen. Als Referenzfilm wird eine Probe aus der selben Herstellungscharge mit gleichen Wachstumsbedingungen verwendet. Die Filme werden paarweise vermessen und der Mittelwert des effektiven Oberflächenwiderstandes bestimmt. Der Übergang von der normalleitenden in die supraleitende Phase ( $T_c = 88 \text{ K}$ ) wurde mit dem hier verwendeten Messsystem nicht untersucht. Zum Vergleich mit einem Normalleiter ist zusätzlich der Oberflächenwiderstand einer Kupferprobe dargestellt.

Die YBCO-Filme zeigen den geforderten, monotonen, glatten Temperaturverlauf des Oberflächenwiderstandes  $R_s$  von  $T_c$  bis hinunter auf etwa 60 K. Bei 77 K beträgt der Oberflächenwiderstand einer 330 nm dicken Schicht 530  $\mu\Omega$ . Zwischen 60 K und 40 K nimmt  $R_s$  nicht mehr so stark ab und es wird eine Tendenz zur Ausbildung eines Plateaus beobachtet. In diesem Bereich wird die Temperaturabhängigkeit maßgeblich

durch die ungepaarten Ladungsträger, die Quasiteilchen bestimmt. Bei kristallinem Massivmaterial liegt hier ein relatives Maximum vor [Bon93].

Der Verlauf des Oberflächenwiderstandes kann qualitativ durch das in Abschnitt 2.1.4 beschriebene Drude-Zwei-Flüssigkeiten-Modell mit einer temperaturabhängigen Streurrate der Quasiteilchen  $\tau^{-1}(T) = \frac{v_F}{l}$  beschrieben werden ( $v_F$  = Fermigeschwindigkeit,  $l$  = freie Weglänge) [Bon93][Har93]. Anhand von Messungen der Leitfähigkeit an  $YBa_2Cu_3O_7$ -Einkristallen wurde von Bonn et al. [Bon93] eine exponentielle Temperaturabhängigkeit der Quasiteilchenstreurrate gefunden:

$$\tau^{-1}(T) = 6 \cdot 10^9 s^{-1} \exp\left(\frac{T}{12K}\right) + \tau_{res}^{-1} \quad (4.1)$$

$\tau_{res}^{-1}$  bezeichnet dabei eine temperaturunabhängige, elastische Verunreinigungsstreurrate für  $T \rightarrow 0$  K. Dieser Einfluss spiegelt sich im Realteil  $\sigma_1$  der komplexen Leitfähigkeit wider (Gleichung (2.29)):  $\sigma_1 \sim n \cdot \tau$ . Die gegensätzliche Temperaturabhängigkeit dieser Größen ( $\tau$  nimmt mit sinkender Temperatur zu,  $n$  hingegen ab) kann in einem Maximum der Quasiteilchen-Leitfähigkeit im mittleren Temperaturbereich resultieren. Dieser Aspekt wurde bereits in zahlreichen Arbeiten diskutiert und wird daher nicht weiter behandelt [Orb94][Zuc97].

Bei tieferen Temperaturen unterscheidet sich das  $R_s(T)$ -Verhalten der oxydischen Hochtemperatursupraleiter von dem klassischer Supraleiter wie z.B. Niob. Das Tieftemperaturverhalten ist zwar im Hinblick auf technische Anwendungen weniger relevant, erlaubt dafür wesentliche, physikalische Erkenntnisse hinsichtlich der Symmetrie des Paarwellenzustandes. Während sich bei einem anisotropen s-Wellen-Paarzustandes mit minimaler Energielücke  $\Delta_{min}$  eine exponentielle Temperaturabhängigkeit für  $R_s$  ergibt, erwartet man für einen d-Wellen-Paarzustand eine Abhängigkeit, die schwächer als  $T^2$  ist [Zuc97]. An dieser Stelle sei ausdrücklich betont, dass die Frage nach der Symmetrie des Paarzustandes in HTSL-Schichten nicht eindeutig bestimmt sein muss. Eine Vielzahl von Messungen verschiedener Forschungsgruppen lässt sich durch die Annahme einer gemischten Symmetrie des Ordnungsparameters erklären. Zur Zeit wird diese Überlegung als wahrscheinlichste Antwort angesehen.

Den Restwiderstand  $R_s$  bei  $T \rightarrow 0$  K erhält man durch Extrapolation des temperaturabhängigen Verlaufs bis zum absoluten Nullpunkt. Man stellt fest, dass  $R_s$  bei 0 K einen endlichen Wert annimmt und nicht verschwindet. Der Restwiderstand ist stark von den einzelnen Proben abhängig und beträgt in Abbildung 4.2 etwa  $80 \mu\Omega$ . Er resultiert aus Defektstrukturen, der Sauerstoffordnung, schwachen Bindungen (engl. weak links) und Oberflächenrauigkeiten.

Die hier vorgestellte Messung wurde bei magnetischen Feldstärken vernachlässigbarer Amplitude durchgeführt und zeigt daher ein lineares Verhalten. Das Verhalten ändert sich drastisch, wenn eine bestimmte Feldamplitude überschritten wird. Dieses nichtlineare Verhalten soll im folgenden Kapitel untersucht werden

#### 4.1.4 Leistungsabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes

Neben der Temperaturabhängigkeit wurde zusätzlich der leistungsabhängige Mikrowellenoberflächenwiderstand mit Hilfe des in Abschnitt 3.3 vorgestellten Systems für

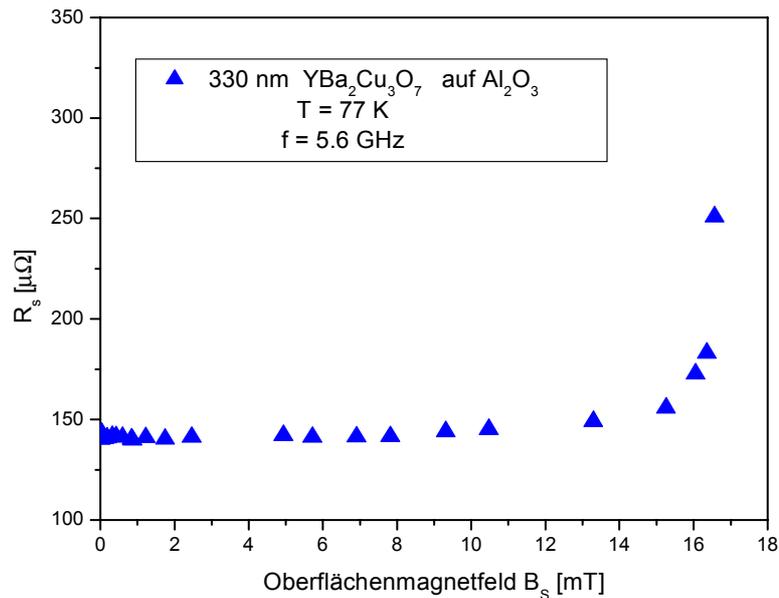


Abbildung 4.3: Leistungsverträglichkeit eines thermisch koverdampften, 330 nm dicken  $YBa_2Cu_3O_7$ -Filmes auf Saphir bei 77 K und 5.6 GHz.

2 Zoll Proben bei 5.6 GHz bestimmt. Das nichtlineare Verhalten von HTSL wurde bereits von anderen Gruppen untersucht und ist im Detail noch nicht ganz verstanden [Kai98][Oat92]. Die Untersuchungen an unserem Institut bei einer festen Temperatur von 77 K haben in erster Linie eine Überprüfung der Schichtqualität zum Ziel und sollen zeigen, wie sich Mikrowellenbauteile aus den hergestellten HTSL bei hohen Leistungen verhalten.

Abbildung 4.3 zeigt den leistungsabhängigen Oberflächenwiderstand einer YBCO-Probe auf Saphir als Funktion des Magnetfeldes. Bis zu einem Oberflächenmagnetfeld von 15 mT zeigt die Schicht nahezu lineares Verhalten und  $R_s(77K)$  nimmt nur leicht zu. Oberhalb von 15 mT steigt der Oberflächenwiderstand deutlich an bis die Supraleitung bei etwa 17 mT zusammenbricht (engl. quench).

Der Verlauf von  $R_s(B)$  bis 15 mT kann durch die im Supraleiter eindringenden Flussschläuche verstanden werden: Durch verstärktes "Pinning", d.h. durch starkes Haften der Flussschläuche an Defekten oder Inhomogenitäten, können die Flusslinien nicht mehr reversibel verschoben werden und es kommt zu hysteretischen Verlusten. Das Beanmodell beschreibt den Zustand, der durch das gegenläufige Zusammenspiel von "Pinning"-Kräften, die den Flussschlauch festhalten, und Lorentzkräften, die ihn verschieben, entsteht [Bea64]. Bei Supraleitern mit starkem Pinning werden die Flussschläuche bis zu einem kritischen Magnetfeld  $B_{Pin}$  festgehalten. Aus Modellberechnungen erhält man eine lineare Feldabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes [Hei99]. Systematische Untersuchungen [Kai98] haben gezeigt, dass das zu erwartende, kritische Magnetfeld, der  $B_{c1}$ -Wert aus der Ginzburg-Landau-Beziehung von etwa 10 mT von keinem  $YBa_2Cu_3O_7$ -Film signifikant überschritten wird und deshalb als Grenze für mögliches Pinning  $B_{Pin}$  betrachtet werden kann.

Der deutliche Anstieg von  $R_s(B)$  bei einem Magnetfeld über 15 mT kann mit Hilfe des endlichen Oberflächenwiderstandes erklärt werden. Der endliche Oberflächenwiderstand verursacht Mikrowellenverluste im Film, die in Joulsche Wärme umgewandelt werden und die Temperatur in der Schicht erhöhen. Wird in der Umgebung eines Defektes die Energiedichte so hoch, dass sich die lokale Temperatur über die Sprungtemperatur erhöht, kann die im Film gespeicherte Energie lawinenartig frei gesetzt werden und der gesamte Film wird normalleitend. Erhöht man das Magnetfeld über 15 mT hinweg, steigt der Oberflächenwiderstand sprunghaft an. Das entsprechende Zeitverhalten von  $P_{trans}$  ist in Abbildung 3.7 zu sehen und wird als Feldzusammenbruch bezeichnet. Dieses Phänomen ist nur an Proben mit sehr hoher Qualität bei so hohen Feldern beobachtbar, da sonst andere Mechanismen, wie weak-links, bereits bei kleineren Feldstärken einen Anstieg von  $R_s(B)$  bewirken [Oat92].

Zusammenfassend kann man sagen, dass die durch thermische Koverdampfung hergestellten Filme eine ausgezeichnete Leistungsverträglichkeiten besitzen, die auf eine sehr niedrige Defektdichte zurückzuführen ist. Durch die hohe, kritische HF-Magnetfelddichte von 15 mT eignen sich die Schichten für den Bau von Ausgangsfiltern, die höheren Leistungen von HF-Verstärkern ausgesetzt sind.

Komplexe Mehrkreis-Filter lassen sich durch planare Strukturen realisieren, deren Positionen auf der Filmoberfläche der Wafer durch das Layout festgelegt sind. Zum Erreichen der erforderlichen Spezifikationen ist es daher sehr wichtig, dass der Oberflächenwiderstand der Schicht möglichst homogen ist. Das folgende Kapitel zeigt die ortsaufgelöste Messung des Oberflächenwiderstandes, die die Homogenität der hergestellten HTSL-Filme wiedergibt.

### 4.1.5 Ortsaufgelöster Oberflächenwiderstand

Zur Messung der Homogenität von HTSL-Schichten werden am Institut standardmäßig ortsaufgelöste Messungen der kritischen Stromdichte durchgeführt. Die Charakterisierung findet bei relativ niedrigen Frequenzen statt ( $\approx$ kHz-Bereich) und erlaubt daher nicht die Messung hochfrequenter Verluste im HTSL. Das in Abschnitt 3.4 vorgestellte Messsystem schließt diese Lücke und ergänzt die Materialanalyse um die Charakterisierung des Oberflächenwiderstandes als Funktion des Ortes. Zur Bestimmung der Homogenität und der Inhomogenitäten wurden 330 nm dicke  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filme<sup>1</sup> der Firma THEVA charakterisiert.

Um den Einfluss systematischer Messfehler, wie Temperaturdrifts auszuschließen wurden die Proben jeweils um  $90^\circ$  gedreht und ein zweites Mal gemessen. Abbildung 4.4 zeigt die ortsaufgelöste Messung des effektiven Oberflächenwiderstand (19.7 GHz, 77 K) von drei unterschiedlichen 2 Zoll großen  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filmen auf Saphir bei einer gewählten Ortsauflösung von 2.5 mm. Blaue Messpunkte kennzeichnen Positionen auf dem Film, die nicht ausgewertet wurden. Die Verteilung und das integrale Mittel der  $R_s$ -Werte ist den beigefügten Histogrammen zu entnehmen.

Es zeigt sich, dass die Schichten lokale Schwankungen in  $R_s$  um den Mittelwert zwischen - 40% und + 100% aufweisen. Da die Messunsicherheit maximal 15 % beträgt

<sup>1</sup>Herstellung: Thermische Verdampfung mit dem in Abschnitt 2.3.3 beschriebenen Drehtellerverfahren.

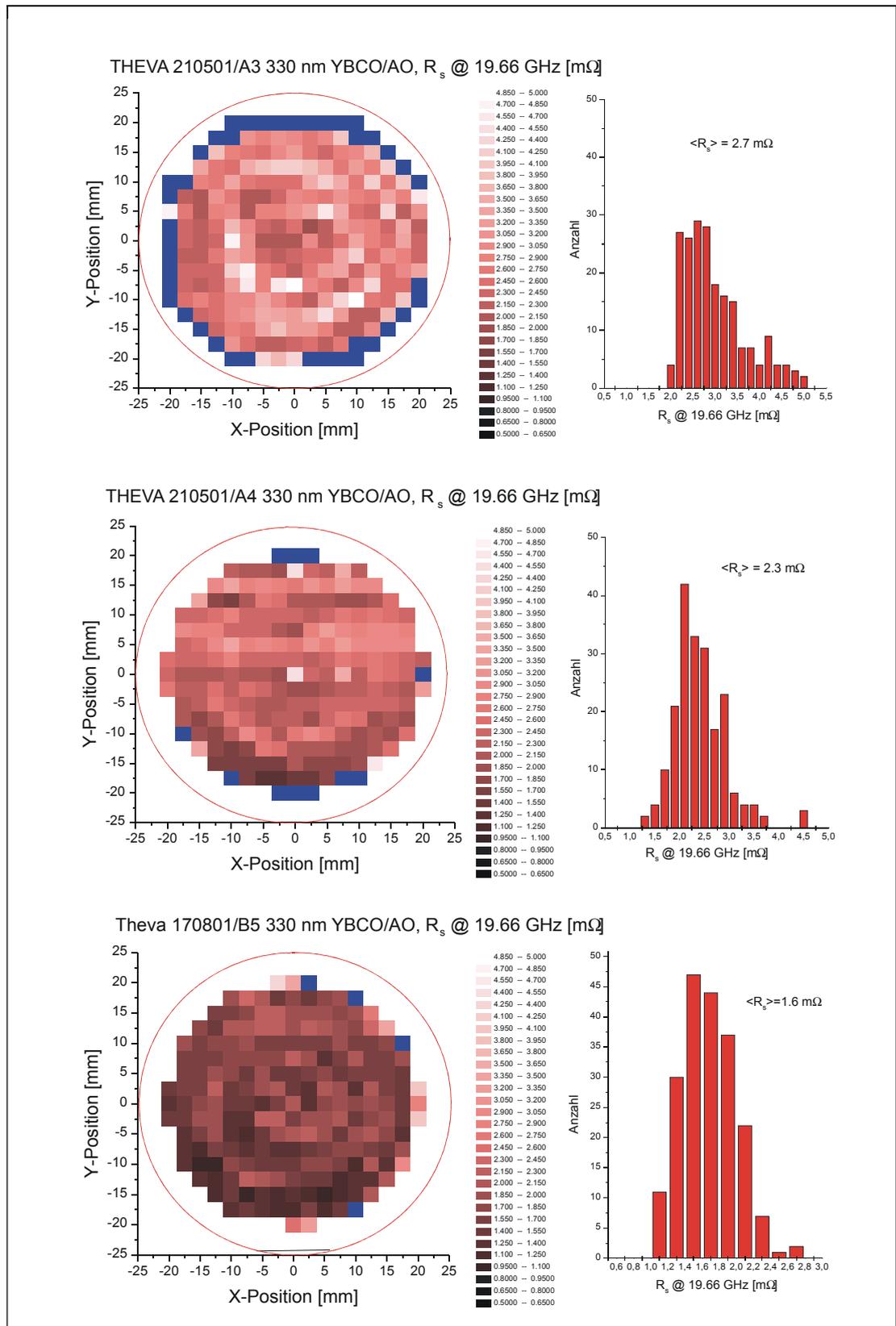


Abbildung 4.4: Ortsaufgelöste Messung des Oberflächenwiderstandes an drei verschiedenen  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filmen auf Saphir bei 19.7 GHz und 77 K.

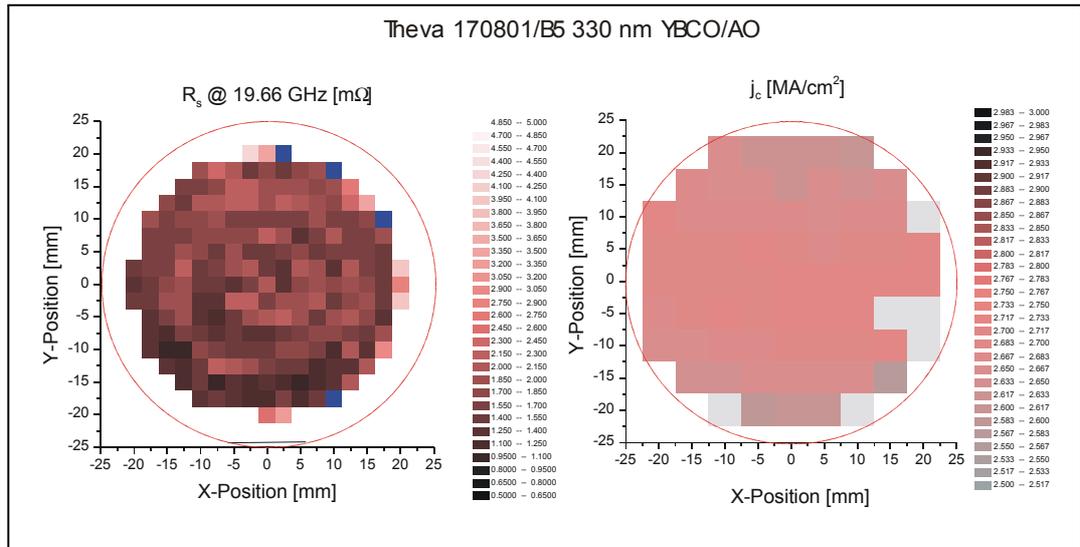


Abbildung 4.5: Vergleich von Oberflächenwiderstand und kritischer Stromdichte der Probe 170801/B5 als Funktion des Ortes.

(Abschnitt 3.5), sind die beobachteten Inhomogenitäten intrinsischer Natur. Diese entstehen z.B. durch Inhomogenitäten im Substrat und durch Gitterfehler wie Versetzungen und Stapelfehler und sind in jedem epitaktisch aufgewachsenen Film zu finden.

Die Probe 170801/B5 aus Abbildung 4.4 weist zusätzlich einen leichten Gradienten auf. Der Oberflächenwiderstand nimmt in positiver y-Richtung leicht zu. Eine inhomogene Temperaturverteilung auf dem Substrat bei der Herstellung (Abschnitt 2.3.3) könnte einen solchen Gradienten erklären.

Für die Probe THEVA 170801/B5 wurde zum Vergleich die kritische Stromdichte als Funktion des Ortes bestimmt. Das Messverfahren bedient sich der induktiven Anregung und Messung eines kritischen Abschirmstromes im HTSL [Cla91] und erlaubt durch Versetzen der Induktionsspule eine Kartierung der kritischen Stromdichte.

In Abbildung 4.5 sind die Ortsabhängigkeiten von Oberflächenwiderstand und kritischer Stromdichte gegenüber gestellt. Dabei ist auf die gegenläufige Farbskala zu achten. Während niedrige Oberflächenwiderstände dunklen Punkten auf der  $R_s$ -Karte zugeordnet sind, entsprechen dunkle Messwerte einer hohen kritischen Stromdichte. Der Vergleich zeigt deutlich, dass die kritische Stromdichte homogen über die gesamte Filmoberfläche verteilt ist und lediglich bei  $y = 20$  mm niedrigere Werte besitzt. Die mittlere Stromdichte  $\langle j_c \rangle$  der Probe beträgt  $2.7 \frac{MA}{cm^2}$ .

Die ortsaufösende Messung des Oberflächenwiderstandes kann somit Inhomogenitäten auf der Filmoberfläche detektieren, die mit der Messung der ortsaufgelösten Stromdichte nicht sichtbar sind. Damit ist gezeigt, dass die Bestimmung hochfrequenter Verluste ein geeignetes Verfahren darstellt, die Qualität einer HTSL-Schicht zu beurteilen.

## 4.2 Substitutionsreihe Seltene Erden

### 4.2.1 Allgemeine Eigenschaften

Wie bereits in Abschnitt 2.3.2 erwähnt wurde, lassen sich die Sprungtemperaturen einiger Seltenen-Erden-Verbindungen (RE-123-Verbindungen) in Perowskitstruktur durch die Substitution von Yttrium zum Teil bedeutend erhöhen. Da der Oberflächenwiderstand über 70 K entscheidend von der Sprungtemperatur abhängt, wurden im Hinblick auf die technische Nutzung, dünne HTSL-Schichten aus RE-Verbindungen hergestellt [Sem00] und das HF-Verhalten der neuen Materialien untersucht [Irg98][Irg99].

Die untersuchten RE-BCO Filme auf Saphir sind in Verbindung mit den Werten der kritischen Stromdichte (77 K), der Sprungtemperatur und dem gemessenen Oberflächenwiderstand (77 K und 5.6 GHz) in Tabelle 4.1 aufgelistet. Die Ergebnisse werden im Folgenden in Abhängigkeit der Ionenradien der seltenen Erden diskutiert.

| RE-Film         | Filmdicke [nm] | Substrat  | $R_s$ [ $\mu\Omega$ ]<br>@5.6GHz | $j_c$ [ $\frac{MA}{cm^2}$ ] | $T_c$ [K] |
|-----------------|----------------|-----------|----------------------------------|-----------------------------|-----------|
| $YBa_2Cu_3O_7$  | 330            | $Al_2O_3$ | 140                              | 2.6                         | 88        |
| $ErBa_2Cu_3O_7$ | 400            | $Al_2O_3$ | 290                              | 2.4                         | 89        |
| $ErBa_2Cu_3O_7$ | 420            | $Al_2O_3$ | 280                              | 2.5                         | 88        |
| $ErBa_2Cu_3O_7$ | 500            | $Al_2O_3$ | 495                              | 3.1                         | 88        |
| $NdBa_2Cu_3O_7$ | 200            | $Al_2O_3$ | >600                             | <i>gerissen</i>             | 93        |
| $DyBa_2Cu_3O_7$ | 250            | $Al_2O_3$ | 130                              | 2.9                         | 91        |

Tabelle 4.1: Supraleitende Eigenschaften bei 77 K verschiedener RE-Filme der Substitutionsreihe auf Saphir.

### 4.2.2 Seltene Erden mit größeren Ionenradien als Y (La, Nd)

Die Ionen der seltenen Erden La, Nd und Eu weisen einen größeren Radius als Yttriumionen auf. Bei der Herstellung der HTSL-Schichten auf Saphir mit diesen Elementen zeigten sich Probleme durch die größeren Radien.  $LaBa_2Cu_3O_7$ - und  $NdBa_2Cu_3O_7$ -Filme konnten nur bis zu einer kritischen Schichtdicke von etwa 200 nm auf Saphir aufgedampft werden. Durch die größeren Ausdehnungskoeffizienten kommt es im Schichtmaterial bei höheren Schichtdicken zu starker Rissbildung im Film. Der Oberflächenwiderstand eines 200 nm dicken  $NdBa_2Cu_3O_7$ -Filmes liegt oberhalb von 600  $\mu\Omega$ . Eu erwies sich bereits beim Aufdampfen als sehr problematisch. Durch das starke Sublimationsverhalten von Eu konnten keine Filme hergestellt und charakterisiert werden.

### 4.2.3 Seltene Erden mit kleineren Ionenradien als Y (Yb, Lu)

Die Ionen der seltenen Erden Yb und Lu weisen einen kleineren Radius als Yttriumionen auf. Yb sublimiert wie Eu sehr stark und lässt sich daher sehr schwer anschmelzen.  $LuBa_2Cu_3O_7$ -Filme können zwar auf Grund des kleineren Ausdehnungskoeffizienten dicker als 200 nm beschichtet werden, sie zeigten jedoch ein starkes Abweichen von der

erforderlichen Stöchiometrie im Filmwachstum. Weitere Versuche zu den beiden Elementen wurden daher eingestellt.

#### 4.2.4 Seltene Erden mit ähnlichen Ionenradien als Y (Er, Dy)

Aussichtsreiche Substitute wurden bei den Elementen gefunden, die einen ähnlichen Ionenradius wie Y besitzen. Dies sind Erbium und Dysprosium. Die hergestellten  $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filme hatten eine Sprungtemperatur von 88 K. Der Oberflächenwiderstand lag bei diesen Proben über dem von  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filmen. Eine Optimierung der Aufdampfparameter sollte zu einer Verbesserung der HF-Eigenschaften führen.

$\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filme hingegen zeigen bereits ohne eine wesentliche Anpassung der Prozessparameter eine deutliche Verbesserung der HF-Eigenschaften und eine Erhöhung der Sprungtemperatur um 3 K. Schichten auf Saphir mit einer Dicke von 250 nm haben bei 77 K einen bis zu  $\frac{1}{4}$  kleineren intrinsischen Oberflächenwiderstand als vergleichbare  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Schichten. Durch die stark unterschiedlichen Ausdehnungskoeffizienten von  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filmen und Saphirsubstraten konnten zunächst nicht die gleichen Schichtdicken wie bei YBCO-Filmen erreicht werden. Da das Wachstum dieser Filme hinsichtlich des Zusammenhangs zwischen Stöchiometrie und Oberflächenmorphologie sehr ähnlich dem von  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filmen ist, kann man auf die Erfahrung aus der  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Herstellung zurückgreifen und den Prozess optimieren.

Temperatur- und leistungsabhängige Messungen des Mikrowellenoberflächenwiderstandes geben Aufschluss darüber, inwieweit sich das neue Material für HF-Bauteile eignet und werden daher im folgenden Abschnitt vorgestellt.

### 4.3 DyBCO-Filme auf Einkristallsubstraten

#### 4.3.1 DyBCO-Filme auf Saphir

Bereits die ersten Beschichtungen von  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  auf Saphir haben gezeigt, dass die Filme schneller reißen als vergleichbare  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filme und der Ausdehnungskoeffizient  $\alpha_{\text{DyBCO}} > \alpha_{\text{YBCO}}$  ist. Obwohl die in Abschnitt 2.3.4 vorgestellte Theorie den Einfluss der Elastizität auf die limitierende Schichtdicke beschreibt, können hieraus keine kritischen Schichtdicken berechnet werden und müssen daher experimentell bestimmt werden. Dazu wurden  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Filme mit drei verschiedenen Filmdicken und zwei unterschiedlichen Aufdampfparametern hergestellt und der temperaturabhängige Oberflächenwiderstand bestimmt.

In Abbildung 4.6 sind die Messergebnisse dargestellt und mit den Werten einer 330 nm dicken  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Probe verglichen. Auf Grund der höheren Sprungtemperatur ist der Anstieg des Oberflächenwiderstandes aller  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ -Schichten nahe  $T_c$  im Vergleich zu der YBCO-Schicht um 2 K bis 3 K zu höheren Temperaturen verschoben. Der Anstieg von  $R_s$  verläuft allerdings etwas flacher als bei YBCO-Filmen, da die Temperaturabhängigkeit von  $R_s$  durch die geringere Schichtdicke zum Tragen kommt. Die Erhöhung der Aufdampfparameter von der Standardtemperatur von 670 °C auf 715 °C und die damit einhergehende Verbesserung der Kristallinität brachten indes keine weitere Optimierung.

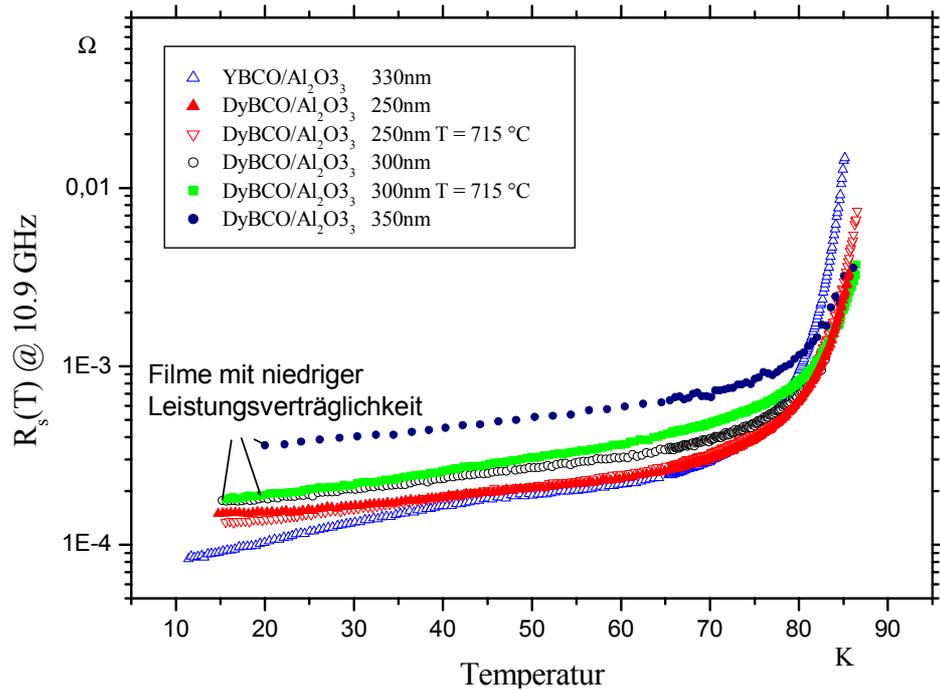


Abbildung 4.6: Oberflächenwiderstand von DyBCO-Filmen unterschiedlicher Dicke auf Saphir.

### 4.3.2 Leistungsverträglichkeit von DyBCO-Filmen auf Saphir

Die Untersuchung des Verlaufs des temperaturabhängigen Oberflächenwiderstands von DyBCO-Schichten unterschiedlicher Dicke auf Saphir gibt Hinweise auf eine reduzierte Leistungsverträglichkeit. Es zeigt sich jedoch, dass dies erst bei Dicken über 250 nm auf Saphir auftritt. Die Ergebnisse sind im Folgenden dargestellt und werden diskutiert.

Der effektive Oberflächenwiderstand des 250 nm dicken DyBCO-Filmes bei 77 K ist mit  $500 \mu\Omega$  trotz der geringeren Schichtdicke um  $40 \mu\Omega$  niedriger als beim dargestellten YBCO-Film ( $540 \mu\Omega$ ). Auf Grund eines höheren Restwiderstandes schneiden die 250 nm dicken DyBCO-Schichten die Messkurve der 330 nm dicken YBCO-Schicht bei etwa 82 K. Während sich bei YBCO-Filmen im mittleren Temperaturbereich ein Plateau andeutet, kann bei keinem der DyBCO-Filme ein schwächer werdender  $R_s(T)$ -Abfall zwischen 60 K und 40 K beobachtet werden. Diese Beobachtung lässt vermuten, dass die mit zunehmender Gitterfehlpassung auftretenden Gitterspannungen in den Filmen einen höheren Beitrag zur elastischen Streurate liefern. Erst bei Temperaturen unter 20 K nimmt der Oberflächenwiderstand der 250 nm dicken Schicht schwächer ab und sättigt in einen relativ hohen Oberflächenwiderstand von etwa  $140 \mu\Omega$ . Der Widerstand  $R_s(15 \text{ K})$  von YBCO liegt vergleichsweise niedrig bei  $90 \mu\Omega$ .

Ein ähnliches Verhalten kann auch bei DyBCO-Schichten mit 300 nm und 350 nm Dicke beobachtet werden. Mit zunehmender Schichtdicke erhöht sich der Widerstand  $R_s(15 \text{ K})$  und der temperaturabhängige Verlauf des Oberflächenwiderstand verschiebt sich zu größeren Werten. Die  $R_s$ -Werte bei 77 K der 300 nm und 350 nm dicken

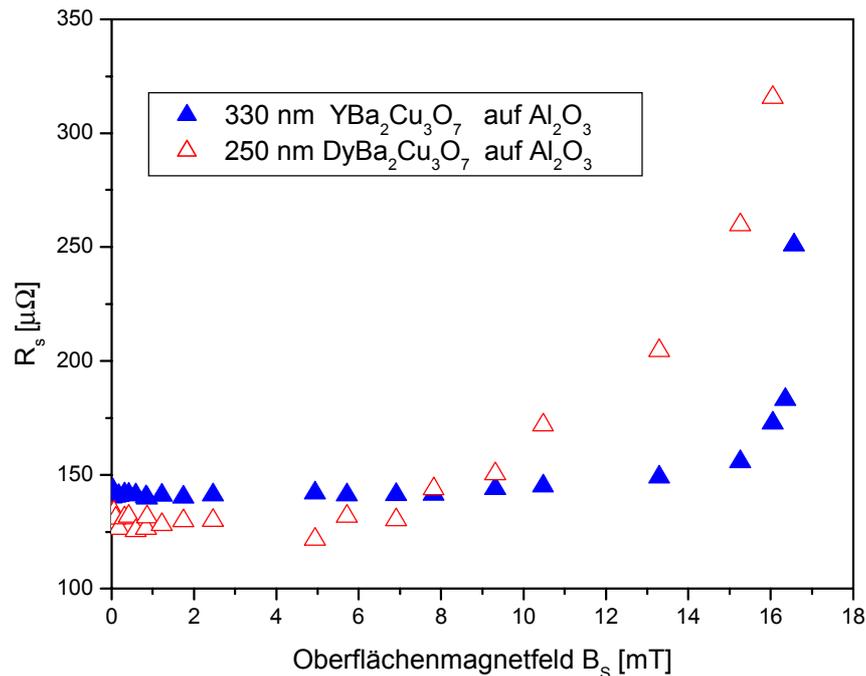


Abbildung 4.7: Vergleich der Leistungsverträglichkeiten eines 250 nm dicken DyBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>- Filmes mit einem 330 nm dicken YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>-Film. Beide Filme sind auf Saphir abgeschieden.

Filme liegen über den Messwerten der YBCO-Schicht und sind damit für technische Anwendungen weniger interessant.

Einen Hinweis auf dieses Verhalten gibt die Auswertung der Resonanzkurven. Bereits bei kleinsten HF-Leistungen ( $\mu$ W-Bereich) und schwacher Ankopplung sind die Transmissionskurven der gemessenen Filme (300 nm und 350 nm) verzerrt und zeigen nichtlineares Verhalten. Diese Beobachtung und die Tatsache, dass sich der Oberflächenwiderstand mit zunehmender Schichtdicke erhöht, kann nur mit einer Verschlechterung der Mikrostruktur erklärt werden und spiegelt sich in den Lichtmikroskop-Aufnahmen der DyBCO-Schichten wider (s. Abbildung 2.7). Ab einer Schichtdicke von 250 nm beginnen die Filme zu reißen und zeigen die typischen, um  $90^\circ$  versetzten Risse, die in polarisiertem Licht als helle und dunkle Linien erscheinen. Die entstehenden Risse engen den Strompfad ein und setzen die kritische Stromdichte herab, was sich in einer stark reduzierten Leistungsverträglichkeit bemerkbar macht.

Da die Vermutung nahe lag, dass auch der 250 nm dicke Film aufgrund der höheren Risstendenz eine niedrigere Leistungsverträglichkeit besitzt, wurde zusätzlich der HF-Magnetfeld abhängige Oberflächenwiderstand bestimmt und mit einem YBCO-Film auf Saphir verglichen. Wie man in Abbildung 4.7 sieht, steigt  $R_s$  bis 10 mT nur geringfügig an und geht bei etwa 15 mT in die Normalleitung über. Der DyBCO-Film besitzt damit ein etwas niedrigeres, kritisches HF-Oberflächenmagnetfeld als die charakterisierte YBCO-Schicht, das maximale Feld ist dennoch ausreichend um die Spezifikationen für HF-Filter zu erfüllen.

Die Messung zeigt, dass die 250 nm dicke DyBCO-Probe rissfrei ist und keine Defekte besitzt, die den Transport größerer Ströme verbietet. Ein Vergleich mit der kritischen Stromdichte ( $j_c = 2.9 \frac{\text{MA}}{\text{cm}^2}$ ) bestätigt die hohe Qualität der hergestellten DyBCO-Probe.

Eine Einschränkung für DyBCO-Filme auf Saphir stellt somit die kritische Schichtdicke von 250 nm dar, gegenüber 330 nm für YBCO-Filme. Eine entscheidende Erniedrigung von  $R_s$  bei 77 K kann jedoch erst bei höheren Schichtdicken erreicht werden. HTSL-Filme mit Schichtdicken größer als 330 nm benötigen Substrate, die einen höheren, thermischen Ausdehnungskoeffizienten besitzen.  $\text{LaAlO}_3$  erfüllt diese Anforderung und erlaubt die Deposition von Schichten mit einer Dicke von bis zu 1200 nm mittels Koverdampfung.

### 4.3.3 Filme auf $\text{LaAlO}_3$

Auf Lanthanaluminat konnten sowohl YBCO- als auch DyBCO-Schichten mit einer Dicke von bis zu 1200 nm hergestellt und charakterisiert werden. In Abbildung 4.8 ist die Temperaturabhängigkeit des Oberflächenwiderstands für zwei DyBCO-Schichten, 700 nm und 1200 nm dick, mit der einer 600 nm dicken YBCO-Schicht verglichen. Die aufgetragenen Messwerte der DyBCO-Proben schneiden die der YBCO-Proben aufgrund der oben diskutierten unterschiedlichen Sprungtemperatur in Verbindung mit den unterschiedlichen Restwiderständen. Zusätzlich schneiden sich die Messkurven der beiden DyBCO-Filme oberhalb von 80 K.

Im Temperaturbereich von etwa 40 K bis 60 K variiert der Oberflächenwiderstand nur sehr schwach mit der Temperatur. Das Plateau zeigt, dass auch bei höheren Schichtdicken eine akzeptable Mikrostruktur vorliegt. Neben Lanthanaluminat als Substrat wurden zusätzlich Messreihen mit Yttriumaluminat durchgeführt.

### 4.3.4 Filme auf $\text{YAlO}_3$

Aufgrund seiner zwillingsfreien Kristallstruktur erscheinen  $\text{YAlO}_3$ -Substrate auf den ersten Blick als interessante Alternative zu  $\text{LaAlO}_3$ -Substraten. Bereits die ersten Beschichtungen haben allerdings gezeigt, dass auf  $\text{YAlO}_3$ -Substraten aufgrund ihrer niedrigen thermischen Ausdehnungskoeffizienten nicht die gleichen Schichtdicken wie auf  $\text{LaAlO}_3$  erreicht werden können. Bereits bei 600 nm dicken Filmen tritt deutliche Rissbildung auf. Schichten mit 330 nm Dicke können dagegen rissfrei hergestellt werden. Zum Vergleich wurden DyBCO- und YBCO-Filme identischer Dicke (330 nm) auf  $\text{YAlO}_3$  abgeschieden und mit Mikrowellen charakterisiert. Der Verlauf des temperaturabhängigen Oberflächenwiderstandes wurde mit einem entsprechenden Film auf Saphir verglichen (s. Abbildung 4.9). Der Oberflächenwiderstand des Filmes auf  $\text{YAlO}_3$  liegt jeweils über dem des Filmes auf Saphir. Die Werte des Oberflächenwiderstandes der DyBCO-Filme liegen im gesamten Temperaturbereich unter 80 K über den Werten der YBCO-Filme. Die DyBCO-Filme weisen kein Plateau im mittleren Temperaturbereich auf. Zum Vergleich ist der Oberflächenwiderstand bei 77 K und 5.6 GHz in Tabelle 4.2 aufgeführt.

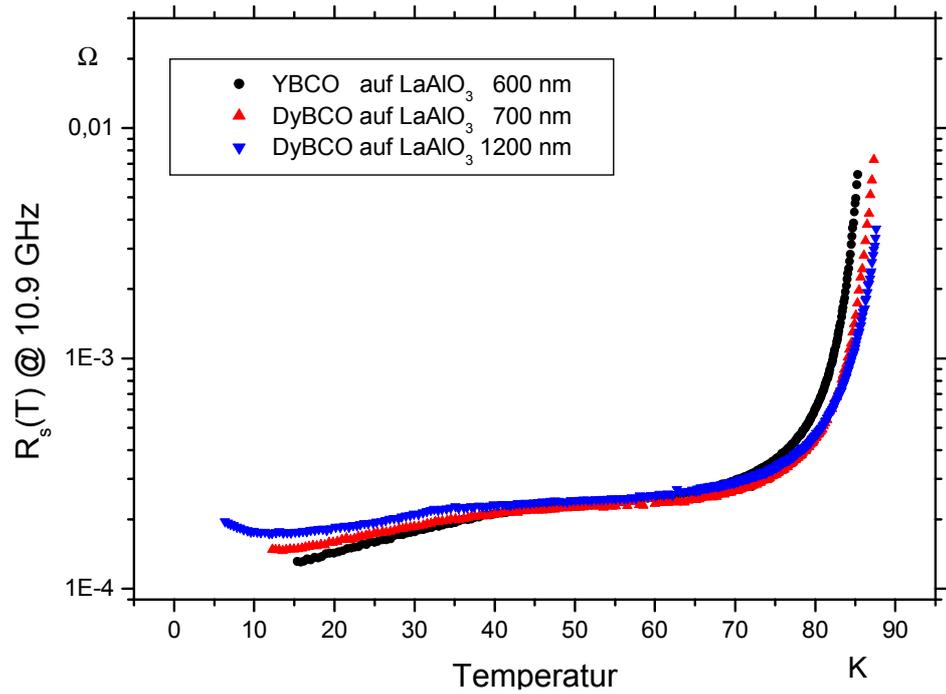


Abbildung 4.8: Temperaturabhängiger Oberflächenwiderstand von DyBCO-Filmen unterschiedlicher Dicke auf  $\text{LaAlO}_3$ . Die Messkurven sind mit einem 600 nm dicken YBCO-Film verglichen.

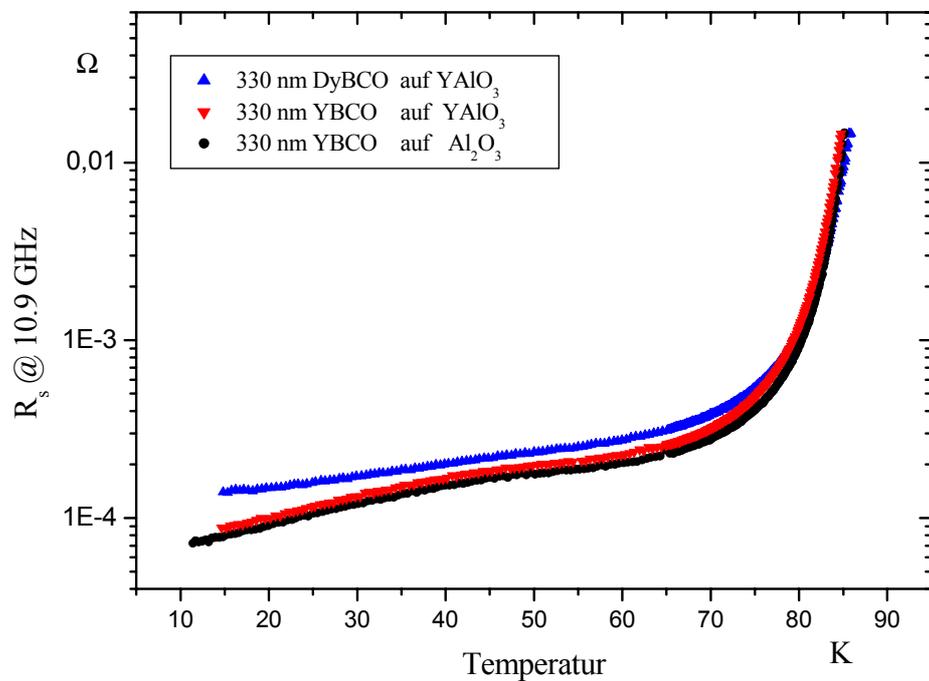


Abbildung 4.9: Temperaturabhängiger Oberflächenwiderstand von YBCO-Filmen und einem DyBCO-Film gleicher Dicke auf  $\text{Al}_2\text{O}_3$ - und  $\text{YAlO}_3$ -Substraten.

Die beobachtete Schichtdickenbegrenzung und die damit einhergehende Temperaturabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes machen  $YAlO_3$ -Substrate für HF-Anwendungen relativ uninteressant. Die Tatsache, dass  $YAlO_3$ -Substrate extrem brüchig sind, erschwert zusätzlich die Herstellung und Handhabung entsprechender Bauteile.

Die gemessenen Leistungsabhängigkeiten von RE-BCO-Filmen auf  $LaAlO_3$ - und  $YAlO_3$ -Substraten bei 5.6 GHz zeigen keine Auffälligkeiten und sind vergleichbar mit Filmen auf Saphir [Irg99]. Um einen möglichen Einfluss von Zwillingen auf den Oberflächenwiderstand zu untersuchen, wurden an YBCO-Filmen auf  $LaAlO_3$ -Substraten zusätzlich orts aufgelöste Messungen bei 19.7 GHz und 77 K durchgeführt. Alle charakterisierten Proben zeigen lediglich die normalen, lokalen Schwankungen in  $R_s$  wie sie bei jedem epitaktisch aufgewachsenen Film auftreten [Lud01].

In Tabelle 4.2 sind für die untersuchten DyBCO-Filme die Werte der kritischen Stromdichte, die Sprungtemperatur und der Oberflächenwiderstand bei 77 K und 5.6 GHz zusammengestellt. Die angegebene Charakterisierungsfrequenz liegt im Frequenzbereich der im Verbundprojekt entwickelten HTSL-Filter.

| RE-Film         | Filmdicke [nm] | Substrat  | $R_s$ [ $\mu\Omega$ ]<br>@5.6GHz | $j_c$ [ $\frac{MA}{cm^2}$ ] | $T_c$ [K] |
|-----------------|----------------|-----------|----------------------------------|-----------------------------|-----------|
| $YBa_2Cu_3O_7$  | 330            | $Al_2O_3$ | 140                              | 2.6                         | 88        |
| $YBa_2Cu_3O_7$  | 600            | $LaAlO_3$ | 110                              | 2.8                         | 88        |
| $YBa_2Cu_3O_7$  | 1200           | $LaAlO_3$ | 110                              | >2.4                        | 89        |
| $YBa_2Cu_3O_7$  | 330            | $YAlO_3$  | 166                              | –                           | 88        |
| $DyBa_2Cu_3O_7$ | 250            | $Al_2O_3$ | 130                              | 2.9                         | 91        |
| $DyBa_2Cu_3O_7$ | 330            | $Al_2O_3$ | 234                              | –                           | 91        |
| $DyBa_2Cu_3O_7$ | 500            | $LaAlO_3$ | 104                              | 2.4                         | 90        |
| $DyBa_2Cu_3O_7$ | 750            | $LaAlO_3$ | 95                               | 2.4                         | 90        |
| $DyBa_2Cu_3O_7$ | 700            | $LaAlO_3$ | 95                               | 2.9                         | 90        |
| $DyBa_2Cu_3O_7$ | 1200           | $LaAlO_3$ | 98                               | –                           | 90        |
| $DyBa_2Cu_3O_7$ | 330            | $YAlO_3$  | 180                              | –                           | 90        |

Tabelle 4.2: Supraleitende Eigenschaften der DyBCO-Filme bei 77 K im Vergleich mit YBCO-Filmen auf drei unterschiedlichen Substraten.

## 4.4 Porenreiche Filme auf Einkristallsubstraten

### 4.4.1 Erhöhung der Schichtdicke

Die extrem niedrigen, dielektrischen Verluste machen Saphir zu einem interessanten HTSL-Substrat für HF-Anwendungen. Durch die schlechte Gitteranpassung können jedoch nicht die gleichen Schichtdicken wie beispielsweise auf  $LaAlO_3$  erreicht werden und 330 nm dicke HTSL-Filme auf Saphir weisen daher einen höheren extrinsischen Oberflächenwiderstand auf als 600 nm dicke Filme auf  $LaAlO_3$ .

Aus diesem Grund gibt es immer wieder Bestrebungen, die erreichbaren Schichtdicken zu optimieren und es konnte gezeigt werden, dass durch den gezielten Einbau von

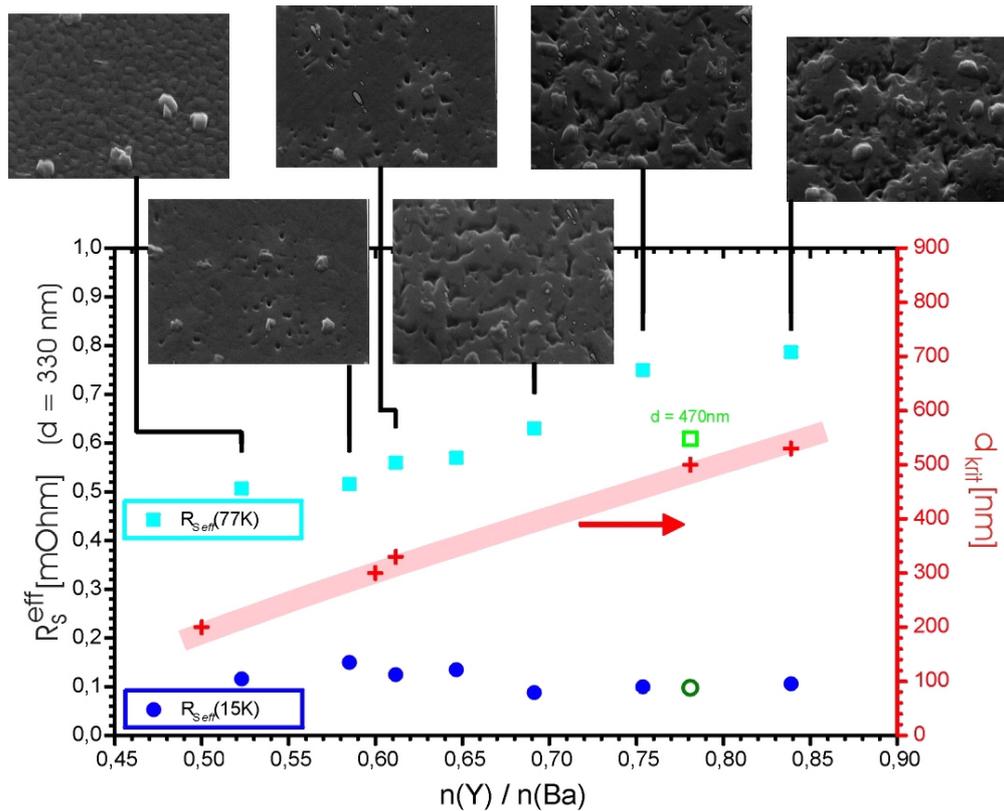


Abbildung 4.10: Oberflächenwiderstand 330 nm dicker YBCO-Filme bei 15 K bzw. 77 K (runde bzw. eckige Symbole) und maximal erreichbare Schichtdicken (Kreuze) als Funktion des  $Y/Ba$ -Verhältnisses. Die dargestellten REM-Aufnahmen besitzen alle den gleichen Maßstab (10.000-fache Vergrößerung) und zeigen deutlich wie die Porendichte mit zunehmendem  $Y$ -Gehalt ansteigt.

Defekten in HTSL-Schichten mittels Sputtern auf Saphir Schichtdicken bis zu 700 nm hergestellt werden können [Wör98]. Eine weitere Möglichkeit die Rissanfälligkeit zu reduzieren besteht darin, bereits beim Filmwachstum Poren entstehen zu lassen, an denen die Spannungen, die zu Rissbildung führen, relaxieren können.

Semerad hat bei Stöchiometrie-Untersuchungen an der Drehtelleranlage (Abschnitt 2.3.3) festgestellt, dass die kritische Schichtdicke stark von der Zusammensetzung der Filme beeinflusst wird und je nach Metallstöchiometrie die Filme eine charakteristische Oberflächenmorphologie besitzen [Sem00]. Die Zusammensetzung der HTSL-Schichten erfolgt dabei über die unabhängige Kontrolle der Aufdampfraten der abzuscheidenden Metalle. Weitere Untersuchungen ergaben, dass sich ab einem  $Y/Ba$ -Verhältnis von etwa 0.60 Poren bilden, deren Anzahl mit zunehmendem  $Y$ -Gehalt steigt und bei Yttrium-reichen Filmen zu einer Überlappung und damit zu einer Grabenbildung führt. Die Entstehung von Poren in den Filmen wird auf  $Y_2O_3$ -Ausscheidungen zurückgeführt [Kru97], die nur schlecht überwachsen werden, und ist auch bei anderen Herstellungsverfahren beobachtet worden. Yttrium-arme Filme hingegen zeigen keine Poren und haben die Eigenschaft schneller zu reißen.

### 4.4.2 Einfluss der Oberflächenmorphologie

Aufgrund dieser Beobachtungen wurde versucht, die kritische Schichtdicke für Filme auf Saphir durch Anheben des Y-Anteils zu erhöhen und den Mikrowellenoberflächenwiderstand zu reduzieren (vgl. Gl. (2.36)). In Abbildung 4.10 ist der gemessene Oberflächenwiderstand von 330 nm dicken YBCO-Filmen auf unterschiedlichen Substraten bei 10.9 GHz, für 15 K und 77 K, und die maximal erreichbare Schichtdicke jeweils in Abhängigkeit des Y/Ba-Verhältnis dargestellt. Zusätzlich werden REM-Aufnahmen, die zu den Y/Ba-Verhältnissen korrespondierenden Oberflächenmorphologien zeigen. Ein Einfluss des Substratmaterials auf die Morphologie wurde nicht beobachtet und spielt deshalb für die folgenden Betrachtungen keine Rolle.

Der niedrigste Oberflächenwiderstand bei der technisch relevanten Temperatur von 77 K konnte bei Filmen mit nur geringem Y-Überschuss gefunden werden und betrug  $510 \mu\Omega$ . Mit zunehmendem Y-Gehalt steigt  $R_s(77 \text{ K})$  linear an und macht bei einem Y/Ba-Verhältnis von 0.78 einen leichten Sprung zu höheren Werten. Das ist der Bereich, in dem die Poren sich zu überlappen beginnen. Bei extrem Yttrium-reichen Filmen gehen die Poren so stark ineinander über, dass sich lange, zusammenhängende Gräben bilden. Diese beeinflussen das eindringende, elektromagnetische Feld stark und sorgen dafür, dass das elektromagnetische Feld nicht mehr exponentiell abnimmt und der Oberflächenwiderstand ansteigt. Bei tiefen Temperaturen (15 K) hingegen ist die Eindringtiefe stark herabgesetzt und ein Anstieg des Restwiderstandes durch den Einfluss der Poren ist nicht zu erkennen.

Wie man in Abbildung 4.10 sehen kann, nimmt die maximale Schichtdicke mit zunehmendem Y/Ba-Verhältnis zu. Im Bereich von 0.77 bis 0.83 konnten YBCO-Filme mit einer Dicke von bis zu 470 nm rissfrei hergestellt werden. Der gemessene Oberflächenwiderstand einer solchen Schicht beträgt allerdings  $605 \mu\Omega$  und ist damit größer als der eines 330 nm dicken Standardfilmes ( $R_s = 530 \mu\Omega$ ). Der positive Schichtdicken-Gewinn bei dieser Porendichte kann die intrinsische Verschlechterung der Mikrowelleneigenschaften nicht mehr kompensieren.

Optimiert man jedoch die Oberflächenmorphologie weiter und sorgt dafür, dass die Poren sich gerade nicht mehr überlappen, so kann der Schichtdickenzuwachs gewinnbringend für Mikrowellenanwendungen eingesetzt werden. Mit einem Y/Ba-Verhältnis von etwa 0.65 konnte ein 400 nm dicker YBCO-Film auf Saphir (unteres rechtes REM-Bild in Abbildung 4.10) rissfrei abgeschieden und gleichzeitig der effektive Oberflächenwiderstand reduziert werden. Um die 2 Zoll große Probe für Mikrowellenanwendungen zu qualifizieren, wurde der Oberflächenwiderstand bei 77 K als Funktion des Oberflächenmagnetfeldes charakterisiert (s. Abbildung 4.11). Bei kleinen Leistungen beträgt  $R_s$  etwa  $120 \mu\Omega$  und ist damit  $20 \mu\Omega$  niedriger als bei einem 330 nm dicken Standardfilm. Dies entspricht einem  $R_s$  von etwa  $450 \mu\Omega$  bei 10.9 GHz. Mit zunehmender Leistung erhöht sich  $R_s$  nur gering und der betrachtete 400 nm dicke Film erreicht vergleichbare HF-Magnetfeldamplituden wie Standardfilme zwischen 12 mT und 15 mT.

Die Sprungtemperatur ändert sich in diesem Stöchiometriebereich nur sehr gering (88 K) und die kritische Stromdichte  $j_c$  besitzt konstant hohe Werte über  $2.5 \frac{\text{MA}}{\text{cm}^2}$ .

Hiermit konnte eine Möglichkeit zur Erhöhung der Schichtdicke bei gleichbleibender

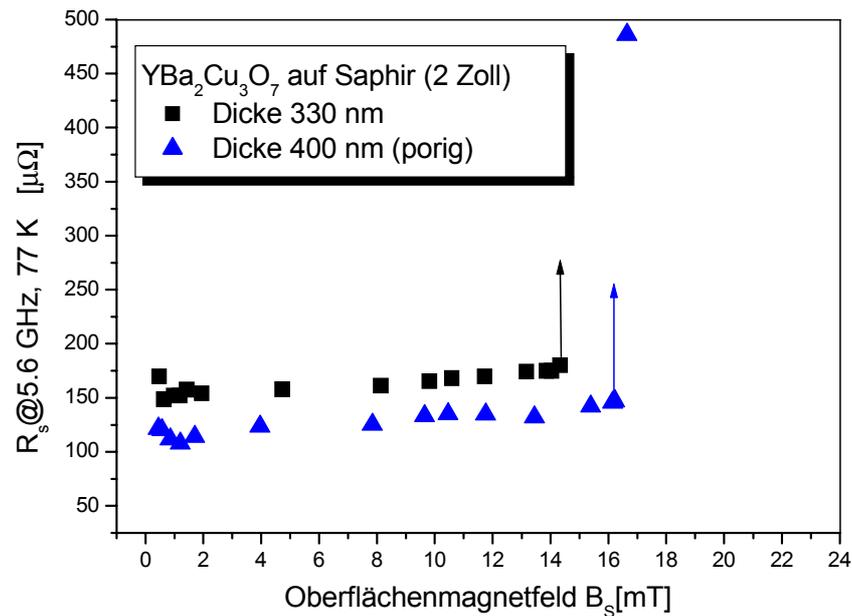


Abbildung 4.11: Oberflächenwiderstand eines 400 nm dicken, porigen YBCO-Filmes ( $n(\text{Y})/n(\text{Ba})=0.65$ ) auf Saphir als Funktion des HF-Magnetfeldes. Zum Vergleich ist die Leistungsabhängigkeit einer Standard-YBCO-Schicht mit einer Dicke von 330 nm dargestellt.

Filmqualität durch das "Einfügen" von Poren gezeigt werden. Für Anwendungen, bei denen eine etwas rauere Oberflächenmorphologie toleriert werden kann, stellen porige Filme eine Alternative mit verbesserten Hochfrequenzeigenschaften dar.

## 4.5 YBCO-Filme auf technischem Substrat

### 4.5.1 YBCO-Filme mit IBAD-YSZ-Puffer auf Keramik SM210

Die bisher vorgestellten RE-BCO Filme für Mikrowellenanwendungen wurden auf teure Einkristall-Substrate abgeschieden. Technische Keramiken, die speziell für Mikrowellenanwendungen entwickelt wurden, bieten demgegenüber eine Reihe von Vorteilen. Sie sind in nahezu beliebiger Größe verfügbar, die Dielektrizitätskonstante ist isotrop und kann durch geeignete Wahl der Zusammensetzung zwischen etwa 10 und 110 eingestellt werden. Bei der Herstellung großer Stückzahlen ist letztendlich eine nicht unerhebliche Preisreduzierung zu erwarten.

Den genannten Vorteilen stehen Schwierigkeiten bei der Präparation der Substrate und der epitaktischen Schichten gegenüber. Wegen der polykristallinen Natur solcher Substrate kann es bei der chemo-mechanischen Politur zum Herausbrechen einzelner Körner aus dem Verbund kommen. Löcher und Poren in der Substratoberfläche entstehen.

Im Folgenden werden die HF-Charakterisierungen an einer YBCO-Schicht auf ei-

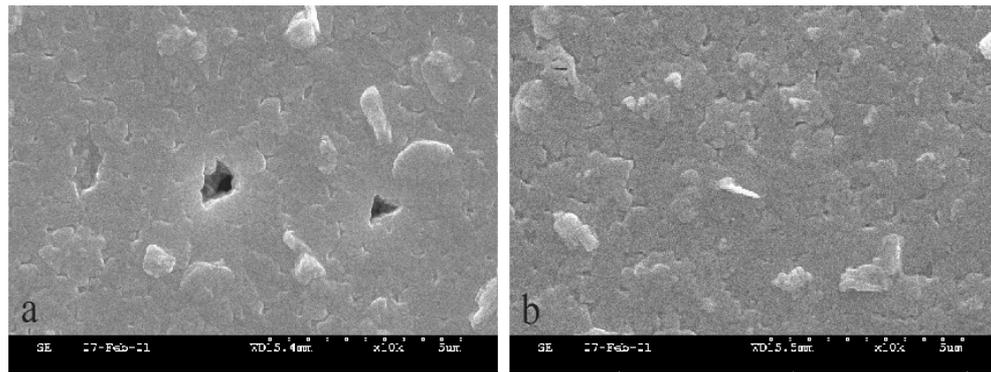


Abbildung 4.12: YBCO-Filme mit IBAD-YSZ Puffer auf Kyocera Keramik SM210 mit unterschiedlicher Politur.

ner kommerziell erhältlichen, 2 Zoll großen Mikrowellenkeramik der Firma Kyocera, mit dem Namen SM210, mit einer Dielektrizitätskonstante  $\epsilon_r=21$  vorgestellt. Die Permittivität liegt nahe an der von  $LaAlO_3$  und lässt kompakte Filterstrukturen zu. Die Keramik besitzt einen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von 9.2 ppm/K und sollte demnach rissfreies Wachstum dickerer YBCO-Filme ermöglichen.

Um ein Abscheiden des HTSL auf einem polykristallinen Material zu ermöglichen, wurde die Beschichtung in zwei Schritten durchgeführt. Zunächst wird als Puffer eine 2  $\mu\text{m}$  dicke hochwertige IBAD<sup>2</sup>-YSZ<sup>3</sup>-Schicht auf das polierte, 0.5 mm dicke Substrat aufgebracht [Dzi00][Dzi99]. Der IBAD-YSZ-Puffer wurde mittels PLD<sup>4</sup> vom ZFW Göttingen abgeschieden und ermöglicht durch die so entstandene Textur in einem zweiten Schritt den eigentlichen YBCO-Film mittels thermischer Verdampfung herzustellen. Die YBCO-Schicht auf dem 2 Zoll großen Substrat wurde von der Firma THEVA hergestellt.

Die Textur des IBAD-YSZ-Puffers gibt eine hervorragende in-plane Orientierung von etwa 8° vor. Abbildung 4.12 zeigt die REM-Aufnahmen von YBCO-Filmen auf verschieden polierten Proben. Deutlich ist zu erkennen, wie sich Substratporen bei Probe (a) in den YBCO-Film fortgesetzt haben und nicht überwachsen wurden. Mit einer speziellen chemo-mechanischen Politur hingegen kann die Porendichte niedriger gehalten werden und der YBCO-Film überwächst während der Aufdampfphase übrig gebliebene Löcher (b). Man erkennt deutlich, dass Substratporen einen Einfluss auf das Filmwachstum haben und YBCO kleine Inseln bildet. Offene, bis auf das Substrat durchgehende Poren, wurden dennoch nicht gefunden. Rissbildung konnte bis zu einer Filmdicke von 700 nm nicht beobachtet werden.

#### 4.5.2 Supraleitende Eigenschaften

Beide charakterisierten Proben sind 700 nm dick und besitzen eine Sprungtemperatur von 87 K. Die ortsaufgelöste Messung der kritischen Stromdichte (rechte Darstellung in

<sup>2</sup>Ion Beam Assisted Deposition

<sup>3</sup>Yttrium Stabilisiertes Zirkonoxid

<sup>4</sup>Pulsed Laser Deposition

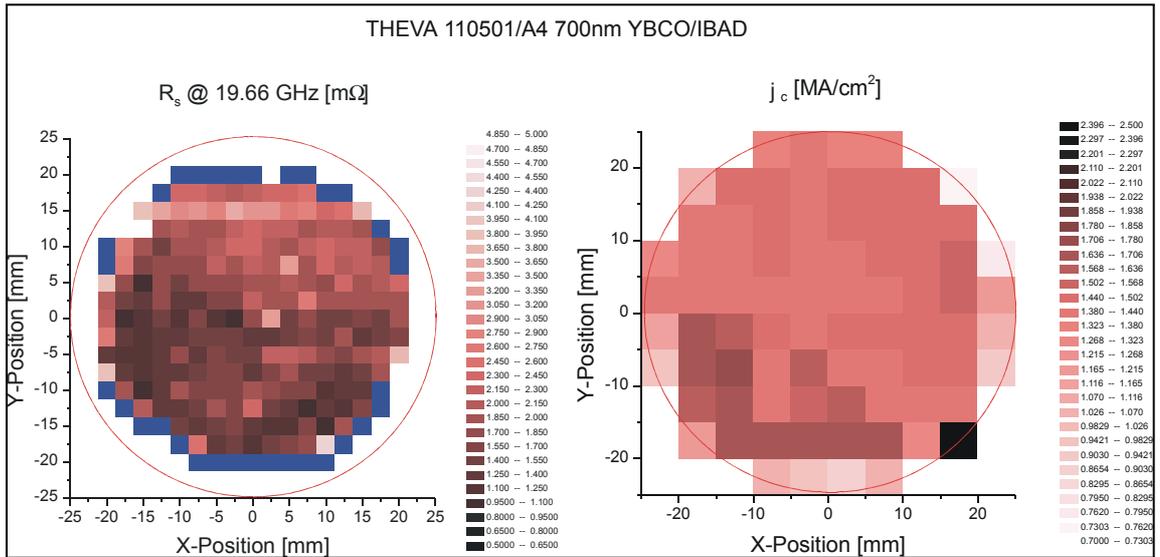


Abbildung 4.13: Ortsaufgelöste Messung des Oberflächenwiderstandes (links) und der kritischen Stromdichte (rechts) eines YBCO-Films auf SM210 Keramik. Zum besseren Vergleich sind dunkle Messpunkte niedrigen  $R_s$ -Werten und hohen kritischen Stromdichten zugeordnet.

Abbildung 4.13) zeigt höhere Werte im unteren, linken Bereich des Filmes ( $\approx 1.6 \frac{MA}{cm^2}$ ) verglichen mit dem Mittelwert der Messung ( $\approx 1.5 \frac{MA}{cm^2}$ ). Die optische Kontrolle der Probe zeigt in diesem Sektor einen Halbmond förmigen Schatten, der auf einen leichten Gradienten in der Textur des YSZ-Puffers zurückgeführt werden kann. Zur weiteren Bewertung der Filmqualität für Filteranwendungen wurde der temperatur- und magnetfeldabhängige Oberflächenwiderstand bestimmt. In der Mitte des Filmes besitzen beide Proben ein  $R_s$  von  $470 \mu\Omega$  bei 77 K und 10.9 GHz und sind damit vergleichbar mit typischen  $R_s$ -Werten von 330 nm dicken YBCO Filmen auf Saphir-Einkristallen. Der temperaturabhängige Verlauf des Oberflächenwiderstandes bei 10.9 GHz liegt nahe an den Werten einer YBCO-Schicht auf Saphir (s. Abbildung 4.14), wobei der Restwiderstand der Keramikprobe höher ist. In der selben Abbildung ist zusätzlich der temperaturabhängige Verlauf einer YBCO-Schicht auf  $LaAlO_3$  mit einer vergleichbaren Schichtdicke von 600 nm dargestellt. Der Film auf LAO besitzt bei 77 K einen signifikant niedrigeren Oberflächenwiderstand von  $250 \mu\Omega$  als der dickere YBCO-Film auf der SM210 Keramik. Die Messung zeigt, dass der intrinsische Wert der YBCO-Probe auf SM210 erhöht ist, da es trotz einer Schichtdicke von 700 nm zu höheren Mikrowellenverlusten in der YBCO-Schicht kommt.

Die Leistungsabhängigkeit bei 5.6 GHz ist in Abbildung 4.15 gezeigt und zeigt lineares Verhalten bis etwa 4 mT. Ab dieser HF-Magnetfeldamplitude nimmt der Oberflächenwiderstand bis 6.5 mT linear auf etwa den doppelten Wert zu und steigt bei höheren Werten stärker an. Ab 8.5 mT geht der HTSL in die Normalleitung über und es kann kein Oberflächenwiderstand mehr gemessen werden. Verglichen mit hochwertigen YBCO-Filmen auf Saphir oder  $LaAlO_3$  ist das maximal erreichbare HF-Magnetfeld

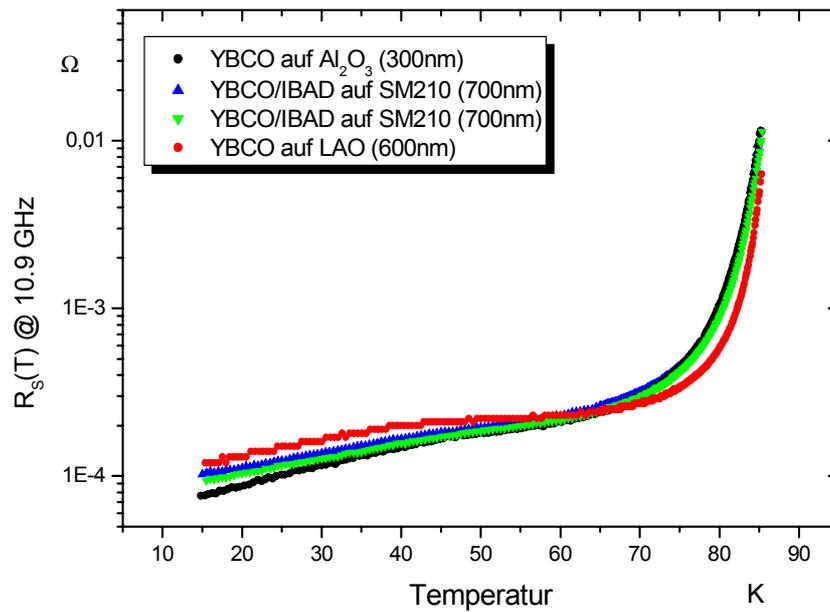


Abbildung 4.14: Oberflächenwiderstand von YBCO-Filmen auf drei verschiedenen Substraten. Der temperaturabhängige Verlauf von  $R_s$  der beiden Schichten auf dem polykristallinen Substrat (SM210) ist nahezu identisch und zeigt, dass die Filme reproduzierbar hergestellt werden können.

$B_{max}$  damit ungefähr 3 mal niedriger.

### 4.5.3 Ortsaufgelöster Oberflächenwiderstand

Schließlich wurde eine orts aufgelöste Messung des Oberflächenwiderstandes bei 20 GHz und 77 K durchgeführt. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.13 dargestellt und zeigt einen Gradienten von der Mitte der Probe aus in Richtung des Sektors, in dem die höchsten  $j_c$ -Werte gefunden wurden. Bei den Darstellungen ist zu beachten, dass helle (dunkle) Bereiche hohen (niedrigen) Oberflächenwiderständen und niedrigen (hohen) Stromdichten entsprechen. In diesem Sektor werden deutlich niedrigere  $R_s$ -Werte gemessen. Der Mikrowellenoberflächenwiderstand reagiert empfindlicher auf Texturänderungen als dies bei der kritischen Stromdichte beobachtet wurde.

### 4.5.4 Mikrowellenverluste im Substrat

Um den Verlustwinkel der SM210 Keramik zu bestimmen wurden zwei verschiedene Experimente durchgeführt. Zuerst wurde der Mikrowellenverlust der Rückseite einer Probe (durch die SM210 Keramik hindurch) als Funktion der Temperatur bestimmt. Das Ergebnis dieser Charakterisierung ist in Abbildung 4.16 dargestellt und mit den Messungen an der YBCO zugewandten Seite verglichen. Im gesamten Temperaturbereich sind hohe Mikrowellenverluste zu beobachten, die bei 70 K in einem

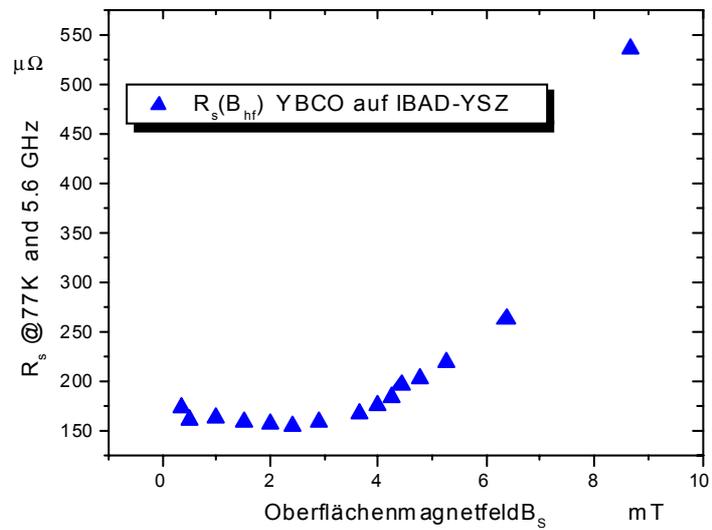


Abbildung 4.15: Oberflächenwiderstand der 700 nm dicken YBCO-Schicht auf SM210 als Funktion des Oberflächenmagnetfeldes bei 77 K und 5.6 GHz.

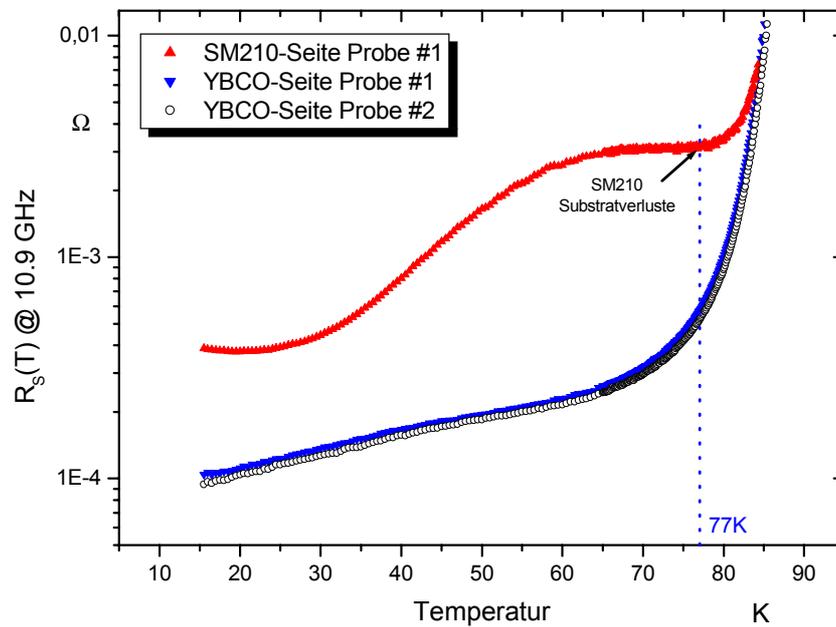


Abbildung 4.16: Temperaturabhängigkeit der Mikrowellenverluste, gemessen an der YBCO- (leere Symbole) und Substratseite (ausgefüllte Symbole). Die zusätzlichen Verluste im Substrat erhöhen den effektiv gemessenen Oberflächenwiderstand.

Intervall von etwa 10 K nahezu temperaturunabhängig sind. Um einen möglichen Einfluss der IBAD-YSZ-Schicht auszuschließen, wurde in einem zweiten Experiment eine unbeschichtete 2 Zoll große SM210 Keramik in einer Sandwichkonstruktion zwischen dielektrischen Saphirkristall und einem Referenzfilm (HTSL mit bekanntem  $R_s$ ) in den 5.6 GHz Resonator eingeschlossen und die Mikrowellenverluste bei 77 K gemessen. Die Messung und Berechnung (auf 10.9 GHz umgerechnet, nicht dargestellt) ergeben bei 77 K vergleichbare Verluste wie sie bei der temperaturabhängigen Charakterisierung der HTSL-Schicht auf der SM210 Keramik zu finden sind. Dies lässt den Schluss zu, dass Verlustmechanismen im Substrat und nicht in der 2  $\mu\text{m}$  dicken IBAD-YSZ-Schicht eine Rolle spielen. Die Berechnung nach Gleichung (2.38) ergibt ein  $\tan\delta$  von  $5 \cdot 10^{-5}$  der SM210 Keramik. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass es sich bei den angegebenen Werten nicht um einen Oberflächenwiderstand im herkömmlichen Sinne handelt, da die Verluste im Substrat überwiegen und es sich nach Gleichung (2.38) um einen Volumeneffekt handelt. Das beobachtete Plateau gibt einen Hinweis darauf, dass im betrachteten Temperaturbereich ein relatives Maximum des Verlustwinkels vorliegt, das den mit sinkender Temperatur abnehmenden Verlusten im HTSL entgegen steht. Derartige Verluste können auch bei anderen Substratmaterialien beobachtet werden [Kru94].

Wenn es gelingt das Verlustmaximum durch weitere Behandlungsschritte oder andere Herstellungsfahren zu höheren Temperaturen ( $>100$  K) zu verschieben, so erscheint die polykristalline Keramik aufgrund ihrer isotropen Dielektrizitätskonstante für Filterdesigns sehr interessant. Die zum Teil sehr aufwendigen Abstimmverfahren von planaren Filterstrukturen würden in diesem Fall erheblich vereinfacht werden. In Tabelle 4.3 sind wichtige physikalische Eigenschaften der polykristallinen Keramik SM210 zusammengefasst.

| Substrat                               | SM210               | Einheit   |
|--|---------------------|---|
| Dielektrizitätskonstante $\epsilon_r$  | 21                  | –   |
| Verlustwinkel $\tan \delta$ (10 GHz)   | $5 \cdot 10^{-5}$   | –   |
| Ausdehnungskoeffizient $\alpha$        | $9.2 \cdot 10^{-6}$ | $\frac{1}{K}$   |
| Thermische Leitfähigkeit $\sigma_{th}$ | 0.018               | $\frac{\text{cal}}{\text{cm} \cdot \text{s} \cdot K}$ |
| Materialdichte $\rho$                  | 3.7                 | $\frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$                        |
| Biegesteifigkeit $E$                   | 2.0                 | $\frac{\text{kg}}{\text{cm}^2}$                       |

Tabelle 4.3: Physikalische Eigenschaften der Kyocera Keramik SM210. Die genaue chemische Zusammensetzung des polykristallinen Materials ist nicht bekannt.

## 4.6 Ca-dotierte YBCO-Filme

### 4.6.1 Einfluss der Dotierung

Bei den bisher betrachteten HTSL-Proben wurden das Mikrowellenverhalten reiner undotierter RE-BCO-Verbindungen studiert. Supraleitende Elektronik wie sie heutzutage eingesetzt wird, benötigt Josephson-Kontakte (sog. SIS-Kontakte) mit definierten Eigenschaften [Hin88]. Für Anwendungen ist es wünschenswert die Transporteigenschaften wie kritische Stromdichte, den Normalleitungswiderstand oder die Kapazität kontrolliert einzustellen. Diese Kontaktparameter können beispielsweise über die Kontaktgröße, die Wahl des Barrierematerials oder die Fehlorientierung von Korngrenzen eingestellt werden. Alternativen zu den genannten Möglichkeiten sind die Dotierung des Supraleiters mit bestimmten Metallen [Sun97] oder die Änderung des Sauerstoffgehaltes [Kaw92].

Durch die Dotierung der Elektroden von YBCO-Josephson-Korngrenzkontakten auf  $24^\circ$  Bikristallen mit  $\text{Ca}^{2+}$ -Ionen gelang es Schneider et al. [Scc99] und Mannhart et al. [Man97] die kritische Stromdichte bei 4.2 K in einem solchen Kontakt, im Vergleich zu äquivalenten Kontakten auf undotierten Filmen, um mehr als eine Größenordnung zu erhöhen. Als Erklärung dieses Effektes geben Schneider et al. eine erhöhte Ladungsträgerdichte (Löcher) an den Kontakten durch die 2-fach positiv geladenen  $\text{Ca}^{2+}$ -Ionen an, die zu einer reduzierten Thomas-Fermi-Abschirmlänge [Kit93] an den SIS-Kontaktstellen und damit zu einem verbesserten Stromtransport führt<sup>5</sup>. Die Barriere, die SIS-Kontakte darstellen, wird demnach stark von der Ladungsträgerdichte beeinflusst. Andererseits ist ebenfalls der Ordnungsparameter und die damit einhergehende Paarwechselwirkung eine Funktion der Ladungsträgerdichte. Die Ladungsträgerdichte kann über den Dotierungsgrad gezielt eingestellt werden. Somit kann durch geeignete Dotierung die temperaturabhängige Länge, auf der der Ordnungsparameter und damit die Supraleitung reduziert oder unterdrückt wird, minimiert werden.

Wie in Abschnitt 2.1.4 dargestellt wurde, wird andererseits die Mikrowellenabsorption unter anderem durch die Ladungsträgerdichte und die Anzahl bzw. die Art von Defekten im HTSL bestimmt. Mit dem Wissen, dass die kritische Stromdichte und damit der Stromtransport durch eine gezielte Dotierung optimiert werden kann, stellt sich die Frage, inwieweit die Dotierung von YBCO mit zusätzlich eingebrachten Ladungsträgern das Mikrowellenverhalten beeinflusst und welche Effekte zu beobachten sind.

Da eine Dotierung mit Sauerstoff begrenzt ist ( $\text{O}_7$ ), wurde der Einfluss einer *Ca*-Dotierung auf den Oberflächenwiderstand von YBCO-Filmen auf Saphir-Einkristallen experimentell untersucht. Die im Folgenden vorgestellten  $Y_{1-\kappa}Ca_\kappa Ba_2 Cu_3 O_{7-\delta}$ -Filme wurden von Numssen mit dem in Abschnitt 2.3.3 beschriebenen Drehtellerverfahren hergestellt. *Ca* wird hierzu in einem 4. Schiffchen verdampft. Über eine zusätzlich eingebrachte Lochblende kann die Dampfkonzentration und damit der Dotierungsgrad festgelegt werden. Die partielle Ersetzung von  $Y^{3+}$  durch  $Ca^{2+}$ -Ionen in der Ein-

<sup>5</sup>Mannhart et al. geben als ein mögliches Szenario eine Bandverbiegung in der Größenordnung des reziproken Fermi- Wellenvektors (Nanometerbereich) in der Nähe des Kontaktes an.

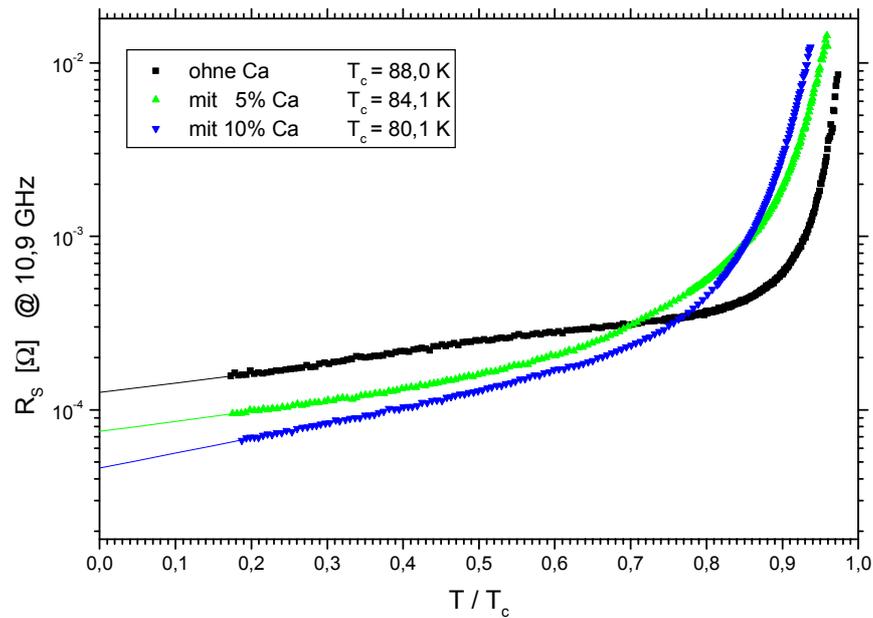


Abbildung 4.17: Oberflächenwiderstand von drei YBCO-Filmen mit unterschiedlicher Ca-Dotierung. Zur Bestimmung des Restwiderstandes wurde der temperaturabhängige Verlauf bis auf  $T=0$  K extrapoliert (exponentielles Verhalten).

heitzelle  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  führt zu einer Überdotierung der  $CuO_2$ -Ebenen<sup>6</sup>. Ab einer  $Ca$ -Konzentration von mehr als 30% wird die kritische Stromdichte wieder reduziert, da dann die Löslichkeit für  $Ca$  in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  erreicht wird [Kuc95].

#### 4.6.2 Vergleich mit Modellergebnissen

Zur Untersuchung des Einflusses des  $Ca$ -Gehaltes auf die Mikrowelleneigenschaften wurde der temperaturabhängige Oberflächenwiderstand einer undotierten, einer 5%- und einer 10%- $Ca$ -dotierten Probe jeweils zwischen 15 K und nahe der Sprungtemperatur gemessen. Wie in Abbildung 4.17 gezeigt wird, nimmt die Sprungtemperatur mit zunehmendem  $Ca$ -Gehalt ab. Da alle drei Proben mit der gleichen Sauerstoffbeladung hergestellt wurden, ist diese Beobachtung einer Ladungsträgerdotierung durch das  $Ca$ -Ion zuzuschreiben und mit Sauerstoff vollbeladene,  $Ca$ -dotierte Filme erscheinen überdotiert [Scs99]. Während der Oberflächenwiderstand des undotierten Filmes im Temperaturbereich zwischen 40 K und 60 K die Tendenz zur Ausbildung eines Plateaus zeigt, nimmt  $R_s$  der dotierten Filme weiterhin stark ab und liegt ab etwa 55 K unter dem Wert der undotierten Probe. Bei 15 K schließlich ist der Oberflächenwiderstand des 10%-dotierten Filmes deutlich gegenüber dem 5%-dotierten Film abgesenkt.

Die drastische Abnahme des Oberflächenwiderstandes der dotierten Filme bei tiefen Temperaturen kann nicht allein mit einer Zunahme der supraleitenden Ladungsträgerdichte (Abnahme der Normalleitenden) durch die  $Ca$ -Ionen erklärt werden, wie die

<sup>6</sup>Das 2-wertige Ca stellt einen Ladungsträger (Loch) zusätzlich bereit.

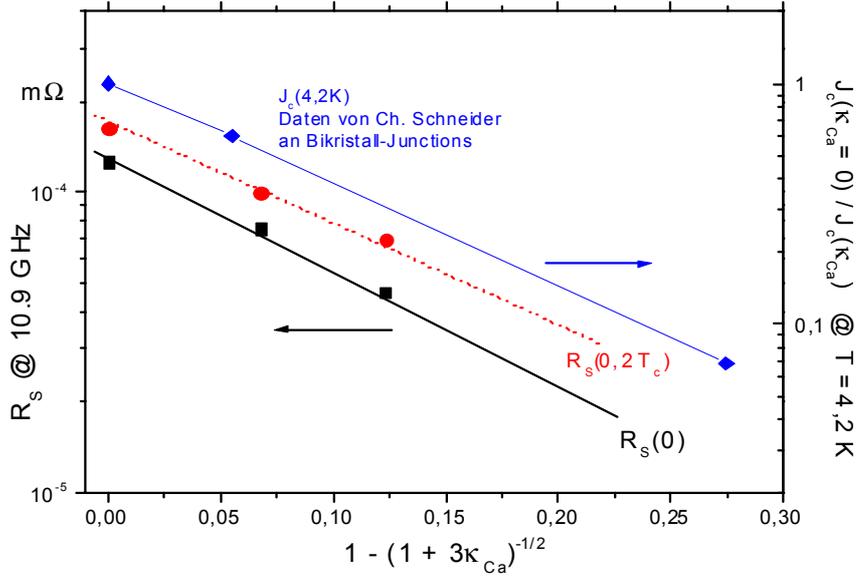


Abbildung 4.18: Restwiderstände bei  $T \rightarrow 0$  K (extrapoliert) und bei  $0.2 T_c$  der hergestellten YBCO-Filme als Funktion des  $Ca$ -Gehaltes. Die Steigung der gefitteten Kurven (durchgezogene Kurve) steht in Übereinstimmung mit dem Korngrenzen-Modell. Zum Vergleich sind Messwerte der kritischen Stromdichte an einem Bikristall aufgetragen [Scc99].

folgende Abschätzung zeigt. Für tiefe Temperaturen ( $T \rightarrow 0$  K) gilt für die Leitfähigkeit der Quasiteilchen (vgl. Gleichung (2.27) in Verbindung mit (2.18)):

$$\sigma_1 \sim \frac{\tau}{\lambda_L^2(0 \text{ K})} \quad (4.2)$$

Setzt man voraus, dass  $Ca$ -Ionen keine elastischen Streustellen darstellen<sup>7</sup> ( $\tau$  variiert nicht mit dem  $Ca$ -Gehalt) und setzt obigen Ausdruck in den Oberflächenwiderstand aus dem Zwei-Flüssigkeiten-Modell (Gleichung (2.28)) ein, so erhält man für  $R_s(0 \text{ K})$  folgenden Zusammenhang:

$$R_s(0 \text{ K}) \sim \lambda_L(0 \text{ K}) \quad (4.3)$$

Der Oberflächenwiderstand bei  $T \rightarrow 0$  K ist direkt proportional zur Londonschen Eindringtiefe  $\lambda_L(0 \text{ K})$  und damit zu  $\frac{1}{\sqrt{n}}$  ( $n$  = Ladungsträgerdichte). Selbst eine Dotierung der YBCO-Filme mit 10%  $Ca$  führt nach dem Zwei-Flüssigkeiten-Modell (mit einem empirisch eingeführten Restwiderstand) nur zu einer Reduktion des Oberflächenwiderstandes um etwa 15 %. Für die gemessene, deutliche Abnahme von  $R_s$  um mehr als den Faktor 2 muss daher ein zusätzlicher Mechanismus verantwortlich sein.

Eine mögliche Erklärung für dieses Verhalten liefern planare Defekte, wie z.B.  $Ca$ -dotierte SIS-Kontakte in den HTSL-Schichten. In Einkristallen können solche SIS-

<sup>7</sup>Eine Analyse der Messdaten im Zwei-Flüssigkeiten-Modell ergibt eine mittlere freie Weglänge  $l$  von mindestens  $0.4 \mu\text{m}$ . Der mittlere Abstand der  $Ca$ -Ionen beträgt dagegen nur etwa  $10 \text{ \AA}$ .

Kontakte durch Antiphasengrenzen [Joo99] bei der Beschichtung entstehen. Der Stromtransport an solchen Barrieren wird, wie bereits beschrieben, durch einen Josephson-Tunnelstrom bestimmt und kann mit der Dotierung der Konzentration  $\kappa_{Ca}$  beeinflusst werden. Die  $Ca$ -Dotierung liefert zusätzliche Ladungsträger pro dotierte Einheitszelle<sup>8</sup> [Tal95], d.h.

$$n = n_0(1 + 3\kappa_{Ca}) \quad (4.4)$$

$n_0$  ist hier die Ladungsträgerdichte ohne Dotierung. Die resultierende Barrierendicke ist durch die Thomas-Fermi-Abschirmlänge  $\lambda_{TF}$  gegeben [Kit93]. Für sie gilt:

$$\lambda_{TF} \sim n^{-\frac{1}{2}} \quad (4.5)$$

Mit zunehmender Teilchendichte nimmt die Breite der Barriere ab und die kritische Stromdichte  $J_c$  über einen solchen (Josephson-) Kontakt exponentiell zu:

$$J_c \sim \exp(-const \cdot \lambda_{TF}) \quad (4.6)$$

Der nötige Zusammenhang zwischen der kritischen Stromdichte und dem Oberflächenwiderstand bei  $T \rightarrow 0$  K lässt sich aus dem Korngrenzenmodell ableiten [Hal99] [Num02]. Das Modell beschreibt den Einfluss von planaren Defekten wie z.B. Antiphasengrenzen und Korngrenzen und sagt die Existenz eines Restwiderstandes bei tiefen Temperaturen voraus. Für den Restwiderstand  $R_s^{res}$  und die kritische Stromdichte über eine Korngrenze (Josephson-Kontakt) erhält man folgenden Zusammenhang:

$$R_s^{res} = R(0 \text{ K}) \sim J_c^{-const} \quad (4.7)$$

Aus dem Verhältnis der Stromdichten eines undotierten und eines dotierten Filmes mit der Konzentration  $\kappa_{Ca}$  lässt sich dann mit den Gleichungen (4.4) bis (4.6) folgender funktionaler Zusammenhang finden:

$$\ln \left[ \frac{J_c(\kappa_{Ca} = 0)}{J_c(\kappa_{Ca})} \right] \sim [\lambda_{TF}(\kappa_{Ca}) - \lambda_{TF}(\kappa_{Ca} = 0)] \sim - \left[ 1 - \frac{1}{\sqrt{1 + 3\kappa_{Ca}}} \right] \quad (4.8)$$

Der natürliche Logarithmus von  $J_c(\kappa_{Ca} = 0)/J_c(\kappa_{Ca})$  und entsprechend auch von  $R_s^{res}(\kappa_{Ca})/R_s^{res}(\kappa_{Ca} = 0)$  (vgl. Gleichung (4.7)) sollte entsprechend diesem Modell mit  $1 - (1 + 3\kappa_{Ca})^{-1/2}$  linear abnehmen. In Abbildung 4.18 sind die extrapolierten Restwiderstände  $R_s(0)$  und die Oberflächenwiderstände bei  $0.2 T_c$  der untersuchten  $Y_{1-\kappa}Ca_\kappa Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ - Filme bzw. des  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Filmes in einem entsprechenden Koordinatensystem aufgetragen. Man erkennt deutlich, dass alle Messwerte auf einer Geraden liegen und mit steigendem  $Ca$ -Gehalt abnehmen, ebenso wie die kritische Stromdichte, gemessen an  $24^\circ$  Bikristallkorngrenzen bei 4.2 K [Scc99].

Dieses Ergebnis unterstützt die Annahme, dass der Mikrowellenoberflächenwiderstand bei tiefen Temperaturen stark von planaren Defekten beeinflusst wird und gezielt durch Ladungsträgerdotierung eingestellt werden kann. Das eröffnet die Möglichkeit, durch eine Optimierung der Dotierungen eine für Anwendungen relevante Reduzierung des Oberflächenwiderstandes bei nicht zu tiefen Temperaturen ( $> 60$  K) zu erreichen.

<sup>8</sup>Bei optimaler Sauerstoffbeladung existieren  $2 \cdot 0.16 = 0.32$  Ladungsträger pro Einheitszelle.

# Kapitel 5

## Zusammenfassung

Hochfrequenzfilter aus Hochtemperatursupraleitern (HTSL) benötigen homogene Dünnschichten mit niedrigem Oberflächenwiderstand und hoher Leistungsverträglichkeit. Für die technische Verwendung der Schichten muss der Oberflächenwiderstand bestimmt werden. Im Rahmen dieser Arbeit sind verschiedene Messsysteme auf der Basis abgeschirmter Saphir-Resonatoren entwickelt worden, die die Untersuchung der Temperatur-, Feld- und Ortsabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes epitaktischer, großflächiger (1 und 2 Zoll) HTSL-Filme bei unterschiedlichen Frequenzen zwischen 5 GHz und 20 GHz erlauben. Während die Apparatur zur Messung der Temperaturabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes Charakterisierung im Bereich zwischen 10 K und  $T_c$  ermöglicht (10.9 GHz), finden die Messungen zur Ortsabhängigkeit (19.7 GHz) und Leistungsabhängigkeit (5.6 GHz) bei 77 K statt. Die Koppelstärke kann bei dem letztgenannten System in-situ variiert werden und man erreicht an Filmpaaren mit hoher Qualität bei 5.6 GHz Oberflächenmagnetfelder von bis zu 15 mT. Mit den aufgebauten Resonatoren wurden Charakterisierungen an  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ ,  $DyBa_2Cu_3O_{7-x}$  und weiteren Seltenen-Erden-Schichten (RE-BCO) durchgeführt. Diese wurden durch thermisches reaktives Koverdampfen auf Einkristallsubstraten ( $Al_2O_3$ ,  $LaAlO_3$  und  $YAlO_3$ ) und einer polykristallinen, technischen Keramik (SM210 von Kyocera) hergestellt.

Durch den Einsatz eines Helium gekühlten Durchflusskryostaten konnte das Tieftemperaturverhalten von  $R_s$  zwischen 10 K und 60 K sowie die Verluste der HTSL-Filme bei 10 K gemessen werden. Dabei ergaben sich für YBCO-Filme auf Saphir bei 10.9 GHz ein Bestwert von  $R_s(10K) = (90 \pm 15) \mu\Omega$ . Die auf Saphirsubstrate deponierten DyBCO-Filme zeigen wie auch die auf andere Substrate abgeschiedenen YBCO-Filme grundsätzlich einen höheren Restwiderstand. Eine drastische Reduzierung der Restverluste konnte bei *Ca*-dotierten YBCO-Filmen erreicht werden. Der Restwiderstand einer mit 10% *Ca*-dotierten Probe betrug nur noch etwa die Hälfte im Vergleich zu einem undotierten Film. Als Ursache des festgestellten, dotierungsabhängigen Verhaltens wurden planare Defekte diskutiert. Von 10 K bis etwa 40 K nimmt  $R_s(T)$  bei allen Schichten exponentiell zu. Im Temperaturbereich zwischen 40 K und 60 K findet sich bei allen undotierten, untersuchten RE-BCO-Schichten die Tendenz zur Ausbildung eines Plateaus, das bei RE-BCO-Filmen auf  $LaAlO_3$  am stärksten ausgeprägt ist. Dieses Verhalten kann im Rahmen des Drude-Zwei-Flüssigkeiten-Modells in Ver-

bindung mit einer temperaturabhängigen Streurate der Quasiteilchen erklärt werden. Ab 60 K nimmt der Oberflächenwiderstand wieder stärker zu und steigt in der Nähe der Sprungtemperatur stark an.

Die Tauglichkeit der HTSL-Filme für HF-Anwendungen wird durch den Oberflächenwiderstand bei Temperaturen über 60 K bestimmt. Die hier vorgestellten RE-BCO-Filme erfüllen die Anforderungen, die Mikrowellenanwendungen an HTSL-Filme stellen.  $R_s$ -Werte von  $540 \mu\Omega$  bei 77 K und 10.9 GHz können an 330 nm dicken YBCO-Schichten auf Saphir reproduzierbar erreicht werden. Die Realisierung noch niedrigerer, effektiver Oberflächenwiderstände lässt sich nur durch Erhöhen der Schichtdicke oder der Sprungtemperatur erzielen. Im Fall der betrachteten Schichten auf Saphir ist allerdings mit wachsender Filmdicke eine Verschlechterung des Oberflächenwiderstandes festgestellt worden, da bei höheren Filmdicken die Filme verstärkt zur Bildung von Mikrorissen neigen. Durch das Einfügen von Poren in YBCO konnte die kritische Schichtdicke auf 400 nm erhöht und der effektive Oberflächenwiderstand bei 77 K auf  $450 \mu\Omega$  reduziert werden.  $LaAlO_3$ -Substrate und eine getestete polykristalline Keramik erlauben grundsätzlich das Abscheiden noch höherer Schichtdicken. Eine Reduzierung des effektiven Oberflächenwiderstandes bei 77 K konnte allerdings nur bei RE-BCO Filmen (700 nm bis 1200 nm) auf  $LaAlO_3$ -Substraten erreicht werden. Der niedrigste, effektive Oberflächenwiderstand bei 77 K betrug  $330 \mu\Omega$  für einen 1200 nm dicken DyBCO-Film auf  $LaAlO_3$ , der eine um etwa 3 K höhere Sprungtemperatur als YBCO besitzt. Auf Grund der höheren Ausdehnungskoeffizienten von DyBCO konnten DyBCO-Schichten auf Saphir nur bis zu einer Dicke von 250 nm rissfrei beschichtet werden. Trotz der geringeren Schichtdicke ist hierbei  $R_s(77 \text{ K}, 10.9 \text{ GHz})$  im Vergleich zu einer 330 nm dicken YBCO-Schicht um mehr als 7 % reduziert.

Bei  $R_s$ -Messungen in Abhängigkeit des Oberflächenmagnetfeldes  $B_S(77 \text{ K}, 5.6 \text{ GHz})$  wurden maximale Felder in RE-BCO-Filme auf Einkristallsubstraten von bis zu 15 mT erreicht. Dies erlaubt unter anderem den Einsatz der Filme in dielektrischen Filtern bei höheren Leistungen. YBCO-Schichten auf einer polykristallinen Keramik zeigen dagegen einen graduellen Anstieg der Verluste mit zunehmender Feldstärke schon ab etwa 4 mT. Diese Beobachtung wird der Existenz von Defekten zugeschrieben, die durch den Einfluss der polykristallinen Keramik während des Filmwachstums entstanden sind.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Messverfahren entwickelt, das die ortsauflösende Analyse des Oberflächenwiderstandes bei Frequenzen zwischen 10 GHz und 20 GHz ermöglicht. Experimente und Untersuchungen an HTSL-Filmen haben gezeigt, dass die effektive Ortsauflösung auf 1 mm gesteigert werden kann. Mit den ortsauflösenden Systemen konnten lokale Defekte und inhomogene Hochfrequenzverluste in HTSL-Filmen gefunden werden. Bei Homogenitätsuntersuchungen hat sich herausgestellt, dass der Oberflächenwiderstand auch bei qualitativ hochwertigen Schichten um mehr als 15 % um einen mittleren Wert schwanken kann. Eine Korrelation zwischen ortsaufgelöstem Oberflächenwiderstand und kritischer Stromdichte konnte speziell bei den charakterisierten YBCO-Schichten auf der polykristallinen Keramik beobachtet werden. Darüber hinaus gibt es Inhomogenitäten auf Filmen, die nur mit Mikrowellen bei Bestimmung des Oberflächenwiderstandes detektiert werden konnten. Dies belegt, dass die Messung des Oberflächenwiderstandes eine empfindliche Messmethode darstellt.

Die im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Messsysteme zeigten bei ihrer intensi-

ven Nutzung ihre hervorragende Eignung zur Bestimmung der Hochfrequenzverluste. Obwohl eine Steuerung es erlaubt, die mehrstündigen Messungen der Temperatur- und Ortsabhängigkeit vollautomatisch durchzuführen, ist eine Reduzierung der Messzeiten wünschenswert. Diese kann beispielsweise mit Hilfe eines verbesserten Kühlsystems realisiert werden. Eine weitere Erhöhung der Ortsauflösung des bestehenden Systems durch geeignete Dielektrika sollte das Ziel künftiger Arbeiten sein. Die systematische Untersuchung der Mikrowellenverluste hat gezeigt, dass die mittels Koverdampfung hergestellten YBCO- bzw. RE-BCO-Schichten auf Grund der geringen Mikrowellenverluste sich ideal für den Einsatz in der HF-Technik eignen. Für planare Filterstrukturen ist die weitere Optimierung der nichtlinearen Verluste in RE-BCO-Schichten notwendig und eine systematische Untersuchung der Korrelation ihrer Mikrostruktur mit den Mikrowelleneigenschaften erforderlich. Die Entwicklung von Schutzschichten zur Korrosionsbeständigkeit der HTSL und die Bereitstellung geeigneter Kühler sind der nächste Schritt in Richtung kommerzieller Anwendung in der Satellitenkommunikation und in terrestrischen Basisstationen.

# Literaturverzeichnis

- [Abr59] A. A. Abrikosov, L. P. Gor'Kov, I. M. Khalatnikov, "A superconductor in a high frequency field", Soviet Physics JETP **8**, 182 (1959).
- [Ash76] N.W. Ashcroft, N.D. Mermin, "Solid State Physics", Sanders College, Philadelphia (1976).
- [Bar57] J. Bardeen, L. N. Cooper, J. R. Schrieffer, Phys. Rev., **108**, 1175 (1957).
- [Bau97] C. Bauer, "Thermische und magnetische HF-Feldstärkebegrenzungen in Hochtemperatursupraleiter-Filmen", Externer Bericht WU D 97-11, Gesamthochschule Wuppertal (1997).
- [Bau99] A. Baumfalk, private Mitteilung (1999).
- [Bea64] C.P. Bean, Rev. Mod. Phys., **36**, 31 (1964).
- [Bed86] J.G. Bednorz, K.A. Müller, "Possible high  $T_c$  superconductivity in the Ba-Lu-Cu-O system", Z. Phys. B, **64**, 189-193 (1986).
- [Bed88] J.G. Bednorz, K.A. Müller, "Oxide mit Perowskitstruktur-Der neue Weg zur Hochtemperatur-Supraleitung", Phys. Bl., **44**, Nr.9, 347 (1988).
- [Bon93] D.A. Bonn, Ruixing Liang, T.M. Riseman, D.J. Baar, D.C. Morgan, Kuang Zhang, P. Dosanjh, T.L. Duty, A. MacFarlane, G.D. Morris, J.H. Brewer, W.N. Hardy, C. Kallin, A.J. Berlinsky, "Microwave determination of quasiparticle scattering time in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6.95}$ ", Phys. Rev. **B47**, 11314 (1993).
- [Bra85] V.W. Braginsky, V.P. Mitrofanov, V.I. Panov, "Systems with Small Dissipation", The University of Chicago Press (1985).
- [Bra87] V.B. Braginsky, V.S. Ilchenko, Kh.S. Bragdasarov, "Experimental observation of fundamental microwave absorption in high-quality dielectric crystals", Phy. Lett. A, **120**, 300 (1987).
- [Cha96] H. Chaloupka, M. Jeck, B. Gurzinski, S. Kolesov, "Superconducting planar disk resonators and filters with high power handling capability", Elec. Lett., **32**, 1735-1736 (1996).
- [Cla91] J. H. Claasen, M. E. Reeves, R. J. Soulen Jr., "A contactless method for measurement of the critical current density and critical temperature of superconducting films", Rev. Sci. Instrum., **62**, 996 (1991).

- [Dan96] E.B. McDaniel, J.W.P. Hsu, "Nanometer scale optical studies of twin domains and defects in lanthanum aluminate crystals", *J. Appl. Phys.*, **80**, 1085 (1996).
- [Deh90] M. Dehler et al., "Status and future of the 3D MAFIA group of codes", *IEEE Trans. Magn.*, **26**, 751 (1990).
- [Dre99] S. Drexler, "Messung der Temperaturabhängigkeit des Oberflächenwiderstandes von Hochtemperatursupraleitern", Diplomarbeit, Technische Universität München (1999).
- [Dzi99] J. Dzick, S. Sievers, J. Hoffmann, K. Thiele, F. Garcia-Moreno, A. Usoskin, C. Jooss and H. C. Freyhardt, "Biaxially textured buffer layers on Large-Area Polycrystalline, Fundamental Mechanisms of Low-Energy-Beam-Modified Surface Growth and Processing", *MRS Proceedings*, **585**, 55-66 (1999).
- [Dzi00] J. Dzick, "Mechanismen der ionenstrahlunterstützten Texturbildung in Yttrium-stabilisierten Zirkonoxid-Filmen", Dissertation Universität Göttingen, Seite 5, Shaker Verlag (2000).
- [Gey95] R.G. Geyer, J. Krupka, "Microwave Dielectric Properties of Anisotropic Materials at Cryogenic Temperatures", *IEEE Transactions on Instrumentation and Measurement*, **44**, 329 (1995).
- [Gol96] M. Golosovsky, A. Galkin, D. Davidov, "High-Spatial Resolution Resistivity Mapping of Large-Area YBCO Films by a Near-Field Millimeter-Wave Microscope", *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*, **44**, No. 7 (1996).
- [Gor34] C.J. Gorter, H.B.G. Casimir, "Zur Thermodynamik des supraleitenden Zustandes", *Physik. Zeitschrift*, **35**, 963 (1934).
- [Hal70] J. Halbritter, Externer Bericht, 3/70-6, Forschungszentrum Karlsruhe (1970).
- [Hal99] J. Halbritter, "Material science and surface impedance  $T(T, f, H)$  of Nb and YBCO and their quantitative modelling by the leakage current of weak link", *Supercond. Sci. Technol.*, **12**, 883-886 (1999).
- [Har93] W.N. Hardy et al., *Phys. Rev. Lett.*, **70**, 3999, (1993).
- [Hei99] M.A. Hein, "Physics and applications of high-temperature superconductor thin films at microwave frequencies", *Tracts in modern Physics*, Springer Verlag, Berlin (1999).
- [Hin88] J. Hinken, "Supraleiter-Elektronik: Grundlagen in der Mikrowellentechnik", Springer Verlag, Berlin (1988).
- [Irg98] K. Irgmaier, R. Semerad, S. Drexler, H. Kinder, T. Kaiser, "Großflächige Re-Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>-Filme mit gezielten HF- Eigenschaften bei 5 GHz", *Supraleitung und Tieftemperaturtechnik, Berichte zum Statusseminar 19.-20. Oktober 1998*, VDI-Technologiezentrum Physikalische Technologien (1998).

- [Irg99] K. Irgmaier, S. Drexler, R. Semerad, K. Numssen und H. Kinder, "Microwave properties of DyBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> films on AO-, LAO-, YAO-substrates and measurements in dielectric resonators", Proceedings of the 1999 Applied Superconductivity Conference, **2**, 117 (1999).
- [Irg00] K. Irgmaier, A. Ludsteck, K. Numssen, R. Semerad, H. Kinder, "Spatially Resolved Measurements of the Microwave Surface Resistance of HTS Thin Films with a Dielectric Resonator Design at 10.5 GHz and 77 K", IEEE Microwave Theory and Techniques Society, **1**, 600 (2000).
- [Irg01] K. Irgmaier, R. Semerad, W. Prusseit, A. Ludsteck, G. Sigl, H. Kinder, J. Dzick, S. Sievers, H. Freyhardt, K. Peters, "Deposition and microwave performance of YBCO-Films on technical ceramics", To be published in: Physica C: Superconductivity and its applications (EUCAS 2001).
- [Jac62] J. D. Jackson, "Classical Electrodynamics", John Wiley & Sons Inc., New York (1962).
- [Jac91] A.G. Jackson, "Handbook of Crystallography: For electron microscopists and others", Springer Verlag, Berlin (1991).
- [Joo99] Ch. Joos, R. Warthmann, H. Kronmüller, T. Haage, H.-U. Habermeier, J. Zegenhagen, "Vortex Pinning due to Strong Quasiparticle Scattering at Antiphase Boundaries in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$</sub> ", Phys. Rev. Lett., **82**, 632 (1999).
- [Käs98] T. Kässer, M. Klauda, C. Neumann, C. Guha, S. Kolesov, A. Baumfalk, H. Chaloupka, "A satellite repeater comprising superconducting filters", IEEE MTT-S, 375-378 (1998).
- [Käs99] T. Kässer, "Herstellung, Abgleich und Charakterisierung planarer Mikrowellenfilter aus Hochtemperatursupraleitern", Dissertation, Universität Wuppertal, Shakerverlag (1999).
- [Käs95] G. Kästner, D.Hesse et al., "Microcracks Observed in Epitaxial Thin Films of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$</sub>  and GdBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$</sub> ", Phys. Stat Sol (a), **150**, 183 (1995).
- [Kai98] T. Kaiser, "Nichtlineare Hochfrequenzeigenschaften von Hochtemperatursupraleiter-Filmen", Dissertation, Universität Wuppertal, WUB-DIS 98-8 (1998).
- [Kaj86] D. Kajfez und P. Guillon, "Dielectric Resonators", Artech House Inc., Dedham (1986).
- [Kaw98] J. Kawashima, Y. Yamada, I. Hirabayashi, "Critical Thickness and effective thermal expansion coefficient of YBCO crystalline film", Phys. C, **306**, 114 (1998).
- [Kaw92] M. Kawasaki, P. Chaudari, A. Gupta, Phys. Rev. Lett. **68**, 1065 (1992).

- [Kin97] H. Kinder, P. Berberich, W. Prusseit, S. Rieder-Zecha, R. Semerad, B. Utz, "YBCO Film Deposition on Very Large Areas Up to 20x20 cm<sup>2</sup>", *Physica C*, **282-287**, 107-110 (1997).
- [Kit93] C. Kittel, "Einführung in die Festkörperphysik", R. Oldenbourg Verlag, München, 10. Auflage (1993).
- [Kle89] N. Klein, G. Müller, H. Piel, J. Schurr, *IEEE Trans. Magn.* **MAG-25**, 1362 (1989).
- [Kle90] N. Klein, H. Chaloupka, G. Müller, S. Orbach, B. Roas, L. Schultz, U. Klein, M. Peiniger, "The effective microwave surface impedance of high  $T_c$  thin Films", *J. Appl. Phys.*, **67**, 6940 (1990).
- [Kln89] N. Klein, G. Müller, H. Piel, B. Roas, L. Schultz, U. Klein, M. peiniger, "Millimeter wave surface resistance of epitaxial grown  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  thin films", *Appl. Phys. Lett.* **54**, 757 (1989).
- [Kre93] V.Z. Kresin et al., "Mechanism of conventional and high  $T_c$  superconductivity", Oxford University Press (1993).
- [Kru94] J. Krupka, R.G. Geyer, M. Kuhn, J.H. Hinken, "Dielectric Properties of Single Crystals of  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{LaAlO}_3$ ,  $\text{NdGaO}_3$ ,  $\text{SrTiO}_3$ , and  $\text{MgO}$  at Cryogenic Temperatures", *IEEE Trans. Microwave Theory Tech.*, **42**, 1886 (1994).
- [Kru97] R. Krupke, Z. Barkay, G. Deutscher, "On the origin of hole formation in YBCO films", *Phys. C*, **289**, 146 (1997).
- [Kuc95] J.T. Kucera, J.C. Bravman, *Phys. Rev. B*, **51**, 8582 (1995).
- [Led91] H. Ledbetter, M. Lei, *J. Material Research*, **6**, 2253 (1991).
- [Lin95] J.G. Lin, C.Y. Huang, Y.Y. Xue, C.W. Chu, X.W. Cao, J.C. Ho, "Origin of the R-ion effect on  $T_c$  in  $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ", *Phy. Rev. B*, **51**, 12900 (1995).
- [Lan67] L. D. Landau, E. M. Lifschitz, "Lehrbuch der theoretischen Physik VIII - Elektrodynamik der Kontinua", Seite 329, Akademie-Verlag, Berlin (1967).
- [Lan97] M. J. Lancaster, "Passive microwave device applications of high-temperature superconductors", Cambridge University Press, Cambridge (1997).
- [Lan99] A.F. Lamm, "A Cryogenic Microwave Scanning Near-Field Probe: Applications To Study Of High  $T_c$  Superconductors", *Rev. Sci. Instrum.*, **70**, Nr 11, 1-8, (1999).
- [Len97] K. Lenog, J. Mazierska, J. Krupka, "Measurements of Unloaded Q-Factor of Transmission Mode Dielectric Resonators", accepted to the Int. Symp. on Microwave Theory and Techniques MTTTS' 97, Denver.

- [Lon35] F. und H. London, "Electromagnetic Equations of the Superconductor", Proc. Roy. Soc. A, **149**, 71 (1935).
- [Lud01] A. Ludsteck, "Ortsauflösende Messung des Oberflächenwiderstandes dünner YBCO-Schichten bei 20 GHz", Diplomarbeit, Technische Universität München (2001).
- [Man97] J. Mannhart, H. Hilgenkamp, Applied Superconductivity, **158**, 1 (1997).
- [Man98] R.R. Mansour, S. Ye, S. Peik, B. Jolley, V. Dokas, T. Romano, G. Thomson, "HTS filter technology for space applications", IEEE MTT-S Int. Microwave Symp. (1998).
- [Mar91] J.S. Martens, "Confocal Resonators For Measuring The Surface Resistance Of HTS Films", Appl. Phys. Lett., **58**, 2543-2546 (1991).
- [Mei92] Meinke, Gundlach, "Taschenbuch der Hochfrequenztechnik", Springer Verlag, Berlin (1992).
- [Mül90] G. Müller, N. Klein, H. Brust, H. Chaloupka, M. Hein, S. Orbach, H. Piel, D. Reschke, J. Supercond., **3**, 235 (1990).
- [Neu93] J.J. Neumeier, A.H. Zimmermann, "Pressure dependence of the superconducting transition temperature of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  as a function of carrier concentration: a test for a simple charge-transfer model", Phys. Rev. B, **47**, 8385 (1993).
- [Num02] K. Numssen, Dissertation (in Vorbereitung), Technische Universität München.
- [Oat92] D.E. Oates, P.P. Nguyen, G. Dresselhaus et al., Proceedings of the 1992 Applied Superconductivity Conference, 1114 (1992).
- [Orb94] S. Orbach-Werbig, Dissertation, Universität Wuppertal, WUB-DIS 94-4 (1994).
- [Peh89] E. Pehl, "Mikrowellentechnik Band1", Hüthig Verlag (1989).
- [Pru94] W. Prusseit, "Herstellung und Charakterisierung epitaktischer  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ -Filme auf Halbleitersubstraten", Dissertation, Technische Universität München (1994).
- [Rao91] C. N. R. Rao, J. Gopalakrishnan, A. K. Santra, V. Manivannan, "Relation between  $T_c$  and hole concentration in superconducting cuprates", Physica C, **174**, 11 (1991).
- [Reu48] G.E.H. Reuter, E.H. Sondheimer, "The theory of the anomalous skin effect in metals", Proc. Roy. Soc. London, **A 195**, 336 (1948).
- [Scc99] C.W. Schneider, R.R. Schulz, B. Goetz, A. Schmehl, H. Bielfeldt, H. Hilgenkamp and J. Mannhardt, "Tailoring of high- $T_c$  Josephson junctions by doping their electrodes", App. Phys. Lett., **75**, 850 (1999).

- [Scc01] C. W. Schneider, private Mitteilung (2001).
- [Scs99] S.I. Schlachter, W.H. Fietz, K. Grube, Th. Wolf, B. Obst, P. Schweiss and M. Kläser, "The effect of chemical doping and hydrostatic pressure on  $T_c$  of  $Y_{1-y}Ca_yBa_2Cu_3O_x$  single crystals", *Physica C*, **1-13**, 328 (1999).
- [Sho98] S. Schornstein, I.S. Gosh, N. Klein, "High-temperature superconductor shielded high power dielectric dual-mode filter for applications in satellite communications", *IEEE MTT-S Int. Microwave Symp.*, 1319-1322 (1998).
- [Sch99] R. Schwab, "Ortsaufgelöste Untersuchung des Oberflächenwiderstandes von epitaktischen  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Dünnschichten mit Millimeterwellen", Dissertation Forschungszentrum Karlsruhe, Wissenschaftliche Berichte, FZKA 6331 (1999).
- [Sem00] R. Semerad, "Großflächige Dünnschichten aus  $YBa_2Cu_3O_x$  und homologen Verbindungen-Herstellung, Charakterisierung und Anwendung", Dissertation, Technische Universität München (2000).
- [Sun97] G.Y. Sung, J. D. Suh, S.-G. Lee, *Physica C*, **282-287**, 2475 (1997).
- [Tal95] J.L. Tallon, C. Bernhard, H. Shaked, "Generic superconducting phase behavior in high- $T_c$  cuprates:  $T_c$  variation with hole concentration in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ", *Phys. Rev. B*, **51**, 12913 (1995).
- [Tho90] M.D. Thouless, *J. Am. Ceram. Soc.* **73**, 2144 (1990).
- [Wil96] G.V.M. Williams, J.L. Tallon, "Ion size effect on  $T_c$  and interplanar coupling in  $RBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ", *Physica C*, **258**, 41 (1996).
- [Wör98] R. Wördenweber, S. Einfeld, R. Kutzner, A.G. Zaitsev, M.A. Hein, T. Kaiser, G. Müller, "Large-Area YBCO Films on Sapphire for Microwave Applications", *IEEE Trans. on Applied Supercond.*, **9**, 2486 (1999).
- [Zuc97] C. Zuccaro, "Mikrowellenabsorption in Dielektrika und Supraleitern für Resonatoren hoher Güte", Dissertation Forschungszentrum Jülich (1997).

# Danksagung

An dieser Stelle bedanke ich mich bei allen, die durch ihre Anregungen und freundliche Unterstützung zu dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein ganz besonderer Dank gilt Herrn Prof. Dr. Helmut Kinder für die Möglichkeit, diese Doktorarbeit an seinem Institut durchzuführen, und für sein stetes Interesse an ihrem Fortgang.

Meinen ehemaligen Diplomanden Herrn Stefan Drexl, Frau Alexandra Ludsteck und Herrn Georg Sigl möchte ich für die hervorragende Zusammenarbeit und ihr großes Engagement danken.

Ganz besonders möchte ich mich bei Herrn Kai Numssen bedanken. Mit seiner ständigen Bereitschaft zur Diskussion, seinem Engagement bei der Filmherstellung, sowie nicht zuletzt der Durchsicht des Manuskripts trug er ganz wesentlich zum Gelingen dieser Arbeit bei.

Ein besonders herzlicher Dank gilt Herrn Dr. Werner Prusseit für die freundschaftliche und fruchtbare Zusammenarbeit.

Herrn Dr. Robert Semerad danke ich für seine Mühe bei der Filmherstellung.

Ein besonderer Dank gilt Herrn Thomas Rapp und Herrn Dr. Paul Berberich, die mir bei physikalischen und technischen Fragen stets hilfreich zu Seite standen.

Allen anderen Institutsmitgliedern danke ich für das angenehme Arbeitsklima und die wertvollen Anregungen.

Für die kooperative Zusammenarbeit möchte ich mich bei den Partnern im Verbundprojekt bedanken, stellvertretend erwähne ich Herrn Dr. habil. Norbert Klein (FZ Jülich), Herrn Dr. habil. Matthias Hein, Herrn Dr. Thomas Kaiser (Uni Wuppertal), Dr. Tobias Kässer, Dr. Matthias Klauda und Frank Schnell (Bosch SatCom).

Schließlich möchte ich mich besonders herzlich bei meinen Eltern bedanken, die durch die selbstlose Förderung meiner Ausbildung die Anfertigung dieser Promotionsarbeit erst ermöglicht haben.

Ganz besonders bedanke ich mich bei meiner Lebensgefährtin Sigrun Matthes, die mich während der gesamten Zeit in jeder Hinsicht unterstützt hat. Außerdem möchte ich meiner Tochter Alina danken, die durch ihre fröhliche Art meine Arbeit bereichert hat.

Diese Arbeit wurde im Rahmen des vom VDI getragenen Verbundprojektes des Bundesministerium für Bildung und Forschung "Hochtemperatursupraleiter in der Satellitenkommunikation" unter dem Förderkennzeichen 13N6827 gefördert.