

FACHBEREICH PHYSIK BERGISCHE UNIVERSITÄT GESAMTHOCHSCHULE WUPPERTAL

# $\label{eq:constraint} \begin{array}{l} \mbox{Untersuchung präparativer Einflüsse auf} \\ \mbox{die Mikrostruktur und die Transporteigenschaften} \\ \mbox{von YBa}_2 \mbox{Cu}_3 \mbox{O}_{7-\delta}\mbox{-Stufenkantenkontakten} \end{array}$

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

> von Frank Hill aus Wermelskirchen

> > Mai 2000 WUB-DIS 2000-1

ii

### Abstract

Josephson junctions are the key elements of unique superconducting electronic devices like extremely sensitive magnetometers, tunable microwave and three-terminal devices and very fast  $(f \sim 100 \text{ GHz})$  digital circuits. The large energy gap of high-temperature superconductors (HTS) promises improved performance of Josephson devices compared to the established Nb/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Nb technology. Unfortunately, HTS Josephson junctions still suffer from poor reproducibility, which impedes large-scale integration. Optimised preparation processes are therefore strongly required.

The research described in this thesis focused on  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  (YBCO) step-edge junctions, which are based on the natural formation of junctions at grain boundaries, involve comparatively simple preparation processes and have the potential for large-scale integration. More than 1000 junctions of  $2 - 60 \,\mu\text{m}$  width were prepared on  $10 \times 10 \,\text{mm}^2$  LaAlO<sub>3</sub> substrates. UV lithography combined with an additional photoresist postbake and a new two-step Ar<sup>+</sup> ion etching process yielded steep and very smooth substrate steps of up to 560 nm height. The 200 nm thick YBCO films were deposited by DC-sputtering at a set of pressure and temperature values at Wuppertal, or by off-axis laserablation at the 'Forschungszentrum Jülich'. Simultaneous patterning of the YBCO microbridges and the gold contact pads improved the junction reproducibility.

An AFM analysis of the sputtered YBCO films at the 'Free University of Amsterdam' revealed a low, but highly temperature dependent, surface diffusion constant  $D_s \sim 10^{-14} - 10^{-13} \text{ cm}^2/\text{s}$ during film growth. This result is one to two orders of magnitude lower than the value derived for off-axis laserablation. It could be shown by TEM analysis at Jülich that the poor surface diffusion led to a high density of crystal defects and to a deep trench in the film near the lower edge of the substrate step, where one of the two grain boundaries is formed.

The current-voltage characteristics (IVC) of the low-temperature sputtered junctions were flux-flow-like, with a low  $T_c \leq 30$  K and a yield  $\leq 30$  %, independent of the film-thickness-to-stepheight ratio and other preparation parameters. In contrast, the IVCs of the laserablated junctions could be described well by the resistively-shunted junction model, with typical parameters  $T_c$ of 88 K, characteristic voltage  $I_c R_n$  of 2.1 mV at 4.2 K and 0.24 mV at 77 K, a yield  $\geq 90$  %, and a statistical spread at 4.2 K of as low as  $\sigma(J_c) = 16.8$  %,  $\sigma(R_n A) = 18.8$  % and  $\sigma(I_c R_n) =$ 7.4 %. The shape of the IVCs, the critical temperature, yield, reproducibility, microwave sensitivity and magnetic field modulation of the critical current were found to depend sensitively on the YBCO deposition process. It could be concluded from a comparison between laserablated and lowand high-temperature sputtered junctions that both their transport properties and microstructure improved with increasing surface diffusion.

The observed scaling law  $I_c R_n \propto J_c^p$  with  $p \approx 0.5$  and slightly non-linear IVCs at high voltages indicated that resonant tunneling through one localised state was the dominant quasiparticle transport mechanism in all investigated junctions. Metallic point contacts, which give rise to a sub-harmonic energy gap structure in the dI/dV characteristics, were observed in O<sub>2</sub>-deficient step-edge junctions. The measurements were analysed in the framework of an extended Octavio-Tinkham-Blonder-Klapwijk model, yielding a high energy gap  $\Delta = 30 - 33 \text{ meV}$  and  $\Delta/kT_c = 3.8 - 4.2$  in the superconducting electrodes adjacent to the barrier. The typical low  $I_c R_n \ll \Delta$  of HTS junctions is therefore, at least in this case, not due to a suppressed energy gap, but attributed to the barrier itself.

Since sputtered bicrystal junctions appeared to be much more sensitive to defects at the substrate grain boundary than laserablated bicrystal junctions,  $D_s$  has to be considered a key parameter to optimise any HTS grain boundary junction engineering. iv

# Inhaltsverzeichnis

# 1 Einleitung 2 Grenzflächeneffekte in Supraleitern

<b>2</b>	Gre	Grenzflächeneffekte in Supraleitern					
	2.1	Supraleiter					
		2.1.1	Grundlegende Eigenschaften von Supraleitern	4			
		2.1.2	$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ – ein Hochtemperatursupraleiter	5			
		2.1.3	Supraleitungsmechanismus und Symmetrie des Ordnungsparameters	7			
	2.2	Trans	portmechanismen an Supraleitergrenzflächen	9			
		2.2.1	Direktes und resonantes Tunneln	10			
		2.2.2	Proximity-Effekt und Andreevreflexion	13			
	2.3	Grundlegende Eigenschaften von Josephsonkontakten					
		2.3.1	Josephsoneffekte	15			
		2.3.2	RSJ-Modell	16			
		2.3.3	Strahlungsemission und Mikrowellenabsorption	18			
		2.3.4	Magnetfeldabhängigkeit des Josephsonstroms	19			
		2.3.5	Josephsonkontakte in $d_{x^2-y^2}$ -Wellen-Supraleitern	23			
	2.4	HTSL	-Josephsonkontakte	24			
		2.4.1	Typen von HTSL-Josephsonkontakten	25			
		2.4.2	Skalierungsverhalten	29			
		2.4.3	Anwendungen	30			
3	Her	stellur	ng von Korngrenzenkontakten	33			
	3.1	3.1 Präparation einer Substratstufe					
	3.1.1 Substratauswahl						
		3.1.2	Substratvorbehandlung	35			
		3.1.3	UV-Lithographie	36			
		3.1.4	$Ar^+$ -Ionenstrahlätzen	39			
		3.1.5	$Bikristallsubstrate-ein\ alternativer\ Weg\ zum\ Korngrenzenkontakt\ .$	44			
	3.2	ition und Strukturierung des $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Films	44				
		3.2.1	Filmdeposition durch Hochdruck sputtern und Laserablation	44			
		3.2.2	Randvergoldung im Lift-off-Prozess	46			
		3.2.3	Strukturierung der Mikrobrücken	48			
		3.2.4	O <sub>2</sub> -Temperung und Kontaktierung	50			
	3.3	Mikro	strukturanalyse	50			
		3.3.1	Theoretische Aspekte des Wachstums epitaktischer Schichten $\ . \ . \ .$	50			
		3.3.2	AFM-Oberflächen analyse epitaktischer YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-<math>\delta</math></sub> -Filme	52			
		3.3.3	Mikrostruktur des YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-<math>\delta</math></sub> -Films im Substratstufenbereich	55			

 $\mathbf{1}$ 

4	Eige	enschaf	ften der Korngrenzenkontakte	61		
	4.1	4.1 Messaufbau				
	4.2	Strom-Spannungs-Kennlinien				
		4.2.1	Tieftemperaturgesputterte Stufenkantenkontakte	65		
		4.2.2	Hochtemperaturgesputterte Stufenkantenkontakte	70		
		4.2.3	Laserablatierte Stufenkantenkontakte	71		
		4.2.4	Bikristallkontakte	72		
		4.2.5	Vergleich der <i>IU</i> -Kennlinien mit dem RSJ-Modell	74		
	4.3	Streuung und Korrelation charakteristischer Parameter				
		4.3.1	Charakteristische Parameter von Stufenkanten- und Bikristallkon-			
			takten	76		
		4.3.2	Parameterstreuung	79		
		4.3.3	Skalierungsverhalten und Temperaturabhängigkeit	82		
	4.4	Abhängigkeit von äußeren Parametern				
		4.4.1	Einfluss von Mikrowellenstrahlung auf die <i>IU</i> -Kennlinie	84		
		4.4.2	Einfluss eines äußeren Magnetfeldes auf den kritischen Strom $\ .\ .\ .$	85		
5	Tunnelspektroskopie an Stufenkantenkontakten					
	5.1	Punktkontakte in Stufenkantenkontakten				
		5.1.1	Typische $I(U)$ - und $dI/dU$ -Kennlinien	89		
		5.1.2	Erweiterung des OTBK-Modells für Punktkontakte	92		
		5.1.3	Datenauswertung mit dem erweiterten OTBK-Modell	95		
		5.1.4	Auswirkungen einer nachträglichen Sauerstoffbeladung	96		
	5.2	Hinwei	ise auf Phasenschlupfzentren	99		
		5.2.1	Spannungsperiodische Strukturen in der $dI(U)/dU$ -Kennlinie	99		
		5.2.2	Entstehung und Eigenschaften von Phasenschlupfzentren	100		
		5.2.3	Auswertung der $dI(U)/dU$ -Kennlinien	102		
6	Zusa	ammer	nfassung	105		
$\mathbf{A}$	Tab	ellen		109		
	A.1	Literat	turdaten für HTSL-Josephsonkontakte	109		
Lit	terat	urverz	eichnis	113		
Ał	obild	ungsve	erzeichnis	133		
Тэ	helle	_ nverze	sichnis	134		
<u>т</u> а						
Da	anksa	agung		135		

# Kapitel 1

## Einleitung

Im Jahre 1911, drei Jahre nach der ersten Heliumverflüssigung [1], stellte H.K. Onnes fest, dass der elektrische Widerstand von Quecksilber bei Unterschreiten einer kritischen Temperatur von etwa 4.2 K schlagartig um mindestens vier Größenordnungen fällt [2]. Erst 46 Jahre später erkannten J. Bardeen, L.N. Cooper und J.R. Schrieffer [3], dass es sich bei dieser in vielen Metallen und Legierungen zu beobachtenden *Supraleitung* um einen völlig neuartigen Festkörperzustand handelt, in dem zwischen je zwei Elektronen mit entgegengesetzt gleichem Impuls und Spin eine anziehende Wechselwirkung besteht, die durch Schwingungen des Kristallgitters (Phononen) vermittelt wird. Die Elektronenpaare (*Cooperpaare*) verhalten sich als Spin-0-Teilchen wie Bosonen und kondensieren alle in *denselben* quantenmechanischen Grundzustand. Da deshalb das gesamte Cooperpaarsystem durch *eine* Wellenfunktion beschrieben wird, treten *makroskopische Quanteneffekte* wie die *Flussquantisierung* und die *Josephsoneffekte* auf, die nicht nur für die Grundlagenforschung sehr interessant sind, sondern völlig neue und einzigartige elektronische Bauteile ermöglichen. Zu diesen Bauteilen gehören z.B. (vgl. Kap. 2.4.3)

- hochempfindliche Magnetometer (SQUID's),
- abstimmbare Hochfrequenzbauteile im GHz- und THz-Bereich,
- hochpräzise Spannungsnormale bis 10 V und
- eine ultraschnelle digitale Logikfamilie (RSFQ), die Taktfrequenzen oberhalb von 30 GHz ermöglicht.

Der gemeinsame, essentielle Bestandteil all dieser Bauteile sind Josephsonkontakte. Ein Josephsonkontakt (engl.: Josephson junction) besteht aus einer dünnen isolierenden oder normalleitenden Barriere, die infolge einer geringfügigen Überlappung der Cooperpaarwellenfunktionen der beiden angrenzenden Supraleiter eine schwach supraleitende Verbindung darstellt und an der die Josephsoneffekte [4] auftreten.

Obwohl für die Herstellung von Josephsonkontakten seit mehr als 15 Jahren die etablierte Nb/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Nb-Technologie [5] zur Verfügung steht, mit der bereits viele digitale Schaltungen mit bis zu 21000 Josephsonkontakten realisiert wurden [6, 7], ist der Weltmarktanteil der Supraleiterelektronik mit ~ 40 Millionen Dollar (1998)<sup>1</sup> noch verschwindend gering. Hauptursachen dafür sind die erforderliche kostenintensive Kühlung mit flüssigem Helium und der mit ihr verbundene logistische Aufwand.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Hochgerechnet aus der Angabe für das 1. Halbjahr 1998 in [8].

Eine entsprechende Euphorie breitete sich vor etwa 12 Jahren kurz nach der Entdeckung der ersten Hochtemperatursupraleiter (HTSL) mit einer kritischen Temperatur  $T_c \ge 90$  K aus. Die neuen Materialien<sup>2</sup> versprachen nicht nur eine wesentlich kostengünstigere Kühlung durch flüssigen Stickstoff (T=77 K) oder Kryogeneratoren, sondern stellten infolge ihrer mehr als 10 mal größeren Energielücke eine entsprechend höhere charakteristische Spannung von HTSL-Josephsonkontakten und damit eine deutliche Verbesserung supraleitender Bauteile in Aussicht.

Die höhere kritische Temperatur  $T_c \approx 90-135$  K der HTSL bedingt aber eine geringere Kohärenzlänge  $\xi_0 \approx 1 - 2$  nm (Niob:  $T_c = 9.2$  K,  $\xi_0 = 40$  nm), die ihre Transporteigenschaften sehr empfindlich gegenüber Mikrostrukturdefekten macht. Einerseits ermöglicht diese Materialeigenschaft erst die Herstellung neuartiger Josephsonkontakttypen, die eine Korngrenze als Josephsonkontakt nutzen (*Korngrenzenkontakte*). Andererseits erfordert die geringe Kohärenzlänge eine Kontrolle der angestrebten Barrierenstruktur des Josephsonkontaktes auf nahezu atomarer Skala, um die gewünschten Transporteigenschaften und vor allem die für komplexere Schaltungen erforderliche Parameterstreuung von deutlich weniger als 10 % zu erreichen. Es besteht daher großes Interesse an einer systematischen Optimierung der Präparationsprozesse für HTSL-Josephsonkontakte, zumal die Entwicklung kompakter, langlebiger Kryogeneratoren für die Kühlung von HTSL-Bauteilen in den letzten Jahren große Fortschritte gemacht hat.

Hier setzt die vorliegende Arbeit an, in der in Kooperation mit internationalen Forschungsgruppen<sup>3</sup> und dem Fachbereich Elektrotechnik der Universität Wuppertal systematisch der Zusammenhang zwischen Präparation, Mikrostruktur und Transporteigenschaften von YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Stufenkantenkontakten und z.T. auch YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Bikristallkontakten untersucht wird. Die Wahl fiel auf diese Korngrenzenkontakte, da angesichts der hohen Anforderungen an die Mikrostruktur der Barriere es als eine gute Idee erschien, zunächst intrinsische Materialeigenschaften auszunutzen<sup>4</sup>.

Schaut man sich die Präparationsprozesse verschiedener HTSL-Josephsonkontakttypen an (vgl. Tab. A.1 in Anhang A), dann fällt auf, dass bei Korngrenzenkontakten der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film fast ausschließlich durch Laserablation deponiert wird, während bei Rampenkontakten überwiegend Sputterverfahren zum Einsatz kommen. Die erste systematische Untersuchung des dadurch nahegelegten, aber bisher in der Literatur weitgehend unbeachteten Einflusses des Filmdepositionsverfahrens auf die Transporteigenschaften von Korngrenzenkontakten bildet einen Schwerpunkt dieser Arbeit. Weitere Schwerpunkte liegen auf der Entwicklung eines neuartigen Ionenätzverfahrens, das die Herstellung von Substratstufen mit extrem geringer Flankenrauhigkeit erlaubt und auf der theoretischen Analyse der in HTSL-Korngrenzenkontakten erstmals beobachteten Punktkontakte. Besonderes Augenmerk gilt ferner der Verbesserung der schlechten Reproduzierbarkeit anwendungsrelevanter Parameter, die der Hauptgrund dafür ist, dass derzeit RSFQ-Anwendungen von HTSL-Josephsonkontakten als unrealistisch gelten, obwohl langfristig gerade digitale Schaltungen für Telekommunikation und ultraschnelle Datenverarbeitung die besten Aussichten auf eine breite Markteinführung haben [8].

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> [9], Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10</sub> [10], Tl<sub>2</sub>Ba<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10</sub> [11].

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Institut für Schicht- und Ionentechnik (ISI) des Forschungszentrums Jülich, Mikrostrukturforschungsgruppe der Fakultät für Natur- und Sternenkunde der Freien Universität Amsterdam.

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>Die prinzipielle Richtigkeit dieser Idee zeigt sich – wenn auch in einer damals noch nicht vorhersehbaren, anderen Richtung – an den jüngsten Erfolgen von HTSL-Josephsonkontakttypen, die kein Fremdmaterial, sondern modifiziertes  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  als Barriere verwenden (vgl. Kap. 2.4.1).

Im Anschluss an diese Einleitung führt **Kapitel 2** in einige theoretische und anwendungsrelevante Grundlagen ein. Nach einer kurzen Behandlung charakteristischer Eigenschaften von Hochtemperatursupraleitern im Vergleich zu klassischen Supraleitern wird auf die für Josephsonkontakte wesentlichen Transportmechanismen an Supraleitergrenzflächen eingegangen. Es folgt ein kurzer theoretischer Abriss der wichtigsten Eigenschaften von Josephsonkontakten. Abschließend werden verschiedene HTSL-Josephsonkontakttypen vorgestellt, typübergreifende Merkmale aufgezeigt und Beispiele und charakteristische Daten für einige bereits erwähnte Anwendungen von Josephsonkontakten angegeben.

Kapitel 3 beschäftigt sich mit der Präparation und der Mikrostrukturanalyse der Korngrenzenkontakte. Bei der Präparation liegen die Schwerpunkte auf dem Vergleich mehrerer alternativer Verfahren für (1) das  $Ar^+$ -Ionenstrahlätzen, (2) die Deposition des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Films und (3) die Mikrostrukturierung der Korngrenzenkontakte. Nach einer kurzen Einführung in theoretische Aspekte des Wachstums epitaktischer Schichten werden Rasterelektronenmikroskop(REM)- und Rasterkraftmikroskop(AFM)-Aufnahmen der Probenoberfläche sowie Transmissionselektronenmikroskop(TEM)-Aufnahmen des Probenquerschnitts insbesondere im Hinblick auf die Oberflächendiffusion während des Filmwachstums ausgewertet.

Kapitel 4 widmet sich den Transporteigenschaften der präparierten Korngrenzenkontakte. Bei der Auswertung der Daten ist das verwendete Filmdepositionsverfahren die primäre Unterscheidungskategorie. Ausführlich werden die Strom-Spannungs(IU)-Kennlinien, die charakteristischen Parameter  $J_c$  (kritische Stromdichte),  $R_nA$  (flächennormierter Normalwiderstand),  $I_cR_n$  (charakteristische Spannung) und  $T_c$  sowie ihre Streuung und die Korrelationen zwischen ihnen behandelt. Ferner wird die Abhängigkeit der IU-Kennlinie bzw. des kritischen Stroms  $I_c$  von der Temperatur, der Mikrowelleneinstrahlung und einem äußeren Magnetfeld untersucht.

In **Kapitel 5** werden subharmonische und spannungsperiodische Strukturen in der dI(U)/dU-Kennlinie sauerstoffdefizienter Stufenkantenkontakte analysiert, die typisch für Punktkontakte bzw. Phasenschlupfzentren sind. Der Vorstellung der experimentellen Daten folgt jeweils eine kurze Darstellung der zugehörigen Theorie, eine Auswertung im Rahmen dieser Theorie, die u.a. Daten für die Energielücke und die mittlere freie Weglänge in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> liefert, und eine Untersuchung der Auswirkungen einer nachträglichen Sauerstoffbeladung.

Kapitel 6 fasst die wichtigsten Ergebnisse der vorliegenden Arbeit zusammen.

## Kapitel 2

## Grenzflächeneffekte in Supraleitern

Josephsonkontakte bilden sich an dünnen isolierenden oder normalleitenden Grenzschichten zwischen Supraleitern aus. Die Kenntnis der auftretenden Grenzflächeneffekte ist daher grundlegend für das Verständnis der Transporteigenschaften und der tunnelspektroskopischen Daten der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Josephsonkontakte.

Im Anschluss an eine kurze Diskussion der wichtigsten Eigenschaften von Supraleitern – insbesondere des Hochtemperatursupraleiters  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  – werden verschiedene Ladungstransportmechanismen behandelt, die in einer dünnen Grenzschicht zwischen zwei Supraleitern auftreten können. Die Josephsoneffekte und andere charakteristische Eigenschaften von Josephsonkontakten sind Thema des dritten Abschnitts. Der letzte Abschnitt beschäftigt sich mit den wichtigsten Typen von Josephsonkontakten in Hochtemperatursupraleitern. Ihre charakteristische Parameter und technologische Aspekte werden im Hinblick auf potentielle Anwendungen diskutiert.

#### 2.1 Supraleiter

#### 2.1.1 Grundlegende Eigenschaften von Supraleitern

Im Jahre 1911, drei Jahre nach der ersten Heliumverflüssigung [1], wurde von H.K. Onnes der supraleitende Zustand entdeckt [2]. Dieser damals völlig neuartige Festkörperzustand, in den Supraleiter bei Unterschreiten ihrer kritischen Temperatur  $T_c$  übergehen, zeichnet sich nicht nur durch widerstandslosen DC-Stromfluss, sondern auch durch einen perfekten Diamagnetismus (Meißner-Ochsenfeld-Effekt [12]) sowie Anomalien der elektronischen Wärmekapazität und der thermischen Leitfähigkeit aus. Bis 1950 wurden mehrere erfolgreiche phänomenologische Theorien entwickelt [13, 14, 15], aber die experimentellen Daten reichten für ein mikroskopisches Verständnis der Supraleitung nicht aus. Erst die Entdeckung des Isotopeneffektes [16] wies auf die entscheidende Wechselwirkung zwischen Elektronen und Kristallgitter hin und bereitete den Weg für die von Bardeen, Cooper und Schrieffer (BCS) im Jahre 1957 vorgestellte mikroskopische Theorie [3].

Im supraleitenden Zustand bilden sich mit abnehmender Temperatur immer mehr Cooperpaare [17], die aus zwei Elektronen mit entgegengesetzt gleichem Impuls und Spin bestehen und als eigenständige Bosonen zu betrachten sind. Da das gesamte Cooperpaar-System durch *eine* Wellenfunktion  $\Psi_s$  beschrieben wird, treten makroskopische Quanteneffekte wie die Flussquantisierung [18] und die Josephsoneffekte (vgl. Kap. 2.3.1) auf.

5

Wichtige Kenngrößen des supraleitenden Zustands sind neben der kritischen Temperatur  $T_c$  die Energielücke  $\Delta$ , die Kohärenzlänge  $\xi_0$ , die London-Eindringtiefe  $\lambda_L$  sowie die kritische Stromdichte  $J_c$  und das kritische Magnetfeld  $B_c$ . Während des Phasenübergangs vom normalleitenden in den supraleitenden Zustand ändert sich gemäß der BCS-Theorie die Zustandsdichteverteilung des Elektronensystems. Es entsteht symmetrisch um die Fermienergie  $E_F$  eine *Energielücke* der Ausdehnung 2 $\Delta$ , in der keine Elektronenzustände existieren. Als Ordnungsparameter  $\Delta(\vec{r})$  des supraleitenden Zustands kann die Wellenfunktion eines Cooperpaars angesehen werden. In isotropen Supraleitern ist der Ordnungsparameter koordinatenunabhängig und fällt mit der Energielücke  $\Delta$  zusammen [19]. Die Kohärenzlänge  $\xi_0$  gibt die minimale Längenskala an, auf der sich der Ordnungsparameter ändern kann und entspricht etwa dem Abstand der beiden Elektronen, die ein Cooperpaar bilden [19]. Nur bis zur London-Eindringtiefe  $\lambda_L$  können äußere Magnetfelder in einen Supraleiter eindringen. Abschirmströme in dieser äußeren Schicht halten das Innere des Supraleiters feldfrei (Meißner-Ochsenfeld-Effekt), solange die kinetische Energie der Cooperpaare kleiner ist als ihre Paarbindungsenergie. Folglich existiert eine kritische Stromdichte  $J_c$ , die wiederum ein kritisches Magnetfeld  $B_c$  impliziert. Gilt  $\xi_0 > \sqrt{2} \lambda_L$ , dann wird bei Überschreiten von  $B_c$  der Supraleiter normalleitend (*Typ-I-Supraleiter*). Im Fall  $\xi_0 < \sqrt{2} \lambda_L$  liegt ein Typ-II-Supraleiter vor, der zunächst bei  $B_{c1}$  in einen Mischzustand (Shubnikov-Phase) übergeht, in dem supraleitende Bereiche und normalleitende Bereiche (die Kerne der eingedrungenen Flussschläuche) koexistieren, und schließlich bei  $B_{c2}$  vollständig normalleitend wird [20].

Bis Mitte der 90er Jahre konzentrierte sich die Forschung hauptsächlich auf elementare Supraleiter (Hg, Pb, Nb) und Niob-Verbindungen mit A15-Struktur (Nb<sub>3</sub>Sn, Nb<sub>3</sub>Ge) und B1-Struktur (z.B. NbN), die im folgenden als *klassische Supraleiter* zusammengefasst werden. Eingeleitet durch die Entdeckung der *oxidischen Hochtemperatursupraleiter* (HTSL) durch Bednorz und Müller im Jahre 1986 [21] konnte das bis dahin erreichbare maximale  $T_c$  von 23.2 K (Nb<sub>3</sub>Ge) [20, 22] innerhalb von sieben Jahren auf mehr als 130 K (HgBa<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>8- $\delta$ </sub>) [23] gesteigert werden.

#### 2.1.2 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ – ein Hochtemperatursupraleiter

Im Gegensatz zu den (nahezu) isotropen klassischen Supraleitern zeichnet sich die Klasse der oxidischen Hochtemperatursupraleiter (HTSL) durch eine quasi-zweidimensionale Kristallstruktur aus, die zu einer ausgeprägten Anisotropie der Transporteigenschaften führt.

Das 1987 entdeckte YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> [9] mit einer kritischen Temperatur  $T_c \approx 93$  K ist der am intensivsten erforschte Vertreter dieser Materialklasse. Gegenüber anderen Verbindungen mit höherer Sprungtemperatur<sup>1</sup> lässt es sich phasenrein und in hoher Kristallqualität herstellen, was für die Grundlagenforschung und die meisten Anwendungen von Bedeutung ist. Abb. 2.1a zeigt die Kristallstruktur von YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> (Gitterparameter: a = 0.38227 nm, b = 0.38872 nm, c = 1.16802 nm, für  $\delta$  = 0.07 [25]). Der Ladungstransport geschieht hauptsächlich innerhalb der CuO<sub>2</sub>-Ebenen. Während die Sauerstoffatome in den CuO<sub>2</sub>-Ebenen fest gebunden sind, lassen sich Sauerstoffgehalt und -ordnung der in b-Richtung verlaufenden CuO-Ketten durch Temperatur und O<sub>2</sub>-Partialdruck beeinflussen. Kritische Temperatur und elektronische Eigenschaften des Materials hängen wesentlich

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10</sub> ( $T_c \leq 115 \text{ K}$ ) [10], Tl<sub>2</sub>Ba<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10</sub> ( $T_c \leq 125 \text{ K}$ ) [11], HgBa<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>8- $\delta$ </sub> ( $T_c \approx 135 \text{ K}$ ) [23], Übersichtsartikel: [24]



Abb. 2.1:

a) (links): Kristallstruktur von YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> (• = Kupfer, • = Sauerstoff) [26]. b) (rechts):  $\delta$ -Phasendiagramm von YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> [27]. AF = Antiferromagnet, INS = Isolator, SC = Supraleiter, tet.  $\rightarrow$  orth. = Übergang von der tetragonalen zur orthorhombischen Phase.

von der O<sub>2</sub>-Defizienz  $\delta$  der CuO-Ketten ab (vgl. Abb. 2.1b). Neuere Messungen zeigen, dass die  $T_c(\delta)$ -Kurve bei  $\delta \approx 0.1$  ein Maximum durchläuft und bis  $\delta = 0$  wieder um etwa 2 K fällt [28, 29]. Das Zwei-Energielücken-Modell von Kresin und Wolf [30, 31, 32] beschreibt CuO<sub>2</sub>-Ebenen und CuO-Ketten als zwei unabhängige elektronische Subsysteme, denen eine große bzw. eine kleine Energielücke ( $\Delta_{Ebene} \approx 24 - 33 \text{ meV}, \Delta_{Kette} \leq 11 \text{ meV},$ [32, 33, 34, 35, 36]) zuzuordnen ist.

In Tabelle 2.1 werden charakteristische Materialeigenschaften von  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  mit denen des klassischen Supraleiters Niob verglichen. Die kritische Temperatur der oxidischen HTSL steigt für  $n \leq 3$  mit der Anzahl n der CuO<sub>2</sub>-Ebenen pro Einheitszelle [26]. Gemäß den BCS-Beziehungen  $\Delta(0) \sim kT_c$  und  $\xi_0 = \hbar v_F / \pi \Delta(0)$  impliziert ein großes  $T_c$  eine kleine Kohärenzlänge  $\xi_0$ . Da in den HTSL die Kohärenzlänge mit den Abmessungen der Kristalleinheitszelle vergleichbar ist, bestimmen bereits atomare Defekte und insbesondere Korngrenzen die Transporteigenschaften dieser Materialien. In klassischen Supraleitern spielen diese Störungen aufgrund der größeren Kohärenzlänge kaum eine Rolle. Die Ladungsträgerkonzentration ist in den HTSL mit  $\approx 10^{-22} - 10^{-21}$  cm<sup>-3</sup> [30] um knapp zwei Größenordnungen kleiner als in klassischen Supraleitern. Daraus resultieren geringere Abschirmströme und eine größere Magnetfeldeindringtiefe  $\lambda_L$ . Mit  $\xi_0 \ll \lambda_L$ gehören die HTSL zu den extremen Typ-II-Supraleitern. Fermigeschwindigkeit  $v_F$  und Fermienergie  $E_F$  sind um etwa eine bzw. zwei Größenordnungen kleiner als in klassischen Supraleitern, während die Energielücke  $\Delta(0)$  um mehr als eine Größenordnung größer ist. Der Quotient  $\Delta(0)/E_F$  gibt an, welcher Teil der Elektronenzustände an der Cooperpaarbildung teilnimmt. Während in klassischem Supraleitern nur Zustände direkt an der Fermi-Kante in Frage kommen  $(\Delta(0)/E_F \approx 10^{-4})$ , bilden in den HTSL auch weiter von

Physikalische Größe		YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> C	Niob			
kritische Temperatur	[K]		$\approx 93$	[9]	9.2	[20]
Kohärenzlänge $\xi_0$	[nm]	$\ _{ab}$	1.2 - 1.6	[37,  38]	40	[38]
		$\perp_{ab}$	0.15 - 0.3	[37,  38]		
London-Eindringtiefe $\lambda_L(0)$	[nm]	$\ _{ab}$	$\approx 140$	[39, 40]	35	[38]
		$\perp_{ab}$	600-800	[38, 40]		
Energielücke $\Delta(0)$	$[\mathrm{meV}]$		24 - 33	[33, 34]	1.55	[41]
Fermigeschwindigkeit $\mathbf{v}_F$	[m/s]		$pprox 10^5$	[34, 38]	$2.9 \times 10^{5}$	[42]
$\Delta(0)/E_F$			$\approx 10^{-1}$	[19]	$\approx 10^{-4}$	[19]
Mittlere freie Weglänge l	[nm]		10-20	[34, 38]	$27-216^{1}$	[43]

Tab. 2.1: Materialparameter von  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  und Niob

 $\|_{ab}$  = parallel zur a,<br/>b - Ebene,  $\perp_{ab}$  = senkrecht zur a,<br/>b - Ebene

<sup>1)</sup> Die mittlere freie Weglänge in Niob ist proportional zum Widerstandsverhältnis  $RRR = \frac{R(300K)}{R(4.2K)}$ . Der angegebene Wert bezieht sich auf gesputterte Niobfilme, die typischerweise ein RRR = 5 - 40 haben. Für hochreines *Bulk*-Niob gilt RRR = 300 - 2000. (Als *Bulk* bezeichnet man *inneres* Material, für das Oberflächeneffekte keine Rolle spielen).

der Fermi-Kante entfernte Zustände Cooperpaare  $(\Delta(0)/E_F \approx 10^{-1})$ . Die größere Impulsunschärfe führt über die Heisenbergsche Unschärferelation zu den für die HTSL typischen sehr kleinen Kohärenzlängen. Darüberhinaus impliziert ein großer Quotient  $\Delta(0)/E_F$  einen großen Temperaturbereich um  $T_c$ , in dem Fluktuationen des Ordnungsparameters auftreten können [30]. In den HTSL ist die (temperaturabhängige) mittlere freie Weglänge zwar klein, aber deutlich größer als die Kohärenzlänge  $\xi_0$ , sodass der reine Grenzfall  $(l \gg \xi_0)$ gilt.

#### 2.1.3 Supraleitungsmechanismus und Symmetrie des Ordnungsparameters

In klassischen Supraleitern kommt die anziehende Wechselwirkung zwischen den Elektronen eines Cooperpaars durch Austausch von virtuellen Phononen zustande. Der Nachweis der Elektron-Phonon-Kopplung gelang durch den Vergleich tunnel- und neutronenspektroskopischer Daten. Aus tunnelspektroskopischen Daten lässt sich die Eliashberg-Funktion  $g(\Omega) = \alpha^2(\Omega)F(\Omega)$  [44] rekonstruieren, während unabhängig davon aus der inelastischen Neutronenstreuung die Phononenzustandsdichte  $F(\Omega)$  bestimmt werden kann. Die Funktion  $\alpha^2(\Omega)$  beschreibt die Elektron-Phonon-Wechselwirkung und hängt nur schwach von der Phononfrequenz  $\Omega$  ab. Treten in  $g(\Omega)$  Peaks auf, die nicht in  $F(\Omega)$  zu finden sind, so weist das auf die Existenz einer nicht-phononischen Wechselwirkung hin [19].

Die extrem kurze Kohärenzlänge  $\xi_0$  und die schnelle chemische Oberflächendegradation, die bei oxidischen HTSL auftritt, behindern die Tunnelspektroskopie dieser Materialien so, dass mit obiger Methode bislang nur für Vertreter des elektronendotier-



#### Abb. 2.2:

Verschiedene denkbare Symmetrien des Ordnungsparameters in HTSL: (a) isotrope s-Welle, (b)  $d_{x^2-y^2}$ -Welle, (c) anisotrope s-Welle, (d) Mischung aus s- und  $d_{x^2-y^2}$ -Welle. Die Vorzeichen geben die Phase  $\varphi$  des Ordnungsparameters an  $(+:\varphi = 0, \varphi)$ 

 $-: \varphi = \pi).$ 

ten Nd(Ce,Pr)CuO-Systems (z.B. Nd<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4-y</sub>) klare Hinweise auf eine phononendominierte Wechselwirkung gefunden werden konnten [19]. Um Hinweise auf den Supraleitungsmechanismus in weiteren HTSL zu bekommen, wurde in den letzten Jahren verstärkt die Symmetrie des Ordnungsparameters untersucht. Die Elektron-Phonon-Kopplung (EPK) und der zur Zeit meistdiskutierte alternative Wechselwirkungsmechanismus auf Basis antiferromagnetischer Spinfluktuationen (AFS) [45] schienen unterschiedliche Symmetrien des Ordnungsparameters zu bevorzugen: eine s-Wellensymmetrie (EPK) bzw. eine  $d_{x^2-y^2}$ -Wellensymmetrie (AFS) [30]. Seit aber klar ist, dass EPK auch zu einer  $d_{x^2-y^2}$ -Wellensymmetrie führen kann, hat die Ordnungsparameterdiskussion an Bedeutung verloren, weil sich mit ihr keine verlässliche Aussage mehr über den zugrundeliegenden Supraleitungsmechanismus treffen lässt.

Da die Größe der Energielücke und die Phase des Ordnungsparameters aber wesentlichen Einfluss auf das Verhalten supraleitender Bauteile und insbesondere auf Josephsonkontakte haben [46, 47], ist die Frage nach der Symmetrie des Ordnungsparameters nicht nur von grundlagentheoretischem Interesse. Daher werden verschiedene denkbare Symmetrien des Ordnungsparameters (vgl. Abb. 2.2) im folgenden kurz diskutiert.

#### Isotrope s-Wellensymmetrie

Winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie (ARPES) weist klar auf eine Anisotropie des Ordnungsparameters in den HTSL hin [48, 49, 50] und schließt damit eine isotrope s-Wellensymmetrie, wie sie in klassischen Supraleitern vorliegt, aus. Die ARPES-Experimente können aber, wie auch Untersuchungen der Temperaturabhängigkeit der Londonschen Eindringtiefe [51] und des Oberflächenwiderstands [52], nicht eindeutig zwischen stark anisotroper s-Wellensymmetrie und  $d_{x^2-y^2}$ -Wellensymmetrie trennen, weil sie im Gegensatz zu Josephsonexperimenten keine Information über einen Vorzeichenwechsel des Ordnungsparameters liefern.

#### $\mathbf{d}_{x^2-y^2}$ -Wellensymmetrie

Trikristall-SQUID-Experimente [53, 54] und die Mehrzahl anderer Josephsonexperimente [55, 56, 57, 58] lassen sich durch eine  $d_{x^2-y^2}$ -Wellensymmetrie erklären, wenn man SIS-artige Josephsonkontakte annimmt [59, 60] (vgl. Kap. 2.2.1 und 2.3.5). Der Barrierentyp der verwendeten Josephsonkontakte ist aber bislang nicht geklärt. Gegen eine reine  $d_{x^2-y^2}$ -Wellensymmetrie sprechen

- das hohe  $T_c$  der HTSL, das mit einem AFS-Mechanismus nicht vereinbar erscheint [61, 62, 63],
- die Beobachtung von Josephsonströmen in c-Richtung [64, 65] und
- ein im Widerspruch zu den oben erwähnten Josephsonexperimenten stehendes weiteres Josephsonexperiment [66].

#### Anisotrope s-Wellensymmetrie

Oxidische HTSL enthalten verschiedene magnetische Streuzentren, die unabhängig vom Supraleitungsmechanismus zur Cooperpaarbrechung beitragen und dadurch die Energielücke in bestimmten Kristallrichtungen reduzieren bzw. verschwinden lassen können (gapless superconductivity) [67]. Eine solche anisotrope s-Wellensymmetrie ist zumindest qualitativ verträglich mit allen oben genannten Experimenten. Die zur Erklärung der Trikristallexperimente notwendige Gegenwart von magnetischen Streuzentren in der Barriere der verwendeten Josephsonkontakte bleibt nachzuprüfen. Das Konzept der magnetischen Streuzentren liefert außerdem Erklärungsansätze für das unterschiedliche  $T_c$  der HTSL [68] und die Tieftemperaturanomalie des kritischen Magnetfelds  $B_{c2}$  [67].

#### Mischung von s- und $d_{x^2-y^2}$ -Wellensymmetrie

In der in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> vorliegenden orthorhombischen Symmetrie des Kristallgitters ist eine Mischung von s- und d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub>-Wellen-Komponente möglich [69], mit der eine konsistente Erklärung aller Josephsonexperimente denkbar ist [70]. Das Mischungsverhältnis der beiden Komponenten hängt von der Temperatur, der Dotierung und dem Abstand von den Supraleitergrenzflächen ab [70, 71, 72, 73].

Die Symmetrie des Ordnungsparameters ist für die meisten oxidischen HTSL bisher nicht geklärt. Angesichts der fundamentalen Probleme einer reinen  $d_{x^2-y^2}$ -Wellensymmetrie sind zur Zeit eine anisotrope s-Wellensymmetrie und eine Mischung aus s- und  $d_{x^2-y^2}$ -Symmetrie die aussichtsreichsten Modellvorstellungen<sup>2</sup>.

#### 2.2 Transportmechanismen an Supraleitergrenzflächen

Für den Ladungstransport zwischen zwei gleichartigen Supraleitern (S), die durch eine dünne Barrierenschicht getrennt sind, kommen in Abhängigkeit vom Barrierentyp verschiedene Mechanismen in Frage. Der Barrierentyp ((I) = Isolator, (Sm) = Halbleiter, (N) = Normalleiter) bestimmt daher wesentlich die Transporteigenschaften von Josephsonkontakten.

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Trotzdem wird derzeit noch weitläufig von einer  $d_{x^2-y^2}$ -Wellensymmetrie in HTSL ausgegangen.

#### 2.2.1 Direktes und resonantes Tunneln

Durch eine dünne isolierende Barriere in einem SIS-Kontakt können Elektronen nach den Regeln der Quantenmechanik hindurchtunneln. Der Tunnelstrom  $I_0$  hängt von der Elektronenzustandsdichte in den supraleitenden Elektroden  $N_s(E)$  und dem Transmissionskoeffizienten  $|T_b|^2$  der Barriere ab [74]:

$$I_0(U) = \int_{-\infty}^{+\infty} G_n N_s(E) N_s(E + eU) (F(E) - F(E + eU)) dE$$
(2.1)

$$G_n = \frac{1}{R_n} \propto |T_b|^2, \qquad N_s = N_n(0) \frac{|E|}{\sqrt{E^2 - \Delta^2}} \,^3, \qquad F(E) = \frac{1}{e^{\frac{E}{kT}} + 1}$$

Dabei bezeichnet  $G_n$  die Leitfähigkeit der Barriere und  $N_n(0)$  die Zustandsdichte an der Fermikante, wenn die Elektroden im normalleitenden Zustand sind, E die Energie relativ zur Fermienergie  $E_F$ ,  $\Delta$  die Energielücke, U die anliegende Spannung und F(E) die Fermiverteilung. Ist das Tunnelmatrixelement  $T_b$  hinreichend groß, und damit die Barrierendicke d nicht wesentlich größer als die Kohärenzlänge  $\xi_0$  der angrenzenden Supraleiter, dann tritt auch ein Cooperpaar-Tunnelstrom

$$I_s = I_c \sin(\varphi), \qquad I_c(T) = \frac{\pi \Delta(T)}{2eR_n} \tanh \frac{\Delta(T)}{2kT}$$
(2.2)

auf [4, 74, 75, 76] (vgl. Kap. 2.3.1). Hier bezeichnet  $\varphi$  die Phasendifferenz zwischen beiden Supraleitern, k die Boltzmann-Konstante und T die Temperatur. Über die Proportionalität  $I_c \propto 1/R_n \propto |T_b|^2$  geht wiederum der Transmissionskoeffizient  $|T_b|^2$  ein, für den im Falle einer Rechteckbarriere folgende Beziehung gilt [74]:

$$T_b \approx e^{-2\kappa d}, \qquad \kappa = \sqrt{\frac{2m\phi}{\hbar^2}}$$
 (2.3)

Dabei bezeichnet d die Barrierendicke,  $\phi$  die Barrierenhöhe relativ zu  $E_F$  und m die effektive Elektronenmasse. Eine typische Tunnelkennlinie eines SIS-Kontaktes ist in Abb. 2.3 dargestellt.

Reale isolierende Barrieren weisen zahlreiche Defekte auf, die lokalisierte Zustände in der Barriere zur Folge haben oder zur Ausbildung von Kanälen mit geringerer Barrierenhöhe führen können [77] (vgl. Abb. 2.4). Lokalisierte Zustände eröffnen über das direkte Tunneln hinaus folgende weiteren Quasiteilchen-Tunnelkanäle:

- elastisches (resonantes) Tunneln über einen oder mehrere lokalisierte Zustände. Die Tunnelwahrscheinlichkeit wird maximal für eine äquidistante Anordnung der lokalisierten Zustände.
- inelastisches (hauptsächlich photonenunterstütztes) Tunneln über einen oder mehrere lokalisierte Zustände. Im Gegensatz zum elastischen Tunneln gewinnt oder verliert das Quasiteilchen Energie während des Tunnelprozesses (z.B. durch Wechselwirkung mit einem Photon).

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>BCS-Näherung für schwach koppelnde Supraleiter





Mit steigender Dichte  $n_L$  der lokalisierten Zustände geht das Barrierenmaterial vom idealen Isolator in einen ungeordneten Halbleiter über. In intrinsischen und künstlichen Barrieren oxidischer HTSL wird  $n_L$  als räumlich und energetisch homogen angenommen, erreicht mit  $n_L \leq 10^{21}$  cm<sup>-3</sup> nahezu die Quasiteilchendichte  $n_e \sim 10^{21}$  cm<sup>-3</sup> und ist um mehrere Größenordnungen größer als in typischen Oxidbarrieren klassischer Supraleiter [77]. Daher trägt das Tunneln über lokalisierte Zustände in den HTSL wesentlich zum Quasiteilchentransport über die Barriere bei. Andererseits begrenzt die extrem kurze Kohärenzlänge der HTSL die Barrierendicke supraleitender SIS-Kontakte auf wenige Nanometer, sodass nur Tunnelprozesse über wenige lokalisierte Zustände in Frage kom-



Abb. 2.4:

Schematische Darstellung des Potentialverlaufs  $E_c(\vec{r})$  (= Unterkante des Leitungsbandes) einer realen Tunnelbarriere [77, 78]. Typische Energieabstände zur Fermienergie  $E_F$  liegen im Bereich  $(E_c - E_F) \approx 1$  eV für den defektfreien Kristall,  $(E_c^* - E_F) \approx 0.1 - 0.2$  eV für Kanäle mit geringerer Barrierenhöhe und  $(\epsilon_I - E_F) \geq 5$  meV für die als Löcher dargestellten Tunnelkanäle über lokalisierte Zustände.



Abb. 2.5:

Beiträge resonanter Tunnelprozesse zur Leitfähigkeit G in Abhängigkeit von der Barrierendicke d [80].  $G_0$ : direktes Tunneln,  $G_1$  ( $G_2$ ): resonantes Tunneln über einen (zwei) lokalisierte Zustände. GBJ = Korngrenzenkontakt, ramp-edge junction = Rampenkontakt, vgl. Kap. 2.4.1)

men [79, 80]. Bei tiefen Temperaturen dominieren Tunnelprozesse über 1-2 lokalisierte Zustände. Für den Tunnelstrom gilt in diesem Fall [81, 82]:

$$I = [\langle G_1 \rangle + \langle G_2(T,0) \rangle + \langle G_2(0,U) \rangle] \cdot U$$

$$\langle G_1 \rangle \propto e^{-d/a}$$

$$\langle G_2(T,0) \rangle \propto T^{4/3} e^{-2d/3a}, \quad eU \ll kT$$

$$\langle G_2(0,U) \rangle \propto U^{4/3} e^{-2d/3a}, \quad eU \gg kT$$
(2.4)

Der Parameter *a* bezeichnet hier den effektiven Radius der lokalisierten Zustände. Der temperatur- und spannungsunabhängige Anteil  $\langle G_1 \rangle$  der Leitfähigkeit enthält die Beiträge von elastischem und inelastischem Tunneln über *einen* lokalisierten Zustand, während  $\langle G_2(T,0) \rangle$  und  $\langle G_2(0,U) \rangle$  sich auf Tunnelprozesse über *zwei* lokalisierte Zustände beziehen. In Abb. 2.5 sind die Beiträge von  $G_0$  (direktes Tunneln) sowie  $G_1$  und  $G_2$  vergleichend in Abhängigkeit der Barrierendicke *d* dargestellt. Mit zunehmender Temperatur und Barrierendicke nimmt der Anteil von Tunnelprozessen über n > 2 lokalisierte Zustände zu [82, 83].

Resonantes Tunneln von Cooperpaaren wird durch die Coulomb-Abstoßung der beiden Elektronen in der Regel weitgehend unterbunden. Wenn die Dichte der lokalisierten Zustände in der Barriere aber so gering ist, dass die Wechselwirkung von Elektronen in benachbarten Zuständen vernachlässigbar ist, kann resonantes Cooperpaartunneln über einen lokalisierten Zustand sogar zum dominierenden Cooperpaar-Transportmechanismus werden [84].



Abb. 2.6: Qualitativer Verlauf des Ordnungsparameters  $\Delta(\vec{r})$  an einer SN-Grenzfläche. Die Ausprägung der Unstetigkeit bei x = 0hängt vom Grenzflächenwiderstand  $R_b$  ab.

#### 2.2.2 Proximity-Effekt und Andreevreflexion

In metallischen, nicht supraleitfähigen Materialien kann durch einen direkt angrenzenden Supraleiter ein supraleitender Zustand in einer dünnen Schicht nahe der SN-Grenzfläche induziert werden, der alle charakteristischen Eigenschaften (vgl. Kap. 2.1.1) wie z.B. eine induzierte Energielücke  $\Delta_n$  aufweist. Während Cooperpaare aus dem Supraleiter ein Stück weit in den Normalleiter eindringen und so diesen *Proximity-Effekt* verursachen, diffundieren Elektronen aus dem Normalleiter in den Supraleiter und erniedrigen den Ordnungsparameter nahe der SN-Grenzfläche (vgl. Abb. 2.6). Der Ordnungsparameter fällt in der N-Schicht exponentiell ab. Die charakteristische Länge des Abfalls ist gegeben durch die im Normalleiter induzierte Kohärenzlänge  $\xi_n$ , für die im reinen Grenzfall (*clean limit*)  $l \gg \xi_n$  (l = mittlere freie Weglänge in N) und im unreinen Grenzfall (*dirty limit*)  $l \ll \xi_n$ folgende Gesetze gelten [85]:

$$\xi_n = \frac{\hbar v_F}{2\pi kT} \qquad l \gg \xi_n \qquad \text{(clean limit)} \qquad (2.5)$$

$$\xi_n = \sqrt{\frac{\hbar D_n}{2\pi kT}} \qquad l \ll \xi_n \qquad (\text{dirty limit})$$
 (2.6)

Dabei bezeichnet  $v_F$  die Fermigeschwindigkeit und  $D_n = \frac{1}{3}v_F l$  die Diffusionskonstante im Normalleiter. Handelt es sich bei der N-Schicht um einen Supraleiter im normalleitenden Zustand mit einer kritischen Temperatur  $T_{cn}$ , dann ist in obigen Gleichungen T durch  $(T - T_{cn})$  zu ersetzen.

Der Suprastrom über einen SNS-Kontakt im *dirty limit* wird durch die mikroskopische Proximity-Effekt-Theorie von Likharev [86], Kupriyanov und Lukichev [87] beschrieben, die nur in einigen Grenzfällen analytische Ausdrücke liefert. Für den Grenzfall  $L \gg \xi_n$ (L = Dicke der N-Schicht) gilt [88]:

$$I_s = I_c \sin(\varphi) \tag{2.7}$$

$$I_{c}(T,L) \cong \frac{4}{\pi e R_{n}} \frac{|\Delta_{\infty}(T)|^{2}}{kT_{c}} \frac{L}{\xi_{n}(T)} e^{-L/\xi_{n}(T)}, \qquad (0.3 T_{c} < T < T_{c})$$
$$I_{c}(L) \cong 29 \frac{\Delta_{\infty}(0)}{e R_{n}} \left(\frac{\xi_{n}(T_{c})}{L}\right)^{2}, \qquad (T \le 0.05 T_{c}; L \ge 6 \xi_{n}(T_{c}))$$

Dabei bezeichnet e die Elementarladung,  $R_n$  den normalleitenden Widerstand der N-Schicht der sowohl spannungs- als auch temperaturabhängig sein kann und  $\Delta_{\infty}$  die Energielücke des Supraleiters weit entfernt von der SN-Grenzfläche. Zumindest für Temperaturen nahe 77 K erfüllen HTSL-SNS-Kontakte die Voraussetzungen  $l \ll \xi_n$  (dirty limit) und  $L \gg \xi_n$  der Gleichungen (2.7) hinreichend gut, da die N-Schicht in der Regel defektreich und die Kohärenzlänge klein ist [88].

Bisher wurde der Einfluss eines Grenzflächenwiderstandes  $R_b$  an der SN-Grenzflächen vernachlässigt, der aufgrund der kurzen Kohärenzlänge und der Oberflächendegradation der HTSL häufig in Form einer (isolierenden) Barriere in nominellen HTSL-SNS-Kontakten auftritt [88]. Bei signifikantem  $R_b$  liegt eher eine SINIS-Struktur vor, in deren Isolatorschichten der Ordnungsparameter exponentiell (nahezu unstetig) abfällt. Dadurch ist in der N-Schicht der Ordnungsparameter und damit der Suprastrom deutlich erniedrigt. Mit dem Grenzflächenparameter [89]

$$\gamma_b = \frac{R_b}{\rho_n \xi_n(T_c)} \qquad l \ll \xi_n \tag{2.8}$$

in den außer dem Grenzflächenwiderstand noch die induzierte Kohärenzlänge  $\xi_n$  und der spezifische Widerstand  $\rho_n$  der N-Schicht eingehen, erhält man folgende Proportionalitäten für den kritischen Strom  $I_c$  und den normalleitenden Widerstand  $R_n$  einer SINIS-Struktur [88]:

$$I_c \propto \frac{1}{\gamma_b^2}, \qquad R_n \propto \gamma_b$$
 (2.9)

Trotz geändertem Absolutwert gilt weiterhin in guter Näherung die in Gleichung (2.7) für den Temperaturbereich  $0.3 T_c < T < T_c$  angegebene *T*- und *L*-Abhängigkeit des kritischen Stroms [88]. Da die zitierte mikroskopische Theorie auf der BCS-Theorie basiert, sollten die Vorhersagen (wie auch im Falle anderer BCS-basierter Theorien) für YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> zumindest in bezug auf das Skalierungsverhalten der Größen richtig sein. Quantitative Abweichungen sind möglich, da die BCS-Theorie nur eingeschränkt auf oxidische HTSL anwendbar ist (vgl. Kap. 2.1.3).

Die Andreevreflexion ist ein spezieller Quasiteilchenstreuprozess, der an SN-Grenzflächen auftritt (vgl. Abb. 2.7). Ein Elektron mit einer Energie  $-\Delta_s < E < -\Delta_s + eU$ , das aus der N-Schicht kommend auf die rechte SN-Grenzfläche trifft, kann für  $0 < eU < 2\Delta_s$ nicht direkt in die S-Schicht eindringen, da im Energielückenbereich  $|E| < \Delta_s$  des Supraleiters keine freien Elektronenzustände existieren. Es kann aber mit einem zweiten Elektron aus der S-Schicht ein Cooperpaar bilden. Die Energieerhaltung bestimmt die Energie des zweiten Elektrons zu -E. Aus der Impulserhaltung folgt, dass sich das entstandene Loch mit der Gruppengeschwindigkeit  $v_{g,Loch} = -v_{g,Elektron}$  in die N-Schicht zurückbewegt. Analog wird ein Loch an SN-Grenzflächen unter Vernichtung eines Cooperpaares als Elektron reflektiert. Elektronen und Löcher nehmen beim Durchlaufen der Potentialdifferenz U jeweils die Energie eU auf. Die Anzahl der Andreevreflexionen eines Quasiteilchens in einem SNS-Kontakt, die notwendig ist um seine Energie über  $\Delta_s$  anwachsen zu lassen und damit seinen direkten Eintritt in den Supraleiter zu ermöglichen, hängt daher von seiner Anfangsenergie E und der Potentialdifferenz U ab. Die Wahrscheinlichkeit für eine Andreevreflexion ist 1 (=100 %) für  $E < \Delta_s$ , sinkt mit weiter wachsendem E und fällt schließlich wie  $\Delta_s^2/4E^2$  für  $E \gg \Delta_s$ . Eine notwendige Voraussetzung für Andreevreflexionen ist, dass der Gesamtweg des Quasiteilchens in der N-Schicht kleiner als die



Abb. 2.7: Andreevreflexion in einem SNS-Kontakt

mittlere Weglänge  $l_i$  zwischen zwei inelastischen Streungen ist, da das Quasiteilchen sonst einen Teil der gewonnenen Energie bei einem inelastischen Streuprozess abgibt und die Andreevreflexion dadurch abbricht.

Da eine zweifache Andreevreflexion netto dem Transport eines Cooperpaars über die N-Schicht entspricht, öffnen Andreevreflexionen einen weiteren Stromkanal für Quasiteilchen, der sich in der I(U)-Kennlinie als Exzessstrom  $I_{exc}$  bemerkbar macht (vgl. Kap. 4.2.1). Eine Vielfach-Andreevreflexion von Quasiteilchen äußert sich in einer erhöhten Leitfähigkeit für  $U \ll 2\Delta$  und führt in der dI(U)/dU-Kennlinie von SNS-Punktkontakten zu einer subharmonischen Energielückenstruktur [90] (vgl. Kap. 5.1).

#### 2.3 Grundlegende Eigenschaften von Josephsonkontakten

#### 2.3.1 Josephsoneffekte

Im Jahre 1962 sagte B.D. Josephson für eine Spannung U = 0 über einen SIS-Tunnelkontakt einen DC-Suprastrom und für U > 0 einen AC-Suprastrom, dessen Frequenz linear von U abhängt, voraus [4]. Diese *Josephsoneffekte* wurden bereits 1963 experimentell nachgewiesen [91] und werden durch folgende zwei Gleichungen beschrieben,

$$I_s = I_c \sin(\varphi),$$
 (DC-Josephson-Effekt) (2.10)

$$\frac{d\varphi}{dt} = \frac{2eU}{\hbar} \qquad (\text{AC-Josephson-Effekt}) \qquad (2.11)$$

in denen  $\varphi$  die Phasendifferenz zwischen den beiden Supraleiter bezeichnet. Die Josephsoneffekte treten nicht nur in SIS-Tunnelkontakten sondern in allen *weak links* auf, in denen sich die Cooperpaar-Wellenfunktionen der angrenzenden Supraleiter hinreichend überlappen. In Abgrenzung zum Tunnelkontakt bezeichnet ein *weak link* einen Bereich schwacher Kopplung, über den ein *direkter* Suprastrom fließt. Einige Beispiele sind SNS-Kontakte, Punktkontakte und Nanobrücken. Gemäß der ersten Josephsongleichung (2.10) bestimmt die Phasendifferenz  $\varphi$  den Suprastrom  $I_s$ . Die Amplitude  $I_c$  hängt vom Kontakttyp ab und wurde für SIS- und SNS-Kontakte bereits in Kap. 2.2 angegeben (vgl. Gleichung (2.2), (2.7) und (2.9)). Wenn die effektive Kontaktdicke  $L_{eff}$  die (induzierte) Kohärenzlänge  $\xi_n$  des Kontaktmaterials überschreitet, treten Abweichungen von der Sinus-Beziehung zwischen  $I_s$  und  $\varphi$  auf. Sie nehmen mit wachsendem  $L_{eff}$  zu bis der Übergang zu einer nicht-eindeutigen Beziehung  $I_s(\varphi)$  stattfindet, der gleichzeitig als Gültigkeitsgrenze der Josephsoneffekte aufzufassen ist [86].

Die zweite Josephsongleichung (2.11) lässt sich direkt aus der zeitabhängigen Schrödingergleichung herleiten [92] und gilt sehr genau. Das implizierte Verhältnis zwischen Frequenz  $\nu$  und Spannung U

$$\frac{\nu}{U} = \frac{2e}{h} \approx 483.6 \frac{\text{GHz}}{\text{mV}}$$
(2.12)

schwankt für verschiedene Supraleiter um nicht mehr als  $10^{-16}$  [93]. Eine elegante Herleitung beider Josephsongleichungen wird in [20] beschrieben und geht auf R.P. Feynman [94] zurück<sup>4</sup>.

Die Phasenkohärenz über den Josephsonkontakt wird durch die Josephsonenergie

$$E_J = -\frac{\hbar I_c}{2e} \tag{2.13}$$

stabilisiert, die aber so klein ist, dass die Phasenkohärenz schon deutlich unterhalb von  $T_c$  durch Fluktuationen gestört wird [74, 91]. Für Anwendungen in HF-Bauteilen ist die nichtlineare Induktivität

$$L_s = \frac{\hbar}{2eI_c \cos\varphi} = \frac{L_c}{\cos\varphi} \tag{2.14}$$

eines Josephsonkontaktes interessant.

#### 2.3.2 RSJ-Modell

Aufgrund thermischer Paarbrechung existiert für T > 0 eine mit der Temperatur  $T < T_c$  wachsende Anzahl von Quasiteilchen im Supraleiter, die für U > 0 in Form folgender Stromkomponenten zum Stromtransport über den Josephsonkontakt beitragen:

• Normalstrom  $I_n = U/R(U)$ 

Nahe  $T_c$  und für  $U > \Delta/2e$  ( $\Delta$  = Energielücke) ist R nahezu spannungsunabhängig [92]. Der normalleitende Widerstand  $R_n = R(U > \Delta/2e)$  und die charakteristische Spannung  $U_c = I_c R_n$  sind wichtige Kenngrößen eines Josephsonkontaktes (vgl. Kap. 2.4).

• Verschiebungsstrom  $I_d = C dU/dt$ 

Gleichung (2.11) impliziert eine hochfrequente Wechselspannung über den Kontakt die zusammen mit der Kontaktkapazität C zu einem Verschiebungsstrom  $I_d$  führt.

• Fluktuationsstrom  $I_f = \gamma I_c$ 

Im Grenzfall  $kT \gg eU, \hbar\omega$  wird der Fluktuationsstrom hauptsächlich durch das thermische Rauschen (Johnson-Nyquist-Rauschen) des Normalwiderstands verursacht.

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>1997 wurde ein mechanisches Analogon zum Josephsoneffekt entdeckt [95], das an einer perforierten Membran zwischen zwei suprafluiden <sup>3</sup>He-Reservoirs auftritt. Eine Druckdifferenz  $\Delta p$  führt zu einem oszillierenden Teilchenstrom durch die Membran, dessen Frequenz proportional zu  $\Delta p$  ist.



Abb. 2.8: Ersatzschaltbild eines Josephsonkontaktes im RSJ-Modell

Es gilt dann  $\gamma = -kT/E_J = 2ekT/\hbar I_c$  und  $I_f[\mu A] \approx 0.042 T[K]$ . Einen Überblick über mögliche weitere Quellen von Stromfluktuationen in Josephsonkontakten wie 1/f-Rauschen und externe Rauschquellen geben [92, 96].

Für den Gesamtstrom über den Josephsonkontakt ergibt sich die Gleichung,

$$I = I_c \sin \varphi(t) + \frac{U(t)}{R(U)} + C \frac{dU(t)}{dt} + I_f(t)$$
(2.15)

die das in Abb. 2.8 dargestellte Ersatzschaltbild für einen Josephsonkontakt nahelegt.

Mithilfe der charakteristischen Frequenz  $\omega_c$  und der Plasmafrequenz  $\omega_p$ 

$$\omega_c = \frac{2eU_c}{\hbar} = \frac{2eI_cR_n}{\hbar} \qquad \omega_p = \sqrt{L_cC} = \sqrt{\frac{2eI_c}{\hbar C}}$$
(2.16)

lassen sich die Amplituden der Stromkomponenten miteinander vergleichen. Es gilt näherungsweise [92]:

$$I_d < I_c$$
, falls  $\omega < \omega_p$   $I_d < I_n$ , falls  $\omega < \frac{1}{R_n C} = \frac{\omega_p^2}{\omega_c}$  (2.17)

Das von Stewart [97] und McCumber [98] vorgeschlagene Resistively Shunted Junction (RSJ) Modell geht von Gleichung (2.15) aus, nimmt aber einen spannungsunabhängigen normalleitenden Widerstand  $R_n$  an. Es gilt nahe  $T_c$  und wird dort durch eine mikroskopische Theorie [99] bestätigt. Josephsonkontakte mit einem Parallelwiderstand geringer Induktivität beschreibt das RSJ-Modell im gesamten Temperaturbereich gut [92]. Vernachlässigt man zunächst den Fluktuationsstrom  $I_f$ , dann lässt sich die Strombilanz (2.15) mit Hilfe von Gleichung (2.11) dimensionslos schreiben:

$$i = \sin\varphi + \frac{d\varphi}{d\tau} + \beta_c \frac{d^2\varphi}{d\tau^2}$$
(2.18)

$$i = \frac{I}{I_c}, \qquad \tau = \omega_c t, \qquad \beta_c = \left(\frac{\omega_c}{\omega_p}\right)^2$$



Abb. 2.9:

Abhängigkeit einer auf  $I_c$  und  $V_c = I_c R_n$  normierten RSJ-IU-Kennlinie

(a) vom Stewart-McCumber-Parameter  $\beta_c$  (linkes Diagramm) und

(b) vom thermischen Fluktuationsstrom  $I_f = \gamma I_c$  für  $\beta_c \ll 1$  [92] (rechtes Diagramm).

Für  $\beta_c \ll 1$  lässt sich Gleichung 2.18 analytisch lösen:

$$U = \begin{cases} 0 & , \quad I < I_c \\ R_n \sqrt{I^2 - I_c^2} & , \quad I \ge I_c \end{cases}$$
(2.19)

Für  $\beta_c < 1$  bestimmt  $R_n$  die Eigenschaften des Josephsonkontakts. Für  $\beta_c > 1$  dominiert der Einfluss der Kapazität C, der zu einer hysteretischen IU-Kennlinie führt (vgl. Abb. 2.9 a). Thermisches Rauschen, ausgedrückt durch den Parameter  $\gamma = I_f/I_c$ , verringert den kritischen Strom und verrundet die IU-Kennlinie (vgl. Abb. 2.9 b). Die Spannung U über einem Josephsonkontakt ist zeitabhängig. Mit wachsender Spannung geht U(t) von einem pulsartigen zu einem sinusartigen ( $U \gg I_c R_n$ ) Verhalten über [96]. Im folgenden bezeichnet U, wenn nicht explizit anders angegeben, die zeitlich gemittelte Spannung < U(t) >.

#### 2.3.3 Strahlungsemission und Mikrowellenabsorption von Josephsonkontakten

Die zeitabhängige Spannung U(t) über dem Josephsonkontakt, deren Frequenz durch Gleichung (2.11) gegeben ist, führt zur Emission elektromagnetischer Strahlung. Josephsonkontakte können daher als abstimmbare Oszillatoren bei hohen Frequenzen (bis in den THz-Bereich) eingesetzt werden. Ein Josephsonkontakt mit  $\beta_c < 1$  kann für  $U > I_c R_n$  die Leistung

$$P_J = \frac{1}{8} I_c^2 R_n \tag{2.20}$$

an eine angepasste Last  $R_L = R_n$  abgeben [100]. Die real auskoppelbare Leistung ist aber aufgrund der Fehlanpassung des niederohmigen Josephsonkontakts  $(R_n \sim 1 \Omega)$  an Antennen oder Wellenleiter  $(R_L \sim 100 \Omega)$  um einige Größenordnungen geringer. Berücksichtigt man nur thermisches Rauschen, dann gilt für die Linienbreite  $\Delta f_J$  [92]:

$$\Delta f_J = \frac{4\pi e^2 R_d^2}{\hbar^2 R_n} kT \tag{2.21}$$

Für den differentiellen Widerstand  $R_d$  im Arbeitspunkt gilt im angenommenen Grenzfall  $U > I_c R_n$  in guter Näherung  $R_d \approx R_n$ . Meist sind größere Leistungen und schmalere Linienbreiten gefragt, als sie ein einzelner Josephsonkontakt liefern kann. Arrays aus n phasengekoppelten Josephsonkontakten können diese Probleme lösen, da  $P_{array} = nP_J$  und  $\Delta f_{array} = \frac{1}{n} \Delta f_J$  gelten [101].

Die Einkopplung von Mikrowellenstrahlung in einen Josephsonkontakt kann durch einen zusätzlichen Term  $I_{rf} \cos(\omega_{rf} t)$  in Gleichung (2.15) berücksichtigt werden. Synchronisieren die Josephsonoszillationen mit der Mikrowelle, dann treten in der *IU*-Kennlinie Stromstufen (*Shapirostufen* [102]) an den Stellen

$$U_n = n \frac{\hbar}{2e} \omega_{rf}, \qquad n = 0, 1, 2, 3, \dots$$
 (2.22)

auf. Die nullte Stufe entspricht dem kritischen Strom  $I_c$ . Unter Vernachlässigung des Fluktuationsstroms  $I_f$  gilt im Grenzfall  $\Omega = \omega_{rf}/\omega_c \ge 1$  [92]

$$I_{s,n} = 2I_c \left| J_n \left( \frac{I_{rf}}{\Omega} \right) \right| \qquad n = 0, 1, 2, 3, \dots$$
 (2.23)

für die Höhe der n-ten Shapirostufe  $I_{s,n}$ .  $J_n$  bezeichnet hier die n-te Besselfunktion. Während Gleichung (2.23) bei T = 4.2 K eine sehr gute Näherung ist, bewirkt ein thermischer Fluktuationsstrom  $I_f$  auch für  $\Omega > 1$  Abweichungen vom Besselverhalten [103]. Für hohe Mikrowellenleistungen bilden sich die Shapirostufen um eine Gerade mit der Steigung  $R_n$  aus, was man ausnutzen kann, um den normalleitenden Widerstand  $R_n$  des Josephsonkontaktes zu bestimmen.

Da die zweite Josephsongleichung (2.11), aus der die Gleichung (2.22) hervorgeht, materialunabhängig sehr genau gilt (vgl. Kap. 2.3.1), lässt sich die Mikrowellenabsorption eines Arrays aus mehreren 1000 Josephsonkontakten ausnutzen um ein hochpräzises Spannungsnormal (1 V bzw. 10 V) aufzubauen [104, 105]. Damit kann die Einheit Volt, wie auch die Grundeinheiten Sekunde und Meter [106], über eine extrem genau messbare Frequenz einer Schwingung definiert werden.

#### 2.3.4 Magnetfeldabhängigkeit des Josephsonstroms

Der Josephsonstrom  $I_c$  hängt, wie im folgenden gezeigt wird, empfindlich vom Magnetfeld H am Ort des Josephsonkontaktes ab. Aus der quantenmechanischen Wahrscheinlichkeitsstromdichte [94]

$$\vec{J}_{w} = \frac{i\hbar}{2m'} (\Psi \vec{\nabla} \Psi^{*} - \Psi^{*} \vec{\nabla} \Psi) - \frac{q}{m'} \vec{A} |\Psi|^{2}$$
(2.24)

für ein Teilchen mit der Masse m' und der Ladung q in Gegenwart eines Vektorpotentials  $\vec{A}$  und der Wellenfunktion des Cooperpaarsystems  $\Psi(\vec{r}) = |\Psi|e^{i\phi(\vec{r})}$  folgt für die Cooperpaarstromdichte  $\vec{J}_s = q \cdot \vec{J}_w$  in einem Supraleiter

$$\vec{J}_s = \frac{\hbar n_s e}{m} \left( \vec{\nabla} \phi - \frac{2e}{\hbar} \vec{A} \right) \tag{2.25}$$



Abb. 2.10: Josephsonkontakt in einem homogenen äußeren Magnetfeld  $H_{ext}$ 

mit m' = 2m, q = 2e und der Cooperpaardichte  $n_s = |\Psi|^2$ . Im folgenden wird der Einfluss eines Magnetfeldes  $H = H_{ext} + H_{eig} = \sqrt{H_x^2 + H_z^2}$  parallel zur Josephsonkontaktfläche untersucht (vgl. Abb. 2.10), das sowohl ein äußeres Magnetfeld  $H_{ext}$  als auch das vom Cooperpaarstrom erzeugte Eigenfeld  $H_{eig}$  repräsentiert. Aus Gleichung (2.25) folgen mit  $\vec{\nabla} \times \vec{A} = \mu_0 \vec{H}$  ( $\mu_0$  = Induktionskonstante) in diesem Fall die Beziehungen [96],

$$\frac{\partial\varphi}{\partial x} = -\frac{2e}{\hbar}\mu_0 H_z d_H \quad \text{und} \quad \frac{\partial\varphi}{\partial z} = \frac{2e}{\hbar}\mu_0 H_x d_H \quad \text{mit} \quad d_H = \lambda_l + \lambda_r + t \tag{2.26}$$

in denen t die Barrierendicke und  $d_H$  die y-Ausdehnung des Kontaktvolumens ist, das vom Magnetfeld H durchsetzt wird. Die Parameter  $\lambda_l$  und  $\lambda_r$  bezeichnen die Londoneindringtiefen und  $\varphi$  die Phasendifferenz der beiden angrenzenden Supraleiter. Aus Gleichung (2.26), den beiden Josephsongleichungen (2.10) und (2.11) und der vierten Maxwellgleichung

$$\vec{\nabla} \times \vec{H} = \vec{J} + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$$
 (2.27)

mit der Stromdichte  $\vec{J}$  und der dielektrischen Verschiebung  $\vec{D}$  folgt die zweidimensionale Sinus-Gordon-Gleichung,

$$\frac{\partial^2 \varphi}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \varphi}{\partial y^2} - \frac{1}{\bar{c}^2} \frac{\partial^2 \varphi}{\partial t^2} = \frac{1}{\lambda_J^2} \sin \varphi$$
(2.28)

$$\bar{c} = \sqrt{\frac{1}{\mu_0 C' d}}$$
  $\lambda_J = \sqrt{\frac{\Phi_0}{2\pi d_H \mu_0 J_c}}$   $\frac{\bar{c}}{\lambda_J} = \omega_p$ 

die die Elektrodynamik eines Josephsonkontaktes beschreibt [107]. Dabei bezeichnet  $C' = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_T}{d_H}$  die Kapazität des Josephsonkontaktes pro Flächeneinheit und  $\Phi_0 = h/2e$  das elementare Flussquant. Die Swihart-Geschwindigkeit  $\bar{c}$  ist die Ausbreitungsgeschwindigkeit elektromagnetischer Wellen in einem Josephsonkontakt. Das Eigenfeld  $H_{eig}$  erhöht die Amplitude  $J_{s,0}$  der räumlich modulierten Cooperpaarstromdichte  $J_s$  (vgl. Gleichung (2.29)) an den Rändern des Josephsonkontaktes. Die Josephsoneindringtiefe  $\lambda_J$  gibt – analog zur Londoneindringtiefe  $\lambda_L$  – die Längenskala an, auf der  $J_{s,0}$  vom Rand zur Mitte hin abfällt. Mithilfe der Josephsoneindringtiefe  $\lambda_J$ , die hauptsächlich durch die temperaturabhängige kritische Stromdichte  $J_c$  bestimmt wird, kann man Josephsonkontakte in zwei Klassen einteilen:

- 1. schmale Kontakte (small junctions)  $(w < \lambda_J)$ Die Breite w des Kontaktes ist kleiner als  $\lambda_J$ . Daher kann  $J_{s,0}$  über die gesamte Kontaktbreite näherungsweise als konstant angesehen werden (d.h.  $J_{s,0} \simeq J_c$ ).
- 2. breite Kontakte (long junctions)  $(w > \lambda_J)$ In diesem Fall kann die Rückwirkung von  $H_{eig}$  auf  $J_{s,0}$  nicht mehr vernachlässigt werden. Es tritt eine deutliche Randüberhöhung von  $J_{s,0}$  auf.

#### Schmale Kontakte

In diesem Abschnitt sei  $H_{ext} = H_z$  räumlich konstant.  $H_{eig}$  wird wegen  $w < \lambda_J$  vernachlässigt ( $\Rightarrow J_{s,0} = J_c$ ). Die nach Integration von Gleichung (2.26) erhaltene ortsabhängige Phase führt auf eine lokale erste Josephsongleichung

$$J_s(x) = J_c \sin\left(\frac{2\pi d_H}{\Phi_0} H_z x + \varphi_0\right)$$
(2.29)

in der die Cooperpaarstromdichte  $J_s$  räumlich moduliert ist und das Vorzeichen wechselt. Da die  $J_s(x)$ -Modulation an die Stromdichteverteilung von Abrikosov-Flusswirbeln [18] in Typ-II-Supraleitern erinnert, spricht man von *Josephson-Flusswirbeln* im Josephsonkontakt, die jeweils ein Flussquant  $\Phi_0$  enthalten. Im Gegensatz zu Abrikosov-Flusswirbeln haben Josephson-Flusswirbel keinen normalleitenden Kern. Nach Integration von Gleichung (2.29) erhält man folgende Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stroms

$$I_s\left(\frac{\Phi}{\Phi_0}\right) = I_c \left|\frac{\sin\left(\frac{\pi\Phi}{\Phi_0}\right)}{\left(\frac{\pi\Phi}{\Phi_0}\right)}\right| \qquad \Phi = \mu_0 H_z w d_H \qquad (2.30)$$

deren Graph dem Interferenzmuster am Einzelspalt (*Fraunhofer-Muster*) ähnelt (vgl. Abb. 2.11). Die Nullstellen entsprechen Vielfachen eines Flussquants  $\Phi_0$ . Für das zum ersten Minimum gehörige Magnetfeld gilt daher:

$$\mu_0 H_{z,1} = \frac{\Phi_0}{w d_H} \tag{2.31}$$

Der Meißner-Effekt des Supraleiters führt zu einer Feldüberhöhung im magnetfelddurchsetzten Kontaktvolumen (*Entmagnetisierungseffekt*), die nicht in Gleichung (2.31) berücksichtigt ist. Entsprechend korrigierte Formeln für eine planare Brückengeometrie mit der Supraleiterfilmdicke d lauten [108]:

$$\mu_0 H_{z,1} \simeq \frac{\Phi_0 d}{1.2w^2 (2\lambda_L + d_H)}, \qquad wd > \lambda_L^2$$
(2.32)

$$\mu_0 H_{z,1} \simeq 1.84 \frac{\Phi_0}{w^2} \qquad wd \ll \lambda_L^2 \tag{2.33}$$



Abb. 2.11:

Abhängigkeit des kritischen Stroms  $I_c$  vom magnetischen Fluss  $\phi$  durch einen homogenen schmalen Josephsonkontakt.

In realen Josephsonkontakten – insbesondere HTSL-Josephsonkontakten – ist meist die Stromdichte  $J_c$  aufgrund von Barriereninhomogenitäten ortsabhängig, was zu erheblichen Abweichungen von der in Abb. 2.11 gezeigten  $I_c(H)$ -Abhängigkeit führen kann [96]. Aus einer gegebenen Stromdichteverteilung kann die  $I_c(H)$ -Kurve berechnet werden. Obwohl der direkte Umkehrschluss nicht möglich ist [109], kann durch gezielte Variation hypothetischer Stromdichteverteilungen die experimentell beobachtete  $I_c(H)$ -Kurve angenähert werden. Dies ist zur Zeit die einzige Methode, mit der nicht-destruktiv  $J_c$ -Inhomogenitäten in einem Josephsonkontakt auf einer sub- $\mu$ m-Skala untersucht werden können. Einige Stromdichteprofile und statistisch verteilte Defekte werden in [96] ausführlich diskutiert.

#### **Breite Kontakte**

Über die Geometrieabhängigkeit des Eigenfeldes  $H_{eig}$  wird in breiten Josephsonkontakten die Stromdichteverteilung und damit auch die  $I_c(H)$ -Kurve geometrieabhängig. Ein weiterer Unterschied zu schmalen Kontakten ist, dass aufgrund der Rückwirkung von  $H_{eig}$ auf  $J_s$  die Anordnung der Josephson-Flusswirbel keine eindeutige Funktion des äußeren Magnetfeldes  $H_{ext}$  ist, sondern von der Vorgeschichte abhängt. Eine typische  $I_c(H)$ -Kurve für einen langen Kontakt ( $w/\lambda_J = 8.24$ ) ist in Abb. 2.12 dargestellt. Die verschiedenen Teilkurven entsprechen möglichen Flusszuständen. Der kritische Strom wird nicht mehr vollständig unterdrückt. Das thermodynamische untere kritische Feld

$$\mu_0 H_{c1} = \frac{2\Phi_0}{\pi^2 \lambda_J d_H} \tag{2.34}$$

eines langen Josephsonkontaktes kann durch Extrapolation der ersten Teilkurve abgeschätzt werden [96]. Oberhalb von  $H_{c1}$  wird der Meißner-Effekt instabil und das Eindringen eines Josephson-Flusswirbels energetisch begünstigt.



#### Abb. 2.12:

 $I_c(H)$ -Abhängigkeit eines langen Josephsonkontaktes  $(w/\lambda_j = 8.24)$  [96]. Die Messpunkte liegen auf der Einhüllenden der Teilkurven, die den möglichen Flusszuständen  $\phi_n$  ( $\phi_n = n\phi_0, n = 0, 1, 2, ...$ ) entsprechen. Die hysteretischen Ansätze der Messkurve zeigen, dass das Magnetfeld, bei dem sich ein Flusszustand ändert, von der Vorgeschichte abhängt.

#### 2.3.5 Josephsonkontakte in $d_{x^2-y^2}$ -Wellen-Supraleitern

In Supraleitern mit anisotropem Ordnungsparameter hängt der kritische Strom  $I_c$  über einen Josephsonkontakt von der Orientierung der Supraleiterelektroden relativ zur Kontaktfläche ab.  $I_c$  ist proportional zum Produkt der Ordnungsparameter der Elektroden in senkrechter Richtung zur Kontaktfläche [54]. Daher kann in einem  $d_{x^2-y^2}$ -Wellen-Supraleiter aufgrund der Nullstellen und des Phasenvorzeichenwechsels des Ordnungsparameters der Josephsonstrom je nach Elektrodenorientierung verringert, vollständig unterdrückt oder sogar negativ werden [54, 59]. Eine Region mit negativem Josephsonstrom wird als  $\pi$ -junction bezeichnet. Eine ungerade Anzahl von  $\pi$ -junctions in einem supraleitenden Ring führt zu einer spontanen Magnetisierung von einem halben Flussquant  $\phi_0/2 = h/4e$ , wenn die Ringinduktivität L die Bedingung  $L|I_{c,min}| \gg \phi_0$  ( $I_{c,min} =$  kritischer Strom der schwächsten  $\pi$ -junction) erfüllt [59, 110]. Diese spontane Magnetisierung wurde in Trikristall-SQUID-Experimenten [53, 54] und an YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenzen [111] beobachtet.

Wie obige Experimente auch wurde die Mehrzahl der Josephsonexperimente zur Klärung der Ordnungsparametersymmetrie in oxidischen HTSL mit YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Bikristall-Josephsonkontakten ausgeführt, deren Kontaktfläche eine stark facettierte Korngrenze mit einer typischen Facettenkantenlänge < 100 nm [112, 113] ist. Die Facettierung führt in einem d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub>-Wellen-Szenario zu einer räumlich inhomogenen Stromdichteverteilung (vgl. Abb. 2.13) und damit zu einer  $I_c(H)$ -Abhängigkeit, die deutlich vom Fraunhofer-Muster abweicht [114]. Der Anteil der  $\pi$ -Regionen an der Korngrenze nimmt mit dem Korngrenzenwinkel zu und erreicht nahezu 50% für asymmetrische 45°-Korngrenzen [115, 116]. Der Rückfluss des Josephsonstroms in den  $\pi$ -Regionen verringert nicht nur den kritischen Strom  $I_c$  des Kontaktes, sondern auch seine charakteristische Spannung  $I_cR_n$ , weil der Quasiteilchenstrom und damit  $R_n$  nicht beeinflusst wird [116]. Entlang der Bikristallkorngrenze kann die spontane Magnetisierung zu verschiedenen metastabilen Flusskonfigurationen führen, deren Umordnung vermutlich zusätzliches niederfrequentes Rauschen



Abb. 2.13: Schematische Darstellung einer facettierten Korngrenze mit einer  $\pi$ -junction zwischen zwei  $d_{x^2-y^2}$ -Wellen-Supraleitern [116].

verursacht [80].

Für Josephsonkontakte in einem  $d_{x^2-y^2}$ -Wellen-Supraleiter werden gebundene Quasiteilchenzustände in der Mitte der Energielücke  $(E = E_F)$  erwartet [117, 118, 119], die als midgap states (MGS) oder zero energy states (ZES) bezeichnet werden. ZES führen zu einem Leitfähigkeitsmaximum bei U = 0 V [120, 121] und einer (experimentell noch nicht beobachteten) Anomalie der  $I_c(T)$ -Abhängigkeit bei tiefen Temperaturen [119]. Sie erniedrigen außerdem, wie auch unterschiedlich orientierte Supraleiterelektroden, intrinsisch den Ordnungsparameter nahe der Kontaktfläche [116].

Abschließend ist festzuhalten, dass in einem anisotropen s-Wellen-Supraleiter die als Indizien für eine  $d_{x^2-y^2}$ -Wellensymmetrie angeführten Josephsonexperimente durch magnetische Verunreinigungen der Kontaktfläche (vgl. Kap. 2.1.3), die ZES und ihre Implikationen durch eine resonante Doppelbarrierenstruktur [122] und die Erniedrigung des Ordnungsparameters nahe der Kontaktfläche durch die Materialeigenschaften der Barriere alternativ erklärt werden können.

Neuere Ergebnisse [123] zeigen, dass symmetrische Bikristall-Josephsonkontakte (vgl. Kap. 2.4.1) aus lochdotierten (YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>) und elektronendotierten (Nd<sub>2-x</sub>Ce<sub>x</sub>CuO<sub>4-y</sub>) HTSL sehr ähnliche Transporteigenschaften haben und gleichermaßen durch das *Intrinsically Shunted Junction* - Modell (vgl. Kap. 2.4.2) beschrieben werden. Unter Annahme einer (anisotropen) s-Wellensymmetrie des Ordnungsparameters im NdCeCuO-System [124, 125] weist das entweder darauf hin, dass der Ordnungsparameter in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> keine signifikante d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub>-Wellenkomponente hat oder sein Einfluss auf die Transporteigenschaften symmetrischer Bikristallkontakte gering ist.

#### 2.4 HTSL-Josephsonkontakte

Die geringe Kohärenzlänge (vgl. Tab. 2.1), die erforderliche bis zur Josephsonbarriere durchgehende Epitaxie und die schnelle chemische Oberflächendegradation der oxidischen HTSL scheinen eine Technologie zur Herstellung hochintegrierbarer SIS-Josephsonkontakte mit geringer Parameterstreuung, die ähnlich einfach wie die Nb/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Nb-Technologie im Bereich der klassischen Supraleiter ist [5], nicht zuzulassen. Das trotz der technologischen Schwierigkeiten große Interesse an HTSL-Josephsonkontakten basiert nicht allein auf der höheren Arbeitstemperatur. Die größere Energielücke der HTSL impliziert eine kürzere dynamische Reaktionszeit ( $h/\Delta \approx 0.1$  ps), eine höhere Arbeitsfrequenz ( $\Delta/h \approx 10$  THz), eine geringere thermische Sensitivität ( $\Delta/k \approx 100$  K) und eine größere charakteristische Spannung  $I_c R_n$  als sie mit Nb-Josephsonkontakten erreicht werden kann [126].

Kriterium	$BCJ^{1)}$	BEJ	SEJ	SNJ	REJ	VJ	EBJ
Technol. Aufwand	$++^{2)}$	0	+	o/+	o/-	o/-	++
Positionierbarkeit	-	+	+	+	+	++	++
Integrationsdichte	-	+	+	+	o/+	o/+	++
Reproduzierbarkeit	о	-	о	-	+	+	+
Stabilität	+	o/-	o/+	+	+	+	-
$J_c(77 {\rm K}) ~[{\rm kA/cm^2}]^{3)}$	3-40	0.5-2	10-180	10-100	0.03-300	20-45	27
$R_n A(77 {\rm K}) \ [10^{-9} \Omega {\rm cm}^2]$	2.5-40	10-30	4-50	1-30	0.7-500	1.3-2.6	1.1
$I_c R_n(77 \mathrm{K}) \; [\mu \mathrm{V}]$	10-200	5-60	100-410	70-1000	3-1500	50-85	30
Rauschen	o/+	-	+		О		

Tab. 2.2: Technologische Kriterien und Transporteigenschaften verschiedener Typen von HTSL-Josephsonkontakten

 BCJ = Bikristallkontakt [127, 128], BEJ = Biepitaktischer Kontakt [127, 129], SEJ = Stufenkantenkontakt [130, 131, 132], SNJ = SNS-Stufenkontakt (N = Au, Ag, Au/Ag) [133, 134], REJ = Rampenkontakt [135, 136, 137, 138, 139], VJ = vertikaler Kontakt [140], EBJ = elektronenstrahlgeschwächte Mikrobrücke [141]

 Bewertungsskala: (++) sehr gut, (+) gut, (o) mittel, (-) schlecht.
 (+) bedeutet: geringer technologischer Aufwand, gute Positionierbarkeit, hohe Integrationsdichte (max. Anzahl der Kontakte pro Flächeneinheit), gute Reproduzierbarkeit von J<sub>c</sub>, R<sub>n</sub>A und I<sub>c</sub>R<sub>n</sub>, geringes Rauschen, gute (Langzeit-)Stabilität.

3) Detailliertere Angaben zu charakteristischen Parametern und Parameterstreuungen verschiedener Typen von HTSL-Josephsonkontakten enthalten die Tabellen A.1 und A.2 im Anhang A.

Im folgenden Abschnitt werden Vor- und Nachteile der wichtigsten Typen von HTSL-Josephsonkontakten diskutiert. Abschnitt 2.4.2 behandelt kurz ihr Skalierungsverhalten und dessen Erklärung im Rahmen des ISJ-Modells. Der letzte Abschnitt weist auf die wichtigsten Anwendungsgebiete von HTSL-Josephsonkontakten hin.

#### 2.4.1 Typen von HTSL-Josephsonkontakten

Charakteristische Eigenschaften der im folgenden diskutierten Typen von HTSL-Josephsonkontakten sind in Tab. 2.2 zusammengefasst. Hinter den Abschnittsüberschriften wird auf Pionierarbeiten, aktuelle Papiere und Übersichtsartikel verwiesen.

Aufgrund der geringen Kohärenzlänge führt eine (gezielt induzierte) Korngrenze in oxidischen HTSL zu einer schwachen supraleitenden Kopplung, die zur Herstellung von Josephsonkontakten ausgenutzt werden kann. Zu diesen *Korngrenzenkontakten*, die keine Entsprechung in klassischen Supraleitern haben, gehören Bikristallkontakte, biepitaktische Kontakte und Stufenkantenkontakte.

#### Bikristallkontakte [79, 142, 143]

Bikristallkontakte werden durch Deposition eines epitaktischen HTSL-Films auf einem (ggf. mit einer Pufferschicht versehenen) Bikristallsubstrat (SrTiO<sub>3</sub>, NdGaO<sub>3</sub>, YSZ, MgO, Saphir (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), Si) und die nachfolgende Strukturierung der Mikrobrücken hergestellt (vgl. Kap. 3.1). Da die Korngrenze im Film in Fortsetzung der Substratkorngrenze(n) entsteht (vgl. Abb. 2.14 a), sind die Positionierbarkeit und die Integrationsdichte der Bi-

kristallkontakte stark eingeschränkt (vgl. Tab. 2.2). Die kritische Stromdichte  $J_c$  des Kontaktes lässt sich über den Korngrenzenwinkel  $\alpha_k$  des Bikristallsubstrats einstellen und nimmt exponentiell mit wachsendem  $\alpha_k \leq 45^{\circ}$  ab [143]. Wegen der einfachen Präparation, des hinreichend großen  $J_c$  und  $I_cR_n$  bei 77 K und der für Schaltungen mit wenigen (< 20) Josephsonkontakten ausreichenden Reproduzierbarkeit werden Bikristallkontakte mit  $\alpha_k = 24^{\circ}$  oft in Prototypschaltungen verwendet. Zwei Bikristallkontakte können auch übereinander gestapelt werden, was neuartige Josephson-Bauteile ermöglicht [144, 145]. Mit (Hg,Re)Ba<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>y</sub>-Bikristallkontakten wurde vor kurzem ein  $I_cR_n$  von 400–460  $\mu$ V bei 77 K erreicht [146].

#### Biepitaktische Kontakte [129, 147, 148]

Bei der Präparation biepitaktischer Kontakte wird zunächst eine dünne epitaktische Template-Schicht (MgO oder BaZrO<sub>3</sub>) auf das Substrat aufgebracht und strukturiert, die die a,b-Ebene der anschließend deponierten Pufferschicht (SrTiO<sub>3</sub> oder CeO<sub>2</sub>) um 45° dreht. Dadurch entstehen asymmetrische 45°-Korngrenzen in der Pufferschicht, die sich in den darauf deponierten YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film fortsetzen (vgl. Abb. 2.14 b).

In einigen Herstellungsverfahren wird der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film direkt auf die strukturierte Template-Schicht deponiert oder eine Pufferschicht zwischen Substrat und Template-Schicht eingefügt. Bisher ließen sich weder symmetrische Korngrenzen noch Korngrenzenwinkel < 45° realisieren. Dem Vorteil der freien Positionierbarkeit der biepitaktischen Kontakte stehen die Nachteile eines kleinen  $I_cR_n$  bei 77 K, einer unzureichenden Reproduzierbarkeit und schlechter Rauscheigenschaften [149] gegenüber (vgl. Tab. 2.2).

#### Stufenkantenkontakte [150, 151, 152]

Wird ein epitaktischer YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film auf einer Stufe in einem LaAlO<sub>3</sub>- oder SrTiO<sub>3</sub>-Substrat deponiert, deren Stufenwinkel  $\alpha > 45^{\circ}$  ist, dann entstehen bei hinreichend großer Oberflächendiffusion der deponierten Wachstumseinheiten (vgl. Kap. 3.3) ausgehend von der unteren und oberen Stufenkante zwei Korngrenzen (vgl. Abb. 2.14 c), die für  $\alpha \approx 60^{\circ}$ ähnliche und für  $\alpha > 70^{\circ}$  deutlich unterschiedliche Transporteigenschaften aufweisen [152]. Die c-Richtung des Films in der Stufenflanke liegt parallel zur Probenoberfläche [153, 154] (vgl. Abb. 2.14 c). Stufenkantenkontakte können vergleichsweise einfach hergestellt werden und erreichen ähnlich gute  $I_cR_n$ -Werte und Parameterstreuungen wie Bikristallkontakte (vgl. Kap. 4). Sie sind rauscharm [149] und erlauben aufgrund ihrer freien Positionierbarkeit eine hohe Integrationsdichte. Die Präparation der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Stufenkantenkontakte wird detailliert in Kap. 3.1 und 3.2 beschrieben.

#### **SNS-Stufenkontakte** [133, 134, 155, 156]

Die Herstellung von SNS-Stufenkontakten beginnt wie die der Stufenkantenkontakte mit der Präparation einer Substratstufe. Der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film wird aber so gerichtet deponiert, dass Abschattungseffekte zum Filmabriss in der Stufenflanke führen. Die Lücke wird in-situ mit einer normalleitenden (N-)Schicht aus Gold, Silber oder einer Au/Ag-Legierung aufgefüllt. Trotz des in-situ-Verfahrens tritt ein Grenzflächenwiderstand  $R_b$  auf, der um mehrere Größenordnungen größer als der Widerstand der N-Schicht ist (vgl. Kap. 2.2.2). Einerseits ermöglicht der hohe Grenzflächenwiderstand  $R_b$  erst ein akzeptables  $R_n$  und ein hohes  $I_cR_n$ . Andererseits impliziert die extrem geringe Ausdehnung der Grenzschicht eine schlechte Reproduzierbarkeit von  $R_b$  und damit eine große Parameterstreuung des SNS-Stufenkontaktes.



Rampenkontakt

Abb. 2.14: Verschiedene Typen von HTSL-Josephsonkontakten.

#### Rampenkontakte [135, 136, 137, 157, 158, 159]

Bei der Präparation von Rampenkontakten wird erst eine Doppelschicht aus YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> (Basiselektrode) und einem Isolator deponiert, in die eine Rampe geätzt wird. Anschliefend wird eine wenige Nanometer dünne epitaktische Barrierenschicht und die zweite YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Schicht (Gegenelektrode) aufgebracht (vgl. Abb. 2.14 d). Der Josephsonstrom zwischen den beiden Elektroden fließt überwiegend in a,b-Richtung. In den letzten Jahren wurden intensiv Barrierenmaterialien (Y<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> [160], PrBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> [138, 139, 161], PrBa<sub>2</sub>Cu<sub>3-x</sub>Ga<sub>x</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> [162, 163]) untersucht, deren Gitterparameter und thermische Ausdehnung kompatibel mit YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> sind. Rampenkontakte mit einer Barriere aus Co-dotiertem [135, 136] oder plasmamodifiziertem [137] YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> sind aufgrund ihrer  $I_c$ - und  $I_cR_n$ -Werte bei T > 65 K, ihrer guten Reproduzierbarkeit und der möglichen Groundplane<sup>5</sup>-Integration zur Zeit die aussichtsreichsten Kandidaten für digitale Anwendungen (vgl. Kap. 2.4.3). Vor kurzem wurde ein dritter Typ gut reproduzierbarer Rampenkontakte mit (La<sub>0.3</sub>Sr<sub>0.7</sub>)(Al<sub>0.65</sub>Ta<sub>0.35</sub>)O<sub>3</sub> als Substrat- und Isolatormaterial entdeckt, deren Barriere ohne vorsätzliche Modifikation vermutlich unter Einfluss des La-Anteils der Isolatorschicht entsteht [159].

#### Vertikale Josephsonkontakte [140, 164, 165, 166, 167]

In vertikalen Josephsonkontakten fließt der Josephsonstrom im Gegensatz zu allen anderen Kontakttypen in senkrechter Richtung zur Probenoberfläche. Wegen der extrem geringen Kohärenzlänge  $\xi_0 = 0.15 - 0.3$  nm in c-Richtung kommen für die YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>-Elektroden und die Barriere solcher Josephsonkontakte nur epitaktische a-Achsen-Filme (= Filme, deren c-Achse parallel zur Substratoberfläche liegt) in Frage. Mit einer 2-3 nm dünnen a-PrGaO<sub>3</sub>-Barriere und zahlreichen Pufferschichten gelang die Herstellung vertikaler Josephsonkontakte mit a,b-Ebenenkopplung, die ein  $I_cR_n$  von mehreren mV bei 4.2 K und von  $110 \,\mu$ V bei 60 K aufwiesen [164].

Intrinsische vertikale Josephsonkontakte, deren Josephsonkopplung jeweils zwischen benachbarten CuO<sub>2</sub>-Ebenen besteht, wurden in stark anisotropen HTSL (Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8</sub> [165, 168], Tl<sub>2</sub>Ba<sub>2</sub>Ca<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>10</sub> [166]) beobachtet. Die dort erreichbare extrem hohe Packungsdichte phasengekoppelter Kontakte erscheint attraktiv für die Realisierung von Josephsonoszillatoren (vgl. Kap. 2.4.3).

Planare Mikrobrücken, deren Dimensionen mit der London-Eindringtiefe in den entsprechenden Kristallrichtungen vergleichbar sind, zeigen aufgrund von kohärenter Flussschlauchbewegung ein ähnliches Verhalten wie ein Josephsonkontakt [169, 170]. Vertikale, aus c-Achsen-Filmen aufgebaute YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> / PrBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> / YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Kontakte dieses Typs zeigen sogar eine etwas geringere Parameterstreuung als die besten Korngrenzenkontakte und erreichen ein  $I_c R_n$  von 1.2 mV bei 60 K [140, 167].

#### Elektronenstrahl- und ionenstrahlgeschwächte Mikrobrücken [141, 171, 172]

Mittels eines hochenergetischen (80-350 keV), auf 1-2 nm Strahldurchmesser fokussierten Elektronenstrahls können Josephsonkontakte in bis zu 200 nm dicken YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Mikrobrücken erzeugt werden. Vorteile dieses Verfahrens sind die einfache Herstellung, die individuelle Wahl der Barrierendicke für verschiedene Kontakte auf einem Chip und die gute Reproduzierbarkeit. Bei 40 K wird ein  $I_c R_n$  von 650  $\mu$ V erreicht [141]. Da das Schreiben

 $<sup>^5\</sup>mathrm{Für}$ digitale Anwendungen (vgl. Kap. 2.4.3) benötigt man Josephsonkontakte mit einer geringen Induktivität (~ 10 pH), die durch eine supraleitende Grundplatte (*Groundplane*) unter den Josephsonkontakten erreicht werden kann [131, 135, 136, 158]



Abb. 2.15:  $I_c R_n(J_c)$ -Skalierungsverhalten verschiedener HTSL-Josephsonkontakte [80].

eines Kontaktes typischerweise mehrere Minuten dauert, sind elektronenstrahlgeschwächte Mikrobrücken eher für Prototypschaltungen und nicht für die Massenproduktion hochintegrierter Schaltkreise geeignet. Der Hauptnachteil dieses Kontakttyps liegt in der zur Zeit noch nicht zufriedenstellenden Langzeitstabilität.

Ionenstrahlgeschwächte Mikrobrücken werden durch einen hochenergetischen Ionenstrahl (200 keV-Ne<sup>+</sup>-Ionen,  $J_{Ne^+} \sim 10 \text{ nA/cm}^2$  [172]) erzeugt, der durch elektronenstrahllithographierte 20-100 nm schmale Schlitze im Photolack den YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film trifft. Während der technologische Aufwand etwas höher und die Reproduzierbarkeit etwas schlechter als bei elektronenstrahlgeschwächten Mikrobrücken ist, ist die Langzeitstabilität besser und der erreichbare Chipdurchsatz deutlich größer.

#### 2.4.2 Skalierungsverhalten von HTSL-Josephsonkontakten

Eine hervorstechende Eigenschaft der meisten HTSL-Josephsonkontakte ist das in Abb. 2.15 dargestellte Skalierungsverhalten  $I_c R_n \propto J_c^p$  mit  $p \approx 0.5$ . Die Tatsache, dass sich die Daten verschiedener Kontakttypen alle um die Skalierungsgerade gruppieren, impliziert ähnliche Ladungstransportmechanismen. In SIS-Josephsonkontakten zwischen klassischen Supraleitern ist  $I_c R_n$  unabhängig von  $J_c$  und entspricht etwa der Energielückenspannung  $\Delta/e$ . Eine weitere Übereinstimmung verschiedener HTSL-Kontakttypen findet sich in der Skalierung der normalisierten Widerstandsfluktuationen  $S_R = |\delta R_n/R_n|^2$  mit  $R_n$ , die auf ähnliche Quellen des 1/f-Rauschens in den Kontakten hinweist [80]. Die für Korngrenzenkontakte gefundene Beziehung  $\sqrt{S_I/S_R} \simeq 1/(1-p)$  [173] mit  $S_I = |\delta I_c/I_c|^2$  ist ein starkes Indiz dafür, dass das niederfrequente Rauschen denselben mikroskopischen Ursprung wie das Skalierungsverhalten der charakteristischen Spannung  $I_c R_n$  hat.

Das Intrinsically Shunted Junction (ISJ)-Modell [79] wird zur Zeit für die Erklärung der



Abb. 2.16:

Mikrostruktur und Ladungstransportmechanismen einer HTSL-Korngrenze im ISJ-Modell [79].

obigen experimentellen Beobachtungen favorisiert. Es geht von unterschiedlichen Transportmechanismen für Quasiteilchen und Cooperpaare aus. Während Cooperpaare direkt tunneln, gelangen Quasiteilchen durch resonantes Tunneln über lokalisierte Zustände in der isolierenden Barriere in die gegenüberliegende Elektrode (vgl. Abb. 2.16). Das Besetzen und Verlassen der lokalisierten Zustände führt zu Fluktuationen der Barrierenhöhe, die Cooperpaar- *und* Quasiteilchenstrom beeinflussen. Die zu erwartende Phasen-Antikorrelation zwischen  $\delta I_c$  und  $\delta R_n$  und die aus  $I_c R_n \propto J_c^p$  folgende Beziehung  $|\delta I_c/I_c|/|\delta R_n/R_n| = \frac{1}{1-p}$  wurden an Korngrenzenkontakten experimentell verifiziert [173, 174]. Der bei abnehmender Temperatur zu beobachtende Übergang von einem thermisch aktivierten (T > 15-20 K) zu einem temperaturunabhängigen, tunnelartigen Besetzungsverhalten (T < 15 K) der lokalisierten Zustände ist charakteristisch für ungeordnete Systeme (Barrieren), die eine große Anzahl von 1/f-Rauschen erzeugenden Zwei-Zustands-Fluktuatoren (*two-level-fluctuators*) enthalten [175].

#### 2.4.3 Anwendungen von HTSL-Josephsonkontakten

Da trotz des rasanten Fortschritts in den letzten Jahren die HTSL-Josephsontechnologie noch vergleichsweise jung und unausgereift ist, sind ihre Anwendungen dort zu finden, wo die Halbleitertechnologie keine Alternative bietet und sich gegenüber der Nb/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Nb-Josephsontechnologie entscheidende Vorteile aufgrund der höheren Arbeitstemperatur oder der höheren charakteristischen Spannung der Josephsonkontakte ergeben. SQUID-Magne-
#### 2.4. HTSL-JOSEPHSONKONTAKTE

tometer, aktive und passive Hochfrequenzbauteile und digitale Schaltungen sind wichtige Anwendungsgebiete und werden im folgenden kurz angesprochen. Referenzen hinter den Überschriften weisen auf aktuelle Übersichtartikel hin.

#### SQUID-Magnetometer [8, 176, 177]

SQUID-Magnetometer erreichen durch Ausnutzung der Flussquantisierung eine Magnetfeldsensitivität pro Flächeneinheit, die vor allem bei niedrigen Frequenzen um mehrere Größenordnungen höher ist, als die der besten alternativen Magnetfeldsensoren. Ihren Kern bildet ein supraleitender Ring mit einem (rf-SQUID) oder zwei (dc-SQUID) Josephsonkontakten. Um die Magnetfeldauflösung zu erhöhen, wird der magnetische Fluss mit einem separaten oder monolithisch integrierten Flusskonzentrator in das SQUID eingekoppelt. Die mit HTSL-SQUIDs bisher erreichte Untergrenze des Magnetfeldrauschens  $S_B^{1/2}(f)$ von  $24 \, \text{fT}/\sqrt{\text{Hz}}$  bei 1 Hz [178, 179] und  $< 10 \, \text{fT}/\sqrt{\text{Hz}}$  bei 1 kHz [180, 181, 182] entspricht etwa der von kommerziellen Nb-SQUIDS. Sie ermöglicht bereits vielfältige Anwendungen in der Medizin (Magnetokardiographie), der Materialprüfung (Risse in Flugzeugteilen), Geophysik (Prospektion von Rohstoffvorkommen) und Mikroskopie (SQUID-Mikroskop).

#### Aktive und passive Hochfrequenzbauteile [126, 183]

Josephsonoszillatoren (vgl. Kap. 2.3.3) sind interessante HF-Quellen im Frequenzbereich oberhalb von 200 GHz. Die Parameterstreuung der HTSL-Kontakte ist derzeit noch zu groß, um hinreichend viele Kontakte kohärent oszillieren zu lassen und damit eine akzeptabel hohe Ausgangsleistung (>  $10 \,\mu$ W) und geringe Bandbreite (<  $10 \,\text{MHz}$ ) zu erzielen (vgl. Kap. 2.3.3). Arrays aus bis zu 1968 LTSL-Josephsonkontakten<sup>6</sup> erreichten dagegen schon Ausgangsleistungen von 850  $\mu$ W bei 240 GHz [184] und Bandbreiten von 750 kHz bei 280 GHz [185].

Überdämpfte (nicht-hysteretische) Josephsonkontakte können als breit- oder schmalbandige *HF-Detektoren* und *Mischer* im Terahertz-Bereich eingesetzt werden [186]. Die Qualität eines Josephsondetektors (genauer: die *noise equivalent power (NEP)*) verbessert sich im RSJ-Modell mit steigendem  $I_c R_n$  [92, 96] und macht damit HTSL-Josephsonkontakte attraktiver als LTSL-Kontakte. Bisher realisierte HTSL-Mischer leiden zur Zeit noch unter geringer Konversionseffizienz und hohen Rauschtemperaturen.

Josephson Transmission Lines, in denen die flussabhängige Induktivität parallelgeschalter SQUIDs für eine Verschiebung der Phase oder der Resonanzfrequenz der Transmission Line ausgenutzt wird, wurden demonstriert. Von den untersuchten aktiven transistor-ähnlichen Bauteilen erreicht bisher nur der Josephson-Vortex-Flow-Transistor eine signifikante Stromverstärkung (20-fach bei 40 K) [187]. Sein Transwiderstand von 5  $\Omega$  ist für eine gute Impedanzanpassung noch zu niedrig, kann aber durch ein höheres  $I_c R_n$  der Josephsonkontakte gesteigert werden.

#### Digitale Schaltungen [6, 7, 8, 126]

HTSL-Josephsonkontakte eignen sich aufgrund ihrer überdämpften IU-Kennlinie und ihrem potentiell hohen  $I_c R_n$  für RSFQ(Rapid Single Flux Quantum)-Schaltungen [188]. Diese derzeit schnellste Logikfamilie stellt die digitalen Grundzustände '0' und '1' durch flussfreie bzw. ein elementares Flussquant enthaltende SQUID-Schleifen dar, die häufig zu

 $<sup>^{6}\</sup>mathrm{LTSL}$  = Suprale iter mit einem niedrigen  $\mathrm{T}_{c}<25\,\mathrm{K},$  wie z.B. klassische Suprale iter.

einer Josephson-Transmission-Line (JTL), einem Hauptbestandteil von RSFQ-Schaltungen, gehören. Die digitale Antwortzeit  $\tau_j = \phi_0/I_c R_n$  einer JTL beträgt für ein  $I_c R_n = 300 \,\mu\text{V}$ , das für LTSL-Josephsonkontakte bei 4.2 K typisch ist, nur 7 ps. Die gegenseitige Abstoßung der Flussschläuche bedingt einen Minimalabstand zwischen ihnen, der die maximale Pulsfrequenz der JTL auf  $0.3/\tau_j ~(\approx 50 \,\text{GHz}$  bei  $I_c R_n = 300 \,\mu\text{V})$  verringert [189].

Josephsonkontakte und die aus ihnen aufgebauten SQUIDs müssen für die Realisierung von RSFQ-Schaltungen folgende Bedingungen erfüllen [158]: (1)  $LI_c \approx \phi_0 \approx 2000 \text{ pH }\mu\text{A}$ , (2)  $\phi_0 I_c \gg kT$ , (3)  $I_c R_n > 300 \,\mu\text{V}$ , (4)  $\sigma(I_c) < 10 \,\%$ . Dabei bezeichnet L die SQUID-Induktivität und  $\sigma(I_c)$  die Standardabweichung von  $I_c$ . Der kritische Strom  $I_c$  sollte möglichst groß sein, um Fehlfunktionen der Schaltung aufgrund thermischer Fluktuationen zu vermeiden(vgl. (2)). Gleichzeitig muss er aber klein genug sein, um die SQUID-Induktivität L unter Beachtung von (1) noch realisieren zu können. Für HTSL wird daher  $I_c > 100 \,\mu\text{A}$  [137], besser  $\approx 500 \,\mu\text{A}$  [135, 140, 158] gefordert, was zu L = 4 (-20) pH und zusammen mit (3) zu  $R_n > 0.6 \,\Omega$  führt. Eine  $I_c$ -Streuung  $< 10 \,\%$  reicht für viele Schaltungen mit  $\sim 100$  Josephsonkontakten aus, muss aber mit zunehmender Kontaktzahl weiter gesenkt werden. Für viele einfachere Logikschaltungen ist bereits eine  $3\sigma$ -Streuung von  $30 \,\%$  tolerierbar [140].

Die Hauptursachen dafür, dass bisher nur einige einfache digitale Prototypschaltungen (Spannungsteiler [190], RS-Flip-Flop mit JTLs [167, 191], T-Flip-Flop [192], logische Gatter [193], einfache A/D-Wandler [194, 195]) mit weniger als 20 Josephsonkontakten realisiert wurden, sind (1) die große  $I_c$ -Streuung der verwendeten HTSL-Kontakte und (2) Probleme mit Streuinduktivitäten, die die einwandfreie Funktion vieler Schaltungen zusätzlich vom Schaltungslayout abhängig machen [196]. Neuere Rampenkontakte mit einer Barriere aus Co-dotiertem [135, 136] oder modifiziertem [137, 159] YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> erreichen mit  $\sigma(I_c) = 3 - 12\%$  geringere Streuungen und ermöglichen durch Integration einer YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Grundplatte SQUID-Induktivitäten von nur 6.6 pH [197]. Infolge dieser Entwicklung sollten digitale Anwendungen von HTSL-Josephsonkontakten in Zukunft an Bedeutung gewinnen. Welche Schaltungskomplexität und Anwendungsvielfalt sich mit einer reproduzierbaren HTSL-Josephsontechnologie eröffnet, zeigt die beeindruckende Entwicklung digitaler Schaltungen auf Basis der Nb/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Nb-Technologie [6].

### Kapitel 3

# Herstellung und Mikrostruktur von $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ - Korngrenzenkontakten

Für die reproduzierbare Einstellung der Transporteigenschaften eines YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> -Korngrenzenkontaktes ist eine homogene Mikrostruktur der Korngrenze essentiell. Die Homogenitätsskala ist gegeben durch die YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Kohärenzlänge  $\xi_{ab} \approx 1.4$  nm [37, 38] und stellt hohe Anforderungen an den Präparationsprozess. Im folgenden wird die Präparation der Stufenkantenkontakte vorgestellt, die ab der Filmdeposition identisch mit der Präparation der Bikristallkontakte ist. Alle Lithographie- und Strukturierungsschritte wurden im Reinraum des Fachbereichs Elektrotechnik (Luftreinheitsklasse 100)<sup>1</sup> ausgeführt, um die Partikelkontamination zu minimieren.

#### 3.1 Präparation einer Substratstufe

Neben dem YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Depositionsprozess bestimmt die Qualität der Substratstufe wesentlich die Transporteigenschaften der Stufenkantenkontakte [132, 199]. Die Substratstufen wurden mittels Ar<sup>+</sup>-Ionenstrahlätzen durch UV-lithographierte Photolackmasken erzeugt. Damit wurde ein einfacher, leicht auf eine höhere Integrationsdichte skalierbarer Prozess gewählt, dessen Teilschritte detailliert untersucht und optimiert wurden.

#### 3.1.1 Substratauswahl

Für die Herstellung von Stufenkantenkontakten geeignete Substratmaterialien müssen zunächst die Voraussetzungen für ein epitaktisches Wachstum der  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Filme erfüllen:

- Einkristallinität
- glatte, epipolierte Substratoberfläche

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Die meisten Arbeitsschritte wurden in einem laminaren Luftstrom unter Filtern der Luftreinheitsklasse 10 durchgeführt. Die Luftreinheitsklassen (nach der amerikanischen Norm FS 209 C, bzw. der VDI-2083 Richtlinie für Reinraumtechnik) geben die zulässige Partikelanzahl pro Kubikfuß (= 28.317 Liter) Reinraumluft für verschiedene Partikelgrößen  $d_p$  an. In der Reinheitsklasse 100 (10) gelten z.B. folgende Obergrenzen für die Partikelanzahl pro Kubikfuß:  $d_p \ge 0.1 \,\mu\text{m}$ : k.A. (350),  $d_p \ge 0.2 \,\mu\text{m}$ : 750 (75),  $d_p \ge 0.3 \,\mu\text{m}$ : 300 (30),  $d_p \ge 0.5 \,\mu\text{m}$ : 100 (10) [198].

Material	Fehlanpassung <sup>1)</sup>		Ausdehnung	$\epsilon_r$	$ an\delta$	Referenzen
	$\frac{\Delta a}{a}$ [%]	$\frac{\Delta b}{b}$ [%]	$[10^{-6}/{ m K}]$	(77 K)	(77  K)	
MgO	-9.0	-6.7	13.8	10	$6.2 \times 10^{-6}$	[200 - 204]
$\mathrm{Al}_2\mathrm{O}_3^{2)}$	0.0	1.3	8	$\approx 10$	$10^{-8}$	[200 - 202, 205, 206]
$LaAlO_3$	-0.9	-2.2	10	$\approx 24$	$7.6 \times 10^{-6}$	[200 - 202, 207]
$\rm SrTiO_3$	2.0	0.7	10.5	$\approx 2000$	$3 \times 10^{-4}$	[209, 200]
$NdGaO_3$	0.3	0.3	10	23	$4 \times 10^{-4}$	[200 - 202, 208]

Tab. 3.1: Materialparameter häufig verwendeter Substrate

1) Fehlanpassung des Substratkristallgitters an das YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Kristallgitter ( $a = a_{YBCO} = 0.382$  nm [209],  $\Delta a = a_{Substrat} - a$ ;  $b = b_{YBCO} = 0.388$  nm [209],  $\Delta b = b_{Substrat} - b$ )

2) Saphir mit  $CeO_2$  - Pufferschicht

- an YBa<br/>2Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> angepasste Gitterparameter und thermische Ausdehnungsko<br/>effizienten
- chemisch inertes Verhalten gegenüber dem aufwachsenden Film und den für die Strukturierung erforderlichen Prozesschemikalien

Im Hinblick auf die Ausnutzung des AC-Josephsoneffektes in SQUIDs, Josephsonoszillatoren und HF-Detektoren (vgl. Kap. 2.4.3) und die Integration von Josephsonkontakten in Mikrowellenbauteile sollte eine zukunftsweisende Technologie darüberhinaus hochfrequenz(HF)-taugliche Substrate verwenden. Damit ergeben sich folgende zusätzlichen Anforderungen an das Substratmaterial:

- geringer Verlustwinkel  $\tan \delta(77 K) < 10^{-4}$
- räumlich homogenes  $\epsilon_r < 100$  [208]
- Verfügbarkeit großflächiger Substrate mit  $\emptyset \ge 2$  Zoll

In Tabelle 3.1 sind häufig verwendete Substratmaterialien zusammengefasst. Ihre Vor- und Nachteile werden im folgenden kurz diskutiert. Alle fünf Materialien sind mit dem thermischen Ausdehnungskoeffizienten von  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  ( $\approx 11 \times 10^{-6}/ \text{K}$  [209]) kompatibel und erlauben die Herstellung rissfreier Filme.

MgO besitzt attraktive Hochfrequenzeigenschaften, ist aber hygroskopisch und damit nicht inert gegenüber den Prozesschemikalien. Die degradierte Oberflächenschicht kann zwar in-situ abgetragen und durch eine homoepitaktisch aufgewachsene MgO-Schicht unmittelbar vor der Filmdeposition ersetzt werden [210], aber dieser Weg ist technologisch aufwendig. Außerdem ist die Gitterfehlanpassung von MgO recht groß und die mechanische Festigkeit gering.

 $Al_2O_3$ -Substrate erzeugen die geringsten HF-Verluste und sind bis zu einem Durchmesser von 100 mm kommerziell erhältlich. Um während der Filmdeposition eine Al-Diffusion in die YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Schicht zu verhindern [211, 212], muss eine Pufferschicht (meist CeO<sub>2</sub>) aufgebracht werden. Die Herstellung epitaktischer Pufferschichten in der Flanke

#### 3.1. PRÄPARATION EINER SUBSTRATSTUFE

der Substratstufe erscheint im Vergleich zu den folgenden Alternativen technologisch aufwendig.

 $LaAlO_3$  erfüllt bis auf die Oberflächenqualität alle Kriterien hinreichend gut. Die Verzwillingung dieses Kristalls und die daraus resultierende Oberflächenrauhigkeit werden auf einen strukturellen Phasenübergang bei 500°C zurückgeführt [213, 214]. Der in dieser Arbeit beobachtete maximale Steigungswinkel der Zwillingsdomänen  $\alpha_z = 3^{\circ}$  ist aber deutlich kleiner als der zur Korngrenzenausbildung notwendige Stufenwinkel >45° [152] und sollte daher nicht zur Entstehung zusätzlicher weak links (vgl. Kap. 2.3.1) führen. Daher wurde LaAlO<sub>3</sub> als Substratmaterial für die im folgenden beschriebene Präparation von Stufenkantenkontakten ausgewählt.

 $SrTiO_3$  besitzt eine etwas bessere Anpassung der Gitterparameter und des thermischen Ausdehnungskoeffizienten als LaAlO<sub>3</sub>, kommt aber wegen des stark temperaturabhängigen, hohen  $\epsilon_r$  und des schlechten tan $\delta$  für Hochfrequenzanwendungen nicht in Frage. In der ersten Entwicklungsphase von YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenzenkontakten und -SQUIDs wurde SrTiO<sub>3</sub> häufig als Modellsubstrat verwendet [150, 215], da frühzeitig SrTiO<sub>3</sub>-Bikristalle verfügbar waren und es mechanisch stabiler als LaAlO<sub>3</sub> ist.

 $NdGaO_3$  hat nahezu ideale Gitterparameter, ist nicht verzwillingt und besitzt sonst ähnliche Eigenschaften wie LaAlO<sub>3</sub>. Es zeigt aber, wie andere Nd-haltige Substratmaterialien auch, eine anomale Temperaturabhängigkeit des tan $\delta$  [201], die für T  $\leq$  77 K zu meist untolerabel hohen Hochfrequenzverlusten führt.

Andere hier nicht vorgestellte Substratmaterialien haben eine schlechte Gitteranpassung, spalten leicht (SrLaAlO<sub>4</sub> [216]) oder erzeugen hohe HF-Verluste bzw. sind daraufhin noch nicht untersucht (LaGaO<sub>3</sub> [217], PrGaO<sub>3</sub> [218]). Eine recht neue Alternative zu LaAlO<sub>3</sub> ist das verwandte, aber zwillingsfreie (La<sub>0.30</sub>Sr<sub>0.70</sub>)(Al<sub>0.65</sub>Ta<sub>0.35</sub>)O<sub>3</sub> [219].

#### 3.1.2 Substratvorbehandlung

Standardmäßig wurden doppelseitig polierte  $10 \times 10 \times 0.5 \text{ mm}^3 \text{ LaAlO}_3$ -Substrate<sup>2</sup> verwendet, die sich bereits bei der Präparation epitaktischer Filme mit hoher kritischer Stromdichte und geringem Oberflächenwiderstand bewährt hatten [220]. Mittels Rasterkraftmikroskopie (AFM)<sup>3</sup> und eines mechanischen Profilometers (Dektak IIa) wurde die Oberflächenmorphologie der Substrate untersucht. Auf einer lateralen Skala von wenigen Mikrometern ist die Oberflächenrauhigkeit geringer als 1 nm. In stark verzwillingten Bereichen beträgt die Zwillingshöhe bis zu 200 nm und die Zwillingsteigung bis zu 3°. Zwillingsabstände zwischen 10 und 100  $\mu$ m sind typisch.

Vor dem ersten Prozessschritt ist es wichtig, möglichst alle Partikel von der Substratoberfläche zu entfernen. Als wirkungsvollste Methode erwies sich das Abwischen des Substrats mit einem propanolgetränkten Schaumstofftupfer<sup>4</sup>, gefolgt von einer Propanolspülung und der Trocknung mittels N<sub>2</sub>-Druckpistole.

Wird der Photolack direkt auf das Substrat aufgebracht (vgl. Kap. 3.1.3), ist oft eine ungleichmäßige Schichtdicke und eine unzureichende Haftung schmaler Lackstrukturen zu beobachten. Der in der Halbleiterindustrie häufig verwendete Haftvermittler Hexamethyldisilazan löst dieses Problem, hinterlässt aber eine mittels EDX-Analyse nachgewiesene

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Hersteller: Fa. Crystal GmbH, Berlin, und Fa. CrysTec GmbH, Berlin.

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Die AFM-Untersuchungen wurden von R. Stephan (Fachbereich Elektrotechnik, Bergische Universität Wuppertal) und Dr. Bernard Dam (Freie Universität Amsterdam) durchgeführt.

 $<sup>^4 \</sup>mathrm{z.B.}$ Schaumstofftupfer TX700 der Fa. Dastex, Muggensturm.

Si-haltige Schicht auf der Substratoberfläche, die sich weder durch organische Lösungsmittel noch durch eine Heizbehandlung vollständig beseitigen lässt. Da Silizium während der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Deposition in den aufwachsenden Film hineindiffundiert und die supraleitenden Eigenschaften des Films verschlechtert oder zerstört, wurde Hexamethyldisilazan nicht weiter verwendet.

Deponiert man stattdessen vor der Belackung eine 30 nm dicke Goldschicht auf dem Substrat, dann verteilt sich der Photolack sehr gleichmäßig und haftet gut. Die Goldschicht lässt sich wieder vollständig entfernen und erlaubt darüberhinaus höhere Belichtungsdosen bei der Randentlackung (vgl. Kap. 3.1.3), da sie die ungewollte Belichtung abgedeckter Photolackbereiche durch im Substrat mehrfach reflektiertes UV-Licht reduziert.

#### 3.1.3 UV-Lithographie

Abbildung 3.1 gibt schematisch den Stufenpräparationsprozess wieder, der im folgenden detailliert vorgestellt wird. Bevor eine Stufe in das Substrat geätzt wird, muss mit Hilfe eines Lithographieverfahrens eine Schicht auf der Substratoberfläche strukturiert werden (Ätzmaske), die von ihr abgedeckte Bereiche vor dem Ätzangriff schützt.

Ein schnelles, aus der Halbleitertechnologie stammendes Verfahren ist die UV-Kontaktlithographie [198]. Dabei wird eine Photolackschicht durch eine direkt auf ihr aufliegende Maske hindurch mit ultraviolettem Licht eines schmalen Wellenlängenbereichs bestrahlt. Das UV-Licht verändert chemisch den Photolack so, dass er im Entwickler aufgelöst wird und nur die von der UV-Maske abgedeckten Bereiche stehen bleiben (Positivprozess). Mit dem Photolack AZ5214E<sup>5</sup> kann sowohl ein Positiv- als auch ein Negativprozess, bei dem nur die belichteten Bereiche stehen bleiben, durchgeführt werden. Er erlaubt minimale Linienbreiten von  $0.5 \,\mu$ m und eine Genauigkeit von 50-100 nm.

Noch präzisere Lackstrukturen mit einer Linienbreite  $\leq 100$  nm und einer Genauigkeit von  $\approx 20$  nm können mittels Elektronenstrahllithographie hergestellt werden. Der Elektronenstrahl übernimmt hier die chemische Modifizierung der zu entwickelnden Lackschichtbereiche. Die Elektronenstrahllithographie erfordert aber nicht nur ein Belichtungssystem mit hochstabilem Elektronenstrahl, sondern ist vor allem bei großflächigen Strukturen sehr zeitintensiv und damit im Hinblick auf industrielle Produktionsraten und "Wafer-Scaling" einem UV- oder Röntgenlithographieprozess klar unterlegen<sup>6</sup>. Ferner konnte bisher kein Vorteil der Elektronenstrahl- gegenüber der UV-Kontaktlithographie im Hinblick auf die Transporteigenschaften von Stufenkantenkontakten nachgewiesen werden [132].

Der im folgenden beschriebene UV-Lithographieprozess dient zur Herstellung der Photolack-Ätzmaske für das anschließende Ar<sup>+</sup>-Ionenstrahlätzen der Substratstufe. Er wurde – wie auch die in Kap. 3.2.2 und 3.2.3 beschriebenen UV-Lithographieprozesse und das Ar<sup>+</sup>-Ionenstrahlätzen (vgl. Kap. 3.1.4 und 3.2.3) – im Reinraum des Fachbereichs Elektrotechnik durchgeführt. Das dort vorhandene Belichtungsgerät (Süss MJB3 UV 300/400) verwendet UV-Licht der Wellenlänge  $\lambda \approx 320$  nm. Die im folgenden angegebenen Parameter wurden in verschiedenen Testreihen empirisch ermittelt oder aus früheren Arbeiten übernommen [221, 222].

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>Hersteller: Fa. Hoechst

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup>Eine allgemeine Einführung in die Grundlagen der Mikrostrukturierung findet sich in [198].



Abb. 3.1: Herstellung der Substratstufe (schematisch). Weitere Erläuterungen im Text.

- Belackung
  - 5-6 Tropfen Photolack AZ5214E auf das mit einer 30 nm dünnen Goldschicht bedeckte $10 \ge 0.5 \, \rm mm^3$  LaAlO\_3-Substrat tropfen
  - $-30 \sec$  Schleudern bei  $8000 \text{ U/min} \rightarrow 1.0 \,\mu\text{m}$  Schichtdicke
  - -5 min Trocknen bei 106°C unter Vakuum
- Randentlackung
  - Belichtung der Randbereiche (soft contact), Dosis:  $500 \,\mathrm{mJ/cm^2}$
  - 100 sec entwickeln in (1:4)-verdünntem Entwickler  $\rm AZ400K^5$
- Strukturlithographie
  - Strukturbelichtung mit einer Cr-Maske (high pressure), Dosis: 110 mJ/cm<sup>2</sup>
  - 40-60 sec entwickeln in (1:4)-verdünntem Entwickler AZ400K
- Aushärtung der Lackstruktur
  - Flutbelichtung, Dosis:  $640 \,\mathrm{mJ/cm^2}$
  - 10 min Aushärten des Photolacks bei 120°C unter Vakuum

Während der Photolack nach außen geschleudert wird, bilden sich durch Adhäsion und Oberflächenspannung in den Ecken des Substrates Lackwülste von mehr als  $10 \,\mu m$  Höhe aus. Werden sie nicht, wie im Prozessschritt Randentlackung beschrieben, entfernt, verhindern sie in der Substratmitte den direkten Kontakt zwischen Photolackschicht und Maske, was zu abgeflachten, ungleichmäßigen Lackflanken führt. Da die Qualität der Lackflanke wesentlich die Qualität der späteren Substratstufe beeinflusst, kommen für die Strukturlithographie nur Chrommasken mit extrem geringer Strukturrauhigkeit ( $< 50 \,\mathrm{nm}$ ) in Frage<sup>7</sup>. Im "high pressure"-Modus des Belichtungsgerätes wird ein Vakuum zwischen der Maske und der Lackschicht erzeugt. Das Vakuum sorgt für optimalen Maskenkontakt, wenn durch einen Abstandsring um das Substrat herum ein Durchbiegen der Maske infolge des Anpressdrucks vermieden wird. Lokale Abstandsschwankungen aufgrund von Substratzwillingen oder Partikeln können anhand des Kontrasts und der Dichte der entstehenden Interferenzringe beurteilt und ggf. korrigiert werden. Die abschließende Flutbelichtung und das Tempern des Lacks bei 120°C führt zu einer dreidimensionalen Vernetzung der Polymerketten und damit zu einer besseren Resistenz gegen das Ionenstrahlätzen. Eine Rasterelektronenmikroskop(REM)-Aufnahme einer typischen, nach diesem Verfahren hergestellten Lackflanke ist in Abb. 3.2 dargestellt.

Alle REM-Aufnahmen in dieser Arbeit mit einer Kopfzeile wie in Abb. 3.2 wurden selbst mit dem Elektronenmikroskop des Fachbereichs Elektrotechnik angefertigt. Die Kopfzeile gibt die Vergrößerung (in Abb. 3.2: 15300-fach), die Beschleunigungsspannung in kV und den Abstand der Fokussiereinheit von der Probenoberfläche in mm an. Die Längenskala (in Abb. 3.2: 2 $\mu$ m-Strich) gilt für Lateralabstände senkrecht zur Blickrichtung, aber aufgrund des von Bild zu Bild unterschiedlichen Blickwinkels nicht für Vertikalabstände.

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup>Die geradlinigsten Lackstrukturen wurden mit Chrommasken erzielt, die von Fr. Nonn vom Institut für Schicht- und Ionentechnik des Forschungszentrums Jülich hergestellt wurden.



Abb. 3.2: Typische  $1 \mu m$  hohe Photolackflanke (links befindet sich der Photolack).

#### 3.1.4 Ar<sup>+</sup>-Ionenstrahlätzen

Das Ionenstrahlätzen ist zur Zeit das einzige Ätzverfahren für LaAlO<sub>3</sub>. Es sind weder nasschemische Ätzmethoden noch ein geeignetes Arbeitsgas für reaktives Ionenätzen (RIE) bekannt [221].

Die zur Verfügung gestellte Ar<sup>+</sup>-Ionenätzanlage Millatron der Fa. Commonwealth Scientific Corporation verfügt über eine 10 cm-Kaufman-Ionenquelle und eine defokussierende Ionenoptik aus Molybdän. Am Ort des wassergekühlten, rotierenden Probentellers ( $\emptyset = 85 \text{ mm}$ ) variiert die Ar<sup>+</sup>-Ionenstrahldichte bei einer Strahlenergie von 500 eV um weniger als  $\pm 2\%$  auf der maximalen, mit Substraten belegten Kreisfläche von  $\emptyset$  60 mm [222]. Die Schwankung der Stufenhöhe auf einem Substrat beträgt weniger als 1%. Mit einer typischen Ionenstromdichte von  $\approx 0.2 \text{ mA/cm}^2$  erhält man in Abhängigkeit vom Strahleinfallswinkel Ätzraten von 8-12 nm/min.

Das Ionenstrahlätzen bietet eine hervorragende Strukturauflösung im sub- $\mu$ m-Bereich, aber eine deutlich geringere Selektivität (Quotient der Ätzraten von Ätzmaske und Substrat) als reaktive Ionenätzverfahren oder nasschemisches Ätzen. Mit der gehärteten Photolackmaske (vgl. Kap. 3.1.3) erreicht man für LaAlO<sub>3</sub> eine Selektivität von 1-1.2, wenn der N<sub>2</sub>-Anteil am Arbeitsdruck von  $2 \times 10^{-4}$  mbar weniger als 0.1 % beträgt. N<sub>2</sub>-Ionen ätzen den Photolack wesentlich schneller als Ar<sup>+</sup>-Ionen. Sie lassen sich aber nicht völlig vermeiden, da während jeder Belüftung des Rezipienten Stickstoff an den Edelstahlwänden adsorbiert wird, der bei der Plasmazündung wieder desorbiert. Es ist sinnvoll, vor und während des Ätzprozesses den Restgasanteil mit Hilfe eines Massenspektrometers zu kontrollieren, um ein Leck rechtzeitig zu bemerken. Eine erhöhte Photolackätzrate verschlechtert nicht nur die Selektivität und damit die Flankendefinition und die Strukturauflösung, sondern führt im ungünstigsten Fall dazu, dass die Photolackmaske durchgeätzt ist, bevor die gewünschte Ätztiefe im Substrat erreicht wurde.

Resistentere Ätzmasken aus einer Kohlenstoffmodifikation (amorph [223] oder diamantähnlich (DLC) [224]) oder einem refraktiven Metall (z.B. Nb [152]) erreichten zwar auf Kosten einer aufwendigeren Stufenpräparation eine Selektivität im Bereich von 1.5 - 2.5, führten aber im Vergleich zu der hier vorgestellten Präparation nicht zu besseren Transporteigenschaften der Stufenkantenkontakte. Diese Ätzmaskentypen wurden daher nicht



Abb. 3.3: Lage der Substrate (grau ausgefüllt) auf dem rotierenden Probenteller während des Ar<sup>+</sup>-Ionenätzens. a) Prozess A. b) 1. Ätzschritt aus Prozess B. Die beiden Striche auf dem mittleren Substrat geben die Lage der beiden Substratstufen an. Weitere Erläuterungen im Text.

näher untersucht, zumal ihre Herstellung den Aufbau einer RIE-Anlage erfordert hätte.

Um ein Fließen oder eine thermische Zersetzung des Photolacks während des Ätzprozesses auszuschließen, ist eine gute Wärmeleitung zwischen Substrat und wassergekühltem Probenhalter erforderlich. Sie kann durch Verwendung von Silberleitpaste oder eines wärmeleitfähigen Vakuumfettes (z.B. Apiezon H) als Haftmittel erreicht werden. Die Silberpartikel kontaminieren aber beim Ablösen der Silberleitpaste den Stufenbereich, während sich Apiezon H mit Heptan vollständig entfernen lässt. Die Kryotauglichkeit und die hohe, nur schwach temperaturabhängige Viskosität, die nachträgliche Lagekorrekturen zulässt, sind weitere Vorteile von Apiezon H, das aus diesen Gründen den Vorzug erhielt.

In Anlehnung an frühere Arbeiten im Forschungszentrum Jülich [152] wurde zunächst ein Ätzprozess (im folgenden *Prozess A* genannt) untersucht, bei dem der Winkel  $\alpha_n$  zwischen Ar<sup>+</sup>-Strahl und Substratnormale 10° beträgt und der Probenteller rotiert (vgl. Abb. 3.3 a). Für kleinere Winkel  $\alpha_n$  ist der Ar<sup>+</sup>-Strahl nicht in der Lage alle in der Lackflanke redeponierten Substratteilchen wieder abzutragen. Es entstehen Redepositionsreste, die die obere Stufenkante um einige 100 nm überragen können (vgl. Abb. 3.1). Die Ar<sup>+</sup>-Ionen werden an der Flanke vorzugsweise reflektiert und erhöhen so die Ätzrate nahe der unteren Stufenkante, was dort zu einer Grabenbildung führt. Für  $\alpha_n > 30^\circ$  ist die untere Stufenkante stark verrundet. Stufenkantenkontakte mit dieser Stufengeometrie besitzen zwei Korngrenzen mit nahezu gleichen kritischen Strömen [152], was für die meisten Anwendungen ungünstig ist.

Prozess A liefert  $\approx 65-70^{\circ}$  steile Stufen, die aber eine hohe Flankenrauhigkeit aufweisen. Um die Ursache zu klären, wurden Rasterelektronenmikroskop(REM)-Aufnahmen vor und unmittelbar nach dem Ätzprozess angefertigt. Vor dem Ätzprozess ist die Lackflanke steil. Sie zeigt nur eine geringe Welligkeit, die durch Intensitätsmaxima und -minima der Interferenz zwischen einfallendem und an der Goldschicht relektiertem UV-Licht während der Belichtung hervorgerufen wird (vgl. Abb. 3.4). Nach dem Ätzprozess dagegen ist die



Abb. 3.4: Typische Photolackflanke (Ausschnitt von Abb. 3.2)





Mit Prozess A geätzte Substratstufe mit restlichem Photolack, der nach dem  $Ar^+$ -Ionenätzen zahlreiche kraterartige Vertiefungen von etwa 100-150 nm Durchmesser in seiner Oberfläche aufweist.



Abb. 3.6: Ausschnitt von Abb. 3.5

Lackflanke auf halber Höhe abgeschrägt (vgl. Abb. 3.5 und Abb. 3.6). Dieses Flankenprofil entsteht durch die Rotation des Ar<sup>+</sup>-Strahls relativ zur Lackflanke und wird prinzipiell in [152] diskutiert. Mit fortschreitendem Ätzprozess wandert die Schräge nach unten und begrenzt die erreichbare Stufenhöhe bei einer 1  $\mu$ m dicken Photolackschicht auf etwa 350 nm. Wie Abb. 3.5 zeigt, bilden sich während des Ar<sup>+</sup>-Ionenstrahlätzens, vermutlich aufgrund lokaler Lackdichteschwankungen, kraterartige Vertiefungen in der zuvor glatten (vgl. Abb. 3.2) Lackschicht. Direkt an der Lackflanke entwickeln sich diese Vertiefungen zu rinnenförmigen Aushöhlungen, die sich bis in die Substratstufe fortsetzen (vgl. Abb. 3.6). Sie sind die Ursache für die schon in früheren Arbeiten [222] beobachtete Flankenrauhigkeit der Substratstufe.

Vor der Deposition des  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Films werden folgende Reinigungsschritte ausgeführt:

- 1. Entfernung des Apiezons von der Substratrückseite durch Abwischen mit (heptangetränkten) Wattestäbchen und ein abschließendes Heptanbad
- 2. Ablösen der Photolackschicht im Acetonbad
- 3. Goldschichtentfernung in einer KJ/J-Methanollösung<sup>8</sup>
- 4. mechanische Beseitigung von Redepositionsresten im Acetonbad (mittels Wattestäbchen)
- 5. abschließende Reinigung mit propanolgetränkten Schaumstofftupfern

Wesentlich glattere und steilere Substratstufen wurden mit folgender Ätzprozesskombination erzielt (Prozess B):

- Ar<sup>+</sup>-Ionenstrahlätzen unter 45° parallel zur Lackflanke (vgl. Abb. 3.3 b)
- kurzes Abätzen (1:40 min) wie in Prozess A, aber  $\alpha_n = 45^{\circ}$  (wird *nach* der mechanischen Beseitigung der Redepositionsreste durchgeführt)

Für den ersten Schritt, den Stufenätzprozess, werden die Substrate auf 45° abgeschrägten, graphitbeschichteten Kupfersockeln so befestigt, dass die Lackflanken mit einer Genauigkeit von  $\pm$  1° radial zur Probentellermitte ausgerichtet sind. Diese Anordnung erlaubt es, durch die Rotation des Probentellers räumliche Inhomogenitäten des Ar<sup>+</sup>-Strahls auszugleichen, ohne dass sich die Einfallsrichtung des Strahls relativ zur Lackflanke ändert. Abbildung 3.7 zeigt eine Stufe mit restlicher Photolackschicht nach dem ersten Ar<sup>+</sup>-Ionenstrahlätzen.

Die Lackflanke ist nach wie vor steil, weist aber Riefen parallel zur Einfallsrichtung des  $Ar^+$ -Strahls auf. Schon in diesem Stadium ist die Stufenqualität deutlich besser als bei Prozess A. Der zweite Ätzprozess nach der mechanischen Beseitigung der Redepositionsreste glättet die Riefen ohne das Stufenprofil signifikant zu verändern. Typischerweise werden so Flankenrauhigkeiten von weniger als 30 nm erreicht. Der resultierende Stufenwinkel ist mit 70-75° etwas größer als bei Prozess A. Die Abbildungen 3.8 und 3.9 dokumentieren die hohe Qualität der nach Prozess B präparierten Substratstufen für verschiedene Stufenhöhen.

 $<sup>^8\</sup>mathrm{Zusammensetzung:}$  300 ml Methanol, 2 g J\_2, 8 g KJ







Nach Prozess B geätzte Stufe mit restlichem Photolack (rechts) in hoher Vergrößerung. Die Grenze zwischen Photolack und Substrat ist in der Stufenflanke nicht zu erkennen.

Abb. 3.8: 250 nm hohe Stufe (Prozess B)



Abb. 3.9: 560 nm hohe Stufe (Prozess B)

#### 3.1.5 Bikristallsubstrate – ein alternativer Weg zum Korngrenzenkontakt

Neben den hauptsächlich untersuchten Stufenkantenkontakten wurden zum Vergleich Bikristallkontakte auf einigen SrTiO<sub>3</sub>-Bikristallsubstraten hergestellt. Unter den Korngrenzenkontakten bieten Bikristallkontakte die einfachste Präparation (es muss nur ein HTSL-Film deponiert und strukturiert werden) und in der Regel die beste Reproduzierbarkeit charakteristischer Parameter. Bikristallsubstrate sind aber mit ungefähr 500 DM pro 10 x 10 mm<sup>2</sup>-Substrat knapp zehnmal teurer als entsprechende Einkristallsubstrate und limitieren darüberhinaus die Position der Josephsonkontakte im Layout. Daher werden Bikristallkontakte vorwiegend eingesetzt, um die Funktionsfähigkeit von Prototypschaltungen nachzuweisen. Ihre kritische Stromdichte  $J_c$  und ihre charakteristische Spannung  $I_cR_n$  nehmen mit wachsendem Korngrenzenwinkel  $\alpha_k$  ab [143]. Um hohe  $J_c$ - und  $I_cR_n$ -Werte zu erzielen, wurde mit  $\alpha_k = 24^{\circ}$  der kleinstmögliche Korngrenzenwinkel gewählt, für den eine gute Kristallgitteranpassung gegeben ist.

Bikristallsubstrate werden aus zwei unter dem gewünschten Winkel zusammengefügten Einkristallen geschnitten. Die Qualität der Bikristallkorngrenze ist von ähnlicher Bedeutung für die Transporteigenschaften der Josephsonkontakte wie die der Substratstufe, wird aber allein vom Substrathersteller bestimmt. Qualitätskriterien, die außer den bereits in Kap. 3.1.1 genannten Kriterien zusammen mit dem Filmwachstum die Ausbildung der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenze bestimmen, sind [225]

- der Winkel zwischen den Normalen der beiden Substrathälften,
- die Abweichung vom angestrebten Korngrenzenwinkel und
- die Dichte und Größe der Löcher entlang der Korngrenze, die sich bei der Bikristallherstellung nicht völlig vermeiden lassen.

Eine detaillierte Untersuchung der Korngrenzen in hochdruckgesputterten  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Filmen auf SrTiO<sub>3</sub>-Bikristallsubstraten findet sich in [225].

Die Vorbehandlung der Bikristallsubstrate vor der Deposition des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Films beschränkte sich auf die Beseitigung der Partikel von der Oberfläche. Alle im folgenden beschriebenen Präparationsschritte gelten für Stufenkantenkontakte und Bikristallkontakte gleichermaßen.

#### 3.2 Deposition und Strukturierung des $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Films

In diesem Unterkapitel wird die weitere Präparation der Stufenkanten- und Bikristallkontakte von der Filmdeposition über die Metallisierung und Strukturierung bis zur Kontaktierung vorgestellt. Im Vordergrund stehen dabei technologische Aspekte. Die Mikrostruktur der Korngrenzenkontakte wird in Kap. 3.3 analysiert.

#### 3.2.1 Filmdeposition durch Hochdrucksputtern und Laserablation

Mit folgenden Depositionsverfahren wurden  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Filme auf Substratstufen abgeschieden:

#### 1. Planares DC-Hochdrucksputtern, Universität Wuppertal<sup>9</sup>

Seit 1990 wird an der Universität Wuppertal planares DC-Hochdrucksputtern erfolgreich zur Präparation von epitaktischen, großflächigen YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filmen mit niedrigem Oberflächenwiderstand eingesetzt [208, 226, 227]. Beim DC-Hochdrucksputtern wird in der Nähe eines stöchiometrischen YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Targets, das als Kathode dient, eine stationäre Glimmentladung erzeugt. Dort entstehende positive Ionen werden im elektrischen Feld beschleunigt und zerstäuben das Target. Die herausgeschlagenen Teilchen wachsen auf einem Substrat auf, das unter dem Target auf einem Widerstandsheizer liegt. Der für einen Sputterprozess hohe Druck  $p(O_2) \geq 150$  Pa des O<sub>2</sub>-Arbeitsgases vermeidet Rücksputtereffekte.

#### 2. Gepulste Laserablation in off-axis-Geometrie, ISI, FZ Jülich<sup>10</sup>

Bei dieser Depositionstechnik werden 20 ns kurze energiereiche Laserpulse (1J/Puls) eines KrF-Excimer-Lasers ( $\lambda = 248 \text{ nm}$ ) auf ein rotierendes, stöchiometrisches YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Target fokussiert. Die deponierte Energie führt lokal zu einer explosionsartigen Verdampfung des Targetmaterials. Während in on-axis-Geometrie der Targetteilchenstrom direkt auf das geheizte Substrat gerichtet ist, verläuft er in der hier verwendeten off-axis-Geometrie [228] parallel zur Substratoberfläche. Zwischen Probenteller und Strahlungsheizer werden die Targetteilchen durch Mehrfachstreuung am O<sub>2</sub>-Arbeitsgas abgebremst und teilweise auf dem Substrat abgeschieden. So vermeidet die off-axis-Geometrie die Deposition von größeren Teilchenagglomeraten ("Droplets"). Durch Rotation des Probentellers konnten simultan vier gestufte Substrate gleichförmig beschichtet werden. In Tabelle 3.2 sind charakteristische Parameter der beiden verwendeten YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Depositionsverfahren und der resultierenden Filme gegenübergestellt.

#### Vergleich des Filmwachstums und der Filmeigenschaften

DC-Hochdrucksputtern und (off-axis-)Laserablation unterscheiden sich grundsätzlich in der Dynamik des Filmwachstums. Während beim Hochdrucksputtern das Targetmaterial in einem Gleichgewichtsprozess mit einer konstanten Rate von 1-2 nm/min deponiert wird, herrscht bei der Laserablation extremes Nichtgleichgewicht. Wenige Mikrosekunden nach einem Laserpuls wird eine Depositionsrate von ~ 100 nm/min erreicht, die in den folgenden 100 Millisekunden bis zum nächsten Laserpuls soweit relaxiert, dass sich eine mittlere Depositionsrate von  $\approx$  7 nm/min ergibt [229]. Die pulsartige Deposition und der geringere O<sub>2</sub>-Partialdruck führen zu einer deutlich größeren Oberflächendiffusion als im Falle des DC-Hochdrucksputterns (vgl. Kap. 3.3.2). Das kurzzeitig sehr hohe Materialangebot bei der Laserablation erlaubt die Bildung von Keimen für ein zweidimensionales Schichtwachstum [230]. Beim Hochdrucksputtern kommt dagegen nur die energetisch günstigere Anlagerung des Targetmaterials an Wachstumsstufen in Frage, die meist aus Schraubenversetzungen in der Substratoberfläche hervorgehen und Teil einer Wachstumsspirale sind. Eine detaillierte Diskussion des unterschiedlichen Filmwachstums mit besonderem Augenmerk auf den Stufenbereich wird in Kap. 3.3 vorgestellt.

Das Abkühlen des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Films nach der Deposition erfolgte bei beiden Verfahren in einer reinen Sauerstoffatmosphäre. In der Regel wurde eine Filmdicke von 200 nm gewählt, die einerseits klein genug ist, um Spielraum für das Verhältnis der Stufenhöhe h

<sup>&</sup>lt;sup>9</sup>Die hochdruckgesputterten Filme wurden von M. Getta, M. Lenkens und R. Wagner hergestellt.

<sup>&</sup>lt;sup>10</sup>Die laserablatierten Filme wurden von J. Schubert und W. Zander hergestellt.

Größe		DC-Hochdrucksputtern	Off-axis Laserablation
Substrattemperatur	[°C]	720 - 780	750
$O_2$ -Partialdruck	[Pa]	150 - 400	50
mittl. Depositionsrate	[nm/min]	1 - 2	7
Peak-Depositionsrate	[nm/min]	1 - 2	$\sim 100$
Diffusionskoeffizient <sup>1)</sup>	$[\mathrm{cm}^2/\mathrm{s}]$	$\geq 10^{-14}$	$\sim 10^{-12}$
Wachstumsmode		Spiralwachstum	2D-Wachstum
O <sub>2</sub> -Nachbeladung		ja	ja
Filmdicke	[nm]	200	200
$T_c$	[K]	89 - 92	89 - 90
$\Delta T_c$	[K]	0.35 - 0.6	0.5 - 0.7
$J_c(77 \mathrm{K})$	$[MA/cm^2]$	2 - 5	1.5 - 2.5
$\mathrm{R}_s(77\mathrm{K},87\mathrm{GHz})$	$[m\Omega]$	12 - 16	16 - 19

Tab. 3.2: Charakteristische Parameter der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Depositionsverfahren und der resultierenden Filmeigenschaften

1) Die angegebenen Diffusionskoeffizienten für die Oberflächendiffusion der Wachstumseinheiten während des Filmwachstums sind Schätzwerte (vgl. Kap. 3.3.2).

zur Filmdicke  $d_f$  im interessanten Bereich  $h/d_f \ge 1$  [152] zu lassen, aber andererseits groß genug ist, um eine für viele Hochfrequenzanwendungen noch akzeptable HF-Qualität zu gewährleisten.

An Referenzproben wurden die supraleitenden Eigenschaften der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filme auf ungestuften Substraten untersucht. Beide Verfahren liefern Filme hoher Qualität, die sich in kritischer Temperatur  $T_c$ , Übergangsbreite  $\Delta T_c$ , kritischer Stromdichte  $J_c$  und Oberflächenwiderstand  $R_s$  nur geringfügig unterscheiden. Tendentiell sind die hochdruckgesputterten Filme etwas besser. Gravierend dagegen sind die Unterschiede in den Transporteigenschaften der Stufenkantenkontakte, die mit den beiden Depositonsverfahren hergestellt wurden (vgl. Kap. 4). Ihre Ursache liegt in der unterschiedlichen Mikrostruktur des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Films im Stufenbereich, die in Kap. 3.3 eingehend diskutiert wird.

#### 3.2.2 Randvergoldung im Lift-off-Prozess

Vor der Strukturierung der Korngrenzenkontakte wird in einem Lift-off-Prozess eine knapp 3 mm breite Goldumrandung auf dem  $10 \times 10 \text{ mm}^2$ -YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film hergestellt, aus der später die Goldkontaktflächen entstehen. Der Lift-off-Prozess ist schematisch in Abb. 3.10 dargestellt. Zunächst erfolgt eine Positiv-UV-Lithographie mit folgenden Parametern:

- Belackung für den Lift-off-Prozess
  - 5-6 Tropfen Photolack AZ5214E auf den YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film tropfen



Abb. 3.10: Randvergoldung des  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Films im Lift-off-Prozess (schematisch)

- $-30 \sec$  Schleudern bei 3000 U/min  $\rightarrow \approx 2 \,\mu m$  Schichtdicke
- $-2 \min$  Trocknen bei 95°C
- Randentlackung
  - Belichtung der Randbereiche (soft contact), Dosis:  $500 \,\mathrm{mJ/cm^2}$
  - 100 sec entwickeln in (1:1)-verdünntem Entwickler 312MIF
- Strukturlithographie
  - Strukturbelichtung mit einer Cr-Maske (high pressure), Dosis: 100 mJ/cm<sup>2</sup>
  - ca. 60 sec entwickeln in (1:1)-verdünntem Entwickler 312MIF

Der nichtionische Entwickler 312MIF (Fa. Hoechst) wurde verwendet, da er  $T_c$ ,  $J_c$ und  $R_s$  des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Films nicht verschlechtert [221]. Eine dicke Lackschicht (2  $\mu$ m) erleichtert den im folgenden beschriebenen Lift-off-Prozess.

Die Mitte des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Films, einschließlich der späteren Stufenkanten- oder Bikristallkontakte, ist nach der Lithographie mit Photolack abgedeckt (vgl. Abb. 3.10 a). In einem Sputtergerät vom Typ SCD 040 (Fa. Balzers) wird die freiliegende YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Oberfläche mit Ar<sup>+</sup>-Ionen angeätzt, um eine eventuell degradierte, schlecht leitende Oberflächenschicht abzutragen. Ohne das Vakuum zu brechen wird anschließend eine 200 nm dicke Goldschicht aufgesputtert. Ist die Lackflanke steil genug, dann wird sie nur teilweise oder gar nicht mit Gold bedeckt (vgl. Abb. 3.10 b). Im folgenden Lift-off-Vorgang greift Aceton seitlich die Lackschicht an, löst sie auf und hebt dabei die aufliegende Goldschicht ab (vgl. Abb. 3.10 c). Wenn man den Photolack im Negativprozess lithographiert, kann bei geeigneter Parameterwahl<sup>11</sup> eine für den Lift-off-Prozess besonders günstige, leicht unterschnittene Lackflanke erzeugt werden. Sie führt zu einer geradlinigeren Goldabrisskante als eine positiv lithographierte Lackflanke, die nicht unterschnitten und daher oft teilweise mit Gold bedeckt ist.

<sup>&</sup>lt;sup>11</sup>Negativ-Lift-off: Belackung wie im Positivprozess aber 3600 U/min, 5 min Lacktrocknung bei  $106^{\circ}$ C, Standard-Randentlackung, high-pressure-Belichtung mit  $125 \text{ mJ/cm}^2$ , 75 sec Reversal Bake bei  $117^{\circ}$ C (Trocknungsprozess, der zusammen mit der folgenden Flutbelichtung aus dem Positivprozess einen Negativprozess macht), UV-Breitbandflutbelichtung mit  $160 \text{ mJ/cm}^2$ , 30 sec Entwicklung in (1:1)-verdünntem 312MIF.

#### 3.2.3 Strukturierung der Mikrobrücken

Für die Lithographie der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Struktur wird bis auf die Lackschleuderdrehzahl (6000 U/min  $\rightarrow$  Lackschichtdicke  $\approx 1.2 \,\mu$ m) und die Strukturbelichtungsdosis (75 mJ/cm<sup>2</sup>) derselbe Prozess wie für die Lift-off-Lithographie verwendet. Der Stegbreitenverlust von der Chrommaskenstruktur zur resultierenden YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Mikrobrücke beträgt weniger als 0.5  $\mu$ m. Das Layout der Chrommaske ist so an den lift-off-strukturierten Goldrand angepasst, dass beim anschließenden Ar<sup>+</sup>-Ionenätzen die Mikrobrücken über die Substratstufe (Bikristallkorngrenze) und die Goldkontaktflächen simultan strukturiert werden. Das vereinfacht die Präparation und vermeidet eine Berührung der Korngrenzenkontakte mit Prozesschemikalien (Wasser, Entwickler, KJ/J-Lösung), die zur separaten Strukturierung der Goldkontaktflächen erforderlich wären. Abbildung 3.11 zeigt das selber entwickelte Layout der fertigen Chips mit 28 Stufenkantenkontakten.



#### Abb. 3.11:

a) Layout eines  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  Chips mit 28 Stufenkantenkontakten. Die (vergoldeten) YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Strukturen erscheinen schwarz (grau). Den Verlauf der Substratstufe gibt die dünne schwarze Linie wieder. Innerhalb dieser Linie liegen der gemeinsame Masseanschluss (Nr. 1) und die drei 2 µm breiten Referenzbrücken (Nr. 16, 17, 32). b) Ausschnittsvergrößerung zweier Mikrobrücken mit 3 und 5 µm Stegbreite

Die folgenden beiden Ar<sup>+</sup>-Ionenätzprozesse zur Strukturierung der  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Mikrobrücken wurden untersucht:

- *Prozess 1:* nicht rotierender, mit flüssigem Stickstoff (LN<sub>2</sub>) gekühlter Probenteller, Ar<sup>+</sup>-Strahl trifft senkrecht auf die Probenoberfläche
- Prozess 2: rotierender, wassergekühlter Probenteller, Winkel zwischen Ar<sup>+</sup>-Strahl und Substratnormale beträgt  $10^{\circ}$

Bei beiden Prozessen beträgt die Beschleunigungsspannung 500 V, die Ar<sup>+</sup>-Ionenstromdichte  $\approx 0.2 \text{ mA/cm}^2$  und die YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Ätzrate  $\approx 10 \text{ nm/min}$ . Entgegen der Erwartung verbesserte die LN<sub>2</sub>-Kühlung im Vergleich zur Wasserkühlung nicht die Transporteigenschaften der Stufenkantenkontakte. Stattdessen rissen häufig sehr schmale Photolackstege ( $w \leq 2 \mu m$ ) während des Kryozyklus aufgrund der unterschiedlichen thermischen Ausdehnung des Films und der Photolackschicht ab. Bei neueren Proben erhielt daher der einfachere Prozess 2 den Vorzug. Nach Beseitigung des Apiezons von der Probenrückseite wurde der Photolack im Acetonbad abgelöst, die Probe kurz mit Propanol gespült und anschließend mit der N<sub>2</sub>-Pistole getrocknet. Die Stegbreite aller Mikrobrücken wurde mit einem Laserrastermikroskop auf 0.1  $\mu m$  genau bestimmt. Insgesamt wurden in knapp drei Jahren auf ca. 40 Proben mehr als 1000 Stufenkantenkontakte mit Stegbreiten zwischen 2 und 60  $\mu m$  präpariert<sup>12</sup>.

Der vorgestellte Strukturierungsprozess ergab sich aus der Untersuchung zahlreicher Variationen, deren wichtigste Ergebnisse im folgenden angesprochen werden. Der ursprüngliche Strukturierungsprozess bestand aus vier Teilschritten:

- 1. Vergoldung der ganzen Probenoberfläche (200 nm)
- 2. Strukturierung der Mikrobrücken
- 3. Zwischenvergoldung (30 nm) zum seitlichen Schutz der Stufenkantenkontakte vor der Einwirkung des Entwicklers im nächsten Lithographieschritt
- 4. Strukturierung der Goldkontaktflächen

Dieses etwas aufwendigere Verfahren hat generell den Nachteil, dass die Goldschicht aus den Schritten 1 und 3 wieder von den empfindlichen Stufenkantenkontakten entfernt werden muss. Nasschemisches Abätzen des Goldes mit einer wässrigen KJ/J<sub>2</sub>-Lösung schädigt oder zerstört die Stufenkantenkontakte. Eine KJ/J<sub>2</sub>-Lösung in Methanol löst dagegen den Photolack auf. Daher kommt nur ein Trockenätzprozess wie das Ar<sup>+</sup>-Ionenstrahlätzen für die Goldentfernung in Frage. Stufenkantenkontakte, die so strukturiert wurden, zeigten eine wesentlich größere Streuung ihrer charakteristischen Größen als Stufenkantenkontakte, bei denen der Lift-off-Prozess angewandt wurde. Hinzu kommt, dass die Entfernung der Goldschicht in der Stufe durch unvermeidliche Abschattungseffekte während des Ar<sup>+</sup>-Ionenätzens und wegen der Winkelabhängigkeit der Ätzrate [221] länger dauert als auf der Filmoberfläche. Bis das Gold in der Stufe vollständig beseitigt ist, wird die YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Schicht wenigstens um 30 nm ausgedünnt.

Diese Ausdünnung kann dadurch verringert werden, das zuerst nur eine dünne Goldschicht aufgesputtert wird, die anschließend durch einen Lift-off-Prozess an den Stellen auf 200 nm aufgestockt wird, an denen die Goldkontaktflächen entstehen sollen [231]. Diese Komplikation des Strukturierungsprozesses erscheint nur lohnend, wenn die dünne Goldschicht in-situ auf den YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film aufgebracht werden kann. In diesem Fall wird die Haftung des Goldes und der Kontaktwiderstand so weit verbessert, dass auf eine abschließende O<sub>2</sub>-Temperung der Proben (vgl. Kap. 3.2.4) verzichtet werden kann.

<sup>&</sup>lt;sup>12</sup>Weitere 30 Proben, die nicht zu Ende präpariert wurden, dienten der Optimierung einzelner Schritte des Präparationsprozesses – meist im Zusammenhang mit einer REM-, AFM- oder TEM-Untersuchung.

#### 3.2.4 O<sub>2</sub>-Temperung und Kontaktierung

Da die Goldschicht nicht in-situ unmittelbar nach der Deposition des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Films aufgebracht wird, ist die Haftung der Goldkontaktflächen oft so schlecht, dass sie sich beim Versuch der Ultraschall-Kontaktierung vom YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> ablösen. Eine einstündige Temperung der Proben bei 500°C im Sauerstoffstrom (11/min) führt zu einer guten Haftung der Goldschicht und verschlechtert nicht die Eigenschaften der Stufenkantenkontakte. Wird diese Temperatur um mehr als 20°C unterschritten, bleibt die Goldhaftung schlecht. Schon ab 550°C entstehen dagegen kleine Blasen in der Goldschicht.

Vor der Kontaktierung wird der Chip mit einem Tropfen Photolack in ein 40-poliges Dual-Inline(DIL)-Gehäuse (*Chipcarrier*) eingeklebt. Die Goldkontaktflächen werden mit  $25 \,\mu$ m dicken Golddrähten mittels eines Ultraschallbondgerätes der Fa. Marpet Enterprises Inc. Typ 1204W kontaktiert. Bei diesem Prozess werden die Drähte von einem ca. 200°C heißen, durch Ultraschall in Schwingung versetzten Werkzeug mit einstellbarer Andruckkraft auf die Goldschicht gepresst. Ihre Haftung ist so gut, dass eher der Draht abreißt, als dass sich die Schweißstelle wieder löst.

#### 3.3 Mikrostrukturanalyse

Sehr unterschiedliche Transporteigenschaften von gesputterten und laserablatierten Stufenkantenkontakten (vgl. Kap. 4), deren Substratstufen nach demselben Präparationsprozess hergestellt wurden, weisen auf einen entscheidenden Einfluss des Filmwachstums im Stufenbereich hin [132]. Im Anschluss an einige generelle Aspekte des Wachstums epitaktischer Schichten (Kap. 3.3.1) werden aus einer AFM-Oberflächenanalyse gesputterter YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filme Rückschlüsse auf Wachstumsmode und Oberflächendiffusion während der Filmdeposition gezogen (Kap. 3.3.2). Die Filmmikrostruktur im Bereich der Substratstufe und eine Modellvorstellung ihrer Entstehung wird in Abschnitt 3.3.3 diskutiert.

#### 3.3.1 Theoretische Aspekte des Wachstums epitaktischer Schichten

#### Wachstum auf defektfreien Einkristalloberflächen

Auf defektfreien Einkristalloberflächen wachsen epitaktische Schichten in einem der folgenden drei Wachstumsmoden auf [232]:

- 1. Zweidimensionales (2D) Lagenwachstum (Frank-von-der-Merve-Wachstum)
- 2. Dreidimensionales (3D) Inselwachstum im Anschluss an 2D-Lagenwachstum der ersten Monolagen (Stranski-Krastanov-Wachstum)
- 3. 3D-Inselwachstum (Volmer-Weber-Wachstum)

Unabhängig vom Depositionsverfahren bestimmt das Verhältnis der Wechselwirkung der Schichtatome untereinander zur Wechselwirkung der Schichtatome mit den Substratatomen den Wachstumsmode eines Schicht-Substrat-Systems [232, 233]. In jedem Fall beginnt das Wachstum mit der Bildung eines 2D-Keims. Ein 2D-Keim besteht aus einer Lage Wachstumseinheiten, die von einer Monostufe<sup>13</sup> umschlossen wird. Aufgrund der

 $<sup>^{13}</sup>$ In Abgrenzung zur Substratstufe wird eine Schichtstufe von der Höhe einer Wachstumseinheit im folgenden als Monostufe bezeichnet.



#### Abb. 3.12:

a) Schraubenversetzung mit resultierender Stufe in einer Einkristalloberfläche. b)-e) Entwicklung einer Wachstumsspirale. Sobald eine Stufenfront länger als 2 rc geworden ist, beginnt sie in Richtung der offenen Pfeile zu wachsen. (Die Abbildungen wurden aus [234] übernommen.)

freien Energie, die aufgewendet werden muss um diese Monostufe auszubilden, ist ein 2D-Keim nur dann stabil, wenn sein Radius größer als der kritische Radius

$$r_c = \frac{\gamma}{\sigma kT} a \tag{3.1}$$

ist [235]. Dabei bezeichnet a den Abstand der Mittelpunkte zweier benachbart eingebauter Wachstumseinheiten, der bei a,b-symmetrischen Wachstumseinheiten in Quadratgitteranordnung gleich der lateralen Ausdehnung einer Wachstumseinheit ist. Ferner bezeichnet  $\gamma$ die freie Energie einer Wachstumseinheit in einer Monostufe, k die Boltzmann-Konstante, T die Temperatur,  $\sigma = (p-p_0)/p_0 = (n-n_0)/n_0$  die relative Übersättigung,  $n_{(0)}$  die Dichte der von der Kristalloberfläche adsorbierten freien Wachstumseinheiten (im thermischen Gleichgewicht) und  $p_{(0)}$  den (Gleichgewichts-)Druck der Wachstumseinheiten unmittelbar an der Kristalloberfläche. Die Wahrscheinlichkeit für die Bildung stabiler 2D-Keime hängt empfindlich von  $\sigma$  ab. Sie ist vernachlässigbar klein unterhalb einer kritischen relativen Ubersättigung  $\sigma_c$  und steigt darüber schnell an [236].

#### Wachstum auf realen, defektbehafteten Einkristalloberflächen

Energetisch wesentlich günstiger als die Bildung von 2D-Keimen ist die Anlagerung von Wachstumseinheiten an Monostufen, die in realen Kristalloberflächen zahlreich auftreten [236]. Monostufen, die geschlossen sind oder die Kristalloberfläche von einem Rand zum anderen durchziehen, können bei geringer Übersättigung kein kontinuierliches Wachstum sichern, da nach vollständiger Auffüllung der Lage wieder 2D-Keime für das Wachstum der nächsten Lage erforderlich sind. Monostufen dagegen, die an einer Stelle in der Kristalloberfläche verschwinden, ermöglichen kontinierliches Wachstum. Sie entstehen an Schraubenversetzungen und sind Keime von Wachstumsspiralen [237], die mit fortschreitendem Wachstum eine immer längere Spiral-Monostufe für die Anlagerung weiterer Wachstumseinheiten zur Verfügung stellen (vgl. Abb. 3.12).

#### Entstehung einer Wachstumsspirale

Die Form der Wachstumsspiralen hängt vom Verhältnis der Oberflächendiffusionslänge  $x_s$  zum mittleren Abstand  $d_k$  von Ecken in der Monostufe (*engl. kink sites*) ab [236, 238], an die bevorzugt Wachstumseinheiten angelagert werden. Für  $x_s \gg d_k$  ergeben sich runde Wachstumsspiralen. Mit sinkender Temperatur (und damit sinkendem  $x_s$ ) tritt eine Facettierung bis hin zu rechteckigen Spiralen auf. Der Abstand  $\Lambda$  zwischen zwischen zwei Spiralwindungen fern des Zentrums der Wachstumsspirale ( $d_{Zentrum} > 10 \Lambda$ ) ist für  $x_s \gg d_k$  proportional zum kritischen Radius  $r_c$  eines 2D-Keims [239]:

$$\Lambda \approx 19 \, r_c \tag{3.2}$$

Die Oberflächendiffusion während des Filmwachstums wird durch den Diffusionskoeffizienten

$$D_s = a^2 \nu e^{-\frac{E_a}{kT}} \tag{3.3}$$

beschrieben [236]. Dabei bezeichnet a wie im vorherigen Abschnitt den Abstand zwischen zwei benachbarten Gleichgewichtspositionen, an denen eine Wachstumseinheit eingebaut werden kann,  $\nu$  einen Frequenzfaktor in der Größenordnung atomarer Schwingungsfrequenzen, der für einatomige Wachstumseinheiten ~  $10^{13}$  s<sup>-1</sup> beträgt, und  $E_a$  die Aktivierungsenergie für einen Sprung zu einer benachbarten Gleichgewichtsposition. Der Zusammenhang zwischen  $D_s$  und der mittleren Diffusionslänge  $x_s$  ist allgemein gegeben durch die Beziehung [236],

$$x_s^2 = D_s \tau_s \tag{3.4}$$

in der  $\tau_s$  die mittlere Aufenthaltszeit einer Wachstumseinheit auf der Oberfläche bis zum Einbau in eine Monostufe oder bis zur Desorption bezeichnet. Die Desorption spielt nur bei Depositionen aus einer angrenzenden Flüssigkeit heraus eine Rolle – nicht aber bei den im folgenden betrachteten Depositionen aus dem Gasraum, bei denen die Wahrscheinlichkeit vernachlässigbar gering ist, dass eine Wachstumseinheit die Substratoberfläche wieder verlässt.

Für die Bildung von 2D-Keimen ist eine bis zu drei Größenordnungen höhere relative Übersättigung  $\sigma$  erforderlich als für die Bildung von Wachstumsspiralen [235]. Bei geringer Übersättigung ist daher das Spiralwachstum so dominant, dass schwer zu beurteilen ist, welcher Wachstumsmode in Abwesenheit von Schraubenversetzungen vorliegen würde [240].

#### 3.3.2 AFM-Oberflächenanalyse epitaktischer $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Filme

Rastertunnelmikroskop(**S**canning **T**unneling **M**icroscopy = STM)-Aufnahmen mit nahezu atomarer Auflösung in z-Richtung zeigten 1991 erstmals Wachstumsspiralen auf der Oberfläche gesputterter epitaktischer YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filme [241, 242]. In der vorliegenden Arbeit wurde die Oberflächenmorphologie der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filme mittels Rasterkraftmikroskopie (**A**tomic **F**orce **M**icroscopy = AFM) untersucht<sup>14</sup>. AFM bietet auch nahezu atomare z-Auflösung, ist aber weniger zeitaufwendig und erfordert keine elektrisch leitende Probenoberfläche.

Bei der  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Deposition durch Hochdrucksputtern und Laserablation entsprechen die Wachstumseinheiten Y-, Ba- und Cu-Kationen [243, 244], die zusammen

<sup>&</sup>lt;sup>14</sup>Alle AFM-Aufnahmen in diesem Kapitel wurden von Dr. Bernard Dam von der Freien Universität Amsterdam angefertigt.





mit dem angebotenen Sauerstoff die YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Einheitszellen aufbauen. Da die a,b-Achsenlänge einer Einheitszelle dem Abstand *a* zwischen zwei Wachstumseinheiten entspricht, gilt  $a \approx 0.4$  nm.

#### Gesputterte $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Filme

Auf allen untersuchten gesputterten YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filmen wurden Wachstumsspiralen, aber kein Hinweis auf 2D-Keim-induziertes Wachstum gefunden. Daraus folgt, dass die relative Übersättigung während des Sputterprozesses (vgl. Kap. 3.2.1) kleiner als der Grenzwert  $\sigma_c$  für 2D-Keim-Bildung ist (vgl. Kap. 3.3.1). Abb. 3.13 zeigt Wachstumsspiralen auf der Oberfläche eines YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Films, der bei der maximalen Substrattemperatur von 780°C gesputtert wurde, bei der noch gute Filmeigenschaften erreicht werden (vgl. Tab. 3.2). Die Höhe der Spiralstufen entspricht der Höhe einer YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Einheitszelle. Der auch für andere gesputterte Filme typische Spiralstufenabstand  $\Lambda = 20-50$  nm ergibt nach Gleichung (3.2) einen kritischen Radius  $r_c \approx 1-2.5$  nm für 2D-Keime, die demnach aus mehr als 20-150 YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Einheitszellen bestehen müssten. Aus der runden Form der Wachstumsspiralen folgt für die mittlere Diffusionslänge  $x_s \gg d_k$  (vgl. Kap. 3.3.1). Typischerweise liegen wenigstens einige Wachstumseinheiten zwischen zwei Ecken in der Monostufe [235], sodass  $d_k > 1$  nm und damit  $x_s > 3$  nm gilt.

Eine weitere Abschätzung der Oberflächendiffusionskenngrößen erhält man aus folgender Überlegung [245]. Da bei der Deposition aus einer Gasphase heraus die Desorption von Wachstumseinheiten vernachlässigbar ist, ist die effektive mittlere Diffusionslänge  $x_s$ durch den Abstand zur nächsten Monostufe begrenzt, in die die Wachstumseinheit eingebaut werden kann. In Abwesenheit von 2D-Keimen gilt daher näherungsweise  $x_s \sim \Lambda/2$ . Da die Diffusionsdauer  $\tau_s$  mit Sicherheit kleiner als die Zeit  $\tau_m$  für die Depositon einer Monolage ist, erhält man mit Gleichung (3.4) folgende untere Abschätzung des Oberflächendiffusionskoeffizienten  $D_s$ :

$$D_s > \frac{\Lambda^2}{4\tau_m} \tag{3.5}$$

Mit  $\Lambda \sim 35 \text{ nm}, \tau_m = v_d/h_m$ , der Depositionsrate  $v_d = 1.5 \text{ nm/min}$  und der Monostufenhöhe  $h_m = 1.17 \text{ nm}$  folgt für den bei  $T_{sub} = 780^{\circ}\text{C}$  gesputterten Film in Abb. 3.13  $D_s > 6.5 \times 10^{-14} \text{ cm}^2/\text{s}.$ 

Setzt man diese Untergrenze für  $D_s$  in Gleichung (3.3) ein, so ergibt sich mit  $a = 0.4 \text{ nm}, \nu = 10^{13} \text{ s}^{-1}$  und  $T = T_{sub} = 1053 \text{ K}$  eine Aktivierungsenergie  $E_a = 2.4 \text{ eV}$ =  $26 k T_{sub}$ , die gut mit dem Literaturwert  $E_a = 2.5 \text{ eV}$  [243] übereinstimmt. Wegen  $E_a \gg k T_{sub}$  hängt  $D_s$  empfindlich von der Substrattemperatur  $T_{sub}$  ab. Eine Erniedrigung von  $T_{sub}$  von 780°C auf 720°C verkleinert bei konstantem  $E_a$  den Oberflächendiffusionskoeffizienten  $D_s$  um nahezu einen Faktor 5.

#### Laserablatierte $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Filme

Laserablatierte Filme wachsen bei höherer Übersättigung als gesputterte Filme auf. In der Regel liegt 2D-Schichtwachstum vor. Typische Werte für den Oberflächendiffusionskoeffizienten und die mittlere Diffusionslänge sind  $D_s = 10^{-12} - 10^{-11} \text{ cm}^2/\text{s}$  [230, 246] und  $x_s \sim 100 \text{ nm}$  [246]. Der Oberflächendiffusionskoeffizient ist bei der Laserablation wegen

- des geringeren Arbeitsdrucks,
- der deutlich höheren kinetischen Energie der Wachstumseinheiten (aufgrund der explosionsartigen Targetverdampfung) und
- der mehr als 50-fach höheren Peak-Depositionsrate (vgl. Tab. 3.2)

wesentlich größer als beim Hochdrucksputtern, da die auf das Substrat übertragene kinetische Energie direkt oder durch Substrataufheizung die Oberflächenmobilität der Wachstumseinheiten erhöht. In off-axis-Geometrie ist dieser Effekt durch die Streuung der laserablatierten Teilchen am O<sub>2</sub>-Gas etwas abgeschwächt, sodass  $D_s$  eher im Bereich 10<sup>-12</sup> cm<sup>2</sup>/s liegen sollte. Im Einklang mit obiger Argumentation steht die Beobachtung, dass bei on-axis Laserablation mit wachsendem Arbeitsdruck ein Übergang vom 2D-Schichtwachstum zum Spiralwachstum stattfindet, der mit einer Verringerung des Oberflächendiffusionskoeffizienten  $D_s$  von ~ 10<sup>-11</sup> cm<sup>2</sup>/s auf ~ 10<sup>-13</sup> cm<sup>2</sup>/s einhergeht [243].

## Gesputterte YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filme im Bereich einer Bikristallkorngrenze oder einer Substratstufe

In Abb. 3.14 ist der Einfluss einer Bikristallkorngrenze auf die Oberflächenmorphologie eines 50 nm dünnen gesputterten  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Films dargestellt. Herstellungsbedingt treten an einer Bikristallkorngrenze viele Schraubenversetzungen auf, die dort zu anfänglich schnellerem Wachstum und zu einer erhöhten Dichte von Wachstumsspiralen führen (vgl. senkrechte Häufungslinie in Abb. 3.14).

Der exakte Verlauf der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenze und ihre Facettierung ließen sich nicht aufklären. Auf einem 200 nm dicken Film konnte die Korngrenze mittels AFM nicht mehr lokalisiert werden. Vermutlich dominieren bei dieser Filmdicke sekundäre Wachstumsspiralen, die aus Schraubenversetzungen im YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film hervorgehen.

Abb. 3.15 zeigt denselben Film wie Abb. 3.13 in der Nähe einer 250 nm hohen Substratstufe. Es ist kein Unterschied in der Oberflächenmorphologie des Films auf der ionenstrahlgeätzten (rechts) und auf der ursprünglichen Substratoberfläche (links) zu erkennen. Der Lateralabstand zwischen oberer und unterer Stufenkante erscheint aufgrund der Form









und Ausdehnung der AFM-Testspitze überhöht. Nahe der oberen und unteren Stufenkante fällt eine Häufung von Wachstumsspiralen auf, die vermutlich durch ionenstrahlinduzierte Defekte hervorgerufen wird. Die Substratstufe war zu steil, um das Filmwachstum in der Stufenflanke beurteilen zu können.

#### 3.3.3 Mikrostruktur des $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Films im Substratstufenbereich

Die Abbildungen 3.16 und 3.17 zeigen typische REM-Aufnahmen eines laserablatierten und eines gesputterten Films auf einer 250 nm hohen Substratstufe. Die 90°-orientierten Ausscheidungen auf dem laserablatierten Film wurden nie im Bereich der dominierenden



Abb. 3.16: Off-axis laserablatierter Film  $(d_f = 200 \text{ nm})$  auf einer 250 nm hohen Substratstufe





unteren Korngrenze [247] beobachtet. Die hohen  $I_c R_n$ -Werte und die geringe Parameterstreuung der laserablatierten Stufenkantenkontakte (vgl. Kap. 4) sprechen gegen einen negativen Einfluss dieser Ausscheidungen auf die Transporteigenschaften. Die Oberfläche des gesputterten Films ist wesentlich glatter, aber entlang der gesamten unteren Stufenkante fallen Unregelmäßigkeiten im Filmwachstum auf.

Eine detaillierte Analyse des Filmwachstums im Substratstufenbereich, das die Transporteigenschaften der Stufenkantenkontakte bestimmt, ist nur mittels Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) möglich.

Die Vorbereitung der Proben und die TEM-Analyse mit einem JEOL 4000EX Mikroskop wurden von Dr. C.L. Jia vom Institut für Festkörperphysik (IFF) des Forschungszentrums Jülich durchgeführt. Eine Probe mit ca. 1500 YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-beschichteten Substratstufen im Abstand von 5  $\mu$ m wurde in dünne Scheiben geschnitten, die erst mechanisch und dann mittels Ar<sup>+</sup>-Ionenätzen unter LN<sub>2</sub>-Kühlung bis zur Perforation ausgedünnt wurden. Ein guter Kontrast und eine hohe Auflösung einer TEM-Aufnahme sind nur zu erwarten,

#### 3.3. MIKROSTRUKTURANALYSE



Abb. 3.18:

TEM-Aufnahme eines 200 nm dicken hochdruckgesputterten Films ( $T_{sub} = 740^{\circ}C$ ) auf einer 250 nm hohen Substratstufe. (Die Aufnahme wurde von Dr. C.L. Jia vom Forschungszentrum Jülich angefertigt.)

wenn die Schicht extrem dünn und einkristallin ist. Weitere Details zur Probenvorbereitung und Interpretation von TEM-Aufnahmen sind in [248] zu finden.

Eine TEM-Aufnahme eines gesputterten Films, der bei einer Substrattemperatur von 740°C und einem O<sub>2</sub>-Partialdruck von 200 Pa deponiert wurde, ist in Abb. 3.18 dargestellt. Auffällig ist eine Grabenbildung im YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film nahe der unteren Stufenkante. Die Filmdicke ist dort lokal auf  $\approx 60\,\mathrm{nm}$  reduziert. Andere TEM-Aufnahmen belegten, dass die schlechte Auflösung der Mikrostruktur in diesem Bereich nicht auf eine unzureichende Ausdünnung der Probe sondern auf eine erheblich gestörte Epitaxie zurückzuführen ist. Eine untere Korngrenze mit räumlich homogenen Transporteigenschaften kann daher dort nicht vorliegen. Der Bereich der oberen Korngrenze ist epitaktisch gewachsen. Da aber stellenweise die c-Achsenorientierung nicht klar erkennbar ist, kann der Verlauf der Korngrenze nicht lokalisiert werden. Eine unzureichende Nukleation des Films in der Stufenflanke ist auszuschließen, da sie vollständig bewachsen ist. Der helle Fleck nahe der oberen Stufenkante ist typisch und weist auf ein schnelles Überwachsen dieser Kante durch den oberen YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film hin. Das führt zu einem Abschattungseffekt, der den Materialtransport zum oberen Teil der Stufenflanke behindert. Ob der Effekt die Ausbildung der oberen Korngrenze stört, war den TEM-Aufnahmen nicht zu entnehmen. Zumindest die letzten  $\approx 60\,\mathrm{nm}$  des Stufenflankenfilms sind epitaktisch gewachsen mit der für steile LaAlO<sub>3</sub>-Substratstufen typischen c-Achsenausrichtung parallel zur Probenoberfläche [154].

TEM-Aufnahmen *laserablatierter*  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Filme auf steilen LaAlO<sub>3</sub>-Substratstufen zeigen eine wesentlich defektärmere Mikrostruktur [154] (vgl. Abb. 3.19). Beide Korngrenzen sind klar erkennbar. Eine Grabenbildung nahe der unteren Stufenkante tritt nicht auf.

STM-Linien-Scans<sup>15</sup> von weiteren gesputterten und off-axis-laserablatierten Proben zeigten, dass die Grabenbildung nur bei gesputterten YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filmen auftritt, die bei einer niedrigen Substrattemperatur (T<sub>sub</sub> = 720 - 740°C) deponiert wurden. Im folgenden wird die Entstehung der Filmmikrostruktur im Substratstufenbereich auf Basis der Ergebnisse aus Kap. 3.3.2 diskutiert.

#### Gesputterte $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Filme

Während des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filmwachstums bestimmt die Deposition aus dem Gasraum und die Oberflächendiffusion die Verteilung der Wachstumseinheiten auf der Substratoberfläche. Beim Hochdrucksputtern gibt es aufgrund des hohen O<sub>2</sub>-Partialdrucks keine ausgeprägte Haupteinfallsrichtung der Wachstumseinheiten relativ zur Substratoberfläche (vgl. Abb. 3.20). Die kurze mittlere freie Weglänge  $l \approx 20 - 50 \,\mu$ m führt zu einer breiten Verteilung der Einfallswinkel. Durch die Abschattungswirkung der Substratstufe können die Wachstumseinheiten nur aus einem eingeschränkten Raumwinkel in den Bereich nahe der unteren Stufenkante gelangen. Ist außerdem die Oberflächendiffusion gering, dann erreicht nur ein Bruchteil von ihnen die untere Stufenkante. Während des Filmwachstums bildet sich dort ein Graben zunehmender Tiefe aus, der den Einfallsraumwinkel der Wachstumseinheiten weiter verkleinert. Die in Kap. 3.3.2 bestimmte mittlere Diffusionslänge  $x_s$ in der Größenordnung von 10 nm passt zu dieser Vorstellung von der Grabenentstehung in Filmen, die bei  $T_{sub} = 720 - 740^{\circ}$ C deponiert wurden. Der geringe  $x_s$ -Wert ist darüberhinaus eine plausible Erklärung für die zahlreichen Defekte und die gestörte Epitaxie dieser Filme im Substratstufenbereich, da er dazu führt, dass der energetisch günstigste Einbau

<sup>&</sup>lt;sup>15</sup>Die STM-Scans wurden von Dr. Bernard Dam von der Freien Universität Amsterdam angefertigt.



#### Abb. 3.19:

TEM-Aufnahmen eines 130 nm dicken on-axis laserablatierten Films auf einer 120 nm hohen Substratstufe in LaAlO<sub>3</sub> [154].

der neuen Wachstumseinheiten kinetisch behindert sein kann. Da der Oberflächendiffusionskoeffizient  $D_s$  sehr schnell mit der Substrattemperatur steigt (vgl. Kap. 3.3.2), ist bei  $T_{sub} = 780^{\circ}$ C eine deutlich geringere Defektdichte und damit eine bessere Epitaxie zu erwarten. Ferner ist es plausibel, dass bei dieser Substrattemperatur die Grabenbildung nicht mehr auftritt oder so stark abgeschwächt ist, dass sie mit STM-Linienscans nicht mehr nachweisbar ist.

#### Laserablatierte $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Filme

Bei der off-axis-Laserablation treffen die YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Teilchen unter einem Winkel < 90° auf das Substrat, das sich auf einem rotierenden Probenteller befindet (vgl. Abb. 3.20). Wird die gesamte Deposition in der 180°-Position durchgeführt, kommt es zum Filmabriss. Die beobachtete gleichmäßige Filmdicke nahe der unteren Stufenkante, die sich bei rotierendem Probenteller ergibt, ist daher nur durch eine hinreichend große Oberflächendiffusion der deponierten Teilchen zu erklären. Die für die off-axis-Laserablation abgeschätzten Werte  $x_s \sim 100$  nm und  $D_s = 10^{-12}$  cm<sup>2</sup>/s (vgl. Kap. 3.3.2) erscheinen angesichts einer Substratstufenhöhe von 200-300 nm dafür ausreichend.



#### Abb. 3.20:

Schematische Darstellung der  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Deposition auf einer Substratstufe durch Hochdrucksputtern und off-axis-Laserablation. Die Richtungsverteilung der einfallenden Wachstumseinheiten ist exemplarisch für einen Ort an der oberen Stufenkante angedeutet.

#### Die Mikrostrukturanalyse führt zu folgendem Schluss:

Das Filmwachstum im Stufenbereich wird behindert, wenn die Oberflächendiffusion nicht groß genug ist, um den energetisch günstigsten Einbau neuer Wachstumseinheiten kinetisch zu ermöglichen. Defekte, nicht-epitaktische Bereiche und Grabenbildung sind die Folge. Mit steigender Oberflächendiffusion während des Filmdepositionsprozesses sollten sich daher die Transporteigenschaften der Stufenkantenkontakte verbessern. Diese Korrelation wird von den Messergebnissen in Kapitel 4 bestätigt.

## Kapitel 4

## Transporteigenschaften von Korngrenzenkontakten

Im Anschluss an die Beschreibung des Messaufbaus in Kap. 4.1 gibt Kap. 4.2 ausgehend von den typischen Strom-Spannungs(IU)-Kennlinien unterschiedlich präparierter Stufenkanten- und Bikristallkontakte (vgl. Kap. 3) einen Überblick über deren Transporteigenschaften. Die Mehrzahl der Messungen wurde bei  $T = 4.2 \text{ K}^1$  durchgeführt, um angesichts der sehr unterschiedlichen kritischen Temperaturen  $T_c = 15 - 88 \text{ K}$  der verschiedenen Korngrenzenkontakte vergleichbare Daten zu erhalten. Kap. 4.3 behandelt charakteristische Parameter der Korngrenzenkontakte sowie deren (1) Korrelation mit Präparationsparametern, (2) Streuung, (3) Skalierungsverhalten und (4) Temperaturabhängigkeit. In Kap. 4.4 wird abschließend der Einfluss von Mikrowellenstrahlung und äußeren Magnetfeldern auf die IU-Kennlinien untersucht.

#### 4.1 Messaufbau

Die Strom-Spannungs(IU)-Kennlinien der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenzenkontakte wurden mit der in Abb. 4.1 dargestellten Apparatur gemessen. Der Chipcarrier mit der kontaktierten Probe befindet sich in einem IC-Sockel am unteren Ende des Probenhalters<sup>2</sup> (vgl. Abb. 4.2). Seine vertikale und azimutale Position kann mit der KF25-Quetschverschraubung eingestellt und durch den vertikalen Sichtschlitz des Helium-Glaskryostaten kontrolliert werden.

Die IU-Kennlinien werden stromgespeist in Vierpol-Anordnung gemessen. Die speziell für die Messung von Josephsonkontakten ausgelegte batteriebetriebene und programmierbare Stromquelle, ein Unikat der Fa. Stapf Electronic, verfügt über fünf bipolare Strombereiche (0.01 - 20  $\mu$ A, 0.1 - 200  $\mu$ A, 1 - 2000  $\mu$ A, 0.01 - 20 mA, 0.1 - 200 mA)<sup>3</sup>. Die 48-polige TTL-I/O-Schnittstelle zum Computer enthält ein Optokoppler-Array, das die Stromquelle galvanisch vom Stromnetz trennt und so netzgebundene Störsignale eliminiert. Mit einem Digitalmultimeter (HP 34401 A von Hewlett-Packard) wird die Spannung über dem Josephsonkontakt 20 Millisekunden (= eine 50 Hz-Wechselstromperiode) lang integriert und

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>(Siede-)Temperatur des flüssigen Heliums, in dem sich die Proben während dieser Messungen befanden.

 $<sup>^2 \</sup>mathrm{Der}$  Probenhalter wurde von T. Hödtke[249]entworfen und von M. Lorenz[250]verbessert.

 $<sup>^{3}</sup>$ Die Bereichsuntergrenze entspricht jeweils dem kleinsten Schritt, um den der Strom verändert werden kann (11 Bit Auflösung).





#### Abb. 4.2:

Chipcarrier mit kontaktierter Probe, der in dem IC-Sockel am unteren Ende des Probenhalters steckt.

der Mittelwert ausgelesen. Mit dieser Integrationszeit und der erforderlichen Stabilisierungszeit der Stromquelle ergibt sich eine Ausleserate von  $\approx 13$  *IU*-Datenpunkten pro Sekunde bei einer Spannungsauflösung  $< 0.3 \,\mu$ V. Für alle Signalleitungen zu den Josephsonkontakten wurden abgeschirmte Kabel verwendet.

Ein weiteres Digitalmultimeter liest wahlweise einen der beiden mittig unter dem Chipcarrier angebrachten Temperatursensoren aus (T = 2 - 30 K: Carbon-Glas-Widerstand CGR 2000 (Fa. Lakeshore), T = 20 - 300 K: Platinwiderstand Pt 100). Der zu messende Josephsonkontakt und der auszulesende Temperatursensor werden über die computergesteuerte Schalteinheit 7001 (mit Multiplexerkarte 7011 S) der Fa. Keithley ausgewählt. Mit einer Helmholtz-Spule kann am Probenort ein homogenes Magnetfeld  $\leq 8$  mT erzeugt werden. Ferner können durch den Sichtschlitz des Kryostaten über eine Hornantenne Mikrowellen eingestrahlt werden (20-22 GHz:  $\leq 20$  W, 88-92 GHz:  $\leq 10$  mW (Generatorausgangsleistungen)).

Zwei selbst entwickelte Messprogramme steuern über die IEEE-Karte bzw. die 48polige TTL I/O-Karte die Stromquellen, die Digitalmultimeter und die Schalteinheit. Die Programme erlauben die Änderung aller wichtigen Geräteeinstellungen und bieten folgende Messmodi:

- Aufnahme der *IU*-Kennlinie<sup>4</sup>
- Bestimmung des kritischen Stroms  $I_c$
- Bestimmung des Widerstands R (bei 0 V)
- Aufnahme der R(T)-Kurve
- Aufnahme der  $I_c(T)$ -Kurve
- Aufnahme der  $I_c(B)$ -Kurve

Außer dem ersten Messmodus erlauben alle Modi die unterbrechungsfreie serielle oder parallele Datennahme an bis zu 20 vom Benutzer ausgewählten Josephsonkontaken. Diverse Auswertungsprogramme wurden entwickelt, die aus den Rohdaten Diagramme erzeugen (IU-Kennlinie, R(T)-,  $I_c(T)$ - und  $I_c(B)$ -Kurve) und wichtige Parameter  $(I_c, R \text{ an fünf frei}$ wählbaren Stellen der Kennlinie,  $T_c$ , R(4.2 K), R(100 K)) extrahieren. Alle relevanten Parameter wurden in einer relationalen Datenbank (ACCESS 2.0 von Microsoft) gespeichert, um leichter Korrelationen auffinden zu können.

Mithilfe eines zweiten Messsystems, das auf einer Multifunktions-Computersteckkarte (AT-MIO-16, Hersteller: National Instruments, enthält u.a. 12-Bit A/D- und D/A-Wandler), einem Frequenzgenerator und zwei Lock-in-Verstärkern (EG & G Model 5210) basiert, können direkt die dI(U)/dU- und  $d^2I(U)/dU^2$ -Kennlinien eines Josephsonkontakts gemessen werden. Dabei wird dem Gleichstrom über den Josephsonkontakt ein kleiner Wechselstrom (Modulationsstrom) mit einer Frequenz von 333 Hz (dI(U)/dU) bzw. 666 Hz ( $d^2I(U)/dU^2$ ) überlagert. Die Ableitungen an einem bestimmten Punkt der Kennlinie sind zur Amplitude der Modulationsspannung proportional, nachdem diese so reguliert wurde, dass sie gerade ein Referenzsignal kompensiert. Das Messsystem wurde von Dr. B. Aminov entwickelt und bereits in einer früheren Arbeit [250] detailliert beschrieben.

#### 4.2 Strom-Spannungs-Kennlinien

Strom-Spannungs(IU)-Kennlinien charakterisieren detailliert die Transporteigenschaften von Josephsonkontakten und anderen *weak links*. Alle in diesem Kapitel vorgestellten Messergebnisse resultieren aus der Untersuchung von IU-Kennlinien oder der aus ihnen extrahierten Kenngrößen ( $I_c$ ,  $R_n$ , etc.) in Abhängigkeit von äußeren Parametern (Temperatur, HF-Einstrahlung, Magnetfeld).

Im Verlauf der Arbeit stellte sich heraus, dass neben der zuerst optimierten Mikrostruktur der Substratstufe (vgl. Kap. 3.1) das Filmdepositionsverfahren (vgl. Kap. 3.2.1) den größten Einfluss auf die *IU*-Kennlinien der Stufenkantenkontakte hat. Es lag daher nahe, die drei hauptsächlich benutzten Filmdepositionsverfahren zur Klassifizierung der Stufenkantenkontakte zu verwenden und für sie eine abkürzende Schreibweise einzuführen:

LT-SpSputtern bei tiefer Substrattemperatur  $T_{sub} = 720 - 740^{\circ}$ C und  $p(O_2) = 200$  PaHT-SpSputtern bei hoher Substrattemperatur  $T_{sub} = 780^{\circ}$ C und  $p(O_2) = 200$  PaPLDOff-axis Laserablation bei  $T_{sub} = 750^{\circ}$ C und  $p(O_2) = 50$  Pa

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>Dieser Messmodus wurde von T. Hödtke implementiert.



#### Abb. 4.3:

Typische IU-Kennlinien  $4\,\mu\text{m}$  breiter Stufenkantenkontakte, deren Präparation sich nur im Filmdepositionsverfahren (LT-Sp, HT-Sp, PLD) unterscheidet. Die Ausschnittsvergrößerung (kleines Diagramm) verdeutlich das unterschiedliche Krümmungsverhalten der IU-Kennlinien typischer LT-Sp- und HT-Sp-Stufenkantenkontakte.

Wie sehr sich die IU-Kennlinien unterscheiden, die für das jeweilige Depositionsverfahren typisch sind, illustriert Abb. 4.3 anhand sonst identisch präparierter 4  $\mu$ m breiter Stufenkantenkontakte. Die Ausschnittsvergrößerung verdeutlicht das gegensätzliche Krümmungsverhalten der Kennlinien der beiden gesputterten Kontakte. Weitere Beispiele für Kennlinien der LT-Sp-, HT-Sp- und PLD-Stufenkantenkontakte und ihre charakteristischen Merkmale werden in den folgenden drei Abschnitten diskutiert.

#### 4.2.1 LT-Sp-Stufenkantenkontakte

Alle IU-Kennlinien, die bei T = 4.2 K an LT-Sp-Stufenkantenkontakten gemessen wurden, lassen sich folgenden Kennlinientypen zuordnen (vgl. Abb. 4.4):

#### Typ 1: Flux-Flow-artige Kennlinien (vgl. (1) in Abb. 4.4)

Kennlinien dieses Typs zeigen einen kritischen Strom  $I_c > 0$ , haben aber im Gegensatz zu einer RSJ-Kennlinie (vgl. Kap. 2.3.2) eine negative Krümmung



#### Abb. 4.4:

Typische Beispiele für die an LT-Sp-Stufenkantenkontakten bei 4.2 K beobachteten Kennlinientypen. Kennlinie (1) entspricht Kennlinie (LT-Sp) aus Abb. 4.3. Weitere Erläuterungen im Text.

 $\frac{dI^2(U)}{dU^2} < 0$  für kleine Spannungen ( $U < 5 \,\mathrm{mV}$  bei 4.2 K). Mit wachsender Spannung nähert sich die Kennlinie oft asymptotisch einer Geraden an, deren Stromachsenabschnitt als *Excess-Strom I<sub>exc</sub>* bezeichnet wird (vgl. Abb. 4.5).

#### Typ 2: Resistive nicht-lineare Kennlinien (vgl. (2) und (3) in Abb. 4.4)

Wie auch für Typ 3 und 4 gilt hier  $I_c = 0$ . In einigen Fällen tritt eine abrupte Widerstandsänderung bei einer Spannung U > 5 mV auf (vgl. senkrechte Pfeile an Kennlinie (2) in Abb. 4.4). Viele Kennlinien lassen sich durch Subtraktion eines ohmschen Widerstands in Typ 1 überführen (vgl. Abb. 4.5).

**Typ 3: Lineare Kennlinien** (vgl. (4) in Abb. 4.4) Nahezu ohmsches Verhalten bis mindestens U = 50 mV.

#### **Typ 4: Halbleiter-ähnliche Kennlinien** (vgl. (5) in Abb. 4.4) Seltener Kennlinientyp, der hauptsächlich an sauerstoffdefizienten Proben beobachtet wurde.


## Abb. 4.5:

Die resistive Typ-2-Kennlinie (1) lässt sich durch Subtraktion des Ohmschen Widerstands  $R_0 = 1.77 \Omega$  in die Typ-1-Kennlinie (2) verwandeln. Am Beispiel der Kennlinie (2) wird die Bestimmung des Excess-Stroms  $I_{exc}$  gezeigt.

Die Form der Typ-1-Kennlinie weist auf die Bewegung von Josephson-Flusswirbeln (engl. flux flow) entlang einer Korngrenze hin, wie sie verstärkt in breiten Josephsonkontakten  $(w > \lambda_J, vgl. Kap. 2.3.4)$  mit inhomogener Barriere auftritt [251]. Die meisten LT-Sp-Stufenkantenkontakte zeigen diese beiden typischen Merkmale. Die Josephsoneindringtiefe  $\lambda_J$  ist in fast allen Fällen kleiner als die Stegbreite w und die in der TEM-Untersuchung (vgl. Kap. 3.3.3) nachgewiesene defektreiche Mikrostruktur des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Films im Bereich der unteren Stufenkante lässt auf eine inhomogene Barriere (Korngrenze) schließen<sup>5</sup>. Der mit dem kritischen Strom  $I_c$  vergleichbare große Excess-Strom ist auf einen wesentlichen Beitrag der Andreev-Reflexion zum Quasiteilchentransport zurückzuführen (vgl. Kap. 2.2.2).

Die Beobachtung, dass viele *Typ-2-Kennlinien* sich durch Subtraktion eines ohmschen Widerstands in Typ-1-Kennlinien überführen lassen (vgl. Abb. 4.5), weist darauf hin, dass

 $<sup>\</sup>frac{1}{5} \text{Für die LT-Sp-Kennlinie in Abb. 4.4 gilt z.B.: } w = 3.6 \,\mu\text{m}, \, d_f = 200 \,\text{nm} \text{ (Dicke des YBCO-Films)}, \\ I_c = 278 \,\mu\text{A} \, (5 \,\mu\text{V-Kriterium, vgl. Kap. 4.2.5)} \Rightarrow J_c = \frac{I_c}{wd_f} = 3.86 \cdot 10^8 \,\frac{\text{A}}{\text{m}^2}. \text{ Mit } d_H = 300 \,\text{nm}, \, \phi_0 = \frac{h}{2e} = 2.0678 \cdot 10^{-15} \,\text{Tm}^2 \,\text{und} \,\mu_0 = 1.2566 \cdot 10^{-6} \,\frac{\text{Vs}}{\text{Am}} \text{ erhält man } \lambda_J \approx 1.5 \,\mu\text{m} \text{ (vgl. Gleichung 2.28)}.$ 

zu einer supraleitenden Korngrenze eine normalleitende Barriere mit nahezu spannungsunabhängigem Widerstand  $R(U) \approx R(U = 0V) =: R_0$  in Serie liegt. Zwei Zuordnungen dieser normalleitenden Barriere sind denkbar: (I) Es handelt sich um die zweite Korngrenze, die hier resistiv ist. (II) Es ist eine *zusätzliche* normalleitende Barriere (Korngrenze), die in Serie zu den beiden nominellen, supraleitenden Korngrenzen liegt. Interpretiert man eine abrupte Widerstandsänderung bei U > 3 mV wie in Kennlinie (2) in Abb. 4.4 (siehe Pfeile) als Überschreitung des kritischen Stroms der zweiten Korngrenze, dann ist das zugehörige  $I_c$  viel größer als der kritische Strom der Typ-1-Kennlinie, die man nach Subtraktion von  $R_0$  von der gemessenen Typ-2-Kennlinie erhält. Das spricht für Fall (II), da außer zwei supraleitenden Korngrenzen eine zusätzliche normalleitende Barriere zur Erklärung benötigt wird. In jedem Fall ist davon auszugehen, dass in LT-Sp-Stufenkantenkontakten eine *zusätzliche* normalleitende Barriere oder schwach supraleitende Korngrenze existieren kann. Nach den Erkenntnissen der TEM-Analyse sollte sie sich in dem defektreichen Bereich des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-\delta</sub>-Films nahe der unteren Stufenkante (vgl. Kap. 3.3.3), also in unmittelbarer Nähe der unteren Korngrenze befinden.

Mithilfe des auf die Kontaktfläche  $A = wd_f$  normierten Flächenwiderstands

$$R_0 A = d_b \rho_b \tag{4.1}$$

lassen sich die normalleitenden Barrieren von Stufenkantenkontakten unterschiedlicher Stegbreite w und YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filmdicke  $d_f$  miteinander vergleichen. Hier bezeichnen  $d_b$  und  $\rho_b$  die Dicke bzw. den spezifischen Widerstand der normalleitenden Barriere.

Es fällt auf, dass  $R_0A$  von Kennlinientyp 2 über Typ 3 bis zu Typ 4 zunimmt und jedem Typ ein bestimmter  $R_0A$ -Wertebereich zuzuordnen ist, der zu den anderen disjunkt ist (vgl. Tab. 4.1). Da mit steigendem  $R_0A$  die zunächst negative Krümmung der Kennlinie in eine für Halbleiter typische positive Krümmung übergeht, ist davon auszugehen, dass nicht nur die Dicke  $d_b$ , sondern auch der spezifische Widerstand  $\rho_b$  der normalleitenden Barriere zunimmt. Für  $d_b \sim 10$  nm erhält man bei Kennlinientyp 4 einen spezifischen Widerstand  $\rho_b = 0.8 - 2.6 \,\Omega$ cm, der um 6 Größenordnungen größer als der von Kupfer bei Raumtemperatur ist ( $\rho_{Cu}(291 \,\mathrm{K}) = 1.7 \,\mu\Omega$ cm [106]) und damit im Halbleiterbereich liegt. Da halbleiterartige Kennlinien vorzugsweise an sauerstoffdefizienten Proben gefunden wurden, liegt es nahe, dass die Barriere aus isolierendem YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> mit zahlreichen defektinduzierten lokalisierten Zuständen (= ungeordneter Halbleiter, vgl. Kap. 2.2.2 und Abb. 2.1b) besteht. In der Ableitung dI(U)/dU von Typ-3- und Typ-4-Kennlinien wurden mehrfach periodische und subharmonische Strukturen gefunden, die in Kap. 5 detailliert diskutiert werden.

Tab. 4.1: Häufigkeit und typische  $R_0A$ -Werte der LT-Sp-Kennlinientypen bei 4.2 K

Kennlinientyp	Häufigkeit $[\%]^{1)}$	$R_0 A \ [10^{-9} \Omega \text{cm}^2]^{\ 2)}$
1	22	
2	45	3 - 75
3	30	100 - 400
4	3	800 - 2600

<sup>1)</sup> 143 LT-Sp-Kennlinien wurden ausgewertet. <sup>2)</sup> 80% der  $R_0A$ -Werte liegen im angegebenen Bereich.



#### Abb. 4.6:

(a) Kennlinien zweier  $4 \,\mu$ m breiter Stufenkantenkontakte gleicher Stufenhöhe (250 nm), deren Präparation nur hinsichtlich des Filmdepositionsprozesses (LT-Sp) übereinstimmt. Alle übrigen Präparationsschritte erfolgten wie in Kap. 3.1 und 3.2 beschrieben (1) bzw. nach dem Jülicher Standardprozess (2) [252].

(b) Einfluss der Substratstufenhöhe auf die Kennlinie eines LT-Sp-Stufenkantenkontakts. Die Kennlinie (1) in Abb. 4.6 a und 4.6 b ist dieselbe wie Kennlinie (LT-Sp) in Abb. 4.3.

Der Einfluss der Filmdeposition auf die IU-Kennlinie konnte auch an Stufenkantenkontakten nachgewiesen werden, die mit verwandter, aber im Detail verschiedener Stufenpräparation und Mikrobrückenstrukturierung an einem anderen Institut (ISI, FZ Jülich) präpariert wurden<sup>6</sup> [252]. Im Jülicher Prozess wurde lediglich das Filmdepositionsverfahren (Laserablation) durch die in Wuppertal durchgeführte LT-Sp-Deposition ersetzt, was von RSJ-Kennlinien [252] zu Flux-Flow-Kennlinien führte, die sich nicht signifikant von den oben diskutierten Typ-1- und Typ-2-Kennlinien unterscheiden (vgl. Abb. 4.6 a). Damit ist *auch an Fremdproben* gezeigt, dass die Art der Filmdeposition entscheidend für die Transporteigenschaften der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-\delta</sub>-Stufenkantenkontakte ist.

In einer früheren Arbeit wurden Typ-1-Kennlinien an laserablatierten YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Stufenkantenkontakten beobachtet, deren geringes Verhältnis  $h/d_f < 1$  von Stufenhöhe h zu Filmdicke  $d_f$  zu einer (teilweisen) Überwachsung der Substratstufe ohne durchgehende Ausbildung der Korngrenzen führte [152, 253]. Für Stufenkantenkontakte mit  $h/d_f > 1$  ergaben sich dagegen fast ausschließlich RSJ-*IU*-Kennlinien. Im Gegensatz zu diesen Ergebnissen konnte bei den hier untersuchten LT-Sp-Stufenkantenkontakten keine entsprechende Annäherung der *IU*-Kennlinie an das RSJ-Verhalten durch eine Erhöhung der Substratstufenhöhe h bei gleicher Filmdicke  $d_f = 200$  nm erreicht werden. Abb. 4.6 b zeigt zwei typische Kennlinien 4  $\mu$ m breiter Stufenkantenkontakte mit  $h/d_f = 1.28$  und  $h/d_f = 2.05$ . Für  $h/d_f = 2.05$  ist der differentielle Widerstand deutlich größer und die mittlere kritische Stromdichte mit  $J_c(4.2 K) = 10 \text{ kA/cm}^2$  nur noch halb so groß wie für

 $<sup>^6\</sup>mathrm{Die}$  Stufenpräparation und die Strukturierung der Mikrobrücken wurden von Dr. Stephan Beuven durchgeführt.

 $h/d_f = 1.28$ . Beide Beobachtungen lassen sich durch eine stärkere Filmausdünnung in der Stufenflanke erklären, die durch den größeren Abschattungsbereich der höheren Stufe während der Filmdeposition hervorgerufen wird (vgl. Kap. 3.3.3). Eine weitere Erhöhung von  $h/d_f$  erschien daher genauso wenig sinnvoll ( $\rightarrow$  Filmabriss), wie ein  $h/d_f < 1$ , bei dem die oben erwähnte Überwachsung der Substratstufe droht.

## 4.2.2 HT-Sp-Stufenkantenkontakte

Der HT-Sp-Filmdepositionsprozess unterscheidet sich vom LT-Sp-Prozess nur durch die höhere Substrattemperatur  $T_{sub} = 780^{\circ}$ C, die zu einer nahezu 5 mal größeren Oberflächendiffusionskonstante  $D_s$  während des Filmwachstums führt (vgl. Kap. 3.3.2).

Während die spezifischen Widerstände  $\rho(100 \text{ K})$  der LT-Sp- und PLD-Filme mit 110 – 160  $\mu\Omega$ cm eine noch gute Filmqualität dokumentieren, liefern HT-Sp-Filme schon deutlich schlechtere Werte bis zu 300  $\mu\Omega$ cm. Das zeigt, dass mit  $T_{sub} = 780^{\circ}$ C eine Obergrenze für die Substrattemperatur während des Hochdrucksputterns erreicht ist, oberhalb der die Filmqualität – insbesondere für Hochfrequenzanwendungen – nicht mehr akzeptabel ist.



Abb. 4.7:

Typische Kennlinien  $4\mu m$  breiter HT-Sp-Stufenkantenkontakte bei 4.2 K. Kennlinie (1) entspricht Kennlinie (HT-Sp) aus Abb. 4.3.

In Abb. 4.7 sind einige Beispiele für IU-Kennlinien 4  $\mu$ m breiter HT-Sp-Stufenkantenkontakte dargestellt. HT-Sp-Kennlinien zeigen nie eine negative Krümmung wie LT-Sp-Kennlinien (Typ 1), sondern in der Regel eine positive Krümmung, die dem RSJ-Verhalten näher kommt (vgl. kleine Abbildung in Abb. 4.3). Typischerweise treten 1-2 Widerstandssprünge in der Kennlinie auf. Während die Sprünge bei U > 5 mV eher vom Übergang einer Korngrenze in den normalleitenden Zustand herrühren, können buckelartige Widerstandsänderungen bei U < 2 mV auch auf Flussschlauchbewegung (*flux flow*) hinweisen [251]. Obwohl die  $J_c(4.2 \text{ K})$ -Werte der HT-Sp-Stufenkantenkontakte tendentiell etwas größer als die der LT-Sp-Stufenkantenkontakte sind (vgl. Tab. 4.2 in Kap. 4.3.1) und daher ebenfalls  $w > \lambda_J$  gilt, ist der *flux-flow*-Einfluss auf die *IU*-Kennlinie viel schwächer ausgeprägt. Das deutet auf eine defektärmere Mikrostruktur der Korngrenze hin, die durch die deutlich größere Oberflächendiffusionskonstante  $D_s$  zu erklären ist.

## 4.2.3 PLD-Stufenkantenkontakte

PLD-Stufenkantenkontakte entstehen in einem Filmdepositionsprozess mit deutlich größerer Oberflächendiffusion als HT-Sp- und LT-Sp-Stufenkantenkontakte (vgl. Tab. 3.2 und Kap. 3.3.2). Ihre Kennlinien lassen sich bei T = 77 K und meist auch schon bei T = 4.2 K näherungsweise durch das RSJ-Modell beschreiben (vgl. Abb. 4.8 und Kap. 4.2.5).



Abb. 4.8:

Typische Kennlinien von PLD-Stufenkantenkontakten für verschiedene Stegbreiten bei (a) 4.2 K und (b) 77 K. Die  $4 \mu \text{m}$ -Kennlinie bei 4.2 K entspricht der Kennlinie (PLD) in Abb. 4.3.

Die im Vergleich zu LT-Sp- und HT-Sp-Stufenkantenkontakten wesentlich bessere Reproduzierbarkeit der *IU*-Kennlinien lässt die zu erwartenden Korrelationen  $I_c \sim w$  und  $R_n \sim \frac{1}{w}$  zwischen dem kritischen Strom  $I_c$ , dem normalleitenden Widerstand  $R_n$  und der Stegbreite w der Josephsonkontakte deutlich hervortreten (vgl. Abb. 4.8).

In Abb. 4.9 ist eine Kennlinie dargestellt, in der der kritische Strom  $I_{c2}$  der zweiten Korngrenze des Stufenkantenkontakts deutlich zu erkennen ist. In der Regel gilt  $I_{c2} > 4 I_c$ , sodass die zweite Korngrenze keinen störenden Einfluss auf die meisten Anwendungen hat.



## Abb. 4.9:

Hinweis auf die zweite Korngrenze in der 4.2K- und der 77K-Kennlinie eines PLD-Stufenkantenkontaktes. Kenndaten der zweiten Korngrenze (Index 2) bei 4.2K (77K):  $I_{c2} = 16.8 (3.52) \text{ mA}, R_{n2} = 0.10 (0.13) \Omega.$ 

## 4.2.4 Bikristallkontakte

Auf zwei Bikristallsubstraten von verschiedenen Herstellern, die sich schon unter einem optischen Mikroskop erkennbar in der Defektdichte und -größe entlang der Korngrenze deutlich unterschieden, wurde mit dem LT-Sp-Prozess ein 200 nm dicker YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film abgeschieden, lift-off-vergoldet und strukturiert (vgl. Kap. 3.2).

Abbildung 4.10 zeigt typische *IU*-Kennlinien bei T = 4.2 K von drei  $4 \mu$ m breiten Bikristallkontakten. Die für das *defektärmere* Bikristallsubstrat typische Kennlinie (1) ist RSJ-ähnlich und gleicht den Kennlinien der PLD-Stufenkantenkontakte. Die Ausbeute an Bikristallkontakten dieses Typs mit einem typischen  $T_c$  von 50-70 K betrug mehr als 80%. Auf dem *defektreicheren* Bikristallsubstrat fanden sich nur 3 supraleitende Bikristallkontakte (Ausbeute: < 20%), die alle ein  $T_c$  < 30 K und eine für U < 0.2 mV vom RSJ-Verhalten abweichende *IU*-Kennlinie aufweisen (vgl. Kennlinie (2) in der Ausschnittsvergrößerung von Abb. 4.10). Kennlinie (2) stellt in diesem Spannungsbereich eine Übergangsform zwischen Kennlinie (1) und der resistiven Kennlinie (3) dar, die für die nicht-



Abb. 4.10:

Typische Kennlinien von LT-Sp-Bikristallkontakten auf Substraten mit defektarmer (1) und defektreicher (2),(3) Korngrenze bei 4.2 K.

supraleitenden Bikristallkontakte typisch ist. Allen Kennlinien gemeinsam ist die positive Krümmung für U > 3 mV. Zusätzlich zeigen die Kennlinien (2) und (3) bei  $U \approx 1 - 2 \text{ mV}$  einen Bereich mit leicht negativer Krümmung, die auf Flussschlauchbewegung hinweist. Der Flächenwiderstand  $R_0A$  der normalleitenden Barriere aller resistiven Bikristallkontakte liegt im Bereich von  $1 - 12 \times 10^{-9} \Omega \text{cm}^2$  und damit im Mittel niedriger als bei LT-Sp-Stufenkantenkontakten vom Typ 2 (vgl. Tab. 4.1).

Die Kennlinie (1) belegt, dass prinzipiell mit dem LT-Sp-Filmdepositionsverfahren RSJ-Kennlinien erzielt werden können. Gleichzeitig dokumentieren die schlechteren Eigenschaften der Bikristallkontakte auf dem defektreicheren Substrat (niedriges  $T_c$ , geringe Ausbeute, Hinweis auf Flussschlauchbewegung) die Empfindlichkeit des LT-Sp-Verfahrens gegenüber Defekten entlang der Substratkorngrenze, die bei Laserablationverfahren nicht beobachtet wird [254]. Ferner fällt auf, dass sich Berichte über den schädlichen Einfluss von Mikrostrukturdefekten der Substratkorngrenze auf die Mikrostruktur und die Transporteigenschaften von Bikristallkontakten in der Regel auf gesputterte Bikristallkontakte beziehen [255, 256, 257]. In Analogie zur Grabenbildung bei gesputterten Stufenkanten-

kontakten (vgl. Kap. 3.3) wurden sogar Gräben im YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film genau über der Substratkorngrenze beobachtet, die durchweg tiefer sind, als die diese Grabenbildung verursachenden Gräben im Substrat [256, 257]. Eine naheliegende Erklärung für diese Beobachtungen ist wiederum die geringe Oberflächendiffusion während eines YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Sputterprozesses (vgl. Kap. 3.3.3), die

- offensichtlich zu gering ist, um eine Fortsetzung der Substratkorngrenzendefekte in den  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Film hinein zu verhindern,
- ggf. neue Defekte in der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenze dadurch erzeugen kann, dass sie den energetisch günstigsten Einbau von Wachstumseinheiten kinetisch behindert und
- eine Grabenbildung infolge von Abschattungseffekten (vgl. Abb. 3.20) begünstigt.

## 4.2.5 Vergleich der *IU*-Kennlinien von PLD-Stufenkantenkontakten und Bikristallkontakten mit dem RSJ-Modell

Für kleine Spannungen  $U < 3 I_c R_n$  lassen sich die *IU*-Kennlinien der meisten supraleitenden PLD-Stufenkantenkontakte und Bikristallkontakte gut durch das RSJ-Modell (vgl. Kap. 2.3.2) beschreiben, wenn ein thermischer Fluktuationsstrom  $I_f = \gamma I_c$  berücksichtigt wird (vgl. Abb. 4.11). Die theoretischen RSJ-Kennlinien (RSJ-Fit) wurden mithilfe der folgenden Gleichung berechnet [96, 250],

$$U = \gamma R_n I_c \frac{e^{\frac{2\pi I}{\gamma I_c}} - 1}{e^{\frac{2\pi I}{\gamma I_c}}} \mathcal{T}^{-1} \quad \text{mit} \quad \mathcal{T} = \int_0^{2\pi} \mathcal{I}_0 \left(\frac{2}{\gamma} \sin \frac{\varphi}{2}\right) e^{-\frac{I\varphi}{\gamma I_c}} d\varphi \tag{4.2}$$

in der  $\mathcal{I}_0$  die modifizierte Besselfunktion nullter Ordnung bezeichnet. Da die gemessene *IU*-Kennlinie nur sehr wenig Spielraum für die Variation von  $I_c$  und  $R_n$  beim RSJ-Fit lässt, ist  $\gamma$  der einzige freie Parameter.

Der experimentell bestimmte kritische Strom  $I_{c,exp}$  ist der Mittelwert der Beträge des positiven und negativen Stroms, bei denen die Spannung  $|U| = 5 \,\mu V$  über dem Korngrenzenkontakt abfällt (5 $\mu$ V-Kriterium). Für große  $\gamma$ -Werte ist  $I_{c,exp}$  daher viel kleiner als der aus dem RSJ-Fit bestimmte kritische Strom  $I_{c,rsj}$ , während die  $R_n$ -Werte gut übereinstimmen. Die  $I_c$ -Bestimmung über ein Spannungskriterium hat den Vorteil, dass sie modellunabhängig und daher bei beliebigen IU-Kennlinien anwendbar ist. Als Schwellwert wurde  $U = 5 \,\mu V$  gewählt, da diese Spannung hinreichend klein ist, aber trotzdem deutlich über der typischen Schwankung der Nullspannung von  $\sim 1 \,\mu V$  während der Aufnahme einer IU-Kennlinie liegt.  $I_{c,exp}$  wird von dem selbst entwickelten Auswerteprogramm (vgl. Kap. 4.1) für jede IU-Kennlinie automatisch ermittelt. Wenn es nicht explizit anders angegeben wird, gilt in der vorliegenden Arbeit  $I_c = I_{c,exp}$ .

wird, gilt in der vorliegenden Arbeit  $I_c = I_{c,exp}$ . Es fällt auf, dass die aus der Beziehung  $\gamma = \frac{2ekT_r}{\hbar I_{c,rsj}}$  bestimmbare Rauschtemperatur  $T_r$ um etwa zwei Größenordnungen über der gemessenen Probentemperatur liegt. Signifikante Rauscheinflüsse durch elektromagnetische Einstrahlung in den Glaskryostaten konnten durch Experimente mit einem  $\mu$ -Metallschild ausgeschlossen werden. Es liegt daher nahe, dass strukturelle Defekte in der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenze zu den hohen Rauschtemperaturen führen.



## Abb. 4.11:

RSJ-Fit mit  $\beta_c = 0$  an die U(I)-Kennlinie des  $6 \,\mu m$  breiten PLD-Stufenkantenkontaktes aus Abb. 4.9 bei 4.2 K und 77 K unter Berücksichtigung eines thermischen Fluktuationsstroms  $I_f = \gamma I_c$ . Aus dem Fit erhaltene (bzw. experimentell bestimmte) Werte:  $4.2 K: I_c = 4.07 (3.62) \text{ mA}, R_n = 0.43 (0.43) \Omega, \gamma = 0.01, T_r \approx 970 \text{ K}.$  $77 K: I_c = 0.668 (0.227) \text{ mA}, R_n = 0.40 (0.41) \Omega, \gamma = 0.2, T_r \approx 3200 \text{ K}.$ Das gemessene  $I_c$  wurde über ein  $5 \,\mu V$ -Kriterium bestimmt.  $T_r$  bezeichnet die aus  $\gamma$  berechnete Rauschtemperatur.

Für große Spannungen  $U > 5 - 8 I_c R_n$  und tiefe Temperaturen ist eine kleine, aber signifikante Abweichung der PLD-Stufenkantenkontakt- und Bikristallkontakt-Kennlinien vom RSJ-Modell festzustellen. In diesem Bereich folgen die IU-Kennlinien einem Potenzgesetz  $I(U) = aU^b$  mit b = 1.05 - 1.11, anstatt sich gemäß RSJ-Modell asymptotisch einer Geraden (b = 1) anzunähern (vgl. Abb. 4.12).

Die Abweichung lässt sich unter der Annahme erklären, dass ein geringer Teil der Quasiteilchen über zwei lokalisierte Zustände resonant tunnelt. Bei überwiegendem Quasiteilchentransport über zwei lokalisierte Zustände wäre für  $eU \gg kT$  der Exponent b = 7/3 zu erwarten (vgl. Gleichung 2.4), wie er für Rampenkontakte beobachtet wurde [81]. Da die Barriere einer YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenze aber viel dünner als die eines Rampenkontaktes ist (vgl. Abb. 2.5), kann dieser Ladungstransportmechanismus in Korngrenzenkontakten nur eine untergeordnete Rolle spielen.



#### Abb. 4.12:

Fit einer Potenzfunktion  $I(U) = aU^b$  an die IU-Kennlinien von einem PLD-Stufenkantenkontakt (1) (= (PLD) aus Abb. 4.3) und drei Bikristallkontakten (2)-(4) (= (1)-(3) aus Abb. 4.10) im Bereich  $U > 5 - 8 I_c R_n$ . In allen Fällen ist der Fehler von b kleiner als 0.05 % und der Korrelationskoeffizient größer als 0.99998.

## 4.3 Streuung und Korrelation charakteristischer Parameter

## 4.3.1 Charakteristische Parameter von Stufenkanten- und Bikristallkontakten

LT-Sp-, HT-Sp- und PLD-Stufenkantenkontakte unterscheiden sich nicht nur in den IU-Kennlinien (vgl. Kap. 4.2), sondern auch in der Ausbeute supraleitender Kontakte und in typischen Werten ihrer charakteristischen Parameter. Tabelle 4.2 gibt die Wertebereiche für  $T_c$ ,  $J_c(4.2 \text{ K})$ ,  $R_n A(4.2 \text{ K})$  und  $I_c R_n(4.2 \text{ K})$  an, die für jeweils 80-85 % der Stufenkantenund Bikristallkontakte zutreffen. Einen Überblick über die Ergebnisse, die andere Forschungsgruppen mit Stufenkantenkontakten und anderen HTSL-Josephsonkontakttypen erzielten, gibt die Tabelle A.1 im Anhang A.

Die  $T_c$ -Werte der PLD-Stufenkantenkontakte zeigen, dass die kritische Temperatur eines Stufenkantenkontaktes bis auf 1-2 K an die des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Films (hier: 89-90 K, vgl. Tab. 3.2) heranreichen kann. Die kritische Stromdichte  $J_c(4.2 \text{ K})$  der Korngrenzenkontakte ist um etwa 2-3 (1-2) Größenordnungen kleiner als die des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Films bei 4.2 K (77 K) und erfüllt damit das Kriterium einer schwachen supraleiten-

Danamatan	Stufenkantenkontakte			Bikristallkontakte		
Farameter	LT-Sp	HT-Sp	PLD	defektarm $(-reich)^{1}$		
$Anzahl^{2)}$	54	71	101	18	(20)	
Ausbeute $[\%]^{(3)}$	22	85	90	83	(15)	
$T_c [\mathrm{K}]$	15 - 30	30-70	65-88	50-75	$(\approx 40)$	
$J_c(4.2{ m K})~[{ m kA/cm^2}]$	5-40	10-55	55-270	40-110	$(\approx 35)$	
$R_n A(4.2{ m K})  [10^{-9} \Omega { m cm}^2]$	4)	25-75	6-20	13-19	(18-24)	
$I_c R_n(4.2 \mathrm{K}) \mathrm{[mV]}$	4)	0.65 - 2.10	0.90-1.80	0.95 - 1.60	(0.65 - 0.85)	

Tab. 4.2: Charakteristische Parameter von Stufenkanten- und Bikristallkontakten

<sup>1)</sup> Bikristallkontakte auf einem Bikristall mit defektarmer (-reicher) Substratkorngrenze (vgl. Kap. 4.2.4).

<sup>2)</sup> Anzahl der ausgewerteten Stufenkanten- bzw. Bikristallkontakte.

 $^{3)}$  Ausbeute an Kontakten, die bei $4.2\,\mathrm{K}$  supraleitend sind.

<sup>4)</sup> Die IU-Kennlinien der LT-Sp-Stufenkantenkontakte erlauben keine  $R_n$ -Bestimmung.

den Kopplung (weak link). Die breite Streuung der  $J_c$ - und  $R_nA$ -Werte in Tabelle 4.2 (und Tabelle A.1) bei vergleichbarer charakteristischer Spannung  $I_cR_n$  deutet an, dass die Qualität eines YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenzenkontaktes nicht eng mit seinem  $J_c$  oder  $R_n$  korreliert ist. Die eigenen Ergebnisse liegen – mit Ausnahme der maximalen  $J_c$ -Werte der PLD-Stufenkantenkontakte – im Bereich der Literaturwerte. Wenn man für die Berechnung des  $I_cR_n$  das aus einem RSJ-Fit ermittelte  $I_{c,rsj}$  anstelle des hier standardmäßig angegebenen  $I_{c,exp}$  (5  $\mu$ V-Kriterium, vgl. Kap. 4.2.5) heranzieht, erhält man für die PLD-Stufenkantenkontakte eine maximale charakteristische Spannung  $I_cR_n$  von 2.1 mV (0.24 mV) bei 4.2 K (77 K), die an die Bestwerte für Stufenkantenkontakte in Tab. A.1 heranreicht<sup>7</sup>. Wie für alle YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenzenkontakte typisch, sind die  $I_cR_n(4.2\dot{K})$ -Werte um etwa eine Größenordnung kleiner als die Energielückenspannung  $\Delta(0)/e \approx 30 \,\mathrm{mV}$  (vgl. Tab. 2.1 und Kap. 5.1.3).

Von LT-Sp- über HT-Sp- zu PLD-Stufenkantenkontakten steigen Ausbeute, kritische Temperatur  $T_c$  und kritische Stromdichte  $J_c$  bei 4.2 K, während der Flächenwiderstand  $R_n A(4.2 \text{ K})$  fällt. (vgl. Tab. 4.2). Oft sind die typischen Wertebereiche sogar disjunkt. Diese vier klaren Tendenzen reflektieren, dass von LT-Sp- über HT-Sp- zu PLD-Stufenkantenkontakten die relevante schwächere Korngrenze transparenter für Cooperpaare und Quasiteilchen wird. Die Ursache dafür muss allein im Filmdepositionsprozess liegen, da die übrige Präparation der Stufenkantenkontakte identisch verlief. In Kap. 3.3.3 wurde gezeigt, dass der Oberflächendiffusionskoeffizient  $D_s$  um einen Faktor 4-5 vom LT-Sp-Prozess zum HT-Sp-Prozess und um etwa eine Größenordnung vom HT-Sp- zum PLD-Prozess steigt. Da diese Variation von  $D_s$  (1) deutlich größer als die von anderen Depositionsparametern ist, (2) eine unterschiedliche Defektdichte und damit Transparenz der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenze erzeugen kann und (3) mit den Werten aus Tabelle 4.2 korreliert, wird  $D_s$  als Schlüsselparameter für die Transporteigenschaften der in dieser Arbeit untersuchten Stufenkantenkontakte angesehen.

Die charakteristischen Parameter von LT-Sp-Bikristallkontakten verbessern sich deut-

 $<sup>^7\</sup>mathrm{Aus}$ den Literaturquellen geht in der Regel nicht hervor, welche Methode zur  $I_c\text{-}\mathrm{Bestimmung}$  verwendet wurde.



#### Abb. 4.13:

 $J_c$ - und  $R_nA$ -Werte für 47 HT-Sp- und 77 PLD-Stufenkantenkontakte auf je 4 Chips sowie 17 LT-Sp-Bikristallkontakte auf 2 Chips bei 4.2 K. Die gepunkteten Geraden entsprechen  $I_cR_n$ -Werten von 0.5 mV, 1 mV und 2 mV.

lich, wenn Bikristallsubstrate mit defektarmer anstatt defektreicher Substratkorngrenze verwendet werden (vgl. Tab. 4.2). Die Qualität von *laserablatierten* Stufenkantenkontakten und Bikristallkontakten wird aber nicht erreicht (vgl. Tab. 4.2 und A.1). Laut Herstellerangabe [254] werden mit *laserablatierten* Bikristallkontakten sogar auf dem defektreichen Bikristallsubstrattyp regelmäßig bessere Ergebnisse erzielt. Daraus folgt, dass nicht nur bei Stufenkantenkontakten, sondern auch bei Bikristallkontakten der Filmdepositionsprozess eine entscheidende Rolle spielt. Die geringere Empfindlichkeit der laserablatierten Bikristallkontakte gegenüber der Größe und Dichte der Defekte entlang der Substratkorngrenze lässt sich wiederum durch den Oberflächendiffusionskoeffizienten  $D_s$  erklären (vgl. Kap. 3.3), der bei der Laserablation etwa 100 mal größer als beim LT-Sp-Prozess ist und daher die Fortsetzung vieler Defekte in den YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film hinein verhindert.

In Abb. 4.13 sind die charakteristischen Parameter  $J_c$ ,  $R_nA$  (als Kehrwert) und  $I_cR_n$ von 47 HT-Sp- und 77 PLD-Stufenkantenkontakten sowie 17 LT-Sp-Bikristallkontakten bei 4.2 K dargestellt. Neben der bereits in Tab. 4.2 erkennbaren Gruppierung der Kontakte der jeweiligen Typen fällt eine typübergreifende Korrelation zwischen  $J_c$  und  $(R_nA)^{-1}$ auf, die darauf hinweist, dass die  $R_nA$ -Zunahme von PLD-Stufenkantenkontakten über Bikristallkontakte hin zu HT-Sp-Stufenkantenkontakten *nicht allein* auf eine Zunahme der Barrierendicke  $d_b$  zurückzuführen ist. Nach dem ISJ-Modell (vgl. Kap. 2.4.2) kompensieren sich nämlich die gegenteiligen Auswirkungen einer Erhöhung der Barrierendicke auf  $J_c$  und  $R_nA$  nicht zu einem  $d_b$ -unabhängigen  $I_cR_n$ , wie die folgenden Gleichungen zeigen [80],

$$J_c \propto N_0 e^{-2\kappa d_b}, \quad R_n A \propto \frac{1}{N_L} e^{\kappa d_b}, \quad I_c R_n \propto e^{-\kappa d_b} \quad \text{mit} \quad \kappa = \sqrt{\frac{2m\phi}{\hbar^2}}$$
(4.3)

in denen  $N_0$  die Zustandsdichte in den supraleitenden Elektroden und  $N_L$  die Dichte der lokalisierten Zustände in der Barriere bezeichnen. Ein weiteres Indiz dafür, dass außer der Barrierendicke weitere, vermutlich strukturelle Merkmale oder der Sauerstoffgehalt eine Rolle spielen, liefert die Beobachtung, dass *IU*-Kennlinien von Kontakten verschiedenen Typs, die in Abb. 4.13 dicht nebeneinander liegen, sich signifikant unterscheiden, während *IU*-Kennlinien weit auseinanderliegender Kontakte gleichen Typs ähnlich aussehen.

Bei T = 77 K sind in der Regel nur noch die PLD-Stufenkantenkontakte supraleitend. Typische Wertebereiche sind:  $J_c = 7 - 33 \text{ kA/cm}^2$ ,  $R_n A = 5 - 12 \times 10^{-9} \Omega \text{cm}^2$  und  $I_c R_n = 70 - 180 \,\mu\text{V}$  (Bestwert: 220  $\mu\text{V}$ ). Aus einem RSJ-Fit bestimmte  $I_c(77 \text{ K})$ -Werte führen zu 1.2-3 mal größeren  $J_c$ - und  $I_c R_n$ -Werten (vgl. Abb. 4.11). Die charakteristischen Parameter der PLD-Stufenkantenkontakte bei 4.2 K und 77 K sind typisch für gute Stufenkanten- und Bikristallkontakte (vgl. Tab. A.1).

## 4.3.2 Parameterstreuung

In der letzten Zeit wird bei der Optimierung von HTSL-Josephsonkontakten besonderes Augenmerk auf die  $J_c$ - und  $R_nA$ -Streuung gelegt, da die bislang mäßige Reproduzierbarkeit nur Schaltungen mit nicht mehr als 10-20 Josephsonkontakten zulässt (vgl. Kap. 2.4.3). In Tab. 4.3 sind typische Parameterstreuungen bei 4.2 K für die in dieser Arbeit hergestellten Stufenkanten- und Bikristallkontakte zusammengefasst.

Tab. 4.3: Typische Parameterstreuung (Standardabweichung) mindestens  $4 \,\mu m$  breiter Stufenkantenkontakte / Bikristallkontakte entlang einer Substratstufe / Bikristallkorngrenze bei 4.2 K. Die Werte in Klammern geben die Chip-to-Chip-Streuung über 4 Chips an.

Kontakttyp	$\sigma(J_c)  [\%]$		$\sigma(R_n A)  [\%]$		$\sigma(I_c R_n)  [\%]$		$\sigma(T_c)$ [%]	
HT-Sp-SEJ	45-75	(72)	20-45	(38)	15-45	(43)	15-35	(30)
PLD-SEJ	30-50	(54)	10-35	(45)	10-35	(25)	4-11	(11)
LT-Sp-BC	27		12		19		9	

Zunächst fällt auf, dass bei allen Kontakttypen die  $J_c$ -Streuung fast doppelt so groß, wie die  $R_nA$ - und die  $I_cR_n$ -Streuung ist. Im ISJ-Modell (vgl. Kap. 2.4.2) lässt sich dieses Ergebnis dadurch erklären, dass sich Schwankungen der Barrierendicke  $d_b$  und der Barrierenhöhe  $\phi$  stärker auf  $J_c$  als auf  $R_nA$  und  $I_cR_n$  auswirken, wie der Vergleich der Exponenten in Gleichung 4.3 zeigt.

Die vier in Tab. 4.3 aufgeführten Parameter sind mit PLD-Stufenkantenkontakten deutlich besser reproduzierbar als mit HT-Sp-Stufenkantenkontakten, was wieder mit der stärkeren Oberflächendiffusion während der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filmdeposition zu erklären ist. Bei beiden Kontakttypen ist die Streuung entlang einer Substratstufe meist geringer als die Streuung über 4 Chips mit je zwei Substratstufen. Das beste Ergebnis mit



#### Abb. 4.14:

Parameterstreuung (Bestwert) für 11 PLD-Stufenkantenkontakte mit Stegbreiten von  $6\,\mu\text{m}$ ,  $9\,\mu\text{m}$  und  $14\,\mu\text{m}$  entlang einer Substratstufe. Die schwarzen (grauen) Balken geben die  $J_c$ -,  $R_nA$ - und  $I_cR_n$ -Werte der einzelnen Stufenkantenkontakte bei 4.2K (77K) an.

 $\sigma(J_c) = 16.8 \% (40.6 \%), \ \sigma(R_n A) = 18.8 \% (19.9 \%)$  und  $\sigma(I_c R_n) = 7.4 \% (23.5 \%)$  bei 4.2 K (77 K) wurde mit 11 PLD-Stufenkantenkontakten entlang einer Substratstufe erzielt (vgl. Abb. 4.14). Es unterbietet die Parameterstreuung der LT-Sp-Bikristallkontakte und erreicht mit Ausnahme der  $J_c(77 \text{ K})$ -Streuung Literaturbestwerte für Stufenkantenkontakte und typische Werte für Bikristallkontakte (vgl. Tab. A.2).

Die hohe  $J_c$ -Streuung bei 77 K ist hauptsächlich auf die unterschiedliche kritische Temperatur der Josephsonkontakte (81.3 – 88.2 K) zurückzuführen. Für gleiche Stegbreiten w fällt die  $T_c$ -Streuung mit 81.3 – 83.5 K ( $w = 6 \mu m$ ), 83.7 – 86.9 K ( $w = 9 \mu m$ ) und



Abb. 4.15:

IU-Kennlinien von je zwei 5 bzw. 13  $\mu$ m breiten PLD-Stufenkantenkontakten in Serie, die sich an den gegenüberliegenden Stufen eines 5 $\mu$ m breiten Substratgrabens befinden. Die Pfeile markieren das  $I_c$  des 2. Kontakts, das nur 10-30 % größer als das des 1. Kontakts ist.

 $86.1 - 88.2 \text{ K} (w = 14 \,\mu\text{m})$  deutlich geringer aus. Da die kritische Temperatur der Josephsonkontakte für den Flächenwiderstand  $R_n A$  keine Rolle spielt, ist  $\sigma(R_n A)$  vergleichsweise temperaturunabhängig.

In Abb. 4.15 sind IU-Kennlinien von je zwei PLD-Stufenkantenkontakten in Serie dargestellt, die sich an den gegenüberliegenden Stufen eines 5  $\mu$ m breiten Substratgrabens befinden. Die aus diesen Kennlinien extrahierten  $I_c R_n (4.2 \text{ K})$ -Werte sind mit 2.2-2.6 mV etwa doppelt so groß, wie die einzelner Josephsonkontakte (1.0-1.5 mV) auf demselben Chip. Daraus folgt, dass die mit Pfeilen markierten Knicke in den IU-Kennlinien der Doppelkontakte durch Überschreiten des kritischen Stroms des zweiten Stufenkantenkontakts verursacht werden. (Der kritische Strom  $I_{c2}$  der zweiten Korngrenze ist bei beiden Stufenkantenkontakten so viel größer als  $I_c$ , dass er hier keine Rolle spielt.)

Der typische  $J_c$ -Unterschied zwischen den zwei PLD-Stufenkantenkontakten in Serie an einem 5 $\mu$ m-Graben ist mit 10-30% geringer als typische  $J_c$ -Unterschiede von PLD-Stufenkantenkontakten entlang einer Substratstufe (vgl. Tab. 4.3) Das weist darauf hin, dass zwei Substratstufen die sich in sehr geringem Abstand (wenige  $\mu$ m) gegenüberliegen, eine sehr ähnliche Mikrostruktur haben. Für die etwa 1.3 mm voneinander entfernten Substratstufen auf den Standard-Testchips (vgl. Abb. 3.11) ist der  $J_c$ -Unterschied sich gegenüberliegender PLD-Stufenkantenkontakte mit 25-70% in der Regel (deutlich) größer. Gut reproduzierbare Serienkontakte an schmalen Substratgräben sind Voraussetzung für eine hohe Integrationsdichte und lassen mehr Spielraum beim Schaltungslayout als Stufenkantenkontakte, die nur entlang *einer* Substratstufe eine geringe Parameterstreuung zeigen.

## 4.3.3 Skalierungsverhalten und Temperaturabhängigkeit

Während die charakteristische Spannung  $I_c R_n$  für SIS-Josephsonkontakte in klassischen Supraleitern unabhängig von der kritischen Stromdichte  $J_c$  und ungefähr gleich der Energielückenspannung  $\Delta/e$  ist, zeigen zahlreiche HTSL-Josephsonkontakttypen bei 4.2 K das Skalierungsverhalten  $I_c R_n \propto J_c^p$  mit  $p \approx 0.5$ , das im Einklang mit dem ISJ-Modell und resonantem Tunneln über lokalisierte Zustände steht [80] (vgl. Gleichung (4.3) und Kap. 2.4.2). In Abb. 4.16 ist  $I_c R_n$  gegen  $J_c$  für HT-Sp- und PLD-Stufenkantenkontakte sowie LT-Sp-Bikristallkontakte bei 4.2 K aufgetragen. Aufgrund der disjunkten Bereiche typischer Werte (vgl. Kap. 4.3.1) erscheinen die Stufenkontakttypen (HT-Sp) und (PLD) getrennt gruppiert. Abb. 4.17 zeigt die gleiche Abhängigkeit für PLD-Stufenkantenkontakte bei 77 K. Die gepunkteten Geraden entsprechen Potenzgesetzen mit dem Exponenten p = 0.5, die die Daten für 4.2 K (77 K) im Bereich  $I_c R_n > 0.8$  mV (0.06 mV) recht gut beschreiben. Für niedrigere  $I_c R_n$ -Werte erscheint hier – wie auch in Abb. 2.15 – ein höherer Exponent



#### Abb. 4.16:

Skalierungsverhalten der charakteristischen Spannung  $I_c R_n$  für HT-Sp/PLD-Stufenkantenkontakte und LT-Sp-Bikristallkontakte bei 4.2 K. Die gepunkteten Geraden entsprechen folgenden Potenzfunktionen:  $I_c R_n [mV] = 0.245 \cdot (J_c [kA/cm^2])^{0.5}$  bzw.  $I_c R_n [mV] = 0.11 \cdot (J_c [kA/cm^2])^{0.5}$ 



Abb. 4.18:

Typische, auf  $I_c(4.2 \text{ K})$  und  $T_c$  normierte  $I_c(T)$ -Kurven von HT-Sp- und PLD-Stufenkantenkontakten. Die  $I_c$ -Werte stammen aus einer automatischen  $I_c(T)$ -Messung (HT-Sp), die ein 5  $\mu$ V-Kriterium verwendet, bzw. aus einzelnen IU-Kennlinien (PLD). Auf folgende Werte wurde normiert: HT-Sp:  $T_c = 55 \text{ K}$ ,  $I_c(4.2 \text{ K}) = 0.428 \text{ mA}$ . PLD:  $T_c = 76 \text{ K}$ ,  $I_c(4.2 \text{ K}) = 1.76 \text{ mA}$ .

 $p \approx 0.6$  geeigneter. Das im gesamten Temperaturbereich gefundene Skalierungsverhalten  $I_c R_n \propto J_c^{0.5}$  stimmt genau mit der Erwartung aus dem ISJ-Modell überein. Zusammen mit den Ergebnissen aus Kap. 4.2.5 weist das darauf hin, dass resonantes Tunneln über *einen* lokalisierten Zustand in der Barriere der dominierende Ladungstransportmechanismus für Quasiteilchen in PLD-Stufenkantenkontakten und LT-SP-Bikristallkontakten ist.

In Abb. 2.18 sind typische, auf  $I_c(4.2 \text{ K})$  und  $T_c$  normierte  $I_c(T)$ -Kurven von HT-Spund PLD-Stufenkantenkontakten dargestellt, deren Verlauf sich nicht signifikant unterscheidet. Die nahezu lineare Abnahme des kritischen Stroms  $I_c$  mit der Temperatur ist typisch für eine ganze Reihe von HTSL-Josephsonkontakttypen und weist auf die Existenz von supraleitenden Kanälen (*engl. pinholes*) in der normalleitenden Barriere hin [88]. Da der normalleitende Widerstand  $R_n$  der untersuchten Korngrenzenkontakte sich im Temperaturbereich zwischen 4.2 K und  $T_c$  nur um weniger als 10 % ändert, gibt Abb. 2.18 gleichzeitig in guter Näherung die Temperaturabhängigkeit der charakteristischen Spannung  $I_c R_n$  wieder.

## 4.4 Abhängigkeit von äußeren Parametern

## 4.4.1 Einfluss von Mikrowellenstrahlung auf die *IU*-Kennlinie

*PLD-Stufenkantenkontakte* zeigen unter Mikrowelleneinstrahlung in der Regel das aufgrund des AC-Josephson-Effekts (vgl. Gl. 2.11) zu erwartende Verhalten. In der *IU*-Kennlinie treten deutliche Shapirostufen auf, die bei 77 K bis zu einer Spannung von  $600 \,\mu\text{V}$  zu beobachten sind (vgl. Abb. 4.19). Der experimentell bestimmte Stufenabstand von  $180.0 \pm 0.9 \,\mu\text{V}$  stimmt sehr gut mit dem für die Mikrowellenfrequenz  $f = 87.10 \,\text{GHz}$ aus Gl. 2.12 berechneten theoretischen Wert von  $180.1 \,\mu\text{V}$  überein. Eingekoppelt wurden die Mikrowellen über eine Hornantenne durch den Sichtschlitz des Glaskryostaten, da Mikrowellenkabel im Bereich > 20 GHz hohe Verluste verursachen. Weil im Leistungsbereich zwischen 10 und 100 mW keine HF-Quelle zur Verfügung stand<sup>8</sup> konnte die Abhängigkeit der Höhe der Shapirostufen von der eingestrahlten Mikrowellenleistung nur bis zum ersten Minimum der nullten Stufe aufgenommen werden. In diesem Bereich wurden keine signifikanten Abweichungen von Gleichung (2.23) festgestellt. Mit  $I_c R_n(77 \,\text{K}) = 145 \,\mu\text{V}$  ergibt sich für den PLD-Stufenkontakt aus Abb. 4.19  $\omega_c = 440.6 \,\text{GHz}$  und  $\Omega = 2\pi f/\omega_c = 1.24$ .

Eine vollständige Unterdrückung des kritischen Stroms von HT-Sp-Stufenkantenkontakten gelang oft erst mit der 20 GHz-Generator / Verstärker-Kombination bei Leistungen von einigen Watt. Shapirostufen wurden in HT-Sp-Kennlinien nicht beobachtet. Ihr Fehlen ist auf (1) eine inhomogene Stromdichteverteilung entlang der Kontaktfläche, (2) den Excess-Strom, der keinen Beitrag zum AC-Josephson-Effekt liefert und (3) das Grundrauschen des HF-Verstärkers zurückzuführen. Die im Vergleich zu HT-Sp-Stufenkantenkontakten noch geringere Empfindlichkeit von LT-Sp-Stufenkantenkontakten gegenüber Mikrowelleneinstrahlung weist bei ähnlichen Excess-Strömen auf eine noch inhomogenere Stromdichteverteilung entlang der Kontaktfläche hin.

 $<sup>^8 \</sup>rm Der$  20-GHz- und der 90 GHz-Generator liefern maximal 10 mW. Die Ausgangsleistung des 20 GHz-HF-Verstärkers beträgt schon bei offenem Eingang 100 mW.



Abb. 4.19:

Abhängigkeit der IU-Kennlinie eines PLD-Stufenkantenkontakts von der Mikrowellenleistung am Ausgang der einstrahlenden Hornantenne bei 77 K.

## 4.4.2 Einfluss eines äußeren Magnetfeldes auf den kritischen Strom

Mit dem Helmholtzspulenpaar (vgl. Abb. 4.1) kann ein äußeres DC-Magnetfeld  $B \leq 8 \text{ mT}$ am Probenort erzeugt werden, das schon ohne die Berücksichtigung einer Feldüberhöhung im magnetfelddurchsetzten Kontaktvolumen ausreicht, um in den schmalsten untersuchten Korngrenzenkontakten ( $w = 3.6 \,\mu\text{m}$ ) bei 4.2 K einen magnetischen Fluss  $\phi \approx 4 \,\phi_0$  zu erzeugen (vgl. Gleichung 2.31), der groß genug für die Beobachtung der in Kap. 2.3.4 beschriebenen Merkmale der  $I_c(B)$ -Kennlinie ist.

Abhängig vom Filmdepositionsprozess (LT-Sp, HT-Sp, PLD) reagierten die Stufenkantenkontakte bei  $T = 4.2 \,\mathrm{K}$  sehr unterschiedlich auf ein äußeres DC-Magnetfeld B von bis zu 8 mT.

Die Kennlinien der *LT-Sp-Stufenkantenkontakte* waren wenig sensitiv. Ihr kritischer Strom  $I_c(8 \text{ mT})$  fiel nur um max. 20 % geringer aus als  $I_c(0 \text{ mT})$ . Ein solches Verhalten ist typisch für Flux-Flow-Kontakte (vgl. Kap. 4.2.1), die Kanäle mit hohen Stromdichten  $J_c$  getrennt durch schlecht leitende Bereiche enthalten.

HT-Sp-Stufenkantenkontakte lieferten deutlich volatilere  $I_c(B)$ -Kurven (vgl. Abb. 4.20). Veränderungen des *B*-Feldes um nur 0.05 mT verursachten häufig  $I_c$ -Sprünge von bis zu 25 % des Ausgangswertes. Typischerweise betrug der kritische Strom bei 8 mT 30 - 70 % des  $I_c(0)$ -Wertes.

Im Gegensatz zu allen untersuchten gesputterten Stufenkantenkontakten zeigten einige



Abb. 4.20:  $I_c(B)$ -Abhängigkeit eines  $9\,\mu m$  breiten HT-Sp-Stufenkantenkontaktes bei 4.2 K.

*PLD-Stufenkantenkontakte* (vgl. Abb. 4.21) deutlich das für einen langen Josephsonkontakt mit homogener Stromdichteverteilung zu erwartende  $I_c(B)$ -Verhalten (vgl. Kap. 2.3.4 und Abb. 2.12). Der Quotient  $\frac{w}{\lambda_J} \approx 7.3$  aus der Stegbreite  $w = 5.7 \,\mu\text{m}$  und der Josephsoneindringtiefe  $\lambda_J = 0.78 \,\mu\text{m}$  weist den Josephsonkontakt in Abb. 4.21 als ähnlich langen Kontakt wie den in Abb. 2.12 ( $w/\lambda_J = 8.24$ ) aus. Seine  $I_c(B)$ -Kurve fällt linear, bis bei  $\approx 3.8 \,\text{mT}$  das erste und bei  $\approx 4.8 \,\text{mT}$  das zweite Flussquant in den Josephsonkontakt eindringt. Experimentell erhält man aus der linearen Extrapolation (gestrichelte Linie) der zum flussfreien Zustand gehörigen Teilkurve ein thermodynamisches unteres kritisches Feld  $\mu_0 H_{c1} \approx 7.7 \,\text{mT}$ . Eine exakte Übereinstimmung mit dem aus Gleichung 2.33 zu erhaltenden Wert  $\mu_0 H_{c1} = 1.9 \,\text{mT}$  ist nicht zu erwarten, da die Verhältnisse in einem Stufenkantenkontakt (vgl. Kap. 3.3.3) deutlich von einer symmetrischen Inline-Geometrie, für die die Gleichung nur gilt, abweichen und die wirkliche Kontaktfläche durch die Facettierung der unteren Korngrenze (vgl. Abb. 3.19) größer als das für die Berechnung der Stromdichte  $J_c$  verwendete Produkt aus Stegbreite w und Filmdicke  $d_f = 200 \,\text{nm}$  ist.

Abb. 4.22 zeigt die  $I_c(B)$ -Kurve eines PLD-Stufenkantenkontaktes bei T = 77 K. Die deutliche periodische Modulation bis zum fünften Flussquant weist auf eine recht homogene Stromdichteverteilung des Josephsonkontaktes hin. Da es sich wegen der großen Stegbreite  $w = 8.8 \,\mu\text{m}$  und des hohen kritischen Stroms immer noch um einen langen Josephsonkontakt ( $w/\lambda_J \approx 4.2$ ) handelt, erreichen die Minima nicht wie in Abb. 2.11 die Abszisse. Die Kurve stellt stattdessen wie aufgrund des  $w/\lambda_J$ -Quotienten zu erwarten einen Übergangszustand zwischen Abb. 2.11 und Abb. 2.12 dar. Ähnlich deutliche I<sub>c</sub>-Mo-



Abb. 4.21:

 $I_c(B)$ -Abhängigkeit eines 5.7 µm breiten PLD-Stufenkantenkontaktes bei 4.2 K. Die Pfeile markieren die Zweige der Kurve, die 0, 1 und 2 Flussquanten in der Korngrenze entsprechen (vgl. Abb. 2.12). Aus der linearen Extrapolation des flussfreien Zweigs erhält man das thermodynamische untere kritische Feld  $H_{c1} \approx 7.7$  mT.



Abb. 4.22:  $I_c(B)$ -Kurve eines  $8.8 \,\mu m$ breiten PLD-Stufenkantenkontaktes bei  $T = 77 \, K$ .

dulationen bei  $T = 77 \,\mathrm{K}$  waren nur bei wenigen PLD-Stufenkantenkontakten und keinem der untersuchten HT-Sp-Kontakte zu finden.

Die beobachtete Magnetfeldsensitivität und vor allem die  $I_c(B)$ -Kurven der Stufenkantenkontakte weisen deutlich auf den unterschiedlichen, für das YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Depositionsverfahren typischen Grad der Inhomogenität der Stromdichteverteilung entlang der Kontaktfläche hin, der mit der Mikrostrukturdefektdichte zusammenhängt. Nur mit PLD-Stufenkantenkontakten konnten  $I_c(B)$ -Kurven erreicht werden, die auf eine recht homogene Stromdichteverteilung und damit defektarme Mikrostruktur schließen lassen. Das legt wie schon einige Ergebnisse aus den Abschnitten 4.3.1 und 4.3.2 nahe, dass die Oberflächendiffusion während Sputterdeposition (besonders bei niedriger Substrattemperatur) nicht ausreicht, um defektarme, homogene YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenzen herzustellen.

Nachdem Kapitel 4 einen Überblick über die Transporteigenschaften der präparierten Stufenkanten- und Bikristallkontakte gegeben hat, folgt in Kapitel 5 eine detailliertere Analyse der ersten Ableitung dI(U)/dU) der IU-Kennlinien sauerstoffdefizienter LT-Sp-Stufenkantenkontakte, die nicht nur Rückschlüsse auf fundamentale YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Kenngrößen (Energielücke  $\Delta$ , mittlere freie Weglänge l) zulässt, sondern auch auf anderem Wege die in Kap. 3 und 4 gewonnene Vorstellung von der Mikrostruktur eines LT-Sp-Stufenkantenkontaktes bestätigt und ergänzt.

## Kapitel 5

# $$\label{eq:constraint} \begin{split} \mathbf{T} unnelspektroskopie \ an \ \mathbf{O}_2 \text{-} defizienten \\ \mathbf{S} tufenkantenkontakten \end{split}$$

Ein Experiment im Rahmen der Optimierung des Präparationsprozesses führte auf zwei Typen interessanter Strukturen in den I(U)- und dI(U)/dU-Kennlinien von LT-Sp-Stufenkantenkontakten (vgl. Kap. 4.2.1), deren theoretische Interpretation in den Kapiteln 5.1 und 5.2 Rückschlüsse auf grundlegende YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Materialeigenschaften (Energielükke, mittlere freie Weglänge) und die Mikrostruktur der Korngrenze erlaubt.

Mit dem Experiment sollte herausgefunden werden, ob eine Sauerstoffbeladung der Stufenkantenkontakte (vgl. Kap. 3.2.4) nach dem Ar<sup>+</sup>-Ionenstrahlätzen erforderlich ist. Dazu wurden zwei Chips mit 2  $\mu$ m breiten LT-Sp-Stufenkantenkontakten präpariert und ohne abschließende Sauerstoffbeladung kontaktiert und gemessen. Die hohe kritische Temperatur  $T_c \approx 91$  K und die geringe Übergangsbreite  $\Delta T_c < 1$  K der ebenfalls 2  $\mu$ m breiten Referenzmikrobrücken (vgl. Abb. 5.1), die nicht über einer Substratstufe liegen, dokumentieren, dass das Ionenstrahlätzen den  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Film nicht signifikant schädigt. Bei den Stufenkantenkontakten dagegen ist von einer deutlichen Schädigung – vermutlich durch Sauerstoffverlust im Vakuum der Ionenätzanlage – auszugehen, da keiner der Kontakte bei T = 4.2 K supraleitend war und die Mehrzahl auffallend hohe Widerstände aufwies.

## 5.1 Punktkontakte in sauerstoffdefizienten LT-Sp-Stufenkantenkontakten

## 5.1.1 Typische I(U)- und dI/dU-Kennlinien

In Abb. 5.2 sind eine I(U)- und eine dI(U)/dU-Kennlinie dargestellt, die typisch für mehr als 10 der gemessenen, sauerstoffdefizienten LT-Sp-Stufenkantenkontakte sind. Die IU-Kennlinien dieser Stufenkantenkontakte sind alle vom Typ 3 (vgl. Kap. 4.2.1)<sup>1</sup>. Ihr Flächenwiderstand  $R_0A(4.2 \text{ K})$  liegt mit 2-4 · 10<sup>-7</sup>  $\Omega$ cm<sup>2</sup> in der oberen Hälfte des für Typ-3-Kennlinien typischen Bereiches (vgl. Tab. 4.3).

Der signifikante Exzessstrom<sup>2</sup>  $I_{exc}$ , die (in Kap. 5.1.3 noch nachzuweisende) subharmo-

 $<sup>^1 \</sup>rm Die$ Kennlinienklassifizierung für Typ 3 erfolgt im Spannungsbereich bis $\sim 50\,\rm mV.$ In diesem Bereich verläuft die IU-Kennlinie in Abb. 5.2 nahezu linear.

 $<sup>^{2}</sup>$ definiert in Kap. 4.2.1 und Abb. 4.5



Abb. 5.2:

I(U)- und dI(U)/dU-Kennlinie eines sauerstoffdefizienten  $2 \mu m$  breiten LT-Sp-Stufenkantenkontaktes bei 4.2K. Die gepunktete Ursprungsgerade hat die Steigung  $\frac{IR_n}{U} = 1$ . Der Einschub oben links zeigt die dI(U)/dU-Kennlinie eines weiteren Kontaktes, in der deutlich der kritische Strom der zweiten Korngrenze zu erkennen ist.





nische Energielückenstruktur<sup>3</sup> und der hohe normalleitende Widerstand  $R_n > 50 \,\Omega$  sind typische Kennzeichen von Punktkontakten zwischen zwei Supraleitern, die in der Literatur häufig als ScS-Kontakte (S: superconductor, c: constriction) bezeichnet werden. Der Exzessstrom weist darauf hin, dass die Punktkontakte metallisch sind und (mehrfache) Andreevreflexion (vgl. Kap. 2.2.2) wesentlich zum Ladungstransport beiträgt. Aufgrund der TEM-Analyse der LT-Sp-Stufenkantenkontakte (vgl. Kap. 3.3.3) ist davon auszugehen, dass sich die Punktkontakte in der unteren Korngrenze befinden, die ansonsten eine (nahezu) isolierende Barriere darstellt. Der Einschub oben links in Abb. 5.2 zeigt bei  $U > 100 \,\mathrm{mV}$  einen zweiten Abfall der differentiellen Leitfähigkeit, der sich durch das Überschreiten des kritischen Stroms der zweiten, oberen Korngrenze des Stufenkantenkontaktes erklären lässt.

Der Vergleich der dI(U)/dU-Kennlinien von fünf verschiedenen sauerstoffdefizienten Stufenkantenkontakten in Abb. 5.3 zeigt deutlich, dass die Peaks in der differentiellen

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup>Als subharmonische Energielückenstruktur (*engl.: subharmonic energy-gap structure*) bezeichnet man die durch Andreevreflexion an SN-Grenzflächen hervorgerufenen Peaks in der differentiellen Leitfähigkeit dI(U)/dU, die bei den Spannungen  $U_n = \frac{2\Delta}{ne}$  (n = 1, 2, 3, ...) auftreten. Elastische Streuung an den SN-Grenzflächen verstärkt den Effekt und macht ihn auch bei sehr tiefen Temperaturen beobachtbar [90].

Leitfähigkeit immer bei denselben (subharmonischen) Spannungen auftreten. Ferner fällt das Leitfähigkeitsminimum bei U = 0 V auf, das sich folgendermaßen durch inelastische Streuung in der Verengung des Punktkontaktes erklären lässt<sup>4</sup>: Mit abnehmender Spannung U nimmt die Anzahl der Andreevreflexionen, die benötigt werden, um ein Quasiteilchen durch einen SNS-Kontakt hindurch zu transportieren, stark zu (vgl. Kap. 2.2.2). Damit wird auch der Weg der beteiligten Quasiteilchen in der N-Schicht länger und die Wahrscheinlichkeit größer, dass ein Quasiteilchen dort inelastisch gestreut wird, was zum Abbruch der Vielfach-Andreevreflexion führt. Da mit steigendem Anteil der abgebrochenen Vielfach-Andreevreflexionen die Leitfähigkeit abnimmt, führt inelastische Streuung in der N-Schicht zu einem Leitfähigkeitsminimum bei U = 0 V.

In den folgenden Abschnitten wird ein großer Teil einer bereits früher veröffentlichten, theoretischen Interpretation der obigen Kennlinien [34] zusammengefasst und mit Ergebnissen aus den vorangegangenen Kapiteln in Beziehung gesetzt.

## 5.1.2 Erweiterung des OTBK-Modells für Punktkontakte

Eine erste theoretische Beschreibung von (eindimensionalen) SNS-Punktkontakten, die eine elastische Streuung an den SN-Grenzflächen berücksichtigt, lieferte das OTBK-Modell von Octavio, Tinkham, Blonder und Klapwijk [90]. Die Quasiteilchenreflexion an der SN-Grenzfläche wird durch ein  $\delta$ -Potential  $V(x) = H\delta(x)$  (vgl. Abb. 5.4) mit

$$H = \hbar v_{F,n} Z$$
 und  $Z = \sqrt{Z_0^2 + \frac{(1-r)^2}{4r}}$  (5.1)

modelliert. Der erste Term unter der Wurzel berücksichtigt die elastische Streuung und der zweite Term die Fehlanpassung der Fermigeschwindigkeiten im Supraleiter  $(v_{F,s})$  und im Normalleiter  $(v_{F,n})$  an der SN-Grenzfläche [258], deren Quotient  $v_{F,s}/v_{F,n}$  mit r abgekürzt ist. Nach dem OTBK-Modell kann der Strom I über einen Punktkontakt mit eindimensionaler Geometrie mithilfe der Gleichung

$$I = \frac{1}{eR_{sh}} \int_{-\infty}^{\infty} [f_{\rightarrow}(E) - f_{\leftarrow}(E)] dE$$
(5.2)

berechnet werden, in der  $R_{sh}$  den Sharvinwiderstand bezeichnet, der mit dem normalleitenden Widerstand  $R_n$  über die Beziehung  $R_n = (1 + 2Z^2)R_{sh}$  [258] zusammenhängt.  $f_{\rightarrow}(E)$  und  $f_{\leftarrow}(E)$  bezeichnen die Nichtgleichgewichts-Verteilungs-Funktionen der nach rechts bzw. links wandernden Ladungen. Es gilt  $f_{\leftarrow}(E) = 1 - f_{\rightarrow}(-E - eU)$  [259]. Die Verteilungsfunktion  $f_{\rightarrow}(E)$  kann iterativ aus der Gleichung

$$f_{\to}(E) = A(E) \cdot f_{\to}(E - eU) + B(E) \cdot [1 - f_{\to}(-E - eU)] + T(E) \cdot f_0(E)$$
(5.3)

berechnet werden [259], indem man im ersten Schritt für  $f_{\rightarrow}(E)$  die Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion

$$f_0(E) = \frac{1}{e^{\frac{E-E_F}{kT}} + 1}$$
(5.4)

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup>Analog kann das Leitfähigkeitsminimum bei U = 0 V alternativ durch schlecht angepasste elektronische Eigenschaften des S- und c-Bereiches an der Sc-Grenze erklärt werden [258], deren Einfluss ebenfalls mit der Anzahl der erforderlichen Andreevreflexionen zunimmt.



Abb. 5.4:

Modell eines SNS-Punktkontaktes [90]. Elastische Quasiteilchenstreuung und die Fehlanpassung der Fermigeschwindigkeiten an den beiden SN-Grenzflächen werden durch  $\delta$ -Potentiale berücksichtigt. (Vielfach-)Andreevreflexion trägt nur dann wesentlich zum Quasiteilchentransport bei, wenn die Ausdehnung der N-Schicht (deutlich) kleiner als die mittlere Weglänge  $l_i$  bis zur ersten inelastischen Streuung der Quasiteilchen ist.

einsetzt und das linksseitige Ergebnis für  $f_{\rightarrow}(E)$  immer wieder in die rechte Seite der Gleichung einsetzt. Die energieabhängigen Koeffizienten A(E), B(E) und T(E) geben die Wahrscheinlichkeit für Andreevreflexion, elastische Streuung und Transmission an. Da ihre Summe der Gesamtwahrscheinlichkeit

$$A(E) + B(E) + T(E) = 1$$
(5.5)

entspricht, müssen nur zwei der drei Koeffizienten bestimmt werden.

Die durch das Leitfähigkeitsminimum bei U = 0 V (vgl. Abb. 5.2 und 5.3) experimentell nahegelegte inelastische Streuung in den Punktkontakten lässt sich wie folgt über eine zusätzliche, imaginäre Energie  $\Gamma = \hbar/\tau$  in den Bogolyubov-Gleichungen [260, 261]

$$i\hbar \frac{\partial F(x,t)}{\partial t} = \left[ -\frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} - \mu - i\Gamma + V \right] F(x,t) + \Delta G(x,t)$$
$$i\hbar \frac{\partial G(x,t)}{\partial t} = \left[ \frac{\hbar^2 \nabla^2}{2m} + \mu + i\Gamma - V \right] G(x,t) + \Delta F(x,t)$$
(5.6)

in einem erweiterten OTBK-Modell berücksichtigen [34]. Dabei bezeichnet  $\tau$  die mittlere Zeit zwischen zwei inelastischen Streuprozessen (Relaxationszeit) und  $\mu$  das chemische Potential. Die Lösungen der Bogolyubov-Gleichungen

$$F(x,t) = u_0 e^{\left(ikx - \frac{iEt}{\hbar}\right)} \qquad \text{und} \qquad G(x,t) = v_0 e^{\left(ikx - \frac{iEt}{\hbar}\right)} \tag{5.7}$$

für die Elektron- und Loch-Eigenfunktionen F(x,t) und G(x,t) des normalleitenden Zustands enthalten die Bogolyubov-Koeffizienten<sup>5</sup>

$$u_0^2 = \alpha + i\eta = \frac{1}{2} \left( 1 + \frac{\sqrt{(E+i\Gamma)^2 - \Delta^2}}{E+i\Gamma} \right) \quad \text{und} \quad v_0^2 = \beta - i\eta = 1 - u_0^2$$
(5.8)

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup>Da die Bogolyubov-Koeffizienten die Energielücke  $\Delta$  enthalten, sind die Bogolyubov-Gleichungen auf Supraleiter anwendbar. Aus ihren Lösungen  $F(\vec{r}, t)$  und  $G(\vec{r}, t)$  lässt sich das Energiespektrum  $E(\vec{k})$  des Supraleiters berechnen.



Abb. 5.5:

I(U)- und dI(U)/dU-Kennlinien gemäß erweitertem OTBK-Modell bei T = 0 K. Für ein festes reduziertes Potential Z = 0.5 wird der Streuparameter  $\Gamma$  variiert, um den Effekt inelastischer Streuung zu demonstrieren.

deren Real- und Imaginärteile zusammen mit dem reduzierten Streupotential Z aus Gleichung 5.1 die Wahrscheinlichkeiten A(E) und B(E) für Andreevreflexion und elastische Streuung bestimmen [261]:

$$A(E) = \frac{\sqrt{(\alpha^2 + \eta^2)(\beta^2 + \eta^2)}}{\gamma^2}$$
(5.9)

$$B(E) = \frac{\left[(\alpha - \beta)^2 + 4\eta^2\right] \cdot Z^2(Z^2 + 1)}{\gamma^2}$$
(5.10)

mit 
$$\gamma^2 = [\alpha + (\alpha - \beta)Z^2]^2 + (1 + 2Z^2)\eta^2$$
 (5.11)

Der Effekt inelastischer Streuung ist am Beispiel der I(U)- und dI(U)/dU-Kennlinien in Abb. 5.5 ersichtlich, die mithilfe der Gleichungen 5.1-5.3, 5.5 und 5.8-5.11 berechnet wurden. Schon kleine  $\Gamma/\Delta$ -Werte beeinflussen die Zahl, die Lage und die Amplitude der beobachtbaren Peaks, verringern den Exzessstrom und erzeugen ein Leitfähigkeitsminimum bei U = 0 V. Für  $\Gamma/\Delta = 0$  ist deutlich eine subharmonische Energielückenstruktur mit Leitfähigkeitsmaxima nahe  $U = \frac{2\Delta}{n}$  (n = 1, 2, ...) zu erkennen. Mit zunehmendem  $\Gamma$  werden die Peaks kleiner und breiter und verfließen ineinander. Ihre Position verschiebt sich dabei zu etwas geringeren Spannungen hin. Die Entstehung des Leitfähigkeitsminimums bei U = 0 V ist dadurch zu erklären, dass mit zunehmendem  $\Gamma$  die mittlere Weglänge  $l_i$ zwischen zwei inelastischen Streuprozessen abnimmt ( $\Gamma \propto 1/\tau \propto 1/l_i$ ) und damit Andreevreflexionen hoher Ordnung unterbunden werden (vgl. Kap. 5.1.1).



Abb. 5.6:

Anpassung des erweiterten OTBK-Modells an zwei experimentelle dI(U)/dU-Kennlinien. Die Pfeile markieren die Stellen, an denen mithilfe der Parameter  $R_n$  und  $\Delta$  der Funktionswert und die Steigung angepasst wurden.

Obere Kennlinie:  $R_n = 56 \Omega$ ,  $\Delta = 32 \text{ meV}$ , Z = 0.45,  $\Gamma = 5 \text{ meV}$ . Untere Kennlinie:  $R_n = 56 \Omega$ ,  $\Delta = 33 \text{ meV}$ , Z = 0.45,  $\Gamma = 6 \text{ meV}$ .

## 5.1.3 Auswertung der experimentellen Daten im Rahmen des erweiterten OTBK-Modells

Abb. 5.6 zeigt die Anpassung des erweiterten OTBK-Modells (vgl. Kap. 5.1.2) an zwei experimentelle dI(U)/dU-Kennlinien. Dabei wurden zunächst  $R_n$  und  $\Delta$  so gewählt<sup>6</sup>, dass die Modellkurve die Kennlinien an den mit Pfeilen markierten Stellen bestmöglich wiedergibt. In einem zweiten Schritt wurden die so ermittelten Parameter  $R_n$  und  $\Delta$  festgehalten und Z und  $\Gamma$  variiert. Die Spannungen, bei denen lokale Leitfähigkeitsextrema in den experimentellen Kennlinien auftraten, konnten quantitativ mit dem Modell reproduziert werden.

Für alle untersuchten Kennlinien ergab sich eine Energielücke  $\Delta = 30-33 \text{ mV}$ , die auch für YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Einkristall-Bruchkontakte mit einem  $T_c$  von 88–92 K beobachtet wurde [33]. Der hohe  $\Delta$ -Wert weist darauf hin, dass der Ordnungsparameter in unmittelbarer Nähe der Korngrenze nicht erniedrigt ist und Proximity-Kopplung an der SN-Grenzfläche nur eine untergeordnete Rolle spielt. Daraus folgt, dass zumindest für die hier untersuchten Punktkontakte das für HTSL-Josephsonkontakte typische niedrige  $I_cR_n \ll \Delta$  nicht im Zusammenhang mit einer reduzierten Energielücke steht, sondern der Korngrenze selbst zuzuordnen ist.

Für das reduzierte Potential Z und den Streuparameter  $\Gamma$ lagen typische Werte im

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup>Wegen Z = 0 gilt  $R_n = R_0$ , vgl. Erläuterung zu Gleichung (5.2).

Bereich Z = 0.4 - 0.5 bzw.  $\Gamma/\Delta = 0.1 - 0.2$ . Bei vernachlässigbarer elastischer Streuung an den SN-Grenzflächen ergibt sich aus  $Z \approx \sqrt{\frac{(1-r)^2}{4r}}$  (vgl. Gleichung 5.1) ein Verhältnis  $r = v_{F,s}/v_{F,n} = 2.2 - 2.6$  der Fermigeschwindigkeiten. Mit  $v_{F,s} = 2.4 \times 10^5$  m/s [262] erhält man  $v_{F,n} = (0.9 - 1.1) \times 10^5$  m/s für die Fermigeschwindigkeit im normalleitenden Bereich. Damit lässt sich über  $l_i = v_{F,n}\tau$  und  $\tau = \hbar/\Gamma$  die mittlere Weglänge  $l_i$  zwischen zwei inelastischen Streuprozessen im normalleitenden Bereich zu  $l_i = 11 - 13$  nm abschätzen. Die mittlere freie Weglänge  $l \leq l_i$  liegt damit am unteren Rand der für YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> typischen Literaturwerte (vgl. Tab. 2.1), wie es aufgrund der defektreichen Mikrostruktur im Bereich der unteren Korngrenze auch zu erwarten ist.

Einen interessanten Einblick in die Mikrostruktur der sauerstoffdefizienten LT-Sp-Stufenkantenkontakte liefert eine Abschätzung des effektiven Durchmessers d der Punkt-kontakte über die Beziehung

$$R_{sh} = \frac{8h}{(ek_{F,n}d)^2}$$
(5.12)

die für den Sharvinwiderstand eines Punktkontaktes mit kreisförmigen Querschnitt im ballistischen Regime ( $d \ll l$ ) gilt [263]. Da bei der Messung im Heliumbad ( $T = 4.2 \,\mathrm{K}$ ) keine Anzeichen einer Erwärmung des Punktkontaktes durch den Messstrom, wie z.B. eine hysteretische Kennlinie oder eine reduzierte Energielücke, beobachtet wurden, wird aufgrund der tiefen Temperatur vom ballistischen Regime ausgegangen. Unter der Annahme, dass die Quasiteilchen im N- und S- Bereich dieselbe effektive Masse m haben, gilt wegen  $m\vec{v}_F = \hbar\vec{k}$  der Zusammenhang  $k_{F,n} = k_{F,s}/r$  zwischen den Wellenzahlen im normal- und supraleitenden Bereich, der mit  $k_{F,s} = 3.2 \times 10^7 \,\mathrm{cm^{-1}}$  [264] auf  $k_{F,n} = (1.2-1.5) \times 10^7 \,\mathrm{cm^{-1}}$  in der normalleitenden Verengung des Punktkontaktes führt. Mit  $R_n = (1+2Z^2)R_{sh}$  erhält man schließlich einen Durchmesser  $d = 60 - 65 \,\mathrm{nm}$  des Punktkontaktes, der im Widerspruch zu  $d \ll l$  deutlich größer als die mittlere freie Weglänge l ist. Daraus kann man den mit der Interpretation der  $I_c(B)$ -Kurve (vgl. Kap. 4.4.2) konsistenten Schluss ziehen, dass die untere Korngrenze der sauerstoffdefizienten LT-Sp-Stufenkantenkontakte eine ganze Reihe paralleler Punktkontakte enthält, die durch schlecht leitende Bereiche voneinander getrennt sind.

## 5.1.4 Auswirkungen einer nachträglichen Sauerstoffbeladung

Mehrere O<sub>2</sub>- und O<sub>3</sub>-Beladungsexperimente haben gezeigt, dass sich an YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Korngrenzen leicht sauerstoffdefiziente Bereiche bilden [143, 265, 266]. Zudem sind Stufenkantenkontakte besonders empfindlich gegen Präparationsschritte im Hochvakuum (z.B. Ar<sup>+</sup>-Ionenstrahlätzen), da offene a,b-Enden im Stufenbereich auftreten, aus denen leicht Sauerstoff entweichen kann [154]. Die aus den CuO-Ketten herausgelösten Sauerstoffatome verändern nicht nur die Dichte und Verteilung der freien Sauerstoff-Gitterplätze und verringern damit die Perfektion des Kristalls, sondern reduzieren auch die Ladungsträgerdichte und verschlechtern damit die supraleitenden Eigenschaften. Es ist daher zu erwarten, dass der Sauerstoffgehalt die elektronische Fehlanpassung an der SN-Grenzfläche der Punktkontakte stark beeinflusst.

Um diesen Effekt an den untersuchten LT-Sp-Stufenkantenkontakten zu überprüfen, wurden sie bei Raumtemperatur 15 Minuten lang einem Sauerstoffplasma mit 0.1 mbar Sauerstoffpartialdruck ausgesetzt. In Abb. 5.7 werden typische I(U)- und dI(U)/dU-Kennlinien vor und nach der Sauerstoffbeladung gegenübergestellt. Ein deutliches Leitfä-



Abb. 5.7: Vergleich der I(U)- und dI(U)/dU-Kennlinie eines typischen sauerstoffdefizienten LT-Sp-Stufenkantenkontaktes vor und nach einer O<sub>2</sub>-Plasma-Behandlung.

higkeitsmaximum tritt an die Stelle des ursprünglichen Minimums bei U = 0 V. Die Kennlinien verändern sich drastisch für  $U < 2\Delta/e$ . Der Exzessstrom nimmt stark zu, während der normalleitende Widerstand  $R_n$  abnimmt. Alle diese Effekte lassen sich konsistent durch eine verringerte Defektdichte (kleineres  $\Gamma$ ) und durch eine verbesserte Anpassung der elektronischen Eigenschaften (kleineres Z) erklären. Die bei etwa  $U \approx 80$  mV entstandenen, mit der Energielücke zusammenhängenden Leitfähigkeitsminima wurden schon an verschiedenen konventionellen und HTSL-Punktkontakten beobachtet [267, 268, 269, 270] und werden, wie auch der hohe Exzessstrom, besser durch das Kümmel-Günsenheimer-Nicolsky SNS-Modell [271] beschrieben.

Die Sauerstoffdefizienz  $\delta$  der untersuchten LT-Sp-YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Stufenkantenkontakte vor der O<sub>2</sub>-Plasma-Behandlung lässt sich mithilfe der Abhängigkeit des Hallkoeffizienten  $R_H = 1/ne$  von  $\delta$  (vgl. Abb. 5.8 [264],  $\delta = \Delta y$ ) abschätzen. Aus der nicht reduzierten Energielücke  $\Delta = 30-33$  mV in unmittelbarer Nähe der SN-Grenzfläche folgt, dass im S-Bereich die kritische Temperatur  $T_c$  nicht signifikant erniedrigt sein kann und daher  $\delta < 0.25$  gelten muss (vgl. Abb. 2.1 b). Da  $R_H$  in diesem  $\delta$ -Bereich für T < 95 K nur schwach temperaturabhängig ist [264], gilt für den Hallkoeffizienten im S-Bereich  $R_{H,s} \sim (2-4) \times 10^{-9}$  m<sup>3</sup>/As (vgl. Abb. 5.8). Mithilfe der Proportionalität  $n \propto k_F^3$  [272] zwischen der Ladungsträger-



Abb. 5.8:

Abhängigkeit der Hallkonstanten  $R_H$  von der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\Delta y$ </sub>-Sauerstoffdefizienz  $\Delta y$  für T = 95 K (gefüllte Kreise) und T = 290 K (offene Kreise) nach [264]. Die offenen Rauten geben den Volumenanteil an, aus dem das Magnetfeld aufgrund des Meissner-Ochsenfeld-Effekts verdrängt wird.

dichte n und der Fermiwellenzahl  $k_F$  und dem Verhältnis r = 2.2 - 2.6 der Fermigeschwindigkeiten (vgl. Kap. 5.1.3) erhält man für den Quotienten der Hallkoeffizienten im N- und S-Bereich:

$$\frac{R_{H,n}}{R_{H,s}} = \left(\frac{k_{F,s}}{k_{F,n}}\right)^3 = \left(\frac{v_{F,s}}{v_{F,n}}\right)^3 = r^3 \tag{5.13}$$

Demnach ist  $R_H$  im N-Bereich des Punktkontaktes mehr als 10 mal größer als im angrenzenden S-Bereich, was nach Abb. 5.8 auf eine Sauerstoffdefizienz  $\delta \geq 0.65$  im N-Bereich schließen lässt. Es erscheint daher angemessener, die Punktkontakte als Supraleiter–Halbleiter–Supraleiter(S-Sm-S)-Punktkontakte mit einer hohen Dichte lokalisierter Zustände  $n_{LS} \sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$  zu beschreiben (vgl. Abb. 2.1 b und Kap. 2.2.1). Die Dichte lokalisierter Zustände in der SN-Grenzfläche beeinflusst die Transporteigenschaften und insbesondere die Wahrscheinlichkeit für Andreev-Reflexionen [273]. Der Stromanteil, der auf Andreev-Reflexionen zurückzuführen ist, nimmt mit wachsender Dichte  $n_{LS}$  der lokalisierten Zustände zu. Diese Schlussfolgerung kann auch direkt aus dem obigen Experiment gezogen werden, da die O<sub>2</sub>-Plasma-Behandlung, die hauptsächlich Sauerstoffgehalt und -ordnung in der Barriere und damit  $n_{LS}$  beeinflusst, den Exzessstrom deutlich erhöht.

Der starke Einfluss der nachträglichen Sauerstoffbeladung auf die Transporteigenschaften ist dadurch zu verstehen, dass ein in der Substratstufe defektreich gewachsener YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film typischerweise offene a,b-Ebenen enthält, durch die leicht Sauerstoff entweichen oder eindringen kann. Die Tatsache, dass auch nach der Sauerstoffbeladung nur geringe Supraströme zu beobachten waren, zeigt, dass der Film im Stufenbereich außerdem zahlreiche *durch O*<sub>2</sub>-*Beladung nicht reparable* Mikrostrukturdefekte enthält, die schon während des Filmwachstums (vgl. Kap. 3.3.3) entstanden sein müssen.



Abb. 5.9:

Spannungsperiodische Strukturen in der dI(U)/dU-Kennlinie eines sauerstoffdefizienten LT-Sp-Stufenkantenkontaktes bei 4.2 K.

## 5.2 Hinweise aus Phasenschlupfzentren in sauerstoffdefizienten LT-Sp-Stufenkantenkontakten

## 5.2.1 Spannungsperiodische Strukturen in der dI(U)/dU-Kennlinie

Bei einer Reihe von sauerstoffdefizienten LT-Sp-Stufenkantenkontakten mit Typ-4-Kennlinie und einem Flächenwiderstand  $R_0A(4.2 \text{ K}) = 8 - 12 \times 10^{-7} \,\Omega \text{cm}^2$  (vgl. Tab. 4.1), der etwa um einen Faktor 3-4 größer als der Flächenwiderstand der in Kap. 5.1 diskutierten O<sub>2</sub>-defizienten LT-Sp-Stufenkantenkontakte ist, wurden spannungsperiodische Strukturen in der dI(U)/dU-Kennlinie beobachtet, die in der IU-Kennlinie nicht auffallen (vgl. Abb. 5.9). Der schmale, deutliche Leitfähigkeitspeak bei  $U = 0 \,\text{V}$  weist auf einen sehr geringen Suprastrom hin, der in der IU-Kennlinie bei dieser Auflösung ebenfalls nicht erkennbar ist. Zu höheren Spannungen hin nimmt die schon bei Nullspannung geringe differentielle Leitfähigkeit mit jedem Peak weiter ab.

Da die Peaks im Rahmen der Messgenauigkeit äquidistant sind und ihr Abstand nicht subharmonisch mit 1/n abnimmt, rühren sie nicht von Punktkontakten her. Eine Erklärung auf Basis mehrerer (phasengekoppelter) Josephsonkontakte scheidet aus, da nur ein sehr geringer Suprastrom fließt. Auch geometrische Resonanzen [274] infolge von Andreevreflexionen in einem SNS- oder SNINS-Kontakt, dessen SN-Grenzflächen als Potentialwälle und dessen Ausdehnung der N-Schicht als Breite eines quantenmechanischen Potentialtopfes aufgefasst werden können, kommen als Erklärung aus mehreren Gründen nicht in Frage. Zum einen sollten die über die Potentialtopfhöhe  $E_0 = 2\Delta/e$  hinausragenden virtuellen Zustände aufgrund der schnell mit wachsender Energie E abnehmenden



Abb. 5.10:

Abhängigkeit des mittleren halben Energieabstands  $\frac{e}{2} \cdot \frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^{n-1} (U_{i+1} - U_i)$  zwischen zwei benachbarten Peaks in der dI(U)/dU-Kennlinie (vgl. Abb 5.9) von der Temperatur. Die durchgezogene Kurve entspricht der BCS-Temperaturabhängigkeit einer Energielücke  $\Delta(0) = 19.4 \text{ meV}$  in einem Supraleiter mit  $T_c = 71 \text{ K}$ .

Reflexionswahrscheinlichkeit nicht bis $U>200\,{\rm mV}$ sichtbar bleiben. Zum anderen hängen die Energien $^7$ 

$$E_n = \sqrt{\Delta_N^2(T) + \left(n \, \frac{hv_F}{4d_N}\right)^2} \tag{5.14}$$

der gebundenen ( $E < E_0$ ) und virtuellen ( $E > E_0$ ) Zustände wegen des konstanten Verhältnisses  $v_F/d_N$  nur sehr schwach von der Temperatur ab [250], während die spannungsperiodischen Strukturen eine deutliche Temperaturabhängigkeit zeigen (vgl. Abb. 5.10), die der einer Energielücke  $\Delta$  gemäß der BCS-Theorie ähnlich sieht. Dabei bezeichnet  $d_N$  die Breite des normalleitenden Bereichs (bzw. des Potentialtopfs) und  $\Delta_N$  die dort durch den Proximity-Effekt induzierte Energielücke. Eine detailliertere Erörterung der zugrundeliegenden Theorie geometrischer Resonanzen findet sich in [250].

## 5.2.2 Entstehung und Eigenschaften von Phasenschlupfzentren

Geht man davon aus, dass sich die für die Kennlinien in Abb. 5.9 verantwortliche Mikrostruktur nicht grundsätzlich von der Mikrostruktur der in Kap. 5.1 diskutierten, analog präparierten Punktkontakte unterscheidet, dann legt der deutlich höhere Widerstand

<sup>&</sup>lt;sup>7</sup>Wegen  $\frac{\hbar v_F}{4d_N} \gg \Delta_N$  liefert Gleichung (5.14) schon für kleine *n* nahezu äquidistante Spannungspeaks. Im Falle eines SNINS-Kontaktes anstelle des angenommenen SNS-Kontaktes muss der Faktor "4" im Nenner durch "8" ersetzt werden [250].



Abb. 5.11:

Räumliche Verteilung des zeitlich gemittelten normalleitenden Stroms  $\langle I_n \rangle$  und des zeitlich gemittelten Suprastroms  $\langle I_s \rangle$  in der Umgebung eines Phasenschlupfzentrums nach [277]. Die Abklinglänge von  $\langle I_n \rangle$  entspricht der Quasiteilchendiffusionslänge  $\Lambda$ .

 $R_0(4.2 \,\mathrm{K}) = 200 - 300 \,\Omega$  nahe, dass

- die Barriere dicker ist und
- die supraleitenden Kontakte deshalb nicht punktförmig, sondern eindimensional ausgedehnt sind.

In solchen dünnen supraleitenden Kanälen können sich Phasenschlupfzentren (engl.: phase slip centers (PSC)) bilden, wenn der Kanaldurchmesser d von derselben oder kleinerer Größenordnung wie die Kohärenzlänge  $\xi_0$  ist<sup>8</sup> [275] (vgl. Tab. 2.1). Ein Supraleiter dieser eindimensionalen Geometrie geht ab einem bestimmten Suprastrom, der vom Querschnitt und der Länge des Kanals abhängt, in einen resistiven Zustand über, in dem Supraleitung und ein elektrisches Feld in ihm koexistieren. Das elektrische Feld beschleunigt die Cooperpaare und erhöht damit gemäß Gleichung (2.25) die Phasendifferenz zwischen den Endpunkten des Kanals. Ist die kritische Stromdichte  $J_c$  und damit auch die maximale Phasendifferenz erreicht, setzt ein Phasenschlupfmechanismus ein, der im kurzen Augenblick der Normalleitung die Phasendifferenz um  $2\pi$  (oder ein Vielfaches davon) verringert und damit die Supraleitung bis zum nächsten Phasenschlupf wieder ermöglicht. Die Phasenschlupfprozesse wiederholen sich mit der Josephsonfrequenz  $\omega_{PSC} = \frac{2e}{\hbar} < U(t) > (vgl.$ Gleichung (2.11)).

In Abb. 5.11 sind die zeitlich gemittelten normalleitenden und supraleitenden Ströme  $\langle I_n \rangle$  und  $\langle I_s \rangle$  in der Umgebung eines Phasenschlupfzentrums in einem Supraleiter *mit räumlich homogener kritischer Stromdichte J<sub>c</sub>* dargestellt. Die Summe der Ströme  $I = \langle I_n \rangle + \langle I_s \rangle$  ist wegen der Ladungserhaltung konstant. Die Reichweite der Quasiteilchen ist in Form der Quasiteilchendiffusionslänge  $\Lambda$  angedeutet, die ungefähr dem Mindestabstand zwischen zwei Phasenschlupfzentren entspricht. Die Entstehung eines zweiten Phasenschlupfzentrums direkt neben einem bereits bestehenden ist aufgrund des dort reduzierten mittleren Suprastroms  $\langle I_s \rangle$  sehr unwahrscheinlich. Daher nehmen mehrere Phasenschlupfzentren in einem Kanal vorzugsweise äquidistante Abstände voneinander ein. In *realen* HTSL dagegen, die zahlreiche Defekte enthalten, bilden sich die Pha-

<sup>&</sup>lt;sup>8</sup>Bei Typ-I-Supraleitern ist die London-Eindringtiefe  $\lambda_L$  die Bezugsgröße:  $d \leq \lambda_L$ .

senschlupfzentren an den in sehr unregelmäßigen Abständen auftretenden "schwächsten" Stellen, an denen  $J_c$  ein lokales Minimum annimmt. Mit jedem neuen Phasenschlupfzentrum nimmt der differentielle Widerstand der I(U)-Kennlinie abrupt um  $R_d = \rho \frac{2\Lambda}{A}$  [276] zu.

Liegen mehrere Phasenschlupfzentren dicht nebeneinander, kann es zu einer Phasenkopplung zwischen ihnen über (1) Quasiteilchendiffusion, (2) elektromagnetische Abstrahlung und (3) Ordnungsparameteroszillation kommen [277, 278]. In diesem Fall spricht man von *phasenkohärenten* Phasenschlupfzentren. Da sich Phasenschlupfzentren ähnlich wie SNS-Josephsonkontakte verhalten, führt die durch Andreevreflexion verursachte Anomalie der differentiellen Leitfähigkeit bei  $U = 2\Delta/e$  im Falle der Phasenkopplung mehrerer Phasenschlupfzentren zu einer spannungsperiodischen Struktur in der dI(U)/dU-Kennlinie mit der Periode  $U = 2\Delta/e$ . Eine ausführliche Darstellung der Theorie der Phasenschlupfzentren findet sich in [275].

## 5.2.3 Auswertung der dI(U)/dU-Kennlinien

Insgesamt wurden an 7 LT-Sp-Stufenkantenkontakten spannungsperiodische Strukturen (vgl. Abb. 5.9) beobachtet, deren differentielle Leitfähigkeit – wie für Phasenschlupfzentren zu erwarten – mit jedem weiteren Peak abnimmt. Die Periodizität konnte in den zugehörigen experimentellen  $d^2I(U)/dU^2$ -Kennlinien mit guter Genauigkeit (1 meV) nachgewiesen werden [250]. Dabei ergaben sich recht unterschiedliche Spannungsperioden zwischen 18 und 38 mV, die über  $U = 2\Delta/e$  auf Energielückenwerte zwischen 9 und 19 meV bei T = 4.2 K führen. Da die extrem dünnen supraleitenden Kanäle von isolierendem YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta}$ </sub> ( $\delta \ge 0.65$ ) umgeben sind und die Sauerstoffdefizienz  $\delta$  bis zur Kanalmitte hin vielleicht nicht soweit fällt, dass ein  $T_c$  von 90 – 93 K erreicht wird ( $\delta \le 0.15$ , vgl. Abb. 2.1b), ist es nicht verwunderlich, dass (1) die erhaltenen Werte für die Energielücke deutlich kleiner als 30 meV sind und (2) von LT-Sp-Kontakt zu LT-Sp-Kontakt (vermutlich mit dem Kanaldurchmesser) variieren. Ähnliche spannungsperiodische Strukturen wurden von Polturak et al. [278] an YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-SNS-Rampenkontakten beobachtet und auch durch phasenkohärente Phasenschlupfzentren erklärt. Auch ihre Daten ließen auf einen etwas reduzierten Energielückenwert ( $\Delta = 24$  meV) schließen.

Abb. 5.12 zeigt die Temperaturabhängigkeit der  $dI^2(U)/dU^2$ -Kennlinie des LT-Sp-Stufenkantenkontaktes aus Abb. 5.9. Deutlich ist zu erkennen, wie der Peakabstand mit steigender Temperatur abnimmt. Allerdings nimmt gleichzeitig die Peakhöhe ab, bis im Temperaturbereich zwischen 40 K und 50 K die meisten der bis 31 K beobachtbaren sieben Peaks verschwinden. Die in Abbildung 5.10 dargestellte Temperaturabhängigkeit des halben Peakabstands wurde aus der Position des bis 51 K am deutlichsten sichtbaren äußeren siebten Peaks gewonnen. Die Pfeile an der 61 K- und 71 K-Kennlinie kennzeichnen seine Position, wenn man davon ausgeht, dass seine Lage auch in diesem Temperaturbereich dem ausgeprägtesten Maximum entspricht. Zu beachten ist, dass die ausgewerteten Peaks in der  $dI^2(U)/dU^2$ -Kennlinie Nulldurchgängen in der dI(U)/dU-Kennlinie entsprechen und daher 1/4 Peakabstand hinzuaddiert werden muss. Da die  $dI^2(U)/dU^2$ -Kennlinien näherungsweise punktsymmetrisch zum Ursprung sind, entsprechen den Maxima im negativen Spannungsbereich Minima im positiven Spannungsbereich (s. Pfeile). Bis zur Temperatur von 71 K, oberhalb der keine Extrema mehr auszumachen sind, folgt der halbe Peakabstand in guter Näherung der BCS-Temperaturabhängigkeit einer Energielücke von 19.4 meV in einem Supraleiter mit einer kritischen Temperatur von 71 K (vgl. Abb. 5.10).


Abb. 5.12:

Temperaturabhängigkeit der  $d^2 I(U)/dU^2$ -Kennlinie des Stufenkantenkontaktes aus Abb. 5.9. Die Pfeile deuten die Position des äußersten deutlichen Extremums für die Temperaturen 51 K, 61 K und 71 K an.

Dieses experimentelle Ergebnis ist daher sowohl konsistent mit der Erklärung der spannungsperiodischen Strukturen durch phasenkohärente Phasenschlupfzentren, als auch mit der obigen Hypothese der reduzierten kritischen Temperatur der quasieindimensionalen supraleitenden Kanäle. Mit  $\Delta = 19.4 \text{ meV}$  und  $T_c = 71 \text{ K}$  erhält man  $\frac{\Delta}{kT_c} = 3.2$ , was etwas kleiner als  $\frac{\Delta}{kT_c} = 3.8 - 4.2$  für den YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film der Punktkontakte aus Kap. 5.1 ( $\Delta = 30 - 33 \text{ meV}, T_c = 91 \text{ K}$ ), aber nicht untypisch für YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> ist.

Nimmt man an, dass der isolierende Bereich, durch den die dünnen supraleitenden Kanäle mit bis zu sieben beobachteten Phasenschlupfzentren hindurchgehen, auf die Umgebung der unteren Stufenkante begrenzt ist, wie es die Mikrostruktur und die Transporteigenschaften vergleichbarer LT-Sp-Stufenkantenkontakte in Kapitel 3 und 4 nahelegen, dann kommen als Phasenkopplungsmechanismus nicht nur die Quasiteilchendiffusion, sondern auch Ordnungsparameteroszillationen, deren Reichweite der zweifachen Kohärenzlänge 2  $\xi_0$  entspricht, in Frage. Eine Kopplung über elekromagnetische Strahlung scheidet angesichts der für Josephsonkopplung in HTSL untypisch hohen Frequenzen von mehreren Terahertz vermutlich aus. Legt man die in [278] angegebene Quasiteilchendiffusionslänge  $\Lambda \sim 100 \,\mathrm{nm}$  zugrunde, sollten unter Annahme des Quasiteilchen-Kopplungsmechanismus in den untersuchten Proben mehrere Phasenschlupfzentren in Serie nur phasengekoppelt existieren können.

## Kapitel 6

## Zusammenfassung

### Präparation von Korngrenzenkontakten

Ingesamt wurden mehr als 1000 Korngrenzenkontakte mit einer Stegbreite w zwischen 2  $\mu$ m und 60  $\mu$ m auf mehr als 40 Chips im Reinraum des Fachbereichs Elektrotechnik der Universität Wuppertal präpariert. Mit einer durch eine abschließende Flutbelichtung und Temperung gehärteten Photolackmaske wurde beim Ar<sup>+</sup>-Ionenätzen eine Selektivität von 1-1.2 erreicht, die steile Substratstufen mit einem Stufenwinkel von 70-75° ermöglicht. Die systematische Optimierung der Substratstufenpräparation ausgehend von Ergebnissen von Dr. B. Aschermann [221] führte ferner zu einem neuartigen, aus zwei Schritten bestehenden Ar<sup>+</sup>-Ionenätzprozess, der eine besonders geringe Restrauhigkeit der Stufenflanke (< 30 nm) erzielt, die eine Grundvoraussetzung für gut reproduzierbare Transporteigenschaften von Stufenkantenkontakten ist.

Die 200 nm dünnen YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filme wurden durch Hochdruck-DC-Sputtern (M. Getta, Dr. M. Lenkens, R. Wagner, Universität Wuppertal) und durch off-axis-Laserablation (Dr. J. Schubert, W. Zander, ISI, FZ Jülich) hergestellt. In enger Zusammenarbeit mit der Wuppertaler Filmherstellungsgruppe wurde systematisch die Oberflächendiffusion während der Filmdeposition durch Erhöhung der Substrattemperatur  $T_{sub}$  und Erniedrigung des O<sub>2</sub>-Partialdrucks  $p(O_2)$  erhöht, bis die Grenzen erreicht waren, jenseits derer sich der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film zu zersetzen beginnt ( $T_{sub} = 780$ °C) oder Rücksputtereffekte die Filmqualität merklich beeinträchtigen ( $p(O_2) = 150$  Pa). Alle Filme wiesen eine hohe Qualität<sup>1</sup> auf, wobei die bei hohem O<sub>2</sub>-Partialdruck und niedriger Substrattemperatur gesputterten Filme tendentiell etwas besser als die anderen waren.

Eine Reihe von Experimenten zur Optimierung der Mikrostrukturierung zeigte, dass eine simultane Strukturierung der Mikrobrücken und Goldkontaktflächen im Anschluss an eine Lift-off-Randvergoldung des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Films die Transporteigenschaften und die Reproduzierbarkeit charakteristischer Parameter der Josephsonkontakte signifikant verbessert. Die auf diesen Prozess zugeschnittenen Chrommasken wurden, wie alle verwendeten Chrom- und Eisenoxidmasken, selbst entworfen.

Eine gute Haftung und ein guter elektrischer Kontakt der ex-situ deponierten Goldschicht auf dem YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film wurde durch eine nachträgliche Temperung der fertigen Chips bei 500°C in einem O<sub>2</sub>-durchströmten Quarzglasrohr erzielt.

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>kritische Temperatur:  $T_c = 89 - 92 \text{ K}$ , Übergangbreite:  $\Delta T_c = 0.35 - 0.7 \text{ K}$ , kritische Stromdichte  $J_c(77 \text{ K}) = 1.5 - 5 \text{ MA/cm}^2$ , Oberflächenwiderstand:  $R_s(77 \text{ K}, 87 \text{ GHz}) = 12 - 19 \text{ m}\Omega$ .

### Mikrostrukturanalyse

Die AFM-Oberflächenanalyse der hochdruckgesputterten YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-\delta</sub>-Filme in Kooperation mit Dr. B. Dam (Freie Universität Amsterdam) zeigt, dass die relative Übersättigung  $\sigma$  während des Filmwachstums so gering ist, dass 2D-Schichtwachstum nicht möglich ist. Daher bestimmen durch Schraubenversetzungen induzierte Wachstumsspiralen die Oberflächenmorphologie dieser Filme. Der gefundene typische Abstand  $\Lambda = 20 - 50$  nm zwischen zwei benachbarten Spiralwindungen lässt auf eine Diffusionslänge  $x_s \sim 10$  nm und eine Oberflächendiffusionskonstante  $D_s \propto e^{-\frac{E_a}{kT}}$  im Bereich von  $10^{-14} - 10^{-13}$  cm<sup>2</sup>/s schließen. Die im Zusammenhang mit dieser Abschätzung berechnete Aktivierungsenergie  $E_a = 2.4 \,\mathrm{eV}$  für einen Sprung einer YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-\delta</sub>-Wachstumseinheit zu einer benachbarten Gleichgewichtsposition impliziert eine starke Temperaturabhängigkeit der Oberflächendiffusionskonstanten. Daher ist  $D_s$  während eines Hochdrucksputterprozesses bei  $T_{sub} = 780^{\circ}$ C um nahezu einen Faktor 5 größer als bei  $T_{sub} = 720^{\circ}$ C, aber etwa eine Größenordnung kleiner als bei der off-axis-Laserablation.

Von Dr. C.L. Jia (FZ Jülich) angefertigte TEM-Aufnahmen eines Querschnitts durch Stufenkantenkontakte, die bei  $T_{sub} = 740^{\circ}$ C gesputtert wurden, zeigten nahe der unteren Stufenkante eine defektreiche Mikrostruktur und eine auffällige Grabenbildung im YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film. Beide Effekte lassen sich durch das Zusammenspiel einer zu geringen Oberflächendiffusion und der Abschattungswirkung der Substratstufe erklären. Eine Untersuchung mit Hilfe von STM-Linien-Scans (mit Dr. B. Dam) wies nach, dass die Grabenbildung nur bei Stufenkantenkontakten auftritt, die bei niedriger Substrattemperatur gesputtert wurden (LT-Sp)<sup>2</sup>, nicht aber bei Verwendung der anderen Depositionsprozesse (HT-Sp, PLD), bei denen die Oberflächendiffusionkonstante  $D_s$  wesentlich größer ist.

### Transporteigenschaften der Korngrenzenkontakte

Eine bereits bestehende Apparatur zur Messung der Transporteigenschaften von Korngrenzenkontakten wurde um eine programmierbare batteriebetriebene Präzisionsstromquelle und eine computergesteuerte Relais-Schalteinheit ergänzt und weitgehend automatisiert. Die erforderlichen Computerprogramme (1) zur Aufnahme verschiedener charakteristischer Daten (R(T)-,  $I_c(T)$ - und  $I_c(B)$ -Kurve) an Josephsonkontakten und (2) zur graphischen Darstellung der Daten und Vorauswertung der *IU*-Kennlinien ( $I_c$ ,  $I_{exc}$ ,  $R_n$ ) wurden selbst entwickelt.

Die IU-Kennlinien von LT-Sp-Stufenkantenkontakten sind flux-flow-artig oder resistiv, unabhängig vom Verhältnis von Filmdicke zu Stufenhöhe und unabhängig vom Stufenpräparations- und Mikrostrukturierungsprozess, wie eine gemeinsame Probenpräparation mit Dr. S. Beuven (ISI, FZ Jülich) zeigte. RSJ-artige IU-Kennlinien wurden nur für PLDund für einige HT-Sp-Stufenkantenkontakte sowie für Bikristallkontakte beobachtet. Die Asymptote der meisten RSJ-artigen Kennlinien ließ sich bei 4.2 K deutlich besser durch ein Potenzgesetz  $I(U) = aU^b$  mit einem Exponenten b = 1.05 - 1.11 als durch eine Geradengleichung (b = 1) beschreiben, was auf einen geringen Anteil resonanten Tunnelns über mehr als einen lokalisierten Zustand am Quasiteilchentransport schließen lässt.

Die PLD-Stufenkantenkontakte erreichten ein  $T_c$  von bis zu 88 K und eine charakteristische Spannung  $I_c R_n$  von bis zu 2.1 mV (0.24 mV) bei 4.2 K (77 K) bei einem fast temperaturunabhängigen typischen  $R_n A$  von ~ 10<sup>-8</sup>  $\Omega$ cm<sup>2</sup>. Für 11 Stufenkantenkontakte

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup>Die Abkürzungen geben den YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Film-Depositionsprozess an. LT-Sp / HT-Sp : Hochdruck-sputtern bei niedriger (720-740°C) bzw. hoher (780°C) Substrattemperatur; PLD : off-axis-Laserablation.

entlang einer Substratstufe wurde eine besonders geringe Parameterstreuung (Standardabweichung) bei 4.2 K erzielt, die der von guten Bikristallkontakten entspricht und fast an die Werte von Rampenkontakten heranreicht:  $\sigma(J_c) = 16.8 \%$ ,  $\sigma(R_n A) = 18.8 \%$  und  $\sigma(I_c R_n) = 7.4 \%$ . Noch geringer fielen die  $J_c$ -Unterschiede von je zwei Stufenkantenkontakten aus, die an den gegenüberliegenden Stufen eines 5  $\mu$ m breiten Substratgrabens präpariert wurden.

PLD- und HT-Sp-Stufenkantenkontakte und Bikristallkontakte zeigen das nach dem ISJ-Modell zu erwartende Skalierungsverhalten  $I_cR_n \propto J_c^p$  mit  $p \approx 0.5$ , was zusammen mit dem Potenzverhalten der *IU*-Kennlinien-Asymptote darauf hinweist, dass resonantes Tunneln über lokalisierte Zustände der dominierende Quasiteilchentransportmechanismus in den untersuchten Korngrenzenkontakten ist. Ausgeprägte Shapirostufen und eine dem Fraunhofermuster ähnliche  $I_c(B)$ -Kurve wurden nur für PLD-Stufenkantenkontakte beobachtet. Der durch Form und Modulationstiefe der  $I_c(B)$ -Kurve reflektierte Grad der Homogenität der Stromdichteverteilung über die Kontaktfläche nimmt deutlich mit der Oberflächendiffusion während des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-\delta</sub>-Depositionsprozesses ab. Dieser mit den Ergebnissen der Mikrostrukturanalyse konsistente Trend durchzieht die gesamten experimentellen Ergebnisse hinsichtlich der Transporteigenschaften der Stufenkantenkontakte: *Je größer die Oberflächendiffusionskonstante während der Deposition des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-\delta</sub>-<i>Films, desto besser die Transporteigenschaften und desto geringer die Parameterstreuung*.

### Punktkontakte und Hinweise auf Phasenschlupfzentren in sauerstoffdefizienten Stufenkantenkontakten

Ein signifikanter Exzessstrom, eine subharmonische Energielückenstruktur und ein hoher normalleitender Widerstand in den IU- bzw. dI(U)/dU-Kennlinien weisen klar darauf hin, dass Punktkontakte in sauerstoffdefizienten Stufenkantenkontakten existieren. Nach einer Erweiterung des OTBK-Modells hinsichtlich der Berücksichtigung von inelastischer Streuung in der normalleitenden Barriere ließ sich die Lage der beobachteten subharmonischen Energielückenstrukturen in den dI(U)/dU-Kennlinien quantitativ modellieren. Die Anpassung der Modellkennlinien an die experimentellen Kennlinien lieferte eine Energielücke  $\Delta = 30 - 33 \,\mathrm{mV}$  und ein  $\Delta/kT_c = 3.8 - 4.2$ , was für YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> mit einem  $T_c$  von 88-92 K typisch ist [33]. Daraus folgt, dass zumindest für die hier untersuchten Stufenkantenkontakte das für HTSL-Josephsonkontakte typische niedrige  $I_c R_n \ll \Delta$  nicht durch eine nahe der Korngrenze erniedrigte Energielücke, sondern durch die Korngrenzeneigenschaften selbst bedingt ist. Die weitere Auswertung lieferte eine mit Literaturangaben [38] gut übereinstimmende mittlere freie Weglänge  $l < 13 \,\mathrm{nm}$  in der normalleitendenen Barriere. Die Analyse der durch eine nachträgliche O<sub>2</sub>-Beladung in einem Sauerstoffplasma induzierten Veränderung der Kennlinien zeigte, dass die O2-defizienten Stufenkantenkontakte eher als Supraleiter-Halbleiter-Supraleiter-Punktkontakte mit einer hohen Dichte lokalisierter Zustände  $n_{LS} \sim 10^{20} \,\mathrm{cm}^{-3}$  zu beschreiben sind.

Die dI(U)/dU-Kennlinien einiger sauerstoffdefizienter Stufenkantenkontakte wiesen äquidistante Leitfähigkeitsmaxima auf, deren Temperaturabhängigkeit gut mit der einer Energielücke eines Supraleiters mit  $T_c \approx 70 \,\mathrm{K}$  und  $\Delta/kT_c \approx 3.2$  übereinstimmt. Diese für YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> mit einem reduzierten Ordnungsparameter plausiblen Werte und weitere Indizien lassen darauf schließen, dass die Barriere einen oder mehrere quasi-eindimensionale supraleitende Kanäle enthält, in denen sich mit zunehmender Spannung mehrere phasenkohärente Phasenschlupfzentren bilden. Mikrostrukturanalyse, IU-Kennlinien,  $I_c(B)$ -Abhängigkeit und Tunnelspektroskopie zeichnen ein konsistentes Bild einer defektreichen Mikrostruktur eines LT-Sp-Stufenkantenkontaktes, die sich hinsichtlich der Transporteigenschaften durch eine erhöhte Oberflächendiffusion während der Deposition des YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-\delta</sub>-Films deutlich verbessern lässt. Da dieser Verbesserung aber Grenzen gesetzt sind  $(T_{sub} \leq 780^{\circ}\text{C}, p(O_2) \geq 150 \text{ Pa})$ , bevor ähnlich hohe Werte für die Oberflächendiffusionskonstante  $D_s$  wie bei der Laserablation erreicht werden, ist das Hochdrucksputtern trotz der erreichbaren besseren Filmeigenschaften  $(R_s, J_c, \Delta T_c)$  weniger geeignet für die Herstellung von Korngrenzenkontakten als die Laserablation. Aber auch laserablatierte Korngrenzenkontakte erreichen nicht die jüngsten Bestwerte für die Parameterstreuung (vgl. Tab. A.2). Daher sieht es derzeit so aus, als sei der Durchbruch in der HTSL-Elektronik am ehesten mit Rampenkontakten YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> / PrBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> / YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Kontakten [167] zu erreichen.

## Anhang A

## Tabellen

# A.1 Literaturwerte für charakteristische Parameter verschiedener HTSL-Josephsonkontakttypen

Variierbare Absolutwerte und eine geringe Streuung von  $J_c$ ,  $R_nA$  und  $I_cR_n$  sind essentiell für viele Anwendungen von HTSL-Josephsonkontakten (vgl. Kap. 2.4.3). In den folgenden beiden Tabellen A.1 und A.2 werden die in dieser Arbeit erzielten Ergebnisse den Literaturwerten verschiedener HTSL-Kontakttypen gegenübergestellt, die den Status der HTSL-Josephsontechnologie zu Beginn des Jahres 2000 wiedergeben.

### Erläuterungen zu den Tabellen A.1 und A.2:

Die Nummern (Nr.) in der jeweils ersten Spalte der beiden Tabellen stimmen dann überein, wenn es sich um dieselben Josephsonkontakte mit demselben Literaturverweis (letzte Spalte in Tab. A.1) handelt.

HTSL-Josephsonkontakttypen (Typ):

 $BCJ = Bikristallkontakt auf einem SrTiO_3-Substrat mit 24^{\circ}-Korngrenze,$ 

BEJ = biepitaktischer Kontakt auf einem MgO-Substrat mit CeO<sub>2</sub>-Pufferschicht (Nr. 6 und 7) oder einem SrTiO<sub>3</sub>-Substrat mit BaZrO<sub>3</sub>/CeO<sub>2</sub>-Pufferschicht (Nr. 8)

SEJ = Stufenkantenkontakt (weitere Details s.u.)

SNJ = SNS-Stufenkontakt (N = Gold)

REJ = Rampenkontakt (weitere Details s.u.)

 $VJ = vertikale c-Achsen-Mikrobrücke (Nr. 41 und 43) bzw. a-Achsen-orientierter Dreischichter (Nr. 42) (YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-<math>\delta$ </sub> / PrGaO<sub>3</sub> / YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>)

EBJ = elektronenstrahlgeschriebene Mikrobrücke

IBJ = ionenstrahlgeschwächte Mikrobrücke

Die Literaturverweise zu jedem Josephsonkontakttyp sind chronologisch geordnet.

Es wird unterschieden, ob sich die angegebenen Werte auf alle  $(\bullet)$ , typische  $(\circ)$  oder nur die besten  $(\star)$  Josephsonkontakte beziehen. Falls dieser Bezug nicht aus der Literaturquelle hervorgeht, werden die Werte als typisch eingestuft. In der dritten Spalte von Tab A.1 wird die Stegbreite w der Josephsonkontakte angegeben.

Filmdepositionsverfahren (Dep.-V.):

(o)PLD = (off-axis)Laserablation (Nr. 19: PLD, vgl. Kap. 4.2)

dcSp = DC-Hochdrucksputtern (Nr. 5: LT-Sp, Nr. 18: HT-Sp, vgl. Kap. 4.2)

Nr.	. Typ		w	DepV.	$J_c  [\rm kA/cm^2]$		$R_n A  [10^{-9}  \Omega \mathrm{cm}^2]$		$I_c R_n  [\mathrm{mV}]$		Ref.
	51	μm			4.2 K 77 K		4.2 K 77 K		4.2 K 77 K		
1	BCJ	0	5	HSp	$200^{4}$	10	$10^{4}$	20	$2^{4)}$	0.2	[127]
2	BCJ	0	4	PLD	70	5	43	40	3	0.2	[128]
3	BCJ	*	4	PLD	290	24	6.6	6.3	1.9	0.15	[145]
4	BCJ	*	4	PLD	1300	170	1.2	1.2	1.6	0.2	[145]
5	BCJ	٠	2-6	dcSp	40-110		13-19		0.95-1.6		
6	BEJ	0	20	EBE	10	0.5	50	< 20	0.5	< 0.01	[127]
7	BEJ	٠	5-20		$3-50^{3}$		$10-60^{3}$		$0.1-0.9^{3})$		[148]
8	BEJ	0	4-8	PLD	60	2	25	10-30	1.5	20-60	[129]
9	SEJ	0	2-30	PLD/HSp	100	10	10	10	1	0.1	[127]
10	SEJ	٠	5-20	PLD	$100-160^{2}$		$4-12^{2}$		$0.6 - 1.4^{2})$		[199]
11	SEJ	٠	8-32	PLD	1.9-4.5		90-200		0.3-0.7		[199]
12	SEJ	0	2	PLD		112 - 360		0.76 - 1.7		0.16 - 0.30	[130]
13	SEJ	0	2	PLD		114 - 317		0.93		0.3	[130]
14	SEJ	0	2	PLD	17	$2.7^{9)}$	71	$54^{9}$	1.2	$0.15^{9}$	[130]
15	SEJ	0	2	PLD		95		4.3		0.41	[130]
16	SEJ	*	2	PLD		$100^{9}$		$8.5^{9)}$		$0.85^{9)}$	[131]
17	SEJ	0	4	PLD	30-100	4-10	10-30	6-20	0.2-3	0.02 - 0.1	[279]
18	SEJ	٠	4-14	dcSp	10-55		25-75		0.65-2.1		
19	SEJ	٠	4-14	oPLD	55-270	7-33	6-20	5-12	0.9-1.8	0.07 - 0.22	
20	SNJ	٠	2-20	PLD	100-1000	10-100	1-30	1-30	0.6-10.6	0.07 - 1.00	[133]
21	REJ	٠	5-25	rfSp	0.01 - 150		6-6000		0.1-8.0		[162]
22	REJ	0	4	PLD		70-90		0.41		0.03	[160]
23	REJ	0	10	dcSp		16		1.2		0.02	[161]
24	REJ	0			20-200	0.2 - 30	100-600	10-500	3-8	0.02 - 0.15	[280]
25	REJ	0	4			38		1.3		0.05	[281]
26	REJ	0	4	$\operatorname{orfSp}$		$127^{9}$		$4.8^{9}$		$0.5 - 0.8^{9})$	[282]
27	REJ	0	4	PLD		$77^{7)}$		$0.65^{7)}$		$0.1^{7)}$	[197]
28	REJ	*	10	dcSp/PLD	60	0.75	300	110	18	0.085	[163]
29	REJ	٠			$2-400^{1}$	0.03 - 30	$4-250^{1}$	3-500	$0.5-3^{1)}$	0.01 - 0.25	[138]
30	REJ	0	3-4	orfSp/PLD		75		1.3		0.1	[283]
31	REJ	0	3-4	PLD	12.5	4-8	360	16-32	4.5	0.12	[139]
32	REJ	0	4	orfSp/PLD		$41^{9}$		$7.7^{9)}$		$0.315^{9}$	[135]
33	REJ	٠	4	PLD	1-4000	$86^{5)}$	1-330	$6.3^{5)}$	0.18-6	$0.1 - 2^{5})$	[137]
34	REJ	*	10	oPLD		10		3		0.03	[284]
35	REJ	*	10	rfSp	4.6	$1.1^{8}$	260	$250^{8}$	1.2	$0.28^{8}$	[285]
36	REJ	*	4	$\operatorname{orfSp}$		$48-69^{9}$		$7-12^{9}$		$0.5 - 0.6^{9})$	[286]
37	REJ	*		orfSp/PLD		$100^{6}$		$7.7^{6)}$		$0.8^{6)}$	[287]
38	REJ	0		orfSp/PLD		$37^{9)}$		$7.6^{9)}$		$0.266^{9}$	[287]
39	REJ	0		orfSp/PLD		$42^{6}$		$17^{6}$		$0.7^{6)}$	[287]
40	REJ	0	4	PLD	25 - 125		12-120		1.5-2.5	$0.5 - 0.8^{5})$	[159]
41	VJ	0	Ø 2	EBE		20-45		1.3-2.6		0.07	[140]
42	VJ	*	$5 \times 5$	PLD	8.8	$0.2 - 0.4^{8})$	2.6	$1-2^{8)}$	5.7	$0.11^{8}$	[164]
43	VJ	0	Ø 0.6	EBE		$265^{8}$		$4.5^{8}$		$1.2^{8}$	[167]
44	EBJ	0	2-3	PLD	18-500	27		1.1	1-2	0.03	[141]
45	IBJ	0	4			$\sim 35$		$\sim 1$		$\sim 0.036$	[288]
46	IBJ	٠	4			$25-200^{8}$		$0.5 - 2^{8}$		$0.05 - 0.2^{8)}$	[172]

Tab. A.1: Literaturwerte für charakteristische Parameter von verschiedenen HTSL-Josephsonkontakttypen bei  $4.2 \, \text{K}$  und  $77 \, \text{K}$ .

 $^{1)}$   $T = 10~{\rm K},~^{2)}$   $T = 18~{\rm K},~^{3)}$   $T = 20~{\rm K},~^{4)}$   $T = 35~{\rm K},~^{5)}$   $T = 40~{\rm K},~^{6)}$   $T = 55~{\rm K},~^{7)}$   $T = 58~{\rm K},~^{8)}$   $T = 60~{\rm K},~^{9)}$   $T = 65~{\rm K}.$ 

Nr.	Тур		#JJ	$\sigma(J_c$	.) [%]	$\sigma(R_n A)  [\%]$		$\sigma(I_c R_n)  [\%]$		Abw. T-Werte
				$4.2\mathrm{K}$	$77\mathrm{K}$	$4.2\mathrm{K}$	$77\mathrm{K}$	$4.2\mathrm{K}$	$77\mathrm{K}$	
1	BCJ	0	120	16-22						$T = 35 \mathrm{K}$
2	BCJ	0	7	$14^{1)}$	$28^{1}$					
5	BCJ	0	6	27		12		19		
6	BEJ	0	5	75						$T = 35 \mathrm{K}$
7	BEJ	0	16	77		65		48		$T = 20 \mathrm{K}$
9	SEJ	0	70-90		27-52					
10	SEJ	0	6	17		36		26		$T = 18 \mathrm{K}$
11	SEJ	0	6	28		37		23		
12	SEJ	0	30		32-66		13 - 31		23 - 39	
13	SEJ	0	30		41-45					
14	SEJ	0	30	36	47					$T = 4.2  /  65  \mathrm{K}$
15	SEJ	0	30		23		43		32	
16	SEJ	*	30		17					$T = 65 \mathrm{K}$
18	SEJ	0	4-6	45 - 75		20-45		15-45		
19	SEJ	0	4-11	30-50		10-35		10-35		
19	SEJ	*	11	16.8	40.6	18.8	19.9	7.4	23.5	
23	REJ	*	5		10-20		10-20			
25	REJ	٠	6		7.5 - 50		$\sim 17$			
26	REJ	0	4		12 - 20		24		15	$T = 65 \mathrm{K}$
27	REJ	0	20		12 - 17					$T = 58 \mathrm{K}$
30	REJ	0	9		16		10		13	
32	REJ	0	19		13		6		9	$T = 65 \mathrm{K}$
33	REJ	*	10/5	7.8	2.7	3.5	7.6			$T = 4.2 / 40 \mathrm{K}$
34	REJ	*	18		20		10			
36	REJ	*	30		26				11	$T = 65 \mathrm{K}$
37	REJ	*	20		10		5		6	$T = 55 \mathrm{K}$
38	REJ	0	20		33		16		18	$T = 65 \mathrm{K}$
39	REJ	0	20		19		17		21	$T = 55 \mathrm{K}$
40	REJ	0	12	7	10					$T = 40 \mathrm{K}$
40	REJ	0	100	8	$\sim 10$					$T = 40 \mathrm{K}$
41	VJ	0	8		6-33		8-31		5-24	$T = 40 \mathrm{K}$
43	VJ	0	40		13.4		8.2		6.3	$T = 60 \mathrm{K}$
46	IBJ	٠	8/11		12-40					$T=55-65\mathrm{K}$

Tab. A.2: Literaturwerte für die Parameterstreuung (Standardabweichung) von verschiedenen HTSL-Josephsonkontakttypen bei 4.2 K und 77 K.

<sup>1)</sup> Abweichung der Maximal-/Minimalwerte vom Mittelwert.

(o)rfSp = (off-axis)HF-Sputtern

HSp = Hohlkathoden-Magnetron-Sputtern

EBE = Elektronenstrahlverdampfung

Die YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filmdicke liegt bei allen Josephsonkontakten im Bereich von 100-250 nm. Die dritte Spalte in Tab A.2 gibt die Anzahl der Josephsonkontakte an, auf die sich die Parameterstreuung bezieht.

Auf von 4.2 K und 77 K abweichende Messtemperaturen wird in der Fußnote von Tab. A.1 bzw. in der letzten Spalte von Tab. A.2 hingewiesen. Manche Absolutwerte und Streuungen wurden Diagrammen entnommen und stehen nicht als Zahlenwert in der Literaturquelle. Lücken in den Tabellen weisen immer auf fehlende Literaturwerte hin. Verhältnis von Substratstufenhöhe zu Filmdicke  $h/d_f$  und Substratmaterial bei Stufenkantenkontakten:

Nr. 9: 150-250 nm/100-200 nm (SrTiO<sub>3</sub> oder LaAlO<sub>3</sub>)

- Nr. 10: 180 nm/160 nm (LaAlO<sub>3</sub>)
- Nr. 11: 240 nm/180 nm (LaAlO<sub>3</sub>)

Nr. 12: 200-300 nm/100-200 nm (NdGaO<sub>3</sub>)

Nr. 13: 200-300 nm/100-150 nm (LaAlO<sub>3</sub>)

Nr. 14: 170 nm/130 nm (YSZ mit CeO<sub>2</sub>-Pufferschicht)

Nr. 15: 180 nm/140 nm (MgO mit SrTiO<sub>3</sub>-Pufferschicht)

Nr. 16: 150 nm/120 nm (SrTiO<sub>3</sub>-Schicht)

Nr. 17: (LaAlO<sub>3</sub>) Nr. 18,19: 250 nm/200 nm (LaAlO<sub>3</sub>).

Barrierenmaterial der Rampenkontakte:

Nr. 21,29,36: Ga-dotiertes  $PrBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 

Nr. 22,25-27,30,32,36,37: Co-dotiertes  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 

Nr. 23,29,31:  $PrBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 

Nr. 24:  $NdGaO_3$ 

Nr. 33: kubisches  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ 

Nr. 34,35,38: Ar<sup>+</sup>-Ionenstrahlmodifiziertes YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> Nr. 39: chemisch angeätztes, ungeordnetes YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> Nr. 40: La-modifiziertes YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>

Spezielle zusätzliche Angaben zu einzelnen Josephsonkontakten:

Nr 2: Auf einem Chip mit 7 SrTiO<sub>3</sub>-passivierten  $36^{\circ}$ -Bikristallkontakten wurde eine maximale  $J_c$ -Abweichung vom Mittelwert von nur 10 % im gesamten Temperaturbereich zwischen 4.2 K und 77 K erreicht.

Nr. 3,4: Nr. 3 ist der obere und Nr. 4 der untere Bikristallkontakt in einem Zweierstapel über einer Substratkorngrenze.

Nr. 29: T = 65 K:  $J_c = 295 \text{ kA/cm}^2$ ,  $\sigma(J_c) = 7 \%$ .

Nr. 16,25,26,29,31: Unterhalb der Josephsonkontakte ist eine YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Grundplatte integriert, um eine geringere, für digitale Schaltungen geeignete SQUID-Induktivität zu erzielen.

Einige weitere Papiere [289, 290, 291] enthalten interessante Daten zur Parameterstreuung, sind aber nicht in den Tabellen erfasst, weil in ihnen wichtige Angaben (z.B. die Messtemperatur oder die Anzahl der Josephsonkontakte, auf die sich die Parameterstreuung bezieht) fehlen.

## Literaturverzeichnis

- [1] H.K. Onnes, Comm. Leiden Nr. 108, Proc. Roy. Acad. Amsterdam 11, 168 (1908).
- [2] H.K. Onnes, Comm. Leiden **120b**, 124 (1911).
- [3] J. Bardeen, L.N. Cooper, J.R. Schrieffer, *Theory of Superconductivity*, Phys. Rev. 108, 1175 (1957).
- [4] B.D. Josephson, Possible new effects in superconductive tunneling, Phys. Lett. 1, 251 (1962).
- [5] M. Gurvitch, M.A. Washington, H.A. Huggins, *High quality refractory Josephson tunnel junction utilizing thin aluminum layers*, Appl. Phys. Lett. **42**, 472 (1983).
- [6] T. van Duzer, Superconductor Electronics, 1986 1996, IEEE Trans. Appl. Supercond. 7, 98 (1997).
- [7] S. Pagano, A. Barone, Josephson junctions, IOP Inst. Phys. Conf. Ser. No. 158, 457 (1997).
- [8] A.I. Braginski, Superconducting electronics coming to market, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 2825 (1999).
- [9] M. Wu, J. Ashburn, C. Torng, P. Hor, R. Meng, L. Gao, Z. Huang, C. Chu, Phys. Rev. Lett. 58, 908 (1987).
- [10] H. Maeda, Y. Tanaka, M. Fukutomi, T. Asano, Jpn. J. Appl. Phys. Lett. 27, 209 (1988).
- [11] Z. Sheng, A. Hermann, Nature **332**, 55 (1988).
- [12] W. Meißner, R. Ochsenfeld, Naturwissenschaften **21**, 787 (1933).
- [13] C.J. Gorter, H. Casimir, Phys. Z. 35, 963 (1934), Z. Tech. Phys. 15, 539 (1934) und Physica 1, 306 (1934).
- [14] F. London, H. London, Z. Phys. 96, 359 (1935) und H. London, Proc. Roy. Soc. London, A176, 522 (1940).
- [15] V.L. Ginsburg, L.D. Landau, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **20**, 1044 (1950).
- [16] E. Maxwell, Phys. Rev. 78, 477 (1950) und C.A. Reynolds, B. Serin, W.H. Wright, L.B. Nesbitt, Phys. Rev. 78, 487 (1950).

- [17] L.N. Cooper, Phys. Rev. **104**, 1189 (1956).
- [18] A.A Abrikosov, Sov. Phys. JETP 5, 1174 (1957) [Zh. Eksp. Teor. Fiz. 32, 1442 (1957)];
   B.S. Deaver Jr., W.M. Fairbank, Phys. Rev. Lett. 7, 43 (1961);
   R. Doll, M. Näbauer, Phys. Rev. Lett. 7, 51 (1961).
- [19] V.Z. Kresin, S.A. Wolf, Fundamentals of Superconductivity, Plenum Press, New York and London (1990).
- [20] W. Buckel, *Supraleitung*, 4. Auflage, VCH Verlag Weinheim (1990).
- [21] J.B. Bednorz, K.A. Müller, Z. Physik **B64**, 189 (1986).
- [22] Gavaler et al., Appl. Phys. Lett. 23, 480 (1973).
- [23] L. Gao, Z.J. Huang, R.L. Meng, J.G. Lin, F. Chen, L. Beauvais, Y.Y. Sun, Y.Y. Xue, C.W. Chu, Physica C 213, 261 (1993).
- [24] E. Dagotto, Rev. Mod. Phys. 66, 763 (1994).
- [25] J.D. Jorgensen, B.W. Veal, A.P. Paulikas, L.J. Nowicki, G.W. Crabtree, H. Claus, W.K. Kwok, Structural properties of oxygen-deficient YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, Phys. Rev. B 41, 1863 (1990).
- [26] R. Beyers, T.M. Shaw, The structure of  $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$  and its derivatives, Solid State Physics 42, 135 (1989).
- [27] K.C. Hass, Electronic structure of copper-oxide superconductors, Solid State Physics 42, 213 (1989).
- [28] H. Claus, M. Braun, A. Erb, K. Röhberg, B. Runsch, H. Wühl, G. Bräuchle, P. Schweib, G. Müller-Vogt, H. v. Löhneysen, *The "90 K" plateau of oxygen deficient YBa*<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals, Physica C 198, 42 (1992).
- [29] J.R. Cooper, S.D. Obertelli, A. Carrington, J.W. Loram, Phys. Rev. B 44, 12086 (1991).
- [30] V.Z. Kresin, H. Morawitz, S.A. Wolf, Mechanisms of conventional and high-T<sub>c</sub> superconductivity, Oxford University Press, New York (1993).
- [31] V.Z. Kresin, S.A. Wolf, Induced superconducting state and two-gap structure: Application to cuprate superconductors and conventional multilayers, Phys. Rev. 46, 6458 (1992).
- [32] V.Z. Kresin, A. Bill, S.A. Wolf, Yu.N. Ovchinnikov, High T<sub>c</sub> oxides: two order parameters, magnetic scattering, and upper limit of T<sub>c</sub>, novel isotope effects, and the phonon-plasmon mechanism, Proceedings of the Conference on Gap Symmetry and Fluctuations in High-T<sub>c</sub> Superconductors, Cargese, France (1997), Plenum Press, New York, pp. 55-71 (1998).
- [33] B.A. Aminov, M.A. Hein, G. Müller, H. Piel, D. Wehler, Ya.G. Ponomarev, K. Rosner, K. Winzer, Two-Gap Structure in Yb(Y)Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> Single Crystals, J. Supercond. 7, 361 (1994).

- [34] B.A. Aminov, B. Aschermann, M.A. Hein, F. Hill, M. Lorenz, G. Müller, H. Piel, Point-contact characteristics of high-angle YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> step-edge junctions, Phys. Rev. B 52, 13631 (1995).
- [35] N. Klein, N. Tellmann, H. Schulz, K. Urban, S.A. Wolf, V.Z. Kresin, evidence of two-gap and s-wave superconductivity in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  from microwave surface impedance measurements, Phys. Rev. Lett. **71**, 3355 (1993).
- [36] S. Orbach-Werbig, Oberflächenimpedanz epitaktisch aufgewachsener YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>-Filme bei 87 GHz, Dissertation WUB-DIS 94-9, Bergische Universität Wuppertal (1994).
- [37] U. Welp, K. Kwok, G.W. Crabtree, K.G. Vandervoort, J.Z. Liu, Magnetic Measurements of the Upper Critical Field of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> Single Crystals, Phys. Rev. Lett. 62, 1908 (1989).
- [38] B. Batlogg, Physical Properties of High-T<sub>c</sub> Superconductors, Physics Today, 44, Juni 1991.
- [39] L. Krusin-Elbaum, R.L. Greene, F. Holtzberg, A.P. Malozemoff, Y. Yeshurun, Direct Measurement of the Temperature-Dependent Magnetic Penetration Depth in Y-Ba-Cu-O Crystals, Phys. Rev. Lett. 62, 217 (1989).
- [40] B. Pümpin, H. Keller, W. Kündig, W. Ottermatt, I.M. Savic, J.W. Schneider, H. Simmler, P. Zimmermann, E. Kaldis, S. Rusiecki, Y. Maeno, C. Rossel, Phys. Rev. B 42, 8019 (1990).
- [41] C. Camerlingo, P. Scardi, C. Tosello, R. Vaglio, Disorder effects in ion-implanted niobium thin films, Phys. Rev. B 31, 3121 (1985).
- [42] R. Blaschke, R. Blocksdorf, Influence of the inelastic electron-phonon scattering on the superconducting surface resistance, Z. Phys. B 49, 99 (1982).
- [43] G. Müller, Habilitationsschrift WUB 90-26, Bergische Universität Wuppertal (1990).
- [44] G. Eliashberg, Sov. Phys. JETP 13, 1000 (1961); G. Eliashberg, Sov. Phys. JETP 16, 780 (1963).
- [45] P. Monthoux, D. Pines, YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>: a nearly antiferromagnetic Fermi liquid, Phys. Rev. B47, 6069 (1993); P. Monthoux, D. Scalapino, Self-consistent d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub> pairing in a two-dimensional Hubbard model, Phys. Rev. Lett. 72, 1874 (1994); D. Scalapino, The case for d<sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub> pairing in the cuprate superconductors, Physics Reports 250, 329 (1995).
- [46] J. Mannhart, H. Hilgenkamp, Wave function symmetry and its influence on superconducting devices, IOP Inst. Phys. Conf. Ser. No. 158, 1 (1997).
- [47] H. Hilgenkamp, J. Mannhart, Mechanisms controlling interface-properties in High-T<sub>c</sub> superconductors, IEEE Trans. Appl. Supercond. Vol. 9, 3405 (1999).

- [48] Z.X. Shen, D.S. Dessau, B.O. Wells, D.M. King, W.E. Spicer, A.J. Arco, D. Marshall, L.W. Lombardo, A. Kapitulnik, P. Dickinson, S. Doniach, J. Di-Carlo, T. Loeser, C.H. Parks, Phys. Rev. Lett. 74, 797 (1993); Z.X. Shen, W.E. Spicer, D.M. King, D.S Dessau, B.O. Wells, Science 267, 343 (1995).
- [49] J. Kane, Chen Qun, K.W. Ng, H.J. Tao, Phys. Rev. Lett. 72, 178 (1994).
- [50] H. Ding, J.C. Campuzano, A.F. Bellman, T. Yokoya, M.R. Norman, K. Kodowaki, G. Jennins, Phys. Rev. Lett. 74, 2784 (1995).
- [51] D.A. Bonn, S. Kamal, Z. Kuan, L. Ruixing, D.J. Baar, E. Klein, W.N. Hardy, Comparison of the influence of Ni and Zn impurities on the electronic properties of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>6.95</sub>, Phys. Rev. B50, 4051 (1994).
- [52] S. Hensen, G. Müller, C.T. Rieck, K. Scharnberg, In-plane surface impedance of epitaxial  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  films: comparison of experimental data taken at 87 GHz with d- and s-wave models of superconductivity, Phys. Rev. **B** 56, 6237 (1997).
- [53] C.C Tsuei, A. Kirtley, C.C. Chi, Lock See Yu-Jahnes, A. Gupta, T. Shaw, J.Z. Sun, M.B. Ketchen, *Pairing symmetry and flux quantization in a tricrystal super-conductivity ring of YBa*<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, Phys. Rev. Lett. **73**, 593 (1994); C.C. Tsuei, J.R. Kirtley, M. Rupp, J.Z. Sun, A. Gupta, M.B. Ketchen, C.A. Wang, Z.F. Ren, J.H. Wang, M. Bhushan, Science **271**, 329 (1996).
- [54] C.C. Tsuei, J.R. Kirtley, M. Rupp, J.Z. Sun, C.C. Chi, A. Gupta, Lock See Yu-Jahnes, M.B. Ketchen, *Half-integer flux quantum effect in tricrystal cuprate super*conductors, Physica C263, 232 (1996).
- [55] A. Mathai, Y. Gim, R.C. Black, A. Amar, F.C. Wellstood, Phys. Rev. Lett. 74, 4523 (1995).
- [56] D.A. Brawner, H.R. Ott, Phys. Rev. **B50**, 6530 (1994).
- [57] D.A. Wollman, D.J. van Harlingen, J. Giapintzakis, D.A. Ginsberg, Phys. Rev Lett. 74, 797 (1995).
- [58] J.H. Miller Jr., Q.Y. Ying, Z.G. Zan, N.Q. Fan, J.H. Zu, M.F. Davis, J.C. Wolfe, Phys. Rev Lett. 74, 2347 (1995).
- [59] M. Sigrist, T.M Rice, Paramagnetic effect in high T<sub>c</sub> superconductors: a hint for d-wave superconductivity, J. Phys. Soc. Jpn. 61, 4283 (1992).
- [60] G. Deutscher, Electronic properties of the superconducting cuprates, Current Opinion in Solid State and Materials Science 1, 37 (1996).
- [61] M. Prohammer, J.P. Carbotte, Phys. Rev. **B43**, 5370 (1991).
- [62] T. Jacobs, S. Sridhar, C.T. Rieck, K. Scharnberg, T. Wolf, J. Halbritter, J. Phys. Chem. Solids (1995).
- [63] J.R. Schrieffer, J. Low Temp. Phys. 99, 397 (1995); Bull. APS 41, 74 (1996).

- [64] A. Sun, D. Gajewskii, M. Maple, R. Dynes, Phys. Rev. Lett. 72, 2267 (1994); A.G. Sun, A. Truscott, A.S. Katz, R.C. Dynes, B.W. Veal, C. Gu, *Direction of tunneling in Pb/I/YBa*<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> tunnel junctions, Phys. Rev. B54, 6734 (1996).
- [65] R. Kleiner et al., Phys. Rev. Lett. 76, 2161 (1996).
- [66] P. Chaudari, Shawn-Yu Lin, Symmetry of the superconducting order parameter in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  epitaxial films, Phys. Rev. Lett. **72**, 1084 (1994).
- [67] V. Kresin, S. Wolf, Yu. Ovchinnikov, A. Bill, S. Adrian, O. Dolgov, S. Shulga, Magnetic scattering, recovery of superconductivity and tunneling in the cuprates, J. Low Temp. Phys. 106, 159 (1997).
- [68] V.Z. Kresin, S.A. Wolf, Yu. N. Ovchinnikov, Upper limit of T<sub>c</sub> for the copper oxides, J. Supercond. 9, 329 (1996).
- [69] A.J. Leggett, Josephson experiments on the high temperature superconductors, Phil. Mag. B74, 509 (1996).
- [70] K. A. Müller, Possible coexistence of s- and d-wave condensates in copper oxide superconductors, Nature 377, 133 (1995).
- [71] K.A. Müller, H. Keller, S and d wave symmetry components in high temperature cuprate superconductors, Proceedings of the M<sup>2</sup>S, Beijing, China (1997).
- [72] L.J. Buchholtz et al., J. Low Temp. Phys. **101**, 1079 (1995).
- [73] S.R. Bahcall, Phys. Rev. Lett. **76**, 3634 (1996).
- [74] E.L. Wolf, Principles of electron tunneling spectroscopy, Oxford University Press, New York (1989).
- [75] V. Ambegaokar, A. Baratoff, Phys. Rev. Lett. 10, 486 (1963) Erratum 11, 104.
- [76] I. Giaever, Phys. Rev. Lett. 14, 904 (1965).
- [77] J. Halbritter, Extrinsic or intrinsic conduction in cuprates: Anisotropy, weak and strong links, Phys. Rev B48, 9735 (1993).
- [78] J. Halbritter, Pair weakening and tunnel channels at cuprate interfaces, Phys. Rev. B46, 14861 (1992).
- [79] R. Gross, L. Alff, A. Beck, O.M. Fröhlich, R. Gerber, R. Gerdemann, A. Marx, B. Mayer, D. Koelle, On the nature of high-T<sub>c</sub> Josephson junctions Clues from noise and spatially resolved analysis, Proceedings of the HTS Workshop on Applications and New Materials, Twente, The Netherlands, p. 1-8 (1995).
- [80] R. Gross, L. Alff, A. Beck, O.M. Fröhlich, D. Koelle, A. Marx, *Physics and techno-logy of high temperature superconducting Josephson junctions*, IEEE Trans. Appl. Supercond. Vol. 7, 2929 (1997).
- [81] R. Dömel, C. Horstmann, M. Siegel, A.I. Braginski, Resonant tunneling transport across YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>-SrRuO<sub>3</sub> interfaces, Appl. Phys. Lett. 67, 1775 (1995).

- [82] L.I Glazman, K.A. Matveev, Inelastic tunneling across thin amorphous films, Sov. Phys. JETP 67, 1276 (1988) [Zh. Eksp. Teor. Fiz. 94, 332 (1988).
- [83] J. Yoshida, S. Inoue, T. Hashimoto, T. Nagano, Characterization of ramp-type Josephson junctions with a Co-doped PrBaCuO barrier, IEEE Trans. Appl. Supercond. Vol. 9, 3366 (1999).
- [84] I.A. Devyatov, M. Yu. Kupriyanov, Resonant tunneling and long-range proximity effect, JETP Lett. 59, 200 (1994).
- [85] G. Deutscher, P.G. de Gennes, Superconductivity Vol. 2, ed. R.D. Parks, Marcel Dekker New York (1969).
- [86] K.K. Likharev, Superconducting weak links, ev. Mod. Phys. 51, 101 (1979).
- [87] M. Yu. Kupriyanov, V.F. Lukichev, Sov. J. Low. Temp. Phys. 8, 526 (1982) [Fiz. Nizk. Temp. 8, 1045 (1982)].
- [88] K.A. Delin, A.W. Kleinsasser, Stationary properties of high-critical-temperature proximity effect Josephson junctions, Supercond. Sci. Technol. 9, 227 (1996).
- [89] M. Yu. Kupriyanov, V.F. Lukichev, So. Phys. JETP 67, 1163 (1988) [Zh. Eksp. Teor. Fiz. 94, 139 (1988)].
- [90] M. Octavio, M. Tinkham, G.E. Blonder, T.M. Klapwijk, Subharmonic energy-gap structure in superconducting constrictions Phys. Rev. B 27, 6739 (1983).
- [91] P.W. Anderson, J.M. Rowell, Probable observation of the Josephson superconducting tunneling effect, Phys. Rev. Lett. 10, 230 (1963).
- [92] K.K. Likharev, Dynamics of Josephson junctions and circuits, Gordon and Breach Science Publishers, Philadelphia (1986).
- [93] J. Clarke, Phys. Rev. Lett. 21, 1566 (1968); T.D. Bracken, W.O. Hamilton, Phys. Rev. 6, 2603 (1972); J.C. Macfarlane, Appl. Phys. Lett. 22, 549 (1973); J.S. Tsai, A.K. Jain, J.E. Lukens, Phys. Rev. Lett. 51, 316 (1983).
- [94] R.P. Feynman, The Feynman Lectures on Physics, Vol. 3, Addison-Wesley, New York (1965).
- [95] S.V. Pereverzev et al., Nature **388**, 449 (1997).
- [96] A. Barone, G. Paterno, *Physics and applications of the Josephson effect*, Wiley-Interscience, New York (1982).
- [97] W.C Stewart, Appl. Phys. Lett. 12, 277 (1968).
- [98] D.E. McCumber, Appl. Phys. Lett. **12**, 3113 (1968).
- [99] L.G. Aslamazov, A.I. Larkin, JETP Lett. 9, 87 (1987).
- [100] A.K. Jain, K.K. Likharev, J.E. Lukens, J.E. Sauvageau, Phys. Rep. 109, 309 (1984).

- [101] J.E. Lukens, in: Superconducting Devices, ed.: S.T Ruggiero, D.A. Rudman, Academia Press, Boston (1990).
- [102] S. Shapiro, Phys. Rev. Lett. **11**, 80 (1963).
- [103] R.L. Kautz, R.H. Ono, C.D. Reintsema, Appl. Phys. Lett. 61, 342 (1992).
- [104] C.A. Hamilton, R.L. Kautz, R.L. Steiner, F.L. Lloyd, A practical Josephson voltage standard at 1 V, IEEE Elec. Dev. Lett. 6, 623 (1985).
- [105] H.-G. Meyer, G. Wende, L. Fritzsch, F. Thrum, M. Schubert, F. Müller, R. Behr, J. Niemeyer, *Improved primary Josephson voltage standard with a new microwave* driving source, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 4150 (1999).
- [106] C. Gerthsen, H.O. Kneser, H. Vogel, *Physik*, p. 297, 15. Auflage, Springer Verlag, Berlin (1986).
- [107] B.D. Josephson, Supercurrents through barriers, Adv. Phys. 14, 419 (1965).
- [108] P. Rosenthal, M.R. Beasley, K. Char, M.S. Colclough, G. Zaharchuk, Appl. Phys. Lett. 59, 3482 (1991).
- [109] R.C. Dynes, T.A. Fulton, Supercurrent density distribution in Josephson junctions, Phys. Rev. B3, 3015 (1971).
- [110] V.B. Geshkenbein, A.I. Larkin, A. Barone, Phys. Rev. **B36**, 235 (1987).
- [111] J. Mannhart, H. Hilgenkamp, B. Mayer, Ch. Gerber, J.R. Kirtley, K.A. Moler, M. Sigrist, Generation of magnetic flux by single grain boundaries of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub>, Phys. Rev. Lett. 77, 2782 (1996).
- [112] J.A. Alarco, E. Olsson, Z.G. Ivanov, P.Å. Nilsson, D. Winkler, E.A. Stepantsov, A.Ya. Tzalenchuk, *Microstructure of an artificial grain boundary weak link in an YBa*<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> thin film grown on a (100)(110), [001]-tilt Y-ZrO<sub>2</sub> bicrystal, Ultramicroscopy **51**, 239 (1993).
- [113] C. Træholt, J.G. Wen, H.W. Zandbergen, Y. Shen, J.W.M. Hilgenkamp, TEM investigation of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> thin films on SrTiO<sub>3</sub> bicrystals, Physica C230, 425 (1994).
- [114] H. Hilgenkamp, J. Mannhart, B. Mayer, Ch. Gerber, J.R. Kirtley, K.A. Moler, Influence of  $d_{x^2-y^2}$  symmetry on device applications of high- $T_c$  grain boundary junctions, IEEE Trans. Appl. Supercond. Vol. 7, 3670 (1997).
- [115] H. Hilgenkamp, J. Mannhart, B. Mayer, Implications of  $d_{x^2-y^2}$  symmetry and faceting for the transport properties of grain boundaries in high- $T_c$  superconductors, Phys. Rev. **B53**, 14586 (1996).
- [116] H. Hilgenkamp, J. Mannhart, Grain boundary Josephson junctions: Consequences of order parameter anisotropy, Proc. 6th Int. Superconductive Electronics Conference (ISEC), Berlin, Germany, Vol. 1, 5 (1997).

- [117] C.R. Hu, Midgap surface states as novel signature for  $d_{xa^2-xb^2}$ -wave superconductivity, Phys. Rev. Lett. **72**, 593 (1994).
- [118] S. Kashiwaya, Y. Tanaka, M. Koyanagi, K. Kajimura, Phys. Rev. **B53**, 2667 (1996).
- [119] Y. Tanaka, S. Kashiwaya, Theory of the Josephson effect in d-wave superconductors, Phys. Rev. B53, R11957 (1996).
- [120] Y. Tanaka, S. Kashiwaya, Theory of tunneling spectroscopy of d-wave superconductors, Phys. Rev. Lett. 74, 3451 (1995).
- [121] P. Richter, O.M. Fröhlich, A. Beck, R. Gross, G. Koren, Czech. J. Phys. 46, (Suppl. S3), 1303 (1996).
- [122] G. Wendin, V.S. Shumeiko, Superlattices and Microstructures 20, 569 (1996); G. Wendin, *Modeling of HTS Josephson junctions*, Proc. 6th Int. Superconductive Electronics Conference (ISEC), Berlin, Germany, Vol. 1, 14 (1997).
- [123] S. Kleefisch, L. Alff, U. Schoop, A. Marx, R. Gross, M. Naito, H. Sato, Superconducting Nd<sub>1.85</sub>Ce<sub>0.15</sub>CuO<sub>4-y</sub> bicrystal grain boundary Josephson junctions, Appl. Phys. Lett. **72**, 2888 (1998).
- [124] Q. Huang, J.F. Zasadzinski, N. Tralshawala, K.E. Gray, D.G. Hinks, J.L. Peng, R.L. Greene, Nature 347, 369 (1990).
- [125] A. Andreone, A. Cassinese, A. DiChiara, R. Vaglio, A. Gupta, E. Sarnelli, Phys. Rev. B49, 6392 (1994).
- [126] M. Hein, High temperature superconductor thin films at microwave frequencies, Springer tracts in modern physics, Vol. 155, Springer Verlag, Berlin (1999).
- [127] R. Gerdemann, K.-D. Husemann, R. Gross, L. Alff, A. Beck, B. Elia, W. Reuter, M. Siegel, Spatially resolved analysis of high-T<sub>c</sub> grain boundary Josephson junctions and arrays, J. Appl. Phys. **76**, 8005 (1994).
- [128] L.R. Vale, R.H. Ono, D.A. Rudman,  $YBa_2Cu_3O_{7-x}$  Josephson junctions on bicrystal  $Al_2O_3$  and  $SrTiO_3$  substrates, IEEE Trans. Appl. Supercond. 7, 3193 (1997).
- [129] Yu. A. Boikov, Z.G. Ivanov, T. Claeson, *Electromagnetic radiation induced current* steps in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  biepitaxial Josephson junctions, Supercond. Sci. Technol. **10**, 801 (1997).
- [130] C.L. Pettiette-Hall, J.A. Luine, J. Murduck, J.F. Burch, R. Hu, M. Sergant, D. St. John, YBCO step edge junctions on various substrates, IEEE Trans. Appl. Supercond. 5, 2087 (1995).
- [131] J.M. Murduck, J. Burch, R. Hu, C. Pettiette-Hall, J.A. Luine, S.M. Schwarzbek, M. Sergant, H. Chan, A low-inductance, low-I<sub>c</sub> HTS junction process, IEEE Trans. Appl. Supercond. 7, 2940 (1997).

- [132] F.G. Hill, M. Getta, M.A. Hein, G. Müller, H. Piel, B. Dam, S. Beuven, J. Schubert, W. Zander, Influence of film growth conditions on the transport properties of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> step-edge junctions, Proceedings of the International Superconductive Electronics Conference (ISEC), Berlin, Germany, Vol. 2, 67 (1997); Influence of film growth conditions on the transport properties of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> step-edge junctions, Elsevier Applied Superconductivity, Vol. 5, 7 (1997).
- [133] P.A. Rosenthal, E.N. Grossman, R.H. Ono, L.R. Vale, High temperature superconductor - normal metal - superconductor Josephson junctions with high characteristic voltages, Appl. Phys. Lett. 63, 1984 (1993), IEEE Trans. Appl. Supercond. Vol. 5, 3405 (1995).
- [134] C.D. Reintsema, R.H. Ono, G. Barnes, L. Borchert, T.E. Harvey, G. Kunkel, D.A. Rudman, L.R. Vale, N. Missert, P.A. Rosenthal, *The critical current and normal resistance of high-T<sub>c</sub> step-edge SNS junctions*, IEEE Trans. Appl. Supercond. 5, 3405 (1995).
- [135] B.D. Hunt, M.G. Forrester, J. Talvacchio, R.M. Young, *High-resistance SNS edge junctions*, Proceedings of the International Superconductive Electronics Conference (ISEC), Berlin, Germany, Vol. 2, 64 (1997).
- [136] W.H. Mallison, S.J. Berkowitz, A.S. Hirahara, Fabrication of superconductor normal metal - superconductor Josephson junctions with integrated high-T<sub>c</sub> groundplanes, IEEE Trans. Appl. Supercond. 7, 2944 (1997).
- [137] B.H. Moeckly, K. Char, Interface engineered high-T<sub>c</sub> Josephson junctions, Proceedings of the International Superconductive Electronics Conference (ISEC), Berlin, Germany, Vol. 1, 8 (1997); Properties of interface-engineered high T<sub>c</sub> Josephson junctions, Appl. Phys. Lett. 71, 2526 (1997). B.H. Moeckly, K. Char, Y. Huang, K.L. Merkle, Interface-engineered YBCO edge junctions, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3358 (1999).
- [138] M. Schilling, Electrical and noise properties of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> ramp-type Josephson junctions, IEEE Trans. Appl. Supercond. 7, 2960 (1997).
- [139] A. Engelhardt, C. Horstmann, R. Dittmann, M.D. Strikovsiy, Characterization of in-situ and ex-situ YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> / PrBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> / YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> ramp-type Josephson junctions, Proceedings of the International Superconductive Electronics Conference (ISEC), Berlin, Germany, Vol. 2, 79 (1997); A. Engelhardt, priv. Mitteilung.
- [140] S.W. Goodyear, R.G. Humphreys, J.S. Satchell, N.G. Chew, M.J. Wooliscroft, K. Lander, *Control and reproducibility of c-axis microbridges*, IEEE Trans. Appl. Supercond. 7, 2734 (1997).
- [141] M.G. Blamire, W.E. Booij, A.J. Pauza, E.J. Tarte, D.F. Moore, Improvements in the properties of electron beam damage YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> junctions, IEEE Trans. Appl. Supercond. 7, 2856 (1997); Alternative types of YBaCuO Josephson junctions, Proceedings of the International Superconductive Electronics Conference (ISEC), Berlin, Germany, Vol. 1, 11 (1997).

- [142] P. Chaudhari, J. Mannhart, D. Dimos, C.C. Tsuei, C.C. Chi, M.M Oprysko, M. Scheuermann, Phys. Rev. Lett. 60, 1653 (1988); Phys. Rev. Lett. 61, 219 (1988); Phys. Rev. Lett. 61, 2476 (1988); Phys. Rev. B 41, 4038 (1990).
- [143] R. Gross, Grain Boundary Josephson Junctions in High Temperature Superconductors, in: Interfaces in Superconducting Systems, ed. S.L. Shinde und D. Rudman, Springer Verlag, New York 1992.
- [144] R. Ono, H.Q. Li, L.R. Vale, D.A. Rudman, Multilayer processing of high-T<sub>c</sub> films and Josephson devices, Proc. 6th Int. Superconductive Electronics Conference (ISEC), Berlin, Germany, Vol. 2, 34 (1997).
- [145] H.Q. Li, R.H. Ono, L.R. Vale, D.R. Rudman, High temperature superconducting Josephson junctions in a stacked bicrystal geometry, Appl. Phys. Lett. 71, 1121 (1997).
- [146] A. Tsukamoto, K. Takagi, Y. Moriwaki, T. Sugano, S. Adachi, K. Tanabe, Highperformance (Hg,Re)Ba<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>y</sub> grain-boundary Josephson junctions and dc superconducting quantum interference devices, Appl. Phys. Lett. **73**, 990 (1998).
- [147] K. Char, M.S. Colclough, S.M. Garrison, N. Newman, G. Zaharchuk, Appl. Phys. Lett. 59, 733 (1991); Appl. Phys. Lett. 59, 2177 (1991).
- [148] R.P.J. Ijsselsteijn, J.W.M. Hilgenkamp, D. Veldhuis, J. Flokstra, H. Rogalla, C. Træholt, H.W. Zandbergen, *High-T<sub>c</sub>* bi-epitaxial junctions and dc SQUIDs structured by focused ion beam etching, IEEE Trans. Appl. Supercond. 5, 2513 (1995).
- [149] L. Hao, J.C. Macfarlane, C.M. Pegrum, J. Kuznik, *Current and resistance fluctuations in YBCO junctions*, Proceedings of the European Conference on Applied Superconductivity (EUCAS 95), Edinburgh, Scotland, p. 1299 (1995).
- [150] R.W. Simon, J.B. Bulman, J.F. Burch, S.B. Coons, K.P. Daly, W.D. Dozier, R. Hu, A.E. Lee, J.A. Luine, C.E. Platt, S.M. Schwarzbek, M.S. Wire, M.J. Zani, Trans. Mag. 27, 3209 (1991)
- [151] K. Herrmann, Y. Zhang, H.-M. Mück, J. Schubert, W. Zander, A.I. Braginski, Characterization of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> step-edge Josephson junctions, Supercond. Sci. Technol. 4, 583 (1991).
- [152] K. Herrmann, HTSL-Josephson-Stufenkontakte, Dissertation, Universität Gießen / KFA Jülich (1993).
- [153] C.L. Jia, B. Kabius, K. Urban, K. Herrmann, G.J. Cui, J. Schubert, W. Zander, A.I. Braginski, C. Heiden, Physica C 175, 545 (1991).
- [154] C.L. Jia, B. Kabius, K. Urban, K. Herrmann, J. Schubert, W. Zander, A.I. Braginski, The microstructure of epitaxial YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> films on steep steps in LaAlO<sub>3</sub> substrates, Physica C196, 211 (1992).
- [155] M.S. DiIorio, S. Yoshizumi, K.Y. Yang, J. Zhang, M. Maung, Appl. Phys. Lett. 58, 2552 (1991).

- [156] R.H. Ono, J.A. Beall, M.W. Cromar, T.E. Harvey, M.E. Johansson, C.D. Reintsema, D.A. Rudman, Appl. Phys. Lett. 59, 1126 (1991).
- [157] J. Gao, W.A.M. Aarnink, G.J. Gerritsma, H. Rogalla, Controlled preparation of all high-T<sub>c</sub> SNS-type edge junctions and dc SQUIDs, Physica C 171, 126 (1990).
- [158] A.W. Kleinsasser, K.A. Delin, High-T<sub>c</sub> SNS Josephson junctions: Moving beyond adolescence ?, IEEE Trans. Appl. Supercond. 7, 2964 (1997).
- [159] T. Satoh, M. Hidaka, S. Tahara, High-temperature superconducting edge-type Josephson junctions with modified interfaces, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3141 (1999).
- [160] L. Antognazza, B.H. Moeckly, T.H. Geballe, K. Char, Properties of high T<sub>c</sub> Josephson junctions with Y<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>Ba<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> barrier layers, Phys. Rev. B 52, 4559 (1995).
- [161] M.I. Faley, U. Poppe, C.L. Jia, U. Dähne, Yu. Goncharov, N. Klein, K. Urban, V.N. Glyantsev, G. Kunkel, M. Siegel, Applications of Josephson edge type junctions with a PrBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> barrier prepared with Br-ethanol etching or cleaning, IEEE Trans. Appl. Supercond. 5, 2608 (1995).
- [162] M.A. Verhoeven, G.J. Gerritsma, H. Rogalla, Ramp type HTS Josephson junctions with PrBaCuGaO barriers, IEEE Trans. Appl. Supercond. 5, 2095 (1995).
- [163] C. Horstmann, P. Leinenbach, R. Dittmann, U. Memmert, U. Hartmann, A.I. Braginski, *Correlation between ramp morphology and properties of ramp-type junctions*, IEEE Trans. Appl. Supercond. 7, 2844 (1997).
- [164] R. Tsuchiya, M. Kawasaki, H. Kubota, J. Nishino, H. Sato, H. Akoh, H. Koinuma, YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> trilayer junction with nm thick PrGaO<sub>3</sub> barrier, Appl. Phys. Lett. **71**, 1570 (1997); Characteristics of YBaCuO trilayer junctions using nm-thick PrGaO<sub>3</sub> as barrier, Proceedings of the International Superconductive Electronics Conference (ISEC), Berlin, Germany, Vol. **2**, 103 (1997).
- [165] R. Kleiner, P. Müller, H. Kohlstedt, N.F. Pedersen, S. Sakai, Dynamic behaviour of Josephson-coupled layered structures, Phys. Rev. B 50, 3942 (1994).
- [166] F. Schmidl, A. Pfuch, H. Schneidewind, E. Heinz, L. Dörrer, A. Matthes, P. Seidel, U. Hübner, M. Veith, E. Steinbeiß, *Preparation and first measurements of TBCCO* thin film intrinsic stacked Josephson junctions, Supercond. Sci. Technol. 8, 740 (1995).
- [167] P.J. Hirst, T.G. Henrici, I.L. Atkin, J.S. Satchell, J. Moxey, N.J. Exon, M.J. Woolicraft, T.J. Horton, R.G. Humphreys, *C-axis microbridges for Rapid Single Flux Quantum logic*, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3833 (1999).
- [168] R. Kleiner, F. Steinmeyer, G. Kunkel, P. Müller, Intrinsic Josephson effects in Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>8</sub> single crystals, Phys. Rev. Lett. 68, 2394 (1992).
- [169] K.K. Likharev, Sov. Phys. JETP **34**, 906 (1972).

- [170] L.G. Aslamazov, A.I. Larkin, Sov. Phys. JETP 41, 381 (1975).
- [171] S.K. Tolpygo, M. Gurvitch, Critical currents, proximity effect and Josephson penetration depth in planar high-T<sub>c</sub> Josephson junctions, IEEE Trans. Appl. Supercond. 7, 3208 (1997).
- [172] A.S. Katz, S.I. Woods, R.C. Dynes, Stability and uniformity of planar high temperature Josephson junctions fabricated using nanolithography and ion damage, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3005 (1999).
- [173] A. Marx, U. Fath, W. Ludwig, R. Gross, T. Amrein, Phys. Rev. B 51, 6735 (1995).
- [174] A. Marx, U. Fath, L. Alff, R. Gross, Appl. Phys. Lett. 67, 1929 (1995).
- [175] T. Kemen, A. Marx, L. Alff, D. Koelle, R. Gross, Characterization of individual noise sources in high-temperature superconductor Josephson junctions, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3982 (1999).
- [176] J. Clarke, SQUID fundamentals in: SQUID Sensors: Fundamentals, Fabrication and Applications, page 1-62, ed. H. Weinstock, Kluwer Academic Press, Dordrecht (1996).
- [177] J. Clarke, *High-T<sub>c</sub> SQUIDs*, Current Opinion in Solid State & Materials Science 2, 3 (1997).
- [178] R. Cantor, L.P. Lee, M. Teepe, V. Vinetskiy, J. Longo, Low-noise, single-layer YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> dc SQUID magnetometers at 77 K, IEEE Trans. Appl. Supercond. 5, 2927 (1995).
- [179] Y. Zhang, U. Krüger, R. Kutzner, R. Wördenweber, J. Schubert, W. Zander, M. Strupp, E. Sodtke, A.I. Braginski, Single layer YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> radio frequency SQUID magnetometers with direct-coupled pickup coils and flip-chip flux transformers, Appl. Phys. Lett. 65, 3380 (1994).
- [180] F. Ludwig, E. Dantsker, D. Koelle, R. Kleiner, A.H. Miklich, J. Clarke, Multilayer magnetometers based on high-T<sub>c</sub> SQUIDs, Appl. Supercond. 3, 383 (1995).
- [181] D. Drung, F. Ludwig, W. Müller, U. Steinhoff, L. Trahms, H. Koch, Y.Q. Shen, M.B. Jensen, P. Vase, T. Holst, *Integrated YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-x</sub> magnetometer for bio*magnetic measurements, Appl. Phys. Lett. 68, 1421 (1996).
- [182] Y. Zhang, N. Wolters, X.H. Zeng, J. Schubert, W. Zander, H. Soltner, M. Banzet, F. Rüders, A.I. Braginski, Washer rf SQUID magnetometer with coplanar resonators at 77 K, Proceedings of the International Superconductive Electronics Conference (ISEC), Berlin, Germany, Vol. 1, 51 (1997).
- [183] T. Claeson, Novel Three-Terminal Devices, Report to the Future Electron Devices Symposium, Tokyo (1996).
- [184] P.A.A. Booi, S.P. Benz, Proceedings of the European Conference on Applied Superconductivity (EUCAS 95), Edinburgh, Scotland, (1995).

- [185] V.P. Koshelets, S.V. Shitov, A.M. Baryshew, A.V. Shchukin, L.V. Filippenko, Th. deGraauw, W. Luinge, H. van de Stadt, H. Schaeffer, J. Mygind, Proceedings of the European Conference on Applied Superconductivity (EUCAS 95), Edinburgh, Scotland, (1995).
- [186] D. Terpstra, High-frequency properties of high- $T_c$  Josephson junctions, PhD thesis, University of Twente, The Netherlands (1994).
- [187] R. Gerdemann, T. Bauch, L. Alff, A. Beck, R. Gross, Proceedings of the HTS Workshop on Applications and New Materials, Twente, The Netherlands, page 98 (1995); R. Gerdemann, T. Bauch, O.M. Fröhlich, L. Alff, A. Beck, D. Koelle, R. Gross, Appl. Phys. Lett. 67, 1010 (1995).
- [188] K.K. Likharev, V.K. Semenov, RSFQ logic/memory family: A new Josephson junction technology for sub-terahertz clock-frequency digital systems, IEEE Trans. Appl. Supercond. 1, page 3-28 (1991).
- [189] V.K. Kaplunenko, Appl. Phys. Lett. 66, 3365 (1995).
- [190] V.K. Kaplunenko, Z.G. Ivanov, E.A. Stepantsov, T. Claeson, E. Wikborg, Voltage divider based on submicron slits in a high-T<sub>c</sub> superconducting film and two grain boundaries, Appl. Phys. Lett. 67, 282 (1995).
- [191] S. Shokor, B. Nadgorny, M. Gurvitch, V. Semenov, Yu. Polyakov, K. Likharev, Allhigh-T<sub>c</sub> superconductor rapid-single-flux-quantum circuit operating at 30 K, Appl. Phys. Lett. 67, 2869 (1995).
- [192] A.G. Sun, D.J. Durand, J.M. Murduck, S.V. Rylov, M.G. Forrester, B.D. Hunt, J. Talvacchio, *HTS SFQ T-Flip Flop with directly coupled readout*, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3825 (1999).
- [193] S.J. Berkowitz, Y.M. Zhang, A. Hirahara, W.H. Mallison, *Demonstration of logic gates using HTS SNS long junctions*, Proceedings of the Applied Superconductivity Conference, Pittsburgh, USA (1996).
- [194] R.J. Wiegerink, G.J. Gerritsma, E.M.C.M. Reuvekamp, M.A.J. Verhoeven, H. Rogalla, A high-T<sub>c</sub> 4-bit periodic threshold Analog-to-Digital converter, Proceedings of the Applied Superconductivity Conference, Pittsburgh, USA (1996).
- [195] J.D. McCambridge, M.G. Forrester, D.L. Miller, J.X. Przybysz, B.D. Hunt, J. Talvacchio, R.M. Young, *Multilayer HTS counting A/D converter*, Proceedings of the Applied Superconductivity Conference, Pittsburgh, USA (1996).
- [196] J. Satchell, Limitations on HTS Single Flux Quantum Logic, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3841 (1999).
- [197] W.H. Mallison, S.J. Berkowitz, A.S. Hirahara, M.J. Neal, K. Char, A multilayer YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub> Josephson junction process for digital circuit applications, Appl. Phys. Lett. 68, 3808 (1996).
- [198] K. Schade (Hrsg.), Mikroelektroniktechnologie, Verlag Technik GmbH, 1. Aufl., Berlin (1991).

- [199] H.R. Yi, D. Winkler, Z.G. Ivanov, T. Claeson, *Electron beam lithographed straight* and wavy  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  step edge junctions, IEEE Trans. Appl. Supercond. 5, 2778 (1995).
- [200] J.M. Phillips, J. Appl. Phys. **79**, 1829 (1996)
- [201] T. Konaka, M. Sato, H. Asano, S. Kubo, J. Supercond. 4,283 (1991).
- [202] J. Talvacchio, R.G. Wagner, S.H. Talisa, Microwave J. June, 105 (1991).
- [203] B.P. Gorshunov, G.V. Kozlov, O.I. Sirotinsky, I.M. Chernyshev, Kratk. Soobshch. Fiz. AN SSSR Fiz. Inst. P.N. Lebedeva (USSR) N2, 28 (1989).
- [204] J.D. Jorgensen, M.A. Beno, D.G. Hinks, L. Soderholm, K.J. Volin, R.L. Hitterman, J.D. Grace, I.K. Schuller, C.U. Serge, K.Zhang, M.S. Kleefisch, Phys. Rev. B36, 3608 (1987).
- [205] V.B. Braginsky, V.S. Ilchenko, Kh.S. Bagdassarov, Phys. Rev. Lett. **120A**, 300 (1987).
- [206] R. Ramesh, A. Inam, W.A. Bonner, P. England, B.J. Wilkens, B.J. Meagher, L. Nazar, X.D. Wu, M.S. Hedge, C.C Chang, T. Venkatesan, H. Padamsee, Appl. Phys. Lett. 55, 1138 (1989).
- [207] G. Koren, A. Gupta, E.A. Giess, A. Segmüller, R.B. Laibowitz, Appl. Phys. Lett. 54, 1054 (1989).
- [208] M. Lenkens, Optimierung von gesputterten YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>-Filmen f
  ür Hochfrequenzanwendungen Dissertation WUB-DIS 96-5, Bergische Universit
  ät,Wuppertal (1996).
- [209] E.K. Hollmann, O.G. Vendik, A.G. Zaitsev, B.T. Melekh, Supercond. Sci. Technol. 7, 609 (1994).
- [210] J.A. Edwards, J.S. Satchell, N.G. Chew, R.G. Humphreys, M.N. Keene, O.D. Dosser, YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> thin-film step junctions on MgO substrates, Appl. Phys. Lett. 60, 19 (1992)
- [211] K. Dovidenko, S. Oktyabrsky, D. Tokarchuk, A. Michaltsov, A. Ivanov, Mater. Sci. Eng. B15, 25 (1992).
- [212] T. Komatsu, O. Tanaka, K. Matsushita, T. Yamashita, Japan. J. Appl. Phys. 27, L1686 (1988).
- [213] H.J Scheel, M. Berkowski, B. Chabot, Physica C185-189, 2095 (1990).
- [214] H.M. O 'Bryan, P.K. Gallagher, G.W. Berkstresser, C.D. Brandle, J. Mater. Res. 5, 183 (1990).
- [215] D. Dimos, P. Chaudhari, J. Mannhart, F.K. LeGoues, Phys. Rev. Lett. 61, 219 (1988)

- [216] R. Brown, V. Pendrick, D. Kalokitis, B.H.T. Chai, Appl. Phys. Lett. 57, 1351 (1990).
- [217] R.L.Sandstrom, E.A. Giess, W.J. Gallagher, A. Segmüller, E.I. Cooper, S. Shinde, R.B. Laibowitz, Appl. Phys. Lett. 53, 1874 (1988).
- [218] M. Sasaura, M. Mikaida, S. Miyazawa, Appl. Phys. Lett. 57, 2728 (1990).
- [219] B.C. Chakoumakos, D.G. Schlom, M. Urbanlk, J. Luine, Thermal expansion of LaAlO<sub>3</sub> and (La,Sr)(Al,Ta)O<sub>3</sub> substrate materials for superconducting thin-film device applications, J. Appl. Phys. 83, 1979 (1998).
- [220] M. Lenkens, B. Aschermann, S. Hensen, M. Jeck, S. Orbach, H. Schlick, H. Chaloupka, G. Müller, H.Piel, J. Alloys & Compounds 195, 559 (1993).
- [221] B. Aschermann, Beiträge zur Dünnschichttechnologie hochfrequenz- und energietechnischen Komponenten aus Hochtemperatursupraleitern, Dissertation WUB-DIS 97-10, Bergische Universität Wuppertal (1997).
- [222] R. Fabisch, Technologie zur Herstellung von Stufenkanten-Josephson-Kontakten in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>-Hochtemperatursupraleitern, Diplomarbeit WU D 95-36, Bergische Universität Wuppertal (1995).
- [223] H.R. Yi, Z.G. Ivanov, D. Winkler, Y.M. Zhang, H. Olin, P. Larsson, T. Claeson, Improved step edges on LaAlO<sub>3</sub> substrates by using amorphous carbon etch masks, Appl. Phys. Lett. 65, 1177 (1994).
- [224] J.Z. Sun, W.J. Gallagher, A.C. Callegari, V. Foglietti, H. Koch, Improved process for high-T<sub>c</sub> superconducting step-edge junctions, Appl. Phys. Lett. 63, 1561 (1993).
- [225] J.W. Seo, B.Kabius, U.Dähne, A. Scholen, K. Urban, Physica C 245, 25 (1995).
- [226] H. Schlick, priv. Mitteilung, Wuppertal (1997).
- [227] M. Getta, Dissertation in Vorbereitung (2000).
- [228] J. Schubert, W. Zander, priv. Mitteilung, Jülich (1997).
- [229] J. Schubert, priv. Mitteilung, Jülich (1997).
- [230] B. Dam, N.J. Koeman, J.H. Rector, B. Stäuble-Pümpin, U. Poppe, R. Griessen, Physica C261, 1 (1996).
- [231] H.R. Yi, Step edge junctions in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  high- $T_c$  superconductors, Dissertation, Chalmers University of Technology, Göteborg, Schweden, ISBN 91-7197-370-2, (1996).
- [232] E. Bauer, Z. Kristallogr. 110, 372 (1958).
- [233] E. Bauer, H. Poppa, Thin Solid Films **12**, 167 (1972).
- [234] U. Dürig, J.H. Bilgram, W. Känzig, Phys. Rev. A30, 946 (1984) (Gleichungen 6.1, 6.11, 6.14)

- [235] P. Bennema, G.H. Gilmer, in: Crystal growth: An Introduction, ed. P. Hartman, North-Holland, Amsterdam (1973).
- [236] W.K. Burton, N. Cabrera, F.C. Frank, Philos. Trans. Roy. Soc. A243, 299 (1951).
- [237] F.C. Frank, Discussions Faraday Soc. No. 5, 48 (1949).
- [238] F.C. Frank, Adv. Phys. 1, 91 (1952).
- [239] N. Cabrera and M.M. Levine, Phil. Mag. 1, 450 (1956).
- [240] S.K. Streiffer, B.M. Lairson, C.B. Eom, B.M. Clemens, J.C. Bravman, T.H. Geballe, Phys. Rev. B43, 13007 (1991).
- [241] Ch. Gerber, D. Anselmetti, J.G. Bednorz, J. Mannhart, D.G. Schlom, Nature 350, 279 (1991).
- [242] M. Hawley, I.D. Raistrick, J.G. Beery, R.J. Houlton, Science 251, 1587 (1991).
- [243] B. Dam, J.H. Rector, J.M. Huijbregtse, R. Griessen, The transition from 2Dnucleation to spiral growth in pulsed laser deposited  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  films, submitted to Physica C.
- [244] B. Dam, priv. Mitteilung, Amsterdam (1997).
- [245] B. Dam, B. Stäuble-Pümpin, Growth mode issues in epitaxy of complex oxide thin films, J. Mater. Sci. 9, 217 (1998).
- [246] T. Frey, C.C. Chi, C.C. Tsuei, T. Shaw, F. Boszo, Phys. Rev. 49, 3483 (1994).
- [247] K. Herrmann, G. Kunkel, M. Siegel, J. Schubert, W. Zander, A.I. Braginski, J. Appl. Phys. 78, 1131 (1995)
- [248] C.L. Jia, Dissertation, FZ Jülich / RWTH Aachen, Jül-2809 (1993).
- [249] T. Hödtke, Gleichstrommessungen an Dünnfilmkontakten aus YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub> auf gestuften LaAlO<sub>3</sub>-Substraten, Diplomarbeit WU D 94-37, Bergische Universität Wuppertal (1994).
- [250] M. Lorenz, Messung von Strom-Spannungs-Charakteristiken an schwach koppelnden HTSL-Stufenkontakten, Diplomarbeit WU D 95-32, Bergische Universität Wuppertal (1995).
- [251] G. Filatrella, N.F. Pedersen, Flux flow in high-T<sub>c</sub> Josephson junctions, Appl. Phys. Lett. 63, 1420 (1993).
- [252] S. Beuven, Experimentelle Untersuchung zur Wechselwirkung von HTSL-Josephsonkontakten in kleinen Netzwerken, Dissertation D 468, Institut f
  ür Schicht- und Ionentechnik, Forschungszentrum J
  ülich (1997).
- [253] K. Herrmann, priv. Mitteilung, Wuppertal, Januar 1994.
- [254] K. Peters, Fa. CrysTec GmbH, Berlin, priv. Mitteilung (1996).

- [255] E.B. McDaniel, S.C. Gausepohl, C.-T. Li, M. Lee, J.W.P. Hsu, R.A. Rao, C.B. Eom, Influence of SrTiO<sub>3</sub> bicrystal microstructural defects on YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> grain-boundary Josephson junctions, Appl. Phys. Lett. **70**, 1882 (1997).
- [256] Q.D. Jiang, Z.J. Hung, A. Brazdeikis, M. Dezaneti, C.L. Chen, P. Jin, C.W. Chu, Nondestructive investigation of microstructures and defects at a SrTiO<sub>3</sub> bicrystal grain boundary, Appl. Phys. Lett. 72, 3365 (1998).
- [257] H.W. Yu, M.J. Chen, H.C. Yang, S.Y. Yang, H.E. Horng, Characterization of grain boundaries in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> bicrystal junctions, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3101 (1999).
- [258] G.E. Blonder, M. Tinkham, Metallic to tunneling transition in Cu-Nb point contacts, Phys. Rev. B 27, 112 (1983).
- [259] K. Flensberg, J. Bindslev Hansen, M. Octavio, Subharmonic energy-gap structure in superconducting weak links, Phys. Rev. B 38, 8707 (1988).
- [260] M. Tinkham, Introduction to superconductivity, McGraw-Hill Verlag, New York (1975).
- [261] A. Plecenik, M. Grajcar, S. Beňačka, P. Seidel, A. Pfuch, Finite-quasiparticlelifetime effects in the differential conductance of Bi<sub>2</sub>Sr<sub>2</sub>CaCu<sub>2</sub>O<sub>y</sub>/Au junctions, Phys. Rev. B 49, 10016 (1994).
- [262] P.B. Allen, W.E. Pickett, Anisotropic normal-state transport properties predicted and analyzed for high- $T_c$  oxide superconductors, Phys. Rev. **B 37**, 7482 (1988).
- [263] Yu. V. Sharvin, Sov. Phys. JETP **21**, 655 (1965).
- [264] Z.Z. Wang, J. Clayhold, N.P. Ong, J.M. Tarascon, L.H. Greene, W.R. McKinnon, G.W. Hull, Variation of superconductivity with carrier concentration in oxygendoped YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-y</sub>, Phys. Rev. B 36, 7222 (1987).
- [265] B.H. Moeckly, R.A Buhrman, Electromigration studies of the role of oxygen defects in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  grain boundary weak links, IEEE Trans. Appl. Supercond. **3**, 2038 (1993).
- [266] R. Gross, P. Chaudhari, M. Kawasaki, A. Gupta, Superconducting transport properties of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> grain boundary junctions, Supercond. Sci. Technol. 4, S253 (1991).
- [267] H. Srikanth, A.K. Raychaudhuri, Transition from metallic to tunneling-type conductance in metal-metal and normal-metal-superconductor point contacts, Phys. Rev. B 46, 14713 (1992).
- [268] K. Flensberg, J. Bindslev Hansen, Subharmonic energy-gap structure and heating effects in superconducting niobium point contacts, Phys. Rev. B 40, 8693 (1989).
- [269] C.J. Muller, J.M. van Ruitenbeek, L.J. de Jongh, Experimental observation of the transition from weak link to tunnel junction, Physica C 191, 485 (1992).

- [270] B.A. Aminov et al., JETP Lett. 60, 424 (1994), Ya. G. Ponomarev et al. (un-veröffentlicht).
- [271] R. Kümmel, U. Gunsenheimer, R. Nicolsky, Andreev scattering of quasiparticle wave packets and current-voltage characteristics of superconducting metallic weak links, Phys. Rev. B 42, 3992 (1990).
- [272] H. Ibach, H. Lüth, *Festkörperphysik*, Springer Verlag Berlin, 4. Aufl., S. 110 (1995).
- [273] A.V. Tartakovskii, M.V. Fistul, Sov. Phys. JETP 94, 353 (1988).
- [274] J.M. Rowell, W.L.McMillan, Phys. Rev. Lett. 16, 453 (1966).
- [275] V.P. Galaiko, N.B. Kopnin, Theory of the resistive state in narrow superconducting channels, in: Nonequilibrium Superconductivity, eds. D.N. Langenberg, A.I. Larkin, Elsevier Science Publishers, pp. 543-587, (1986).
- [276] W.J. Skocpol, M.R. Beasley, M. Tinkham, J. Low Temp. Phys. 16, 145 (1974).
- [277] R. Tidecks, Current-induced nonequilibrium phenomena in quasi-one-dimensional superconductors, Springer Tracts in Modern Physics Vol. 121, Springer Verlag Berlin, (1990).
- [278] E. Polturak, G. Koren, D. Cohen and E. Aharoni, Measurements of the anisotropy and temperature dependence of the in-plane energy gap in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  using Andreev reflections, Phys. Rev. **B** 47, 5270 (1993).
- [279] F. Lombardi, Z.G. Ivanov, G.M. Fischer, E. Olsson, T. Claeson, Transport and structural properties of the top and bottom grain boundaries in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  stepedge Josephson junctions, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 250 (1999).
- [280] D. Grundler, J.-P. Krumme, B. David, O. Doessel, Multilevel devices of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> with NdGaO<sub>3</sub> barrier, IEEE Trans. Appl. Supercond. Vol. 5, 2751 (1995).
- [281] A.E. Lee, J.A. Luine, C.L. Petiette-Hall, Co-doped-YBCO SNS junctions for superconductive integrated circuits, IEEE Trans. Appl. Supercond. Vol. 5, 2980 (1995).
- [282] B.D. Hunt, M.G. Forrester, J. Talvacchio, J.D. McCambridge, R.M. Young, High-T<sub>c</sub> superconductor/normal metal/superconductor edge junctions and SQUIDs with integrated ground planes, Appl. Phys. Lett. 68, 3805 (1996).
- [283] B.D. Hunt, M.G. Forrester, J. Talvacchio, R.M. Young, J.D. McCambridge, High-T<sub>c</sub> SNS edge junctions with integrated YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>x</sub> groundplanes, IEEE Trans. Appl. Supercond. Vol. 7, 2936 (1997).
- [284] R. Dittmann, J.-K. Heinsohn, A.I Braginski, C.L. Jia, Fabrication of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> ramp-type junctions by interface treatments, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3440 (1999).
- [285] A. Fujimaki, K. Kawai, N. Hayashi, M. Horibe, M. Maruyama, H. Hayakawa, Preparation of ramp-edge Josephson junctions with natural barriers, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3436 (1999).

- [286] R. Hu, H.W. Chan, J.M. Murduck, M. Sergant, C.L. Pettiette-Hall, J. Bulman, J.L. Luine, Fabrication of high I<sub>c</sub>R<sub>n</sub> YBCO ramp junctions using Ga doped Pr-Ba-Cu-O barriers at 65 K, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3129 (1999).
- [287] B.D. Hunt, M.G. Forrester, J. Talvacchio, R.M. Young, *High-resistance HTS edge junctions for digital circuits*, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3362 (1999).
- [288] A.S. Katz, A.G. Sun, S.I. Woods, R.C. Dynes, Planar thin film YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> Josephson junctions via nanolithography and ion damage, Appl. Phys. Lett. 72, 2032 (1998).
- [289] L.R. Vale, R.H. Ono, J. Talvacchio, M.G. Forrester, B.D. Hunt, M.S. DiIorio, K.-Y. Yang, S. Yoshizumi, *Long term stability of YBCO-based Josephson junctions*, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3382 (1999).
- [290] J. Murduck, C.L. Pettiette-Hall, R. Hu, O. Salazar, M. McGerr, K. Daly, J. Luine, HTS edge junction dependence on base electrode edge smoothness, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3354 (1999).
- [291] K.-O. Subke, S. Krey, H. Burkhardt, A. Bartold, M. Schilling, Technology for YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> SNS- and SIS-Josephson junctions, IEEE Trans. Appl. Supercond. 9, 3125 (1999).

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Kristallstruktur und $\delta$ -Phasendiagramm von YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-<math>\delta</math></sub>	6
2.2	Denkbare Symmetrien des Ordnungsparameters in HTSL	8
2.3	<i>IU</i> -Kennlinie eines SIS-Kontaktes	11
2.4	Tunnelbarriere mit lokalisierten Zuständen	11
2.5	Beiträge resonanter Quasiteilchen-Tunnelprozesse	12
2.6	Ordnungsparameter an einer SN-Grenzfläche	13
2.7	Andreevreflexion in einem SNS-Kontakt	15
2.8	Ersatzschaltbild eines Josephsonkontaktes im RSJ-Modell	17
2.9	Abhängigkeit einer RSJ- $IU$ -Kennlinie von $\beta_c$ und $\gamma$	18
2.10	Josephsonkontakt im Magnetfeld	20
2.11	$I_c(\phi)$ -Abhängigkeit eines schmalen Josephsonkontaktes	22
2.12	$I_c(H)$ -Abhängigkeit eines langen Josephsonkontaktes	23
2.13	$\pi$ -junction zwischen zwei d <sub>x<sup>2</sup>-y<sup>2</sup></sub> -Wellen-Supraleitern	24
2.14	Typen von HTSL-Josephsonkontakten	27
2.15	$I_c R_n(J_c)$ -Skalierungsverhalten verschiedener HTSL-Josephsonkontakte	29
2.16	ISJ-Modell einer Korngrenze	30
0.1		97
პ.1 ე.ე	Herstellung der Substratstule	37
3.2	Typische PhotolackПanke	39 40
ა.ა ე_4	Lage der Substrate wahrend des Ar <sup>+</sup> -Ionenatzens	40
ა.4 ენ	Substrateful pack Dragon A	41
ა.ე ე <i>ც</i>	Substratstule liach Prozess A	41
3.0 9.7	Erosion an emer Substratistule nach Prozess A	41
ა. <i>(</i> ე ი	Substratstule liach Prozess D	40
ა.ბ 2-0	Typische 250 nm-Substratstule	40
3.9 2.10	Lift off Drogoga für die Denduergeldung	43
0.10 9.11	Larout sings Ching mit 28 Stufenkentekten	41
3.11 3.19	Entstehung einer Wachstumsspirale (schematisch)	40 51
3.12	AFM Aufnahme eines gesputterten Films	53
3.13	AFM Aufnahme einer Bikristallkorngronzo	55
3.14	AFM Aufnahme einer Dikristankorngrenze	55
3.10	Off axis lasorablation relim auf onor 250 nm Substratstufe	56
3.10	Hochdruckgosputtortor Film auf einer 250 nm Substratstufe	56
3.18	TEM_Aufnahme eines gesputterten Stufenkantenkontaktes	50 57
3.10	TEM-Aufnahmen laserablatierter Stufenkantenkontakte	50
3.19	Absolution $A = A = A = A = A = A = A = A = A = A $	09 60
<b>J</b> .20	Absolution $\dots \dots \dots$	00

4.1	Messapparatur	62
4.2	Chipcarrier mit kontaktierter Probe	63
4.3	Typische IU-Kennlinien von Stufenkantenkontakten	65
4.4	LT-Sp-Kennlinientypen	66
4.5	Verwandlung einer Typ-2- in eine Typ-1-Kennlinie, Excess-Strom	67
4.6	Einfluss von Strukturierung und Stufenhöhe auf LT-Sp-Kennlinien	69
4.7	Typische Kennlinien von HT-Sp-Stufenkantenkontakten	70
4.8	Typische Kennlinien von PLD-Stufenkantenkontakten	71
4.9	2. $I_c$ in der Kennlinie eines PLD-Stufenkantenkontaktes	72
4.10	Typische Kennlinien von LT-Sp-Bikristallkontakten	73
4.11	RSJ-Fit an $IU$ -Kennlinien	75
4.12	Potenzfit an <i>IU</i> -Kennlinien	76
4.13	Überblick: $J_c$ - und $R_n A$ -Werte bei 4.2 K	78
4.14	Bestwerte für die Parameterstreuung entlang einer Substratstufe	80
4.15	<i>IU</i> -Kennlinie zweier PLD-Stufenkantenkontakte in Serie	81
4.16	$I_c R_n$ -Skalierung bei 4.2 K	82
4.17	$I_c R_n$ -Skalierung bei 77 K	83
4.18	$I_c(T)$ -Abhängigkeit von HT-Sp- und PLD-Stufenkantenkontakten	83
4.19	Shapirostufen in der Kennlinie eines PLD-Stufenkantenkontakts	85
4.20	$I_c(B)$ -Abhängigkeit eines HT-Sp-Stufenkantenkontaktes bei 4.2 K	86
4.21	$I_c(B)$ -Abhängigkeit eines PLD-Stufenkantenkontaktes bei 4.2 K	87
4.22	$I_c(B)$ -Kurve eines PLD-Kontaktes bei 77 K $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	87
5.1	R(T)-Kurve einer Referenzmikrobrücke	90
5.2	I(U)- und $dI(U)/dU$ -Kennlinie eines O <sub>2</sub> -defizienten LT-Sp-Kontaktes	90
5.3	Vergleich einiger $dI(U)/dU$ -Kennlinien bei 4.2 K	91
5.4	Modell eines SNS-Punktkontaktes	93
5.5	I(U)- und $dI(U)/dU$ -Kennlinien gemäß erweitertem OTBK-Modell	94
5.6	Anpassung des erweiterten OTBK-Modells an zwei $dI(U)/dU$ -Kennlinien .	95
5.7	I(U)- und $dI(U)/dU$ -Kennlinie vor und nach einer O <sub>2</sub> -Plasma-Behandlung	97
5.8	$R_H(\delta)$ -Abhängigkeit von YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-<math>\delta</math></sub>	98
5.9	Spannungsperiodische Strukturen in der $dI(U)/dU$ -Kennlinie	99
5.10	Temperaturabhängigkeit der $dI(U)/dU$ -Peakabstände	100
5.11	Stromverteilung in der Umgebung eines Phasenschlupfzentrums	101
5.12	Temperaturabhängigkeit einer $d^2 I(U)/dU^2$ -Kennlinie	103

## Tabellenverzeichnis

2.1	Materialparameter von $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ und Niob	7
2.2	von HTSL-Josephsonkontakten	25
3.1	Materialparameter häufig verwendeter Substrate	34
3.2	Parameter der $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ -Depositionsverfahren	46
$4.1 \\ 4.2 \\ 4.3$	Häufigkeit und typische $R_0A$ -Werte der LT-Sp-Kennlinientypen bei 4.2 K . Charakteristische Parameter von Stufenkanten- und Bikristallkontakten Parameterstreuung von Stufenkanten- und Bikristallkontakten	68 77 79
A.1	Literaturwerte für charakteristische Parameter von verschiedenen HTSL-	
	Josephsonkontakttypen1	10
A.2	Literaturwerte für die Parameterstreuung von verschiedenen HTSL-Josephson-	
	kontakttypen	11

### Danksagung

### Abschließend möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt Priv.-Doz. Dr. Matthias Hein, der diese Arbeit sehr engagiert betreut und in unzähligen Diskussionen wertvolle Anregungen geliefert hat. Herrn Prof. Dr. Helmut Piel danke ich für die Unterstützung in jeglicher Hinsicht, ohne die diese technologisch fachbereichsübergreifende Dissertation auf einem aktuellen und interessanten Forschungsgebiet nicht möglich gewesen wäre. Herrn Prof. Engemann und Frau Prof. Scheer vom Fachbereich Elektrotechnik danke ich für die Nutzungsmöglichkeit der Infrastruktur für die Mikrostrukturierung.

Danken möchte ich insbesondere allen Mitgliedern der Wuppertaler Supraleitungsgruppe und den Mitarbeitern aus dem Fachbereich Elektrotechnik. Besonders erwähnen möchte ich Dr. Benedikt Aschermann, der mich in die Kunst der Mikrostrukturierung eingeführt hat und in vielen technologischen Fragen interessante Anregungen geliefert hat. Besonderer Dank gebührt ferner meinem (ehemaligen) Diplomanden Michael Lorenz für seine Beiträge zu dieser Arbeit, der Sputter-Crew Markus Getta, Martin Lenkens und Ralf Wagner, die unermüdlich Substratstufen mit YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filmen beschichtet haben und Dr. Bachtior Aminov, der mich in vielen Diskussionen in die Theorie von HTSL-Barrieren eingeführt hat. Für anregende Diskussionen und wichtige Beiträge danke ich außerdem Robert Fabisch, Stefan Hensen, Thomas Hödtke, Dr. Hans-Gerd Kürschner, Priv.-Doz. Dr. Beate Lehndorff, Priv.-Doz. Dr. Günter Müller, Dr. Markus Perpeet, Jehangir Pouryamout, Dr. Harald Walesch und Dr. Dorothea Wehler. Für die schnelle Hilfe bei Reinraumproblemen danke ich Carsten Brennecke und Hans Keller.

Eine ganze Reihe von Ergebnissen wurde erst durch die Kooperation mit Arbeitsgruppen anderer Forschungsinstitute ermöglicht. Besonders möchte ich Dr. Bernard Dam (Freie Universität Amsterdam) und Dr. Stefan Beuven (ISI, FZ Jülich) für die gute Zusammenarbeit bei der AFM- und STM-Analyse der YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$ </sub>-Filme bzw. der vergleichenden Josephsonkontaktpräparation danken. Ferner danke ich Dr. C.L. Jia (IFF, FZ Jülich) für die TEM-Untersuchung, Dr. J. Schubert und W. Zander für die Filmdeposition durch off-axis-Laserablation, Mona Nonn für der Herstellung verschiedener Chrommasken und Herrn Schröteler (alle ISI, FZ Jülich) für die Nutzungsmöglichkeit des Jülicher Reinraums.

Mein ganz besonderer Dank gilt meiner Frau Sabine und ihrer Mutter, die mich vor allem in der letzten (langen) Phase dieser Arbeit so unterstützt haben, dass sie trotz zweier lieber kleiner Kinder und neben einer weiteren Ausbildung fertiggestellt werden konnte.

Finanziell unterstützt wurde die Arbeit vom Bundesminister für Bildung und Forschung unter dem Kennzeichen 13N6418.