

KfK 3722
März 1984

Tunnelspektroskopie am supraleitenden Nb₃Sn mit Hilfe künstlicher Tunnelbarrieren

U. Schneider
Institut für Nukleare Festkörperphysik

Kernforschungszentrum Karlsruhe

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

Institut für Nukleare Festkörperphysik

KfK 3722

TUNNELSPEKTROSKOPIE AM SUPRALEITENDEN Nb_3Sn MIT
HILFE KÜNSTLICHER TUNNELBARRIEREN*

U. Schneider

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

*von der Fakultät für Physik der Universität Karlsruhe
genehmigte Dissertation

Als Manuskript vervielfältigt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
ISSN 0303-4003

ZUSAMMENFASSUNG

In dieser Arbeit werden Tunneluntersuchungen an Nb_3Sn , einem A15-Supraleiter mit einer Übergangstemperatur zur Supraleitung bis zu 18 K, beschrieben.

Nb_3Sn -Tunnelndioden mit Übergangstemperaturen zwischen 5 K und 18 K wurden durch Magnetron-Sputtern hergestellt. Die Tunnelndioden wurden mit Hilfe der Al-Overlaytechnik präpariert, bei der ein oxidiertes, dünner Al-Film als künstliche Tunnelbarriere dient. Durch Beimengen von Zr in den Al-Film gelang die Präparation von optimalen Nb_3Sn -Tunnelndioden hinsichtlich Proximityeffekten.

Die Messung der zweiten Ableitung der Strom-Spannungscharakteristik erlaubt die Lokalisierung einer niederenergetischen Struktur bei etwa 5.5 meV in der Tunnelzustandsdichte von stöchiometrischem Nb_3Sn ($T_c \approx 18$ K). Bei unterstöchiometrischem Nb_3Sn mit einem T_c um 5 K wird diese Struktur bei 6.7 meV gefunden.

Das Leitfähigkeitsminimum bei kleinen Energien, das in der Tunnelleitfähigkeit der normalleitenden Diode auftritt, wurde im wesentlichen als Beitrag inelastischer Phononenprozesse von Phononen der Barriere und der Nb_3Sn -Schicht identifiziert.

In den Tunnelzustandsdichten der optimal präparierten, stöchiometrischen Nb_3Sn -Dioden wurden Deformationen gefunden, die nicht durch Proximity-Effekte erklärt werden konnten. Diese Deformationen lassen sich auf den Einfluß einer stark strukturierten elektronischen Zustandsdichte an der Fermikante zurückführen.

Für stöchiometrische Nb_3Sn -Dioden können erst dann zuverlässige Werte für λ , μ^* , $\langle\omega\rangle$ und $\langle\omega^2\rangle$ angegeben werden, wenn ein Programm zur Inversion der Selbstenergiegleichung des stark koppelnden Supraleiters vorliegt, das die Energieabhängigkeit der elektronischen Bandstrukturzustandsdichte berücksichtigt.

TUNNELING SPECTROSCOPY ON SUPERCONDUCTING Nb_3Sn WITH ARTIFICIAL BARRIERS

ABSTRACT

Tunneling diodes on Nb_3Sn were prepared by magnetron sputtering. The superconducting transition temperatures of the Nb_3Sn films were in the range of 5 to 18 K.

The diodes were prepared using the Al-overlay technique with a thin, oxidized Al film serving as artificial tunneling barrier. With the addition of Zr to the Al film the fabrication of Nb_3Sn diodes without a proximity effect was achieved.

An energetically low-lying structure in the tunneling density of states has been localized by detailed studies of the second derivative of the current-voltage characteristics of the diodes. This structure was found near 5.5 meV for stoichiometric Nb_3Sn ($T_c \cong 18$ K) and at 6.7 meV for understoichiometric Nb_3Sn ($T_c \cong 5$ K).

The minimum in the conductance at zero energy found in the normal state could be identified to be mainly due to inelastic phonon processes of barrier phonons and Nb_3Sn phonons.

Deformations were found in the tunneling density of states of stoichiometric Nb_3Sn diodes which lead to contradiction when explained by proximity effects.

We refer these deformations to the influence of a strongly structured electronic density of states near the Fermi energy.

Our conclusions are that reliable quantitative values for stoichiometric Nb_3Sn diodes (λ , μ^* , $\langle\omega\rangle$, $\langle\omega^2\rangle$) as extracted from the tunneling experiment will be available only if the energy dependence of the electronic density of states is taken into account in the course of an inversion of the self energy equations of strong coupled superconductors.

INHALTSANGABE

		Seite
Kapitel 1	EINLEITUNG	1
Kapitel 2	THEORETISCHE GRUNDLAGEN	5
	2.1 Schwach koppelnde Supraleiter	5
	2.2 Stark koppelnde Supraleiter	6
	2.3 Tunnelspektroskopie	9
	2.4 Tunnelspektroskopie an nichtidealen Tunneln Tunneln	13
Kapitel 3	EXPERIMENTELLES	18
	3.1 Diodenpräparation	18
	3.2 Bestimmung der Tunnelzustandsdichte	25
	3.2.1 Meßelektronik	25
	3.2.2 Datenweiterverarbeitung	28
	3.3 Analysenverfahren	35
Kapitel 4	ERGEBNISSE UND DISKUSSION	37
	4.1 Materialeigenschaften der Dioden	37
	4.1.1 Nb ₃ Sn und Barriere	37
	4.1.2 Oxidationsverhalten der Barriere	43
	4.1.3 Gegenelektroden	44
	4.2 Tunnelrohdaten und reduzierte Zustandsdichten	45
	4.2.1 Messungen im Bereich der Energieslücke	45
	4.2.2 Leitfähigkeiten im normalleitenden Zustand der Diode	50
	4.2.3 Leitfähigkeiten im supraleitenden Zustand der Diode	59
	4.2.4 Reduzierte Zustandsdichten	64
	4.3 MMR-Inversionsergebnisse	68
	4.4 Einflüsse der elektronischen Bandstruktur- zustandsdichte auf die Tunnelzustands- dichte	78
	4.5 Vergleich und Wertung der Auswertemodelle	83
	LITERATURVERZEICHNIS	87

EINLEITUNG

Die höchsten Werte für die Übergangstemperatur zur Supraleitung (T_c), das kritische Magnetfeld H_{C2} und die kritische Stromtragfähigkeit (j_c) findet man innerhalb der Gruppe der Supraleiter mit A15-Struktur. Die mikroskopischen Supraleitungsgrößen sind im Rahmen der Theorie der Supraleitung durch die Eliashberggleichungen verknüpft, wobei die Eliashbergfunktion $\alpha^2 F(\omega)$ den Kern dieser Gleichungen darstellt. $\alpha^2(\omega)$ ist eine effektive Elektron-Phonon-Kopplungsfunktion und $F(\omega)$ ist die Phononenfrequenzverteilung des Supraleiters. Zum Verständnis der kritischen Größen wie T_c beispielsweise, ist es von großem Interesse, mikroskopische Größen der Supraleitung und insbesondere die Elektron-Phonon-Kopplungsfunktion $\alpha^2(\omega)$ eines solchen Supraleiters mit hoher Übergangstemperatur zu kennen.

Die energieabhängige Gapfunktion, $\Delta(\omega)$, ist experimentell durch die Tunnelspektroskopie direkt zugänglich. Der Vergleich der schließlich aus dem Tunnelexperiment extrahierten Eliashbergfunktion $\alpha^2 F(\omega)$ mit der mittels Neutronenstreuung bestimmten Phononenfrequenzverteilung $F(\omega)$ liefert eine Quotientenfunktion $\tilde{\alpha}^2(\omega)$, die einen Mittelwert über alle Beiträge der bei der Energie ω vorkommenden Phononen darstellt.

Für Tunnelmessungen besonders interessant ist der A15-Supraleiter Nb_3Sn , da für dieses Material gesicherte Neutronendaten (Renker et al. 1976) und auch theoretische Ergebnisse für $\tilde{\alpha}^2(\omega)$ vorliegen, die mit Hilfe von Tight-Binding-Rechnungen für die Phonondispersion und die Zustandsdichte gewonnen wurden (Weber 1982).

Ein weiterer Anreiz für Tunneluntersuchungen an Nb_3Sn waren Rechnungen von Kieselmann und Rietschel (1982) und später Rechnungen derselben Art von Carbotte (1982) und Pickett (1982), die die Einflüsse einer im Bereich von Phononenenergien um die Fermikante stark strukturierten elektronischen Bandstruktur zu-

standsdichte auf die Tunnelzustandsdichte von Nb_3Sn untersuchten. Diese Rechnungen lassen in der Tunnelzustandsdichte Deformationen erwarten.

Von der experimentellen Seite bietet Nb_3Sn den Vorteil, daß das Material ohne Schwierigkeiten stöchiometrisch herzustellen ist.

An Nb_3Sn wurden bereits Tunnelmessungen durchgeführt. Den ersten Messungen von Shen an diffundierten Proben (1972) folgten weitere Tunnelmessungen von Moore an Nb_3Sn -Aufdampfschichten (1978) und von Rudman (1982), der Nb_3Sn -Tunneldioden mit amorphen Si-Tunnelbarrieren realisierte.

Alle diese Tunneldioden zeigten jedoch Eigenschaften, wie z.B. ein "Knie" in der I-V-Charakteristik einer Supraleiter-Supraleiter-Diode und eine Schwächung der reduzierten Zustandsdichte bei kleinen Energien, die sich nicht durch die Eliashberggleichungen erklären lassen. Diese Eigenschaften konnten später im Rahmen der Theorie von Arnold und Wolf (1978) durch den sogenannten Proximity-Effekt erklärt werden. Proximity-Eigenschaften sind typisch für Tunneldioden auf Übergangsmetallen und deren Verbindungen, bei denen das natürliche Oxid als Tunnelbarriere dient (z.B. Noer 1975).

Ein Proximity-Effekt bei einer Normalleiter-Supraleiter-Tunneldiode wird durch eine Zwischenschicht zwischen Tunnelbarriere und Supraleiter hervorgerufen, wobei diese Zwischenschicht eine kleinere Energielücke als der Supraleiter haben soll. Bei Nb oder Nb_3Sn kann diese Zwischenschicht beispielsweise durch Suboxide des Tunneloxids gebildet werden.

Die Proximity-Theorie von Arnold und Wolf ermöglicht die Auswertung der Tunnelspektren auch von solchen Dioden, die mit Proximity-Effekten behaftet sind. In der Theorie wird die

Zwischenschicht als normalleitend angenommen, und ihre Dicke kann aus dem Tunnelexperiment abgeschätzt werden. Typisch sind Werte zwischen 5 \AA und 20 \AA .

Die Zuverlässigkeit der Proximity-Theorie wurde durch Tunnelmessungen an Nb bestätigt (Geerk et al. 1982, Arnold 1982). Dabei gelang Khim et al. (1981) an ausgegasteten Nb-Folien und Geerk et al. (1982) an gesputterten Filmen mittels einer künstlichen Aluminiumoxid-Tunnelbarriere die Präparation von Nb-Tunnelnioden ohne meßbaren Proximity-Effekt. In diesen Studien zeigte es sich, daß sowohl die Dioden mit Proximity-Effekt als auch die Dioden ohne Proximity-Effekt dieselbe Funktion $\alpha^2 F(\omega)$ liefern.

Die künstliche Tunnelbarriere wurde von Geerk et al. mittels der sogenannten Overlaytechnik realisiert: auf die frisch hergestellte Nb-Oberfläche wird in situ ein dünner metallischer Aluminium-Film von z.B. 20 \AA Dicke aufgesputtert. Es zeigt sich, daß der dünne Al-Film die Nb-Oberfläche benetzt und nach einer kurzen Oxidationszeit (z.B. 10 Minuten bei Raumtemperatur) eine durchgehende und nahezu ideale Tunnelbarriere bildet. Diese Benetzung läßt sich mit Hilfe der Oberflächenspannungen von Al und Nb erklären.

Bisher wurde die Overlaytechnik auf Nb_3Sn nur mit a-Si realisiert (Rudman 1982). Die künstliche Siliziumoxidbarriere bewirkte jedoch keine Verbesserung bezüglich des Proximity-Effektes verglichen mit Ergebnissen für natürliche Nb-Sn-Tunneloxide. Dies kann daran liegen, daß die Siliziumoxidbarriere zu niedrig ist oder daß der Si-Film die Nb_3Sn -Oberfläche nur mangelhaft benetzt.

Dagegen zeigen die Messungen von Geerk et al. an Nb-Dioden und an Nb_3Ge -Dioden (Geerk 1982), daß Al_2O_3 gute Eigenschaften als Tunneloxid aufweist, wie z.B. eine hohe Barriere und eine gute Benetzung. Daher wurde in dieser Arbeit versucht, die Overlaytechnik auf Nb_3Sn mit Aluminium zu realisieren.

Im ersten Teil dieser Arbeit werden die theoretischen Grundlagen des Tunnelexperiments und der Auswertung kurz umrissen. Im darauffolgenden experimentellen Teil werden die Herstellung der Dioden und die Meßapparatur sowie die Verarbeitung der Tunnelrohdaten beschrieben. An diesen experimentellen Teil schließen sich die Darstellung und die Diskussion der Ergebnisse an.

2. THEORETISCHE GRUNDLAGEN

In den folgenden Abschnitten werden die theoretischen Voraussetzungen, die für das Verständnis der Tunnelmethode und der Aussagen, die diese Methode liefert, wichtig sind, kurz umrissen. Für einen tieferen Einblick in die theoretischen Grundlagen verweise ich auf die im Text angegebenen Referenzen und die darin zitierten Quellen.

2.1 Schwach koppelnde Supraleiter

Die supraleitenden Eigenschaften von Supraleitern mit geringer Elektron-Phonon-Kopplung und hoher Debyetemperatur werden befriedigend durch die Theorie von Bardeen, Cooper und Schrieffer (BCS 1957, Cooper 1956) beschrieben. Die Übergangstemperatur zur Supraleitung, T_C , eines solchen Supraleiters kann mit der folgenden Formel berechnet werden:

$$k_B \cdot T_C = 1.14 \hbar \omega_D \exp\left\{-\frac{1}{N(0) \cdot V}\right\} \quad (2.1.1)$$

ω_D ist die Debyefrequenz, $N(0) \cdot V$ ist das Produkt aus der Zustandsdichte bei $E = E_F = 0$ und dem BCS-Potential V , k_B ist die Boltzmannkonstante.

Das Dispersionsgesetz der Quasiteilchen des Supraleiters lautet für $-\hbar\omega_0 < \epsilon_K < \hbar\omega_0$ (ω_0 ist eine typische Phononenfrequenz)

$$E_K = (\epsilon_K^2 + \Delta_0^2)^{1/2},$$

dies bedeutet, daß im Anregungsspektrum des Supraleiters eine Energielücke Δ_0 auftritt. Für die Zustandsdichte des Supraleiters folgt daraus

$$N(E) = N(0) \frac{|E|}{\sqrt{E^2 - \Delta_0^2}(T)} \quad |E| > \Delta_0$$
$$N(E) = 0 \quad |E| < \Delta_0 \quad (2.1.2)$$

$\Delta(T)$ ist das temperaturabhängige Energiegap des Supraleiters:

$$\begin{aligned}\Delta(T=0) &= \Delta_0 \\ \Delta(T=T_C) &= 0\end{aligned}$$

Bei $T=0$ K hat die Zustandsdichte eine Singularität für $E = \Delta_0$, für große Energien $E \gg \Delta_0$ geht sie gegen die Zustandsdichte des Normalleiters, $N(0)$.

Für den schwach koppelnden Supraleiter gilt die wichtige Beziehung

$$\frac{2\Delta_0}{k_B T_C} = 3.52 \quad , \quad (2.1.3)$$

die experimentell leicht nachgewiesen werden kann. Für Supraleiter mit starker Elektron-Phononkopplung nimmt dieses Verhältnis wesentlich größere Werte an. Für Blei mit einem Gap von 1.37 meV und einer Sprungtemperatur von 7.2 K wird $\frac{2\Delta_0}{k_B T_C} = 4.4$. Für Niob mit $\Delta_0 = 1.54$ meV und $T_C = 9.2$ K ergibt sich ein Wert von 3.9, für Nb_3Sn mit $\Delta_0 = 3.3$ meV und $T_C = 18$ K wird das Verhältnis 4.3.

2.2 Stark koppelnde Supraleiter

Die Theorie des stark koppelnden Supraleiters wird ausführlich von Scalapino (1969) beschrieben. Bei einem schwach koppelnden Supraleiter bilden je zwei Elektronen nahe der Fermifläche durch Austausch eines virtuellen Phonons einen stabilen Paarzustand. In der Theorie des stark koppelnden Supraleiters zerfallen diese Zustände unter Emission eines Phonons. Dies macht die Lösung eines Vielteilchenproblems nötig.

Migdal (1958) zeigte, daß eine Störungsrechnung auch im Falle starker Kopplung zur Konvergenz führt, wenn als Entwicklungsparameter $\frac{c}{v_F}$ eingesetzt wird. $\frac{c}{v_F}$ ist das Verhältnis der Schallgeschwindigkeit c zur Fermigeschwindigkeit v_F . Es gilt $\frac{c}{v_F} \approx \omega_D/E_F$.

Für die meisten Metalle liegt dieses Verhältnis bei 10^{-2} oder darunter. Ausdrücke höherer Ordnung in der Störungsrechnung liefern lediglich noch Beiträge, die mindestens um den Faktor c/v_F kleiner sind als das Elektron-Phonon-Matrixelement. Mittels einer Störungsrechnung, die sich dieses Entwicklungsparameters bedient, gelang es Eliashberg (1960, 1961), die Greensfunktion des stark koppelnden Supraleiters zu berechnen. Mit Hilfe dieser Greensfunktion stellte er für $T=0$ K die Gapgleichungen des stark koppelnden, isotropen Supraleiters im schmutzigen Grenzfall auf.

Diese Gleichungen lauten:

$$\Delta(\omega) = \frac{1}{Z(\omega)} \int_{\Delta_0}^{\omega_C} d\omega' \operatorname{Re} \left\{ \frac{\Delta(\omega')}{(\omega'^2 - \Delta^2(\omega'))^{1/2}} \right\} [K_+(\omega, \omega') - \mu^*] \quad (2.2.1)$$

$$\omega \cdot [1 - Z(\omega)] = \int_{\Delta_0}^{\omega_C} d\omega' \operatorname{Re} \left\{ \frac{\Delta(\omega')}{(\omega'^2 - \Delta^2(\omega'))^{1/2}} \right\} [K_-(\omega, \omega')]$$

$$K_{\pm}(\omega, \omega') = \int_0^{\infty} d\nu \alpha^2 F(\nu) \left[\frac{1}{\omega' + \omega + \nu + i\delta} \pm \frac{1}{\omega' - \omega + \nu - i\delta} \right]$$

Es ist $\Delta(\omega) = \frac{\phi(\omega)}{Z(\omega)}$ die energieabhängige Gapfunktion, und es gilt $\Delta(\Delta_0) = \Delta_0$. $Z(\omega)$ ist die Renormierungsfunktion und $\alpha^2 F(\omega)$ die Eliashbergfunktion, wobei $\alpha^2(\omega)$ die Elektron-Phonon-Kopplungsfunktion und $F(\omega)$ die Phononenspektralfunktion ist. μ^* ist das Coulomb-Pseudopotential.

Diese Gapgleichungen gelten nur unter bestimmten Voraussetzungen:

1. Die Gültigkeit des Migdaltheorems wird vorausgesetzt.
2. Die Phononenbeiträge sind oberhalb von ω_D vernachlässigbar, so daß bei der Integration über die Frequenz ein beliebiges $\omega_C > \omega_D$ als Integrationsgrenze angenommen werden kann. Üblich ist z.B. $\omega_C = 3\omega_D$ bis $\omega_C = 10 \omega_D$.
3. Alle impulsabhängigen Größen können durch ihren über die Fermifläche gemittelten Wert ersetzt werden.
4. Die elektronische Zustandsdichte ändert sich im Bereich von $|E| \approx \omega_D$ um die Fermienergie nur geringfügig.

5. Das abgeschirmte Coulombwechselwirkungspotential μ kann durch das Pseudopotential $\mu^*(\omega)$ ersetzt werden. ω_c ist ein geeignet gewählter Abschneidewert.

Für A15-Supraleiter sind einige der genannten Voraussetzungen nicht erfüllt. Rechnungen zur elektronischen Bandstruktur von Nb_3Sn von Klein et al. (1978), von Weber und Mattheiss (1982) und von Weber (1982) lassen nahe der Fermikante einen etwa 20 meV breiten Peak in der elektronischen Zustandsdichte erwarten. Außerdem ist aufgrund der geringen Fermigeschwindigkeit in A15-Supraleitern die Gültigkeit des Migdal-Theorems fraglich.

Die gebräuchlichsten Momente der Eliashbergfunktion sind

$$\lambda = 2 \cdot \int d\omega \alpha^2_F(\omega) / \omega \quad \text{und}$$

$$\langle \omega^n \rangle = \frac{2}{\lambda} \cdot \int d\omega \omega^{n-1} \alpha^2_F(\omega) \quad .$$

Ziel des Tunnelexperiments ist die Bestimmung der reduzierten Tunnelzustandsdichte N_{red} , mit deren Hilfe die Eliashbergfunktion bestimmt werden kann. Es gilt:

$$N_{\text{red}}(\omega) = \frac{N_{\text{T}}(\omega)}{N_{\text{BCS}}(\omega)} - 1$$

$N_{\text{T}}(\omega)$ ist die Tunnelzustandsdichte; es gilt

$$N_{\text{T}}(\omega) = \text{Re} \left(\frac{|\omega|}{\sqrt{\omega^2 - \Delta^2(\omega)}} \right) \quad \text{und}$$

$$N_{\text{BCS}}(\omega) = \frac{|\omega|}{\sqrt{\omega^2 - \Delta_0^2}} \quad .$$

Die Berechnung von $\Delta(\omega)$ aus $\alpha^2_F(\omega)$ mit Hilfe der Eliashberggleichungen ist mathematisch verhältnismäßig einfach, verglichen mit dem umgekehrten Weg, $\alpha^2_F(\omega)$ aus $\Delta(\omega)$ zu bestimmen, der mathematisch schwierig ist und sich nur mit Hilfe umfangreicher Computerprogramme durchführen läßt. Ein Lösungsweg wurde von McMillan und Rowell (1969) aufgezeigt und das hierzu entwickelte Computerprogramm (MMR-Programm) von Hubin (1970) beschrieben.

Die Eliashbergfunktion $\alpha^2F(\omega)$ wird im MMR-Programm durch einen iterativen Rechenprozeß bestimmt. Es wird eine Funktion $\alpha^2F(\omega)$ gesucht, deren zugehörige Gapfunktion $\Delta(\omega)$ eingesetzt in die Tunnelzustandsdichte $N_T(\omega)$ einen Verlauf der reduzierten Zustandsdichte erzeugt, der mit der gemessenen reduzierten Zustandsdichte möglichst gut übereinstimmt.

Für die hier gemessenen Tunneldaten wurde eine modifizierte Version des MMR-Programms verwendet, die eine Proximity-Korrektur nach Wolf und Arnold (1978) zuläßt (siehe z.B. Kimhi 1980).

2.3 Tunnelspektroskopie

Bardeen (1962) zeigte, daß zur Berechnung des Tunnelstroms zwischen zwei BCS-Supraleitern (S-I-S-Diode) die "goldene Regel" angewendet werden kann.

Für den Tunnelstrom zwischen den Metallen 1 und 2 ergibt sich

$$I_{SS} = C_{NN} \int_{-\infty}^{\infty} N_S^{(1)}(E-eV) \cdot N_S^{(2)}(E) [f(E-eV) - f(E)] dE \quad (2.3.1)$$

C_{NN} , die Leitfähigkeit der Tunneldiode im normaleitenden Zustand, ist ein Produkt aus Tunnelmatrixelement und den Bandstrukturzustandsdichten der beiden Elektroden. C_{NN} wird als konstant angenommen. $N_S(E)$ ist die Tunnelzustandsdichte und $f(E)$ die Fermiverteilung des jeweiligen Metalles. V ist die Spannung, die an die Diode angelegt wird und E die Energie, die ab der Fermienergie gezählt wird.

Ist eine der beiden Elektroden ein Normalleiter (S-I-N-Diode), so ergibt sich für den Tunnelstrom

$$I_{SN} = C_{NN} \cdot \int_{-\infty}^{\infty} N_S(E) [f(E-eV) - f(E)] dE \quad (2.3.2)$$

Für $T=0$ K kann man die Fermifunktion durch eine Stufenfunktion ersetzen. Damit ergibt sich

$$I_{SN} = C_{NN} \cdot \int_0^{eV} N_S(E) dE$$

Bildet man nun die Ableitung des Tunnelstromes nach der Spannung ($E = e \cdot V$), so erhält man den Ausdruck

$$\left. \frac{dI}{dV} \right|_S = C_{NN} \cdot N_S(E) \quad (2.3.3)$$

Die erste Ableitung der Strom-Spannungscharakteristik ist also proportional zur Tunnelzustandsdichte. Im Tunnelexperiment ist $\frac{dI}{dV}$ die dynamische Leitfähigkeit der Tunneldiode. Ist auch die zweite Elektrode der Diode normalleitend, so gilt

$$I_{NN} = C_{NN} \cdot V$$

und

$$\left. \frac{dI}{dV} \right|_N = C_{NN} \quad (2.3.4)$$

Leider kann Gl. (2.3.4) nicht dazu ausgenutzt werden, die Bandstrukturzustandsdichte $N_N(E)$ zu bestimmen. Nach Harrison (1961) ist in C_{NN} neben der Bandstrukturzustandsdichte auch das Tunnelmatrixelement enthalten, welches den Kehrwert der Zustandsdichte in Richtung senkrecht zur Tunnelbarriere enthält. Dadurch tritt ein Kompensationseffekt ein, der in WKB-Näherung und für parabolische Bänder vollständig ist. Inwieweit $\left. \frac{dI}{dV} \right|_N$ Bandstruktureffekte sichtbar machen kann, sofern der Verlauf der Elektronendispersion vom parabolischen Verlauf stark abweicht, kann nur durch detaillierte Rechnungen des Tunnelstromes unter Berücksichtigung der speziellen Bandstruktur, z.B. von Nb_3Sn , geklärt werden

Aus den Gleichungen 2.3.3 und 2.3.4 folgt schließlich

$$\frac{(dI/dV)_S}{(dI/dV)_N} \equiv N_T(E)$$

$N_T(E)$ ist die normierte Tunnelleitfähigkeit der Diode. Auch wenn C_{NN} nicht konstant ist, gilt diese Art von Normierung in guter Näherung, sofern die Änderungen von $C_{NN} = \left(\frac{dI}{dV}\right)_N$ klein sind (Rowell und McMillan, 1969).

Die Form der dynamischen Leitfähigkeit der Tunneldiode im normalleitenden Zustand, $\frac{dI}{dV}\Big|_N$, gibt über einen großen Spannungsbereich die Eigenschaften der Tunnelbarriere wieder. Für das einfache Modell einer Rechteck-Barriere (Simmons 1963) der Höhe ϕ und der Breite S erwartet man für Spannungen, die klein gegen die Barrierenhöhe sind, einen parabelförmigen Verlauf der Leitfähigkeit. Bestehen die beiden Elektroden der Diode aus unterschiedlichen Materialien, so wird aus der Rechteck-Barriere ein Trapez, da die unterschiedlichen Austrittsarbeiten der Elektroden die Barriere bereits im spannungslosen Zustand deformieren (Rowell 1969), und der Scheitel der Tunnelparabel wird auf der Spannungsachse nach V_0 verschoben.

Aus dem Verlauf der "Tunnelparabel" lassen sich in diesem sehr einfachen Modell sowohl die Höhe als auch Breite der Barriere abschätzen. Die Durchlässigkeit der Barriere wurde dabei in WKB-Näherung bestimmt. Für die Tunnelleitfähigkeit ergibt sich für $0 \leq eV \ll \phi$

$$G(V) = \alpha (1 + 3 \gamma (V - V_0)^2)$$

mit $\gamma \approx \frac{0.0115}{\phi} S^2$

und $\alpha = 3.16 \cdot 10^{10} \frac{\phi^{1/2}}{S} \exp\{-1.025 \cdot S \cdot \phi^{1/2}\}$

S ist die Breite der Barriere, ϕ die mittlere Höhe. Die Krümmung der Tunnelparabel ist dabei umgekehrt proportional zu der Höhe der Barriere: die Tunnelparabel ist umso flacher, je höher die

Barriere ist. Für eine reine Al_2O_3 -Barriere mit Pb-Gegenelektrode ergibt sich eine Höhe von 2.4 eV und eine Breite im Bereich von 10 \AA (Moodera et al. 1982); für eine oxidierte a-Si-Barriere sind die Daten $\phi = 1.2 \text{ eV}$ und $d = 16 \text{ \AA}$ (Rudman 1982).

Für stark koppelnde Supraleiter ist der Ausdruck für den Tunnelstrom formal identisch mit dem für BCS-Supraleiter (Bardeen 1962). Die Tunnelzustandsdichte $N_S(E)$ ist jedoch durch eine effektive Tunnelzustandsdichte zu ersetzen (Schrieffer et al. 1963):

$$I_{12} = \text{const.} \int_{-\infty}^{\infty} dE N_1(E) N_2(E-eV) [f(E-eV) - f(E)] \quad (2.3.6)$$

Für die effektive Tunnelzustandsdichte gilt:

$$N_T(\omega) = \text{Re} \left\{ \frac{|\omega|}{(\omega^2 - \Delta^2(\omega))^{1/2}} \right\} \quad (2.3.7)$$

Für $\Delta(\omega) = \Delta_0$ erhält man das BCS-Resultat. Mit $\Delta(\omega) = \Delta_1(\omega) + i\Delta_2(\omega)$ gilt für $\omega \gg \text{Re} \{ \Delta(\omega) \}$

$$N_T(\omega) = 1 + 1/2 \left(\frac{\Delta_1^2(\omega)}{\omega^2} - \frac{\Delta_2^2(\omega)}{\omega^2} \right) \quad (2.3.8)$$

Für einen BCS-Supraleiter vereinfacht sich dieser Ausdruck zu

$$N_T(\omega) = 1 + 1/2 \frac{\Delta_0^2}{\omega^2} \quad (2.3.9)$$

Die Energieabhängigkeit der Gapfunktion $\Delta(\omega)$ führt im Bereich der Phononenenergien ($\approx \omega_D$) des Supraleiters zu kleinen Abweichungen vom BCS-Verhalten in der Leitfähigkeit $\left. \frac{dI}{dV} \right|_S$ (McMillan und Rowell 1969). Die Stärke der Abweichungen ist proportional zu $\left(\frac{\Delta_0}{\omega_D} \right)^2$. Für Nb_3Sn mit $\Delta_0 = 3 \text{ meV}$ und $\omega_D \approx 20 \text{ meV}$ erwartet man Abweichungen in der Größenordnung von $\sim 2\%$, für Nb von 1-2% und für Al von 0,008% beispielsweise.

Die Abweichungsfunktion vom BCS-Verlauf der Zustandsdichte wird in der Literatur als reduzierte Zustandsdichte bezeichnet und ist folgendermaßen definiert:

$$N_{\text{red}}(\omega) = \frac{N_{\text{T}}(\omega)}{N_{\text{BCS}}(\omega)} - 1 \quad (2.3.10)$$

Peaks in $\alpha^2F(\omega)$ zeigen sich in N_{red} in Form von resonanzartigen Strukturen bei denselben Energien (abzüglich des Energiegaps Δ_0). Die gemessene reduzierte Zustandsdichte stellt in Form äquidistanter, eng benachbarter Meßwerte die Eingangsdaten für das Inversionsprogramm von McMillan und Rowell dar.

2.4 Tunnelspektroskopie an nichtidealen Tunneln

Arnold und Wolf (1978, 1980, 1982) entwickelten eine Theorie, mit der Tunneln beschrieben werden können, die einen Proximity-Effekt aufweisen. Sie modifizierten das MMR-Programm zur Inversion der Eliashberggleichungen und konnten erstmals Tunneln auch von solchen Materialien verwerten, bei denen es schwierig oder unmöglich ist, ideale Tunneln ohne Proximity-Effekt herzustellen, wie dies z.B. bei Nb-Tunneln oder bei Verbindungen von Nb wie z.B. Nb₃Ge, Nb₃Al und Nb₃Sn der Fall ist.

In Abb. 2.4.1 ist das vereinfachte Modell einer Proximity-Tunneln skizziert, wie es in der Theorie von Wolf und Arnold beschrieben wird.

Zwischen der Barriere I und dem Supraleiter S liegt eine dünne Schicht eines Normalleiters N. Bei Nb kann dies beispielsweise eine Nb-Schicht ohne T_c sein, die bei der Oxidation der Oberfläche zum Herstellen der Tunnelbarriere mit Sauerstoff verunreinigt wurde.

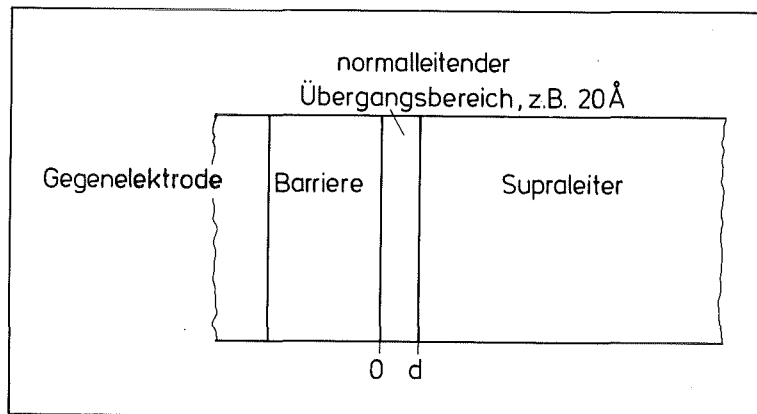


Abb. 2.4.1: Vereinfachtes Modell einer Proximity-Diode

Durch das Paarpotential Δ_S im Supraleiter wird ein Paarpotential Δ_N in den Normalleiter induziert. Im einfachsten Fall wird $\Delta_N = 0$ angenommen. Ist die Dicke von N genügend klein ($d < 20$ nm), so ist die Rückwirkung von Δ_N auf Δ_S vernachlässigbar. Der Normalleiter N soll in perfektem metallischen Kontakt mit dem Supraleiter S sein, und auch in N selbst sollen keine Streuvorgänge stattfinden.

Die Tunnelzustandsdichte der Proximity-Diode ändert sich im Vergleich zur BCS-Zustandsdichte drastisch (Abb. 2.4.2). De Gennes und Saint-James (1963) zeigten, daß zumindest ein gebundener Zustand der Quasiteilchen in dem durch $\Delta_S - \Delta_N$ gebildeten Potentialtopf existiert; die Zustandsdichte zeigt hier einen Peak. Ist N sehr dünn, so ist die Energie des gebundenen Zustands praktisch nicht von Δ_S zu unterscheiden.

Der Potentialwall $\Delta_S - \Delta_N$ führt zu Reflexionen, die schon früher von Andreev (1964) beschrieben wurden: ein Quasielektron tunnelt durch I und N, wird an der Grenzschicht NS durch das Paarpotential $\Delta_S - \Delta_N$ zu einem Cooperpaar in S und hinterläßt ein

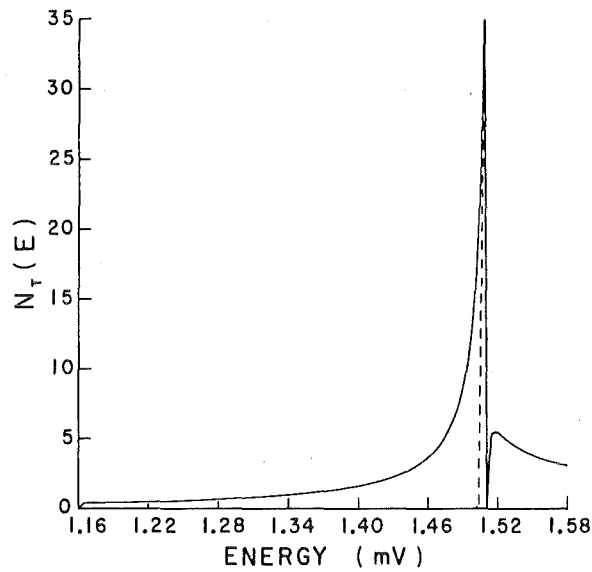


Abb. 2.4.2: Zustandsdichte einer Proximity-Diode (aus Wolf und Arnold 1982).

Quasiloche in N. Diese Reflexionen führen zu oszillatorischen Termen in der Zustandsdichte, wobei es zwei Interferenzprozesse gibt: die Rowell-Oszillationen im Normalleiter N (Rowell und McMillan 1966) und die Tomash-Oszillationen im Supraleiter (Tomash 1965, 1966).

Diese oszillatorischen Terme tragen besonders bei hohen Energien $E \gg \Delta_S$ (bei Phononenenergien) bei und spielen deshalb für die Inversion der Eliashberggleichungen eine große Rolle.

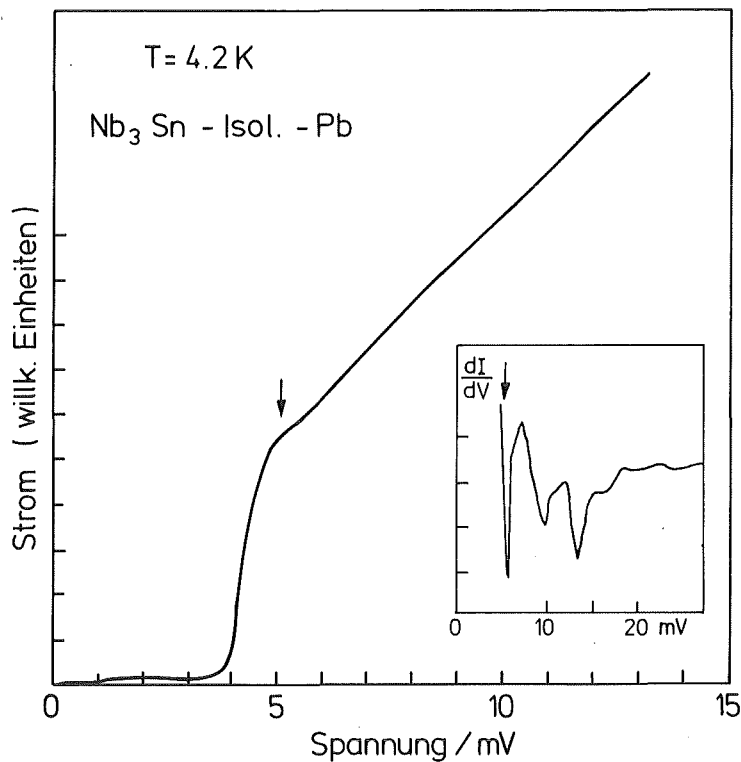
Zwischen dem gebundenen Zustand bei Δ_S und Δ_S selbst liegen keine Zustände, falls N genügend dünn ist. Bei Δ_S liegt keine BCS-Singularität vor, da die Tunnelzustandsdichte nun die lokale Zustandsdichte an der Grenzschicht zum Normalleiter N ist. Unterhalb der Energie des gebundenen Zustandes fällt die Zustandsdichte exponentiell ab. Obwohl in N ein Paarpotential Δ_N vorhanden ist, gibt es auch bei $E = \Delta_N$ keine BCS-Singularität. Dies liegt an der Quantisierung der Quasiteilchenenergien: der gebundene Zustand bei Δ_S ist der einzige bei genügend kleiner Dicke von N.

Für die Tunnelzustandsdichte ergibt sich, falls $E \gg \Delta_S$

$$N^{\text{prox}}(E) = 1 + 1/2 \operatorname{Re}\left\{\left(\frac{\Delta(E)}{E}\right)^2\right\} e^{-2d/\ell} \cdot \cos(2R \cdot E) \quad (2.4.1)$$

Es gilt $R = \frac{2d}{\hbar v_F^*}$. Dieser Faktor wird im Text rpx genannt. d ist die Dicke der normalleitenden Schicht und ℓ die mittlere effektive Eindringtiefe in N. v_F^* ist die renormierte Fermigeschwindigkeit in N. Für $d \rightarrow 0$ geht die Gleichung 2.4.1 in Gleichung 2.3.8 über, die für ideale Tunnelknoten gilt. Im MMR-Programm werden die Parameter d/ℓ und rpx als unabhängige Fitparameter eingegeben und solange variiert, bis die bestmögliche Übereinstimmung der generierten mit den gemessenen Daten erreicht wird.

Abb. 2.4.3: I-V-Charakteristik einer Supraleiter-Supraleiter-Diode mit "Proximity-Knie" (Pfeil).



Für Energien im Bereich der Energielücke ist die Tunnelzustandsdichte

$$N^{\text{prox}}(E) = \frac{E}{\arctan^2 [(\Delta_S^2 - E^2)^{1/2} / E]} \quad E < \Delta_S$$

$$N^{\text{prox}}(E) = \frac{E(E^2 - \Delta_S^2)^{1/2}}{E^2 - \Delta_S^2 \cos^2(R \cdot E)} \quad E \geq \Delta_S$$

Die Auswirkungen der Form der Zustandsdichte auf die I-V-Charakteristik und die Leitfähigkeit sind in Abb. 2.4.3 für eine Nb₃Sn-Al₂O₃-Pb-Tunneldiode gezeigt.

Das "Knie" in der I-V-Charakteristik erscheint in $\frac{dI}{dV}$ als ein sehr scharf ausgeprägtes Minimum. Die resonanzartigen Strukturen bei etwa 8 meV und 12 meV sind die phononeninduzierten Strukturen der TA- und LA-Phononen der supraleitenden Blei-Gegenelektrode.

3. EXPERIMENTELLES

3.1 Die Diodenpräparation

Die Nb₃Sn- und die Overlayschicht, die später nach Oxidation die Barriere bilden soll, wurden in situ in einem Turbomolekularpumpstand durch Magnetron-Sputtern hergestellt. Kernstücke der Anlage sind der Magnetronkopf und der Targetteller, die in Abb. 3.1.1 schematisch dargestellt sind.

Der Magnet besteht aus einem ringförmigen Permanentmagneten, wie er beispielsweise in Lautsprechern verwendet wird, und einem Kern aus Weicheisen (Armko). Das Magnetfeld des Ringmagneten erhöht wesentlich die Elektronendichte im Bereich zwischen dem Nordpol (Weicheisenkern) und dem Südpol (Ringmagnet). Dadurch entsteht auf dem Target ein Plasmaring, in dem durch die hohe Plasmadichte die Sputterausbeute wesentlich höher ist als beim DC-Sputtern ohne Magnetfeld. Übliche Betriebswerte sind z.B. $U = 200 \text{ V}$, $I = 500 \text{ mA}$. In diesem Spannungsbereich verläuft die I-V-Charakteristik der Entladung sehr steil, d.h. geringe Spannungsänderungen erzeugen große Änderungen des Stromes. Die maximale Sputterleistung, die tatsächlich im Experiment ausgenutzt werden kann, ist im wesentlichen durch die Targetkühlung begrenzt. Hohe Sputterraten sind besonders für die Aluminiumdeposition von Bedeutung. Beim DC-Sputtern ohne Magnetfeld neigt das Aluminiumtarget während der Zerstäubung zu einem Konkurrenzprozeß zum Sputtern, nämlich zur anodischen Plasmaoxidation. Aufgrund der Isolatoreigenschaften des Aluminiumoxids fällt ein Teil der angelegten DC-Spannung bereits am Oxid ab und geht damit dem Sputterprozeß verloren. Dadurch treten während des Sputterprozesses instabile Verhältnisse auf. Beim Magnetronsputtern ist die Sputterrate jedoch so groß, daß während des Zerstäubungsprozesses das Target ständig gereinigt wird.

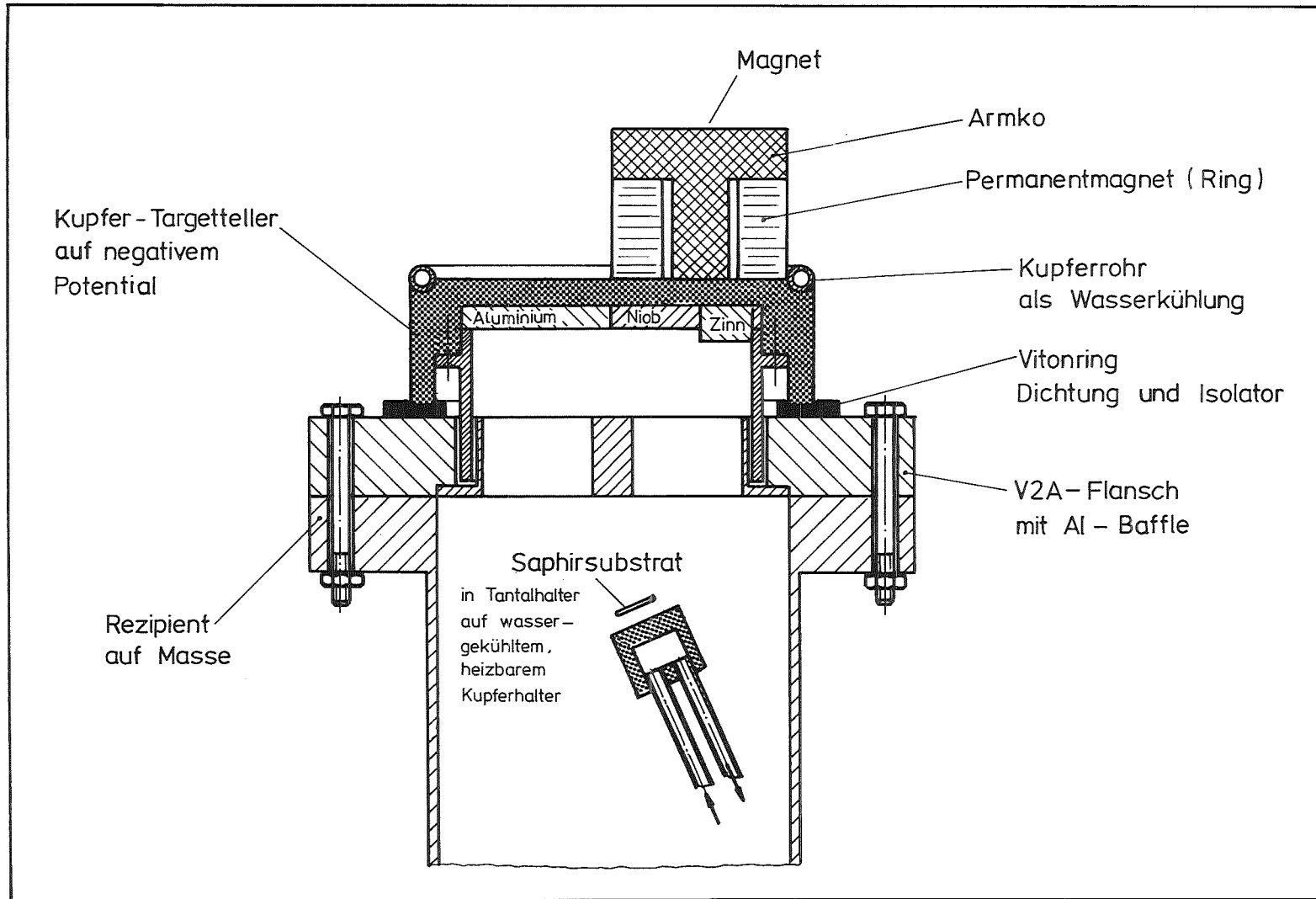


Abb. 3.1.1: Schnitt durch den oberen Teil des Magnetron-Turbopumpstands. Die Skizze ist nicht maßstabsgetreu.

Bei dem verwendeten Ringmagneten wird ein ringförmiges Gebiet auf dem jeweiligen Targetmaterial von etwa 5 mm Breite und 30 mm Durchmesser abgetragen. Die Sputterrate auf der restlichen Targetfläche, die durch reines DC-Sputtern ohne Magnetfeld bei der angelegten Spannung gegeben ist, wird wesentlich von der Bedeckungsrate, herrührend von dem Gebiet hoher Abtragsrate, übertroffen. Damit ist es möglich, auf einem Targetteller mehrere Targets aus unterschiedlichen Materialien unterzubringen, ohne daß beim Sputtern des einen Materials die anderen mitdeponiert werden.

Der Targetteller ist in Abb. 3.1.2 dargestellt. Ein Viertel des Targettellers wird vom Nb-Sn-Target bedeckt, ein weiteres Viertel vom Aluminiumblech. Der Wechsel von der Zerstäubung des Nb₃Sn zur Deposition des Aluminiumfilms erfolgt einfach durch Verschieben des Magneten auf dem Targetteller. Der Targetteller ist wassergekühlt; als elektrische Isolierung und gleichzeitig als

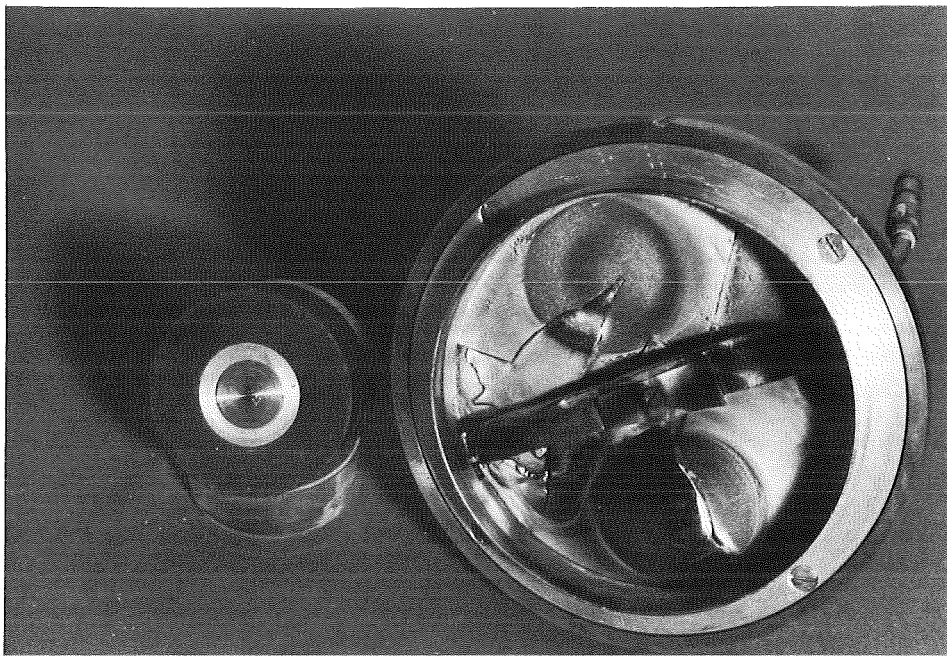


Abb. 3.1.2: Targetteller mit Magnet. Man erkennt deutlich die Bereiche auf den Targets, von denen das Material abgetragen wurde.

Vakuumdichtung dient ein 2 mm dicker und 20 mm breiter Vitonring mit einem Außendurchmesser von 170 mm.

Das Substrat, meist Saphir, wird von einem Tantalhalter gehalten, der auf wassergekühlten und isolierten Kupferträgern montiert ist und mit einer beweglichen Blende abgedeckt werden kann. Der Substrathalter wird resistiv erhitzt. Damit sind Substrattemperaturen von -190°C bis zur Schmelztemperatur des Tantalhalters möglich. Um eine homogene Temperaturverteilung auf dem Substrat zu gewährleisten, wird das Substrat so vom Tantalblech umhüllt, daß nur ein schmaler Mittelstreifen vom Metallfilm bedeckt wird. Die Temperaturmessung erfolgt über ein Chromel-Alumel-Thermoelement, das zwischen Tantalhalter und Substrat gesteckt wird. Mit diesem Thermoelement können Temperaturen bis zu 1100°C gemessen werden. In einem Experiment wurde die Temperatur der Substratoberfläche pyrometrisch bestimmt; die pyrometrisch gemessene Temperatur lag etwa 50°C unterhalb der Temperatur, die mit dem Thermoelement gemessen wurde.

In das Nb-Blech ist ein Keil mit einem Öffnungswinkel von etwa 20° gesägt, der mit Sn gefüllt ist, das auf den Cu-Teller aufgeschmolzen und anschließend in einer Presse flachgedrückt wurde.

Durch Verschieben des Magneten in Richtung der Winkelhalbierenden des Keils kann das Verhältnis Nb:Sn des abgesputterten Materials verändert werden. Es zeigte sich im Verlauf der Arbeit, daß das Nb:Sn-Verhältnis gut reproduzierbar war. Der volle Existenzbereich der A15-Phase von ca. 18 at% bis 25 at% Sn in $\text{Nb}_{1-x}\text{Sn}_x$ ist durch Verschieben des Magneten von insgesamt 15 mm abgedeckt.

Aufgrund der räumlichen Trennung von Nb und Sn stellt sich ein geringer Zusammensetzungsgradient auf dem Substrat von typisch etwa 1 at% Sn ein. Dieser Gradient kann für stöchiometrieabhängige Messungen ausgenutzt werden.

Bedingt durch die Vitondichtung des Targettellers konnten nur Ausheiztemperaturen bis maximal 150°C angewendet werden. Der im Routinebetrieb erreichte Restgasdruck lag im Bereich von 1×10^{-8} mbar. Das verwendete Argongas hatte einen Reinheitsgrad von 1 in 10^6 , so daß bei einem typischen Sputterdruck von 10^{-2} mbar der Partialdruck der durch das Sputtergas eingeführten Verunreinigungen 10^{-8} mbar betrug. Es zeigte sich außerdem, daß auch bei höheren Verunreinigungskonzentrationen, bedingt durch einen schlechten Restgasdruck von z.B. 1×10^{-6} mbar, sowohl die Schicht- als auch die Diodeneigenschaften dieselbe Qualität hatten wie solche Proben, die ausgehend von niedrigeren Restgasdrücken hergestellt wurden. Aus diesen Gründen scheint eine Verbesserung der Vakuumverhältnisse, z.B. durch eine auf 450°C ausheizbare Magnetronkonstruktion, nicht notwendig zu sein.

Als Spannungsversorgung für Ströme bis zu 1.25 A wurde ein Netzgerät aufgebaut. Ein Regeltransformator versorgt einen Transformator mit den Ausgangsdaten von $U_{\max} = 800$ V und $I_{\max} = 1.25$ A. Nach der Gleichrichtung des 50 Hz-Signals mittels einer Graetzschaltung aus Hochleistungsdioden wird die Spannung über zwei parallel geschaltete Keramikwiderstände von je 270 Ω auf den Targetteller gegeben. Aufgrund der negativen Steigung der Entladungsscharakteristik sind die Keramikwiderstände als Strombegrenzer nötig.

Als Targetmaterialien wurden Nb-, Sn-, Al- und Zr-Bleche der Firma Goodfellow Metals mit folgenden Reinheitsgraden verwendet: Nb 99.95, Sn 99.999, Al 99.999, Zr MARZ-Grade. Für die mittels der eben beschriebenen Apparatur hergestellten Tunnelioden wurden die Depositionsparameter für Nb_3Sn im Hinblick auf Fremdphasenanteile in der Schicht und für die Overlayer aus Al bzw. einem Gemisch aus Al und Zr im Hinblick auf Leckströme optimiert. Diese optimalen Parameter sind in Tabelle 1 zusammengefaßt.

TABELLE 1 Optimierte Depositionsparameter

	Nb ₃ Sn	Overlayer (Al/Al+Zr)
Restgasdruck:	10 ⁻⁷ - 10 ⁻⁸ (bei heißem Substrat)	
Substrat :	Saphir	
Substrattemperatur:	1000°C	200°C
Argon-Partialdruck:	5 x 10 ⁻² mbar	5 x 10 ⁻² mbar
Spannung :	200 V	180 V
Strom :	500 mA	400 mA
Depositionsrate:	ca. 50 nm/min	ca. 2 nm/min (bei geschlossener Substratblende)
Dicke	200 - 300 nm	2 - 10 nm
Sputterzeit	5 min	4 - 6 min
		Al:Zr 50:50 bis zu 20:80

Die Zeit zwischen Nb₃Sn- und Overlaydeposition betrug im allgemeinen 2-3 Minuten. Diese Zeit muß möglichst kurz gehalten werden, um die Verunreinigung der frisch erzeugten Nb₃Sn-Oberfläche, z.B. durch Sauerstoff aus dem Restgas, gering zu halten. Eine Abschätzung zeigt, daß in dieser Zeit weniger als 1 Atomlage Sauerstoff an der Oberfläche adsorbiert wird.

Anschließend wurde die Apparatur mit Laborluft belüftet und die Probe durch Lagern in Laborluft und bei Raumtemperatur oxidiert. Die Diodenflächen wurden anschließend durch Bestreichen der Schichtoberfläche mit einem isolierenden Lack definiert, der sich beim Abkühlen auf tiefe Temperaturen nicht ablöst. Dieser Lack wird aus 1 Teil UHU 2000 und etwa 20 Teilen Aceton gemischt. Beim Aufbringen auf die Schicht entsteht nach dem Verdampfen des Acetons eine Lackschicht, die so dünn ist, daß noch Interferenzfarben zu sehen sind. Ablösungen zeigten sich beim Abkühlen der Probe, wenn diese Lackschicht zu dick war.

Die Flächen, die auf diese Weise auf den Dioden ausgeblendet wurden, waren typisch 0,5 mm x 0,5 mm bis 1mm x 0,5 mm. Als Gegenelektroden wurden Supraleiter wie Zinn, Aluminium, Indium und Blei verwendet. Die Gegenelektroden wurden in einem nicht ausheizbaren Turbomolekularpumpstand aufgedampft, den eine Glasglocke dichtete, die auf einen mit Vakuumsfett bestrichenen Vitonring gesetzt wurde. Der Rezipient war nicht frei von Kohlenwasserstoffen. Bei dieser Apparatur betrug der Enddruck im Routinebetrieb etwa 10^{-5} mbar.

Befestigt wurde die Tunneldiode auf dem Probenhalterkopf aus Pertinax mit "Snapfix" der Firma Photo Gum. Bei Raumtemperatur ist dieser Kleber weich, so daß die Probe sehr leicht wieder entfernt werden kann, bei tiefen Temperaturen löst sich dieser Kleber weder vom Pertinax noch vom Saphirsubstrat ab.

Um die Probleme mechanischer Druckkontakte zu umgehen, wurden die Dioden auf folgende Weise kontaktiert: Auf beide Enden der Gegenelektrodenstreifen wurden kleine, frisch geschnittene Indiumstückchen gepreßt, ebenso auf die beiden Enden des Nb_3Sn -Films. Auf diese Indiumstückchen wurden anschließend mit Leitsilber sehr feine Aluminiumföhnchen geklebt, deren Enden wiederum mit Leitsilber auf die verzinnten Kontaktpunkte des Probenhalters geklebt wurden.

Die Messungen der Tunnelcharakteristiken wurden vierpunktartig durchgeführt. Die Strom- und Spannungsanschlüsse des Meßkabels wurden in getrennten Buchsen verdrahtet, so daß beim Vertauschen der beiden Anschlußbuchsen des Meßkabels die Strom- und Spannungszuführungen miteinander vertauscht werden, ohne die Polaritätsverhältnisse an der Tunneldiode zu ändern. Eine solche Austauschbarkeit ist nötig, um mangelhafte Strom- und Spannungsanschlüsse an der Diode zu erkennen. Jeder Probenhalter war zur Temperaturmessung mit einem geeichten Ge-Widerstand der Firma Cryocal ausgestattet.

Die Tieftemperaturmessungen wurden in einem Heliumbad-Glaskryostaten durchgeführt, der am unteren Ende verjüngt war, so daß am Probenort mittels eines Elektromagneten ein variables Magnetfeld erzeugt werden konnte. Das maximal erreichbare Feld betrug 5 kG. Dieses Feld genügte, um jede Spur von Supraleitung der Bleigegenelektroden sicher zu unterdrücken.

Temperaturen unterhalb von 4.2 K wurden durch Abpumpen des Heliumgases aus dem Kryostaten erreicht. Für Messungen im normalleitenden Zustand oberhalb von 4.2 K wurde der Probenhalter aus dem Heliumbad herausgezogen.

3.2 Bestimmung der Tunnelzustandsdichte

3.2.1 Die Meßelektronik

Wie in Kapitel 2.3 dargelegt wurde, ist die Messung der ersten Ableitung der Strom-Spannungscharakteristik einer Tunneldiode im supraleitenden Zustand nötig, um die Quasiteilchenzustandsdichte des Supraleiters zu bestimmen.

Die Messung der ersten und der zweiten Ableitungen der Strom-Spannungscharakteristik wurde mit der Modulationstechnik durchgeführt. Die Datenaufnahme erfolgte on-line über die Einzelbitsteuerung eines Nova 2-Prozeßrechners, mit dem auch die Auswertung der Tunnelrohdaten bis zum Stadium der Erzeugung der Eingangsdaten des MMR-Programms durchgeführt wurde.

Der Aufbau der Meßelektronik und ihre Funktionsweise ist sehr ausführlich in der Doktorarbeit von Geerk (1975) beschrieben. Deshalb werden hier nur die wichtigsten Eigenschaften der Elektronik angerissen.

Bestimmung der ersten Ableitung $\frac{dI}{dV}$, $\frac{dV}{dI}$

Zur Bestimmung der ersten Ableitung der Strom-Spannungscharakteristik wird einer an die Diode angelegten Gleichspannung V_0 ein kleines Wechsellspannungssignal δV mit fester Frequenz (485 Hz) aufgeprägt. Der so erzeugte Wechselstrom δI ist der ersten Ableitung $\frac{dI}{dV}$ proportional, sofern die Amplitude δV klein genug ist und nicht von der Leitfähigkeit der Diode abhängt, die sich besonders im Bereich der Energielücke stark ändert. Das δI -Signal wird mit einem lock-in-Verstärker gemessen. Zur Messung der Leitfähigkeit als Funktion der Spannung wird die Gleichspannung V_0 mit einem Sägezahngenerator langsam variiert. Typische Zeiten für das Durchfahren eines Spannungsintervalls zwischen -80 mV und +80 mV sind z.B. 15-20 Minuten.

Aus Gründen der Rauschfreiheit wird im Phononenbereich die Messung von $\frac{dV}{dI}$ der Messung von $\frac{dI}{dV}$ vorgezogen. Zur Messung von $\frac{dV}{dI}$ wird anstelle des Konstantspannungssignals ein Konstantstromsignal aufgeprägt, was aus technischen Gründen einfacher zu realisieren ist. Im Gapbereich eignet sich die Messung von $\frac{dV}{dI}$ in der oben beschriebenen Weise nicht, da für $V_0 \approx \frac{\Delta_0}{e}$ wegen des hohen Widerstandes der Diode in diesem Bereich bei konstantem δI das δV -Signal sehr groß, eventuell sogar größer als die Gapenergie Δ_0 selbst werden kann.

Während die dynamische Leitfähigkeit der Diode $\frac{dI}{dV}$ mit einem aktiven Netzwerk nach Blackford (1971) bestimmt wird, dient zur Messung des dynamischen Widerstands $\frac{dV}{dI}$ eine Brückenschaltung nach Adler und Jackson (1966). Die Meßanordnung muß dabei bestimmten Ansprüchen an Rauschfreiheit und Driftstabilität genügen. Die relative Stärke der phononeninduzierten Strukturen ist von der Größenordnung 10^{-2} und soll mit einer Genauigkeit von 10^{-3} bestimmt werden, d.h. die $\frac{dV}{dI}|_{s,n}$ - und $\frac{dI}{dV}|_{s,n}$ -Charakteristiken im supraleitenden und normaleitenden Zustand müssen mit einer relativen Genauigkeit von mindestens 10^{-5} bestimmt werden. Bei einer Amplitude von $\delta V = 100-200 \mu V$

muß $\frac{dV}{dI}$ mit einer Genauigkeit von 1 nV gemessen werden. Hierbei ist die Driftstabilität der Anordnung und besonders des Oszillators das größte Problem.

Die Anwendung der Brückenschaltung bringt einen hohen Stabilitätsgewinn, der sich aufgrund der guten Barrierecharakteristiken der Nb₃Sn-Tunneldioden (geringe Krümmung von $\left. \frac{dV}{dI} \right|_n$) prinzipiell voll ausnutzen läßt. Driftvorgänge betreffen nur noch den kleinen nichtkompensierten Anteil von $\frac{dV}{dI}$ im supraleitenden Zustand der Tunneldiode. Allerdings zeigte sich im Verlauf dieser Arbeit, daß die Kenntnis der reduzierten Zustandsdichte auch bei Energien sehr nahe dem Energiegap wünschenswert ist, in einem Spannungsbereich, in dem man sich bereits im steilen, durch den BCS-Verlauf beschriebenen Widerstandsbereich befindet, so daß die Brückenschaltung nicht mit der optimalen Verstärkung betrieben werden konnte.

Die Bestimmung der zweiten Ableitung $\frac{d^2 I}{dV^2}$

Die Auflösung sehr feiner Änderungen in $\left. \frac{dV}{dI} \right|_s$ ist durch die Messung der zweiten Ableitung $\frac{d^2 I}{dV^2}$ möglich. $\left. \frac{d^2 I}{dV^2} \right|_s$ zeigt bei den Spannungswerten Peaks, wo die resonanzartigen phononeninduzierten Strukturen in $\left. \frac{dV}{dI} \right|_s$ die größten Steigungen aufweisen. Dies ist genau bei den Energien der Fall, wo $\alpha^2(\omega)F(\omega)$ Steigungsänderungen oder Peaks zeigt. Durch numerische Integration der zweiten Ableitung kann man die erste Ableitung und damit die reduzierte Zustandsdichte wesentlich genauer bestimmen, als dies mit der Brückenschaltung alleine möglich ist.

Zur Bestimmung der zweiten Ableitung mißt man praktisch den Klirrfaktor der Tunneldiode, der in guter Näherung proportional ist zu der in der Diodenspannung enthaltenen Fourierkomponente der doppelten Frequenz des angelegten Modulationsstromes.

Die Messung der zweiten Ableitung stellt wesentlich höhere Anforderungen an die Meßanordnung hinsichtlich Rauschfreiheit und Abschirmung von Störsignalen, als dies bei der Messung der

ersten Ableitung nötig ist. Es werden Signale im nV-Bereich gemessen, die mit einem relativen Fehler von weniger als 10^{-2} bestimmt werden sollen. Das Rauschen der Apparatur muß deshalb unterhalb von 10^{-10} V liegen. Wegen der geforderten Meßgenauigkeit darf der Klirrfaktor des Grundsignals bei einem Modulationssignal $\delta V = 500 \mu V$ nur etwa 10^{-6} betragen.

Eine quantitative direkte Messung der zweiten Ableitung ist mit den bisher realisierten Apparaturen nicht möglich. Die Bestimmung der ersten Ableitung aus der zweiten Ableitung erfolgt daher durch numerische Integration mit nachfolgender Anpassung der Integralfunktion an die mit der Brückenschaltung gemessene erste Ableitung. Dies wird in Kapitel 3.2.2 beschrieben.

3.2.2 Datenweiterverarbeitung

Im folgenden Abschnitt wird beschrieben, wie die Eingangsdaten für das Inversionsprogramm aus den Meßdaten erzeugt werden. Die grundlegenden Verarbeitungsschritte sind im Report von Hubin (1970) zusammengefaßt. Für die Auswertung der Rohdaten realer Tunnelioden sind an verschiedenen Stellen der Auswertung jedoch Korrekturen der Meßdaten hinsichtlich der Leckströme nötig.

Zuerst wird aus den im supra- und normaleitenden Zustand der Diode bestimmten Leitfähigkeiten die normierte Zustandsdichte $\sigma^{\text{norm}}(V)$ in einem festen Energieraster, z.B. 0.1 oder 0.2 mV, gebildet.

$$\sigma^{\text{norm}}(V) = \frac{\sigma_s}{\sigma_n} - 1, \quad \text{wobei gilt} \quad (3.2.1)$$

$$\sigma_n^{-1} = \left. \frac{dV}{dI} \right|_n \quad \sigma_s^{-1} = \left. \frac{dV}{dI} \right|_s$$

Bei einer Tunneldiode treten primär zwei Arten von Leckströmen auf, die zu $\sigma_{s,n}^{-1}$ beitragen und die in Abb. 3.2.1 skizziert sind. Der sogenannte "ohmsche" Leckstrom stellt den Teil des Leckstromes dar, der kein Tunnelstrom ist. Im Bild wird dieser Leckstrom durch einen zur Tunneldiode parallel geschalteten Widerstand R symbolisiert. Dieser "ohmsche" Leckstrom führt bei einer Supraleiter-Supraleiter-Diode zu einer endlichen Leitfähigkeit bei $U = 0$ V. Aufbauend auf Erfahrungen von Geerk (private Mitteilung) zeigen Tunneldioden mit großem "ohmschen" Leckstrom einen umso flacheren Verlauf der Leitfähigkeitscharakteristik, je höher dieser Leckstrom ist. Daher wird die Tunneldiode hinsichtlich des "ohmschen" Leckstromes korrigiert unter der Voraussetzung, daß dieser Leckstrom ein ohmsches Verhalten zeigt, also einen konstanten, d.h. spannungsunabhängigen, Beitrag zur Leitfähigkeit liefert:

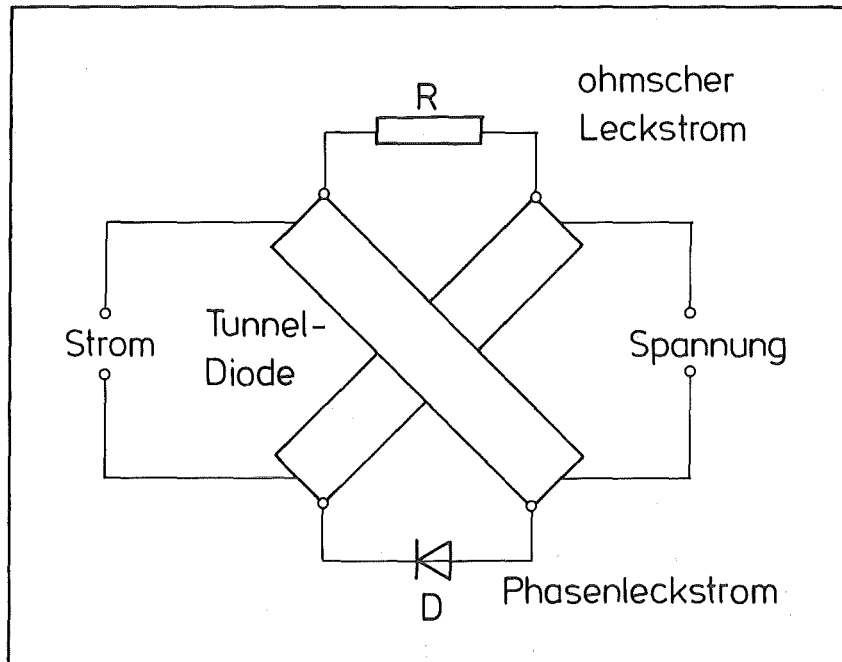


Abb. 3.2.1: Modell einer Tunneldiode mit "ohmschem" und Fremdphasenleckstrom

$$\sigma_{s,n}^2 = \sigma_{s,n}^{\text{meas}} - \frac{1}{R} \left(\frac{\sigma_{ss}^{\text{meas}}}{\sigma_n^{\text{meas}}} \right) \Big|_{U=0 \text{ V}}$$

R ist der Widerstand der Diode bei $U = 0 \text{ V}$, $\sigma_{ss}^{\text{meas}}$ ist die Leitfähigkeit der Diode mit supraleitender Gegenelektrode bei $U = 0 \text{ V}$ und σ_n^{meas} ist die Leitfähigkeit der Diode im normalleitenden Zustand bei derselben Spannung.

Bei der realen Tunneldiode können solche "ohmschen" Leckströme durch Barrierenbereiche erzeugt werden, die anstelle eines Isolators eher halbleitendes Material oder feine metallische Brücken enthalten; letztere können unter Umständen sogar supraleitende Bereiche haben. Dafür spricht insbesondere die Erfahrung, daß Tunneldioden mit großem "ohmschen" Leckstrom bei $T < T_c$ in den $\frac{dV}{dI} \Big|_s$ -Charakteristiken scharfe Stufen zeigen und die Spannungswerte, bei denen diese Stufen auftreten, temperaturabhängig sind. Diese Stufen werden deshalb als "weak links" identifiziert.

Abb. 3.2.2 zeigt die Leitfähigkeit einer Nb_3Sn -Diode im Gapbereich mit einer Blei-Gegenelektrode. Oberhalb der Bleigaps

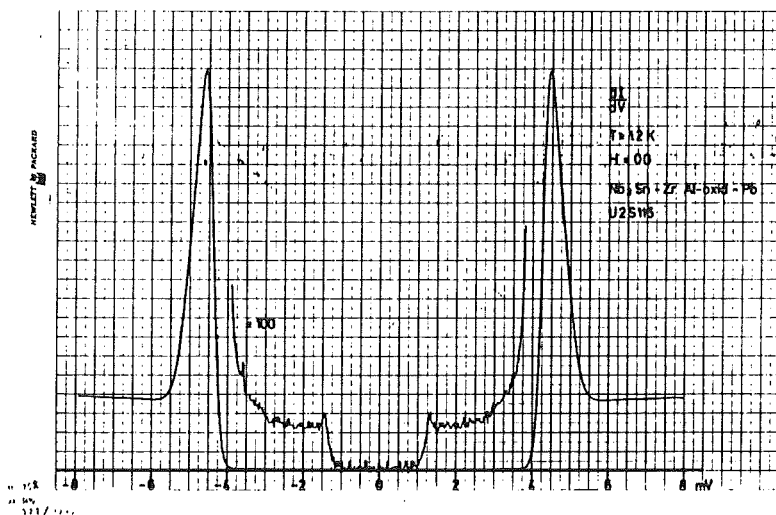


Abb. 3.2.2: $\frac{dI}{dV}$ -Charakteristik einer Nb_3Sn -Diode mit Pb-Gegenelektrode im Gapbereich.

von 1.37 meV ist eine zweite Leckstromkomponente zu erkennen. Diese zweite Leckstromkomponente ähnelt in ihrer $\frac{dI}{dV}$ -Charakteristik der einer Normalleiter-Supraleiter-Diode. Die naheliegende Erklärung für diese Leitfähigkeit ist ein Tunnelstrom in eine in der Nb₃Sn-Schicht vorhandene normalleitende oder in eine nur mit einem sehr kleinen Energiegap behaftete Fremdphase. Eine Identifikation dieser Phase mittels Röntgendiffraktion bei den Nb₃Sn-Schichten ist aufgrund der geringen Konzentrationen (z.B. < 1%-5%) dieser Fremdphase nicht möglich. Bei Tunnelnioden des Typs Nb-Isolator-Pb, bei denen "Fremdphasenleckströme" von bis zu 50% auftraten, konnten eindeutig Linien, herrührend von Fremdphasen (z.B. NbO), im Röntgendiffraktionsbild gefunden werden (Bangert und Geerk 1983, wird veröffentlicht). Dieselbe Beobachtung wurde auch von Kwo und Geballe (1981) bei der Untersuchung von Nb₃Al-Tunnelnioden gemacht.

Da in dieser Arbeit die Barrieren künstlich präpariert wurden, wird die Tunnelniodencharakteristik hinsichtlich des Fremdphasenleckstromes unter der Annahme korrigiert, daß die Tunnelcharakteristiken im normalleitenden Zustand des Supraleiters und für die normalleitende Fremdphase denselben Verlauf haben. Damit ergibt sich für die Leitfähigkeiten

$$\sigma_{s,n}(V) = \tilde{\sigma}_{s,n}(V) - \tilde{\sigma}_n(V) \left(\frac{\sigma^{\text{Fremdphase}}}{\tilde{\sigma}_n} \right) \Bigg|_{(U = 0V)}$$

Bei den Leitfähigkeitscharakteristiken in normalleitenden Zustand tritt im Bereich der Phononenenergien ein Minimum auf, wie es auch bei einfachen s-p-Metallen von Rowell et al. (1969) beobachtet wurde. Wie auch bei den s-p-Metallen wird dieses Leitfähigkeitsminimum als Beitrag realer, inelastischer Phononenprozesse der Barriere und des Supraleiters identifiziert. Diese inelastischen Phononenprozesse führen zu einer Erhöhung der Tunnelleitfähigkeit, tragen jedoch nicht zur Messung der Tunnelzustandsdichte bei der eingestellten Energie ($E = e \cdot V$) bei. Daher müssen

diese Beiträge entsprechend einem Leckstrom von den σ_s - und σ_n -Kurven abgezogen werden. Der Leckstrom ist die Differenz zwischen σ_n und dem Untergrund, der durch die Energieabhängigkeit des Tunnelmatrixelementes hervorgerufen wird; bei der Korrektur von σ_s muß dieser Leckstrom noch um das Energiegap verschoben werden.

Dieser Untergrund läßt sich unter der Annahme angeben, daß in einem Energiebereich oberhalb von 400 meV, in welchem die zweite Ableitung der Tunnelcharakteristik im normalleitenden Zustand praktisch strukturlos ist, die Tunnelcharakteristik den Verlauf des Tunnelmatrixelementes widerspiegelt. In diesem Energiebereich wird über einen Polynomfit eine glatte Kurve erzeugt, die den hochenergetischen Verlauf der zweiten Ableitung gut wiedergibt. Es wird angenommen, daß der Verlauf dieser Kurve bei Energien unterhalb von 400 meV ebenfalls den Untergrund widerspiegelt, der durch die Energieabhängigkeit des Tunnelmatrixelementes hervorgerufen wird. Dabei zeigt es sich, daß die Korrektur der Tunneldaten von Details des Polynomfits weitgehend unabhängig ist. Ergebnisse zu dieser Problematik werden in Kapitel 4.2.2 beschrieben.

Nun können die von den Leckströmen bereinigten Leitfähigkeiten (Gleichung 3.2.1) zusammen mit den gemessenen zweiten Ableitungen weiterverarbeitet werden. Im folgenden beschafft man sich mit Hilfe der zweiten Ableitung eine geglättete, normierte erste Ableitung, die die vollständige gemessene Feinstruktur enthält.

Im ersten Schritt wird die Funktion $(\frac{\sigma_s}{\sigma_n})_{\text{Fit}}$ durch Integration der zweiten Ableitung unter Variation von vier Konstanten beschafft (Geerk 1975, S. 36). Da die Anpassung mit den vier Konstanten meistens noch keine befriedigende Übereinstimmung liefert, wird eine geglättete erste Ableitung durch stückweises Anpassen von $(\frac{\sigma_s}{\sigma_n})_{\text{Fit}}$ an die erste Ableitung nach der von McMillan entwickelten Formel gebildet (Hubin 1970):

$$\left(\frac{\sigma_s}{\sigma_n}\right)_{\text{glatt}} = \left(\frac{\sigma_s}{\sigma_n}\right)_{\text{Fit}} + \int_{V_1-V_2}^{V_1+V_2} dV \left\{ \left(\frac{\sigma_s}{\sigma_n}\right)_{\text{meas}} - \left(\frac{\sigma_s}{\sigma_n}\right)_{\text{Fit}} \right\} f(V, V_1)$$

(3.2.2)

$$f(V, V_1) = \frac{\exp\left\{-\left[\frac{(V-V_1) \cdot H}{\text{ESM}}\right]^2\right\}}{\int_{V_1-V_2}^{V_1+V_2} dV \exp\left\{-\left[\frac{(V-V_1) \cdot H}{\text{ESM}}\right]^2\right\}}$$

Der erste Term $\left(\frac{\sigma_s}{\sigma_n}\right)_{\text{Fit}}$ enthält die Feinstruktur, der zweite paßt die Stärke der Struktur an die mittlere Stärke von $\left(\frac{\sigma_s}{\sigma_n}\right)_{\text{meas}}$ nahe V_1 an. V_1 ist die Spannung, an der die geglättete erste Ableitung bestimmt werden soll. H ist das Energieraster der Eingangsdaten in mV, V_2 ist ein Spannungsintervall, über das geglättet werden soll, und ESM ist ein Glättparameter, der die Halbwertsbreite der Gaußkurve $f(V, V_1)$ anpaßt.

Schließlich wird die reduzierte Zustandsdichte N_{red} gebildet:

$$N_{\text{red}} = \frac{(\sigma_s/\sigma_n)_{\text{glatt}}}{N_{\text{BCS}}} - 1 \quad (3.2.3)$$

N_{BCS} ist die BCS-Zustandsdichte bei einer effektiven Temperatur T_{eff} . Diese effektive Temperatur ist höher als die Meßtemperatur von 1.2 K und soll eine Verschmierung der gemessenen Zustandsdichte ausgleichen, die durch eine Häufigkeitsverteilung von Nb_3Sn -Körnern mit unterschiedlichem Energiegap hervorgerufen wird, wie es bei den in dieser Arbeit präparierten Nb_3Sn -Schichten der Fall war. Diese Verteilung wird nach Geerk und Schneider (unveröffentlicht) iterativ aus der im Gapbereich bestimmten σ_s -Kurve gewonnen, indem mehrere BCS-Kurven mit verschiedenen Gaps und unterschiedlichem Gewicht so überlagert werden, daß die Meßkurve σ_s reproduziert wird. Eine solche Verteilung ist in Abbildung 3.2.3 gezeigt.

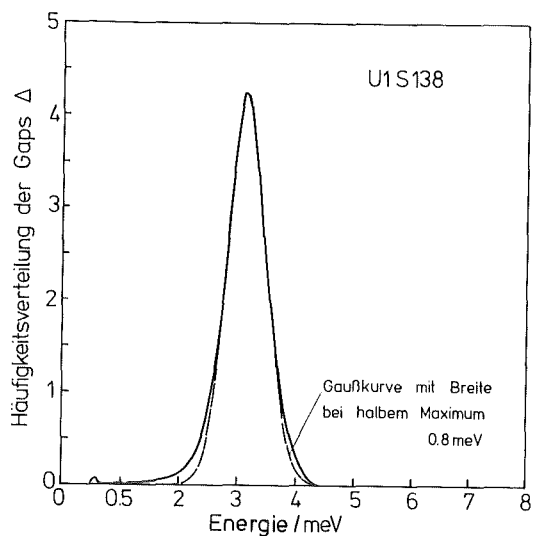


Abb. 3.2.3: Häufigkeitsverteilung des Energiegaps einer stöchiometrischen Diode. Die gestrichelte Kurve ist eine Gaußkurve mit derselben Breite bei halben Maximum.

Die gemessene $\frac{dI}{dV}$ -Charakteristik ergibt sich durch eine Faltung einer solchen Gapverteilung mit einer Zustandsdichte für das Gap im Maximum der Verteilungsfunktion. Die Temperaturverschmierung, hervorgerufen durch die endliche Breite der Fermifunktion der normalleitenden Gegenelektrode, läßt sich ebenfalls durch eine Faltung einer Charakteristik bei $T = 0 \text{ K}$ darstellen, und zwar mit einer Gaußfunktion der Halbwertsbreite $3,5 k_B T$ (Bermon 1964). Da der Verlauf der Verteilungsfunktion in Abb. 3.2.3 in etwa gaußförmig ist, ist eine näherungsweise Analyse der gemessenen $\frac{dI}{dV}$ -Charakteristik nach Gleichung 3.2.3 möglich auf der Grundlage einer Verschmierung mit einer effektiven Temperatur, die größer ist als die tatsächliche Meßtemperatur. Typische Resultate sind z.B. $T_{\text{eff}} = 2.5 \text{ K}$ bei einer Meßtemperatur von 1.2 K . Dies zeigt, daß Effekte einer Gapverteilung bei tiefen Meßtemperaturen sehr wesentlich in die Messung eingehen.

Anschließend wird die reduzierte Zustandsdichte um die Gapenergie Δ_0 verschoben, so daß nun die Energie ab der Gapkante gezählt wird.

Das Energiegap Δ_0 wurde i.a. aus den Leitfähigkeitskurven mit supraleitender Gegenelektrode bestimmt. Der so bestimmte Gapwert stimmt gut mit dem Gapwert überein, bei dem das Maximum der Gapverteilung liegt.

3.3 Analysenverfahren

Die Dicke und die Zusammensetzung der Nb₃Sn-Schichten wurden mit der Methode der Rutherford-Rückstreuung von 2 MeV α -Teilchen bestimmt. Eine ausführliche Beschreibung des experimentellen Aufbaus ist z.B. in der Arbeit von Ziemann (1977) enthalten; die Analyse der Rückstreuenspektren hinsichtlich Dicke und Zusammensetzung ist beispielsweise im "Ion Beam Handbook for Material Analysis" beschrieben.

Die Zusammensetzung kann mit einer Genauigkeit von ± 0.5 at% bestimmt werden, während die Dickenmessung mit einem Fehler von etwa 10% behaftet ist.

Das Zr-Signal bei Tunnelioden mit ZrAl-Oxid-Barriere kann bei der gegebenen Einfallenergie von 2 MeV kaum vom Nb-Signal getrennt werden, da die Massenzahlen der beiden Elemente sich nur wenig unterscheiden. Obwohl bei einigen Nb₃Sn-Dioden ein Rückstreupeakeiner etwa 15 Å dicken Aluminiumschicht an der Oberfläche zu erkennen war, konnte bei vielen der analysierten Proben das Al-Signal nicht vom Untergrund im Spektrum getrennt werden; dies kann möglicherweise darauf zurückgeführt werden, daß bei der Präparation der Dioden zur Rückstreuung die Oberfläche der Diode beim Entfernen von Gegenelektrode und Lackschicht beschädigt wurde.

Der Gitterparameter der Nb₃Sn-Schichten wurde mit einem Guinier-Dünnschichtdiffraktometer mit fokussierender Seemann-Bohlin-Geometrie mit CuK _{α 1}-Strahlung gemessen. Der Fehler der Gitterparameterbestimmung beträgt ± 0.001 Å. Die Empfindlichkeit der Messung hinsichtlich Fremdphasenanteilen in der Probe ist $\geq 5\%$ Volumenanteil. Die in dieser Arbeit diskutierten Tunnelioden waren in dieser Hinsicht phasenrein, d.h. die Röntgenspektren dieser Proben wiesen ausschließlich Reflexe der A15-Struktur auf.

Die Übergangstemperatur zur Supraleitung wurde bei einigen Dioden außer durch Tunnelmessungen mit der induktiven Methode und bei verschiedenen Proben auch mit der resistiven Vierpunktmethode bestimmt. Die im Tunnelexperiment bestimmte Sprungtemperatur lag meist unter der Temperatur, die induktiv oder resistiv gemessen wurde.

Untersuchungen, die nähere Aussagen über die Barriere liefern konnten, wurden nicht durchgeführt. Das Tunnelexperiment selbst stellt die empfindlichste Methode dar, mit der die Beschaffenheit der Tunnelbarriere geprüft werden kann. Dies zeigt sich daran, daß Löcher in der Isolationsschicht, die nur atomare Abmessungen haben, sich im Experiment bereits als merklicher "ohmscher" Leckstrom bemerkbar machen.

4. ERGEBNISSE UND DISKUSSION

4.1 Materialeigenschaften der Dioden

4.1.1 Nb₃Sn und Barriere

Bedingt durch die hohe Depositionstemperatur und die ein-kristalline Saphirunterlage weisen die Nb₃Sn-Schichten ein stark gerichtetes Wachstum auf, wie die Röntgendiffraktionsaufnahme 4.1.1 deutlich zeigt. Der 610-Reflex (zwischen 611 und 600) fehlt im Spektrum ebenso wie auch der 440-Reflex (zwischen 600 und 521). Dagegen zeigen die Reflexe 210 und 420 eine wesentlich erhöhte Intensität gegenüber der Intensität in einer Probe mit statistischer Orientierung der Netzebenen. Dasselbe gilt auch für den 321-Reflex, der bei statistischer Orientierung der Netzebenen nur etwa die vierfache Intensität des 400-Reflexes aufweisen sollte und hier wesentlich mehr Intensität zeigt.

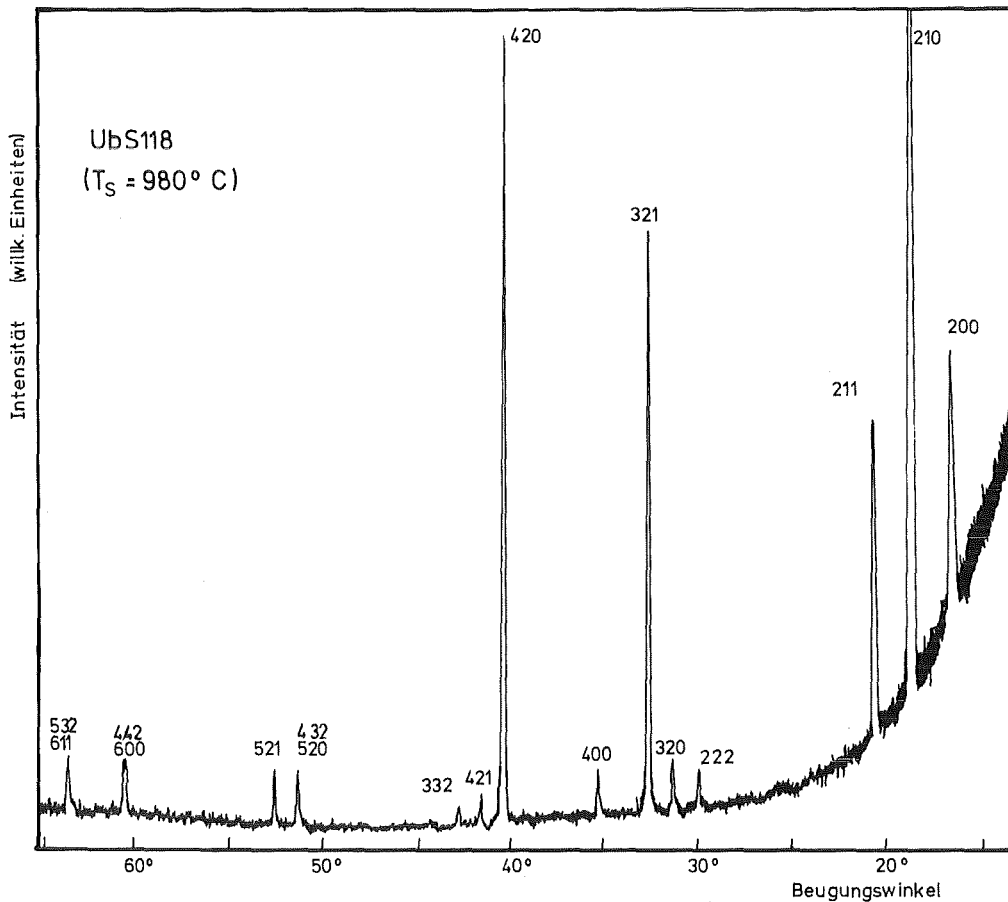


Abb. 4.1.1: Röntgendiffraktionsmitschrift einer Nb₃Sn-Diode

Abb. 4.1.2 zeigt die Bruchkante einer etwa 3000 Å dicken Nb₃Sn-Schicht, die in 20 000-facher Vergrößerung mit einem Rasterelektronenmikroskop aufgenommen wurde. Die Schicht ist dicht geschlossen und zeigt ein säulenartiges Wachstum der Nb₃Sn-Körner; die Orientierung der Saphirunterlage setzt sich auch in der Nb₃Sn-Schicht fort. Die Herstellung und die Depositionsparameter der Nb₃Sn-Schichten wurden eingehend in Kapitel 3.1 beschrieben. Von diesen Parametern wurde, da sie sich als ideal erwiesen hatten, im Laufe der Arbeit nicht abgewichen.

Von besonderem Interesse für diese Arbeit ist natürlich die Frage, welche Bedingungen für die Benetzung der Nb₃Sn-Oberfläche durch das Aluminium wichtig sind. Es zeigte sich, daß weder eine Variation des Argon-Partialdrucks (von 1×10^{-2} bis 1×10^{-1} mbar) noch die Variation der Depositionstemperatur für die ZrAl-Overlay (von Raumtemperatur bis zu 1000°C) einen Einfluß auf die Benetzung zeigten. Als Maß für die Benetzung dienten der Wider-

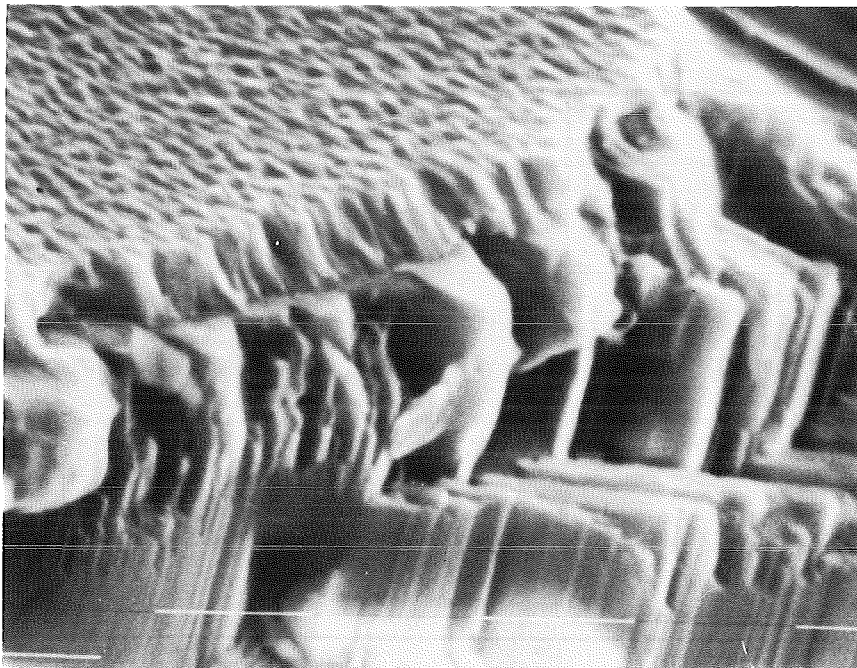


Abb. 4.1.2: Rasterelektronenmikroskopaufnahme der Bruchkante einer Nb₃Sn-Diode auf Saphir. Vergrößerung: 20000-fach. (Strichlänge: 1μ). Für die Aufnahme danke ich Herrn Dr. Obst.

stand und die Größe des ohmschen Leckstromes der Tunneldiode nach einer Oxidationszeit von etwa 10 Minuten bei Raumtemperatur. Die ohmschen Leckströme in der I-V-Charakteristik betragen typischerweise weniger als 5% des Tunnelstromes im normalleitenden Zustand der Diode. Der Widerstand der Dioden lag im Bereich von 100 Ω bis zu einigen k Ω . Um vergleichbare Widerstände mit einer natürlichen Nb-Sn-Oxidbarriere zu erzielen, sind Oxidationszeiten von 2-3 Tagen nötig; typische ohmsche Leckströme für diese Barriere sind z.B. 10% des Tunnelstroms im normalleitenden Zustand.

Die Dioden mit reiner Al-Overlayer zeigten flachere $\frac{dV}{dI}$ -Charakteristiken als Dioden mit natürlicher Nb-Sn-Oxidbarriere, wiesen jedoch noch deutliche Anzeichen von Proximity-Effekten in den Charakteristiken auf. Nb-Tunnelioden, die als Vergleichssystem hergestellt worden waren, zeigten bei derselben nominellen Aluminiumdicke ideale Tunnelcharakteristiken, und die σ_n^{-1} -Kurven verliefen wesentlich flacher als bei den Nb₃Sn-Dioden.

Eine weitere Erhöhung der nominellen Al-Schichtdicke führte bei den Nb₃Sn-Dioden zu keiner weiteren Verbesserung der σ_n^{-1} -Kurven hinsichtlich der Krümmung der Kurven. Dieses Verhalten legt den Schluß nahe, daß die Aluminiumschicht die Nb- und Nb₃Sn-Oberflächen mit unterschiedlichen effektiven Dicken bedeckt, z.B. 25 Å bei Nb und 5 Å bei Nb₃Sn, während das überschüssige Aluminium sich an den Schichtkorngrenzen ansammelt. XPS-Messungen von Kwo et al. (1982) an Nb-Al-Overlaydioden bestätigen diese Vorstellung. Diese effektive Al-Dicke ist auf Nb offenbar größer als auf Nb₃Sn und zufällig so dick, daß die damit gebildete Tunnelbarriere zu einer Nb-Diode mit idealen Eigenschaften führt. Um die effektive Dicke der Al-Schicht auf Nb₃Sn zu erhöhen, wurden stark oxidierende Komponenten wie Y oder Zr gleichzeitig mit Al gesputtert. Die Depositionsparameter wurden für ZrAl-Mischungen optimiert.

Die Krümmung der σ_n^{-1} -Kurve war bei Dioden mit ZrAl-Oxidbarrieren tatsächlich geringer, d.h. die effektive Al-Dicke konnte vergrößert werden.

Dies wird in Abbildung 4.1.3 verdeutlicht, in der die σ_n^{-1} -Charakteristiken von Dioden mit natürlichem NbSn-Oxid, reinem Al_2O_3 und mit ZrAl-Oxid aufgetragen sind. Die Zero-Bias-Anomalie der Charakteristik der natürlichen Oxidbarriere läßt die Beteiligung von Nb-Oxid am Tunneloxid erkennen (Rowell 1969), während die beiden anderen Charakteristiken keine solche Anomalie aufweisen.

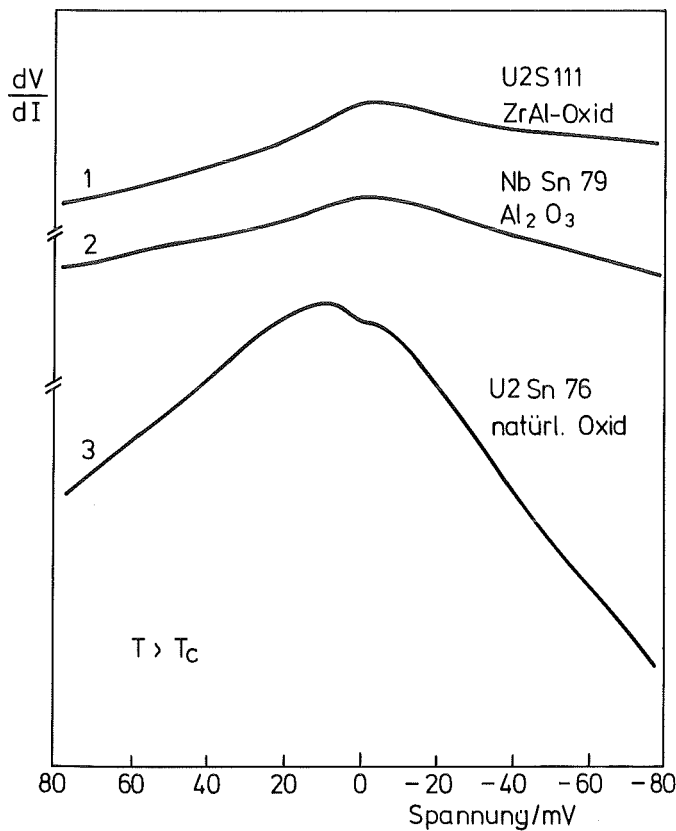


Abb. 4.1.3:
 $\frac{dV}{dI} \Big|_n$ -Charakteristiken
 von Nb_3Sn -Dioden mit
 unterschiedlichen
 Barrieren.

In Abbildung 4.1.4 sind die T_c -Werte und die Energiegaps über der Sn-Konzentration aufgetragen. Als Vergleichswerte sind einige Daten von Rudman (1982) eingezeichnet. Während die Gapwerte oberhalb von 22 at% Sn gut übereinstimmen, sind die Sprungtemperaturen der Rudmanschen Dioden etwa 1 K niedriger als bei den Dioden dieser Arbeit, was bei diesen zu niedrigeren $\frac{2\Delta_0}{k_B T_c}$ -Werten als bei Rudmans Dioden führt.

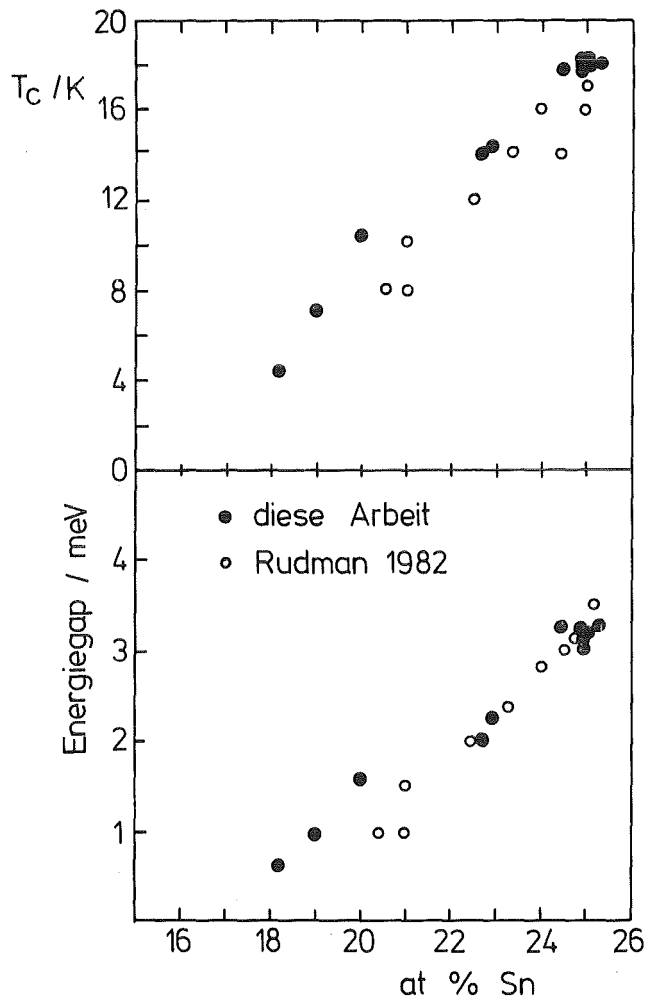


Abb. 4.1.4:

Sprungtemperatur
und Gap als Funktion
des Sn-Gehaltes

Die Schichtdaten sind in Tabelle 2 zusammengestellt. In einigen Fällen wurde die Zusammensetzung über die Sprungtemperatur mittels der Daten von Devantay et al. (1981) bestimmt. Bei den unterstöchiometrischen Proben ($T_c < 10$ K) konnte das T_c der Dioden aus technischen Gründen nicht aus dem Tunnelexperiment bestimmt werden. Dies gilt besonders für die Dioden, deren T_c niedriger als die Sprungtemperatur der Bleiegenelektrode war, da die Messung in einem He-Badkryostaten durchgeführt und die Supraleitung des Bleis mit einem lokalen Magnetfeld unterdrückt wurde. Die T_c -Werte der unterstöchiometrischen Dioden wurden deshalb induktiv bestimmt. Die breite Gapverteilung von typisch ± 0.4 meV bei den unterstöchiometrischen Proben führt jedoch zu T_c -Werten, die größer sind als die eigentliche Sprungtemperatur im Tunnelexperiment.

Tabelle 2 Verschiedene Schichtdaten

Probe	Dicke/ nm	Gitter- param. $\frac{a}{\text{\AA}}$	at%Sn	$T_C^{\text{Gap}}/\text{K}$	$T_C^{\text{ind}}/\text{K}$	Gap/ meV	Barriere	Gegenelektrode	$2\Delta_0/k_B T_C$	T_C^2/K
Ubs123	200	5.287	<19	~4.5	5.82	0.55	Al+Zr	Pb	(3.09)	3.9
U2S139	200		19	7		0.93	Al+Zr	Pb	(3.04)	6.1
U2S124	240	5.283	20	10.5	11.4	1.58	Al+Zr	Pb	3.49 \pm 0.03	
U3S136	200		22.7	14	14.4	2.0	Al+Zr	Pb	(3.32)	13.27
N3Sn79	300	5.293	22.9	14.3	14.01	2.5	Al	In	4.06	
U1Sn41	230		24.9	18.2		3.06	Al	In	3.9	
U2Sn76	300		25.3	18		3.26	Nb-Sn-Oxid	In	4.2	
U2S118	225	5.293	24.9	18		3	Al+Zr	Pb	3.87	
U2S111	225		24.5	17.8		3.25	Al+Zr	Pb	4.31	
U1S138	200		24.9	17.9		3.15	Al+Zr	Pb	4.08	
U4S126	220		25	18		3.2	Al+Zr	Pb	4.13	
Ubs115	225		24.9	18		3.2	Al+Zr	Pb	4.13	

Daraus resultiert ein irreführendes Verhältnis von $\frac{2\Delta_0}{k_B T_C}$. Diese Werte sind in der Tabelle mit Klammern versehen.

In der letzten Spalte sind die T_C -Werte angegeben, die mit den gemessenen Gaps der unterstöchiometrischen Proben zu einem $\frac{2\Delta_0}{k_B T_C}$ -Wert von 3.52 führen und deshalb dem T_C der Tunneldiode entsprechen.

4.1.2 Das Oxidationsverhalten der Barriere

Die Oxidationszeiten der Dioden waren je nach verwendeten Tunnelbarrieren unterschiedlich. Die längste Oxidationszeit benötigte die Diode mit einer Barriere aus natürlichem NbSn-Oxid. Nach einer Oxidationszeit von 30 Stunden betrug der Diodenwiderstand 70Ω . Solche langen Oxidationszeiten sind bei natürlichen NbSn-Oxiden üblich (z.B. Moore et al. (1979)).

Schichten mit reiner Al-Overlayer wurden mehrere Minuten bis zu 20 Stunden oxidiert. Die Widerstände dieser Dioden lagen im Bereich $<1 \Omega$ bis zu 50Ω . Die kürzesten Oxidationszeiten benötigten die Dioden mit ZrAl-Overlayer, sie betrug typisch etwa 10 Minuten. Die Widerstände dieser Dioden lagen im Bereich zwischen 100Ω und mehreren $k\Omega$.

Die Dioden wurden meist in Raumluft und bei Raumtemperatur oxidiert. Da jedoch die Dioden mit reiner Al-Overlayer auch nach einer Oxidationszeit von 20 Stunden noch verhältnismäßig niederohmig waren, wurden einige dieser Dioden 60 sec lang einer Ozonatmosphäre ausgesetzt. Die Widerstände dieser Dioden waren jedoch nicht signifikant höher als die derjenigen Dioden, die in Raumluft oxidiert waren. Daraus kann der Schluß gezogen werden, daß das Oxidationsverhalten der Overlayer unabhängig ist von der Reaktivität der die Probe umgebenden Atmosphäre.

Außerdem deutet dieses Verhalten darauf hin, wie in Kapitel 4.1.1 bereits für das Verhalten der σ_n^{-1} -Charakteristiken beschrieben wurde, daß die Benetzungsdicke der reinen Al-Overlayer geringer ist als die einer ZrAl-Overlayer. Dies ist konsistent mit einem Ergebnis von Geerk (1982), der bei Nb_3Ge -Tunnelnioden mit Al-Overlayer feststellte, daß die effektive Benetzungsdicke von Al auf Nb_3Ge höchstens etwa 5 \AA betrug. Diese Dicke der Overlayer

genügt nicht zur Präparation optimaler Dioden.

4.1.3 Gegenelektroden

Anders als die unterschiedlichen Oxidationsbedingungen hatte die Wahl der Gegenelektrode einen großen Einfluß auf den Widerstand und auch auf den ohmschen Leckstrom der Dioden. Da auch die Wahl der Barriere den Diodenwiderstand beeinflusst, gelten die folgenden Ergebnisse für Dioden mit ZrAl-Barriere.

Tunneldioden mit Al als Gegenelektrode zeichneten sich durch geringe Leckströme aus, der Widerstand war jedoch stets kleiner als 40Ω . Außerdem neigen Tunneldioden mit Al-Gegenelektrode zur Bildung von Weak Links oder überhaupt zur Bildung von Kurzschlüssen und sind daher für eine reproduzierbare Diodenpräparationstechnik nicht gut geeignet.

Dioden mit In-Gegenelektroden zeigten Widerstände zwischen 1Ω und 50Ω . Dioden mit Widerständen unterhalb von 5Ω können mit den hier verwendeten Netzwerken nicht mehr zufriedenstellend gemessen werden. Außerdem zeigt sich bei niederohmigen Proben ($< 10 \Omega$) eine große Verschiebung zwischen den Meßkurven im normal- und supraleitenden Zustand, da der Restwiderstand der normalleitenden Schicht vergleichbar mit dem Widerstand der Zuleitungsdrähte wird, so daß die im supraleitenden Zustand gemessenen Charakteristiken nicht mehr mit Hilfe der Normalleitungscharakteristik normiert werden können.

Als geeignetste Gegenelektrode erwies sich Blei. Die Widerstände der Dioden mit dieser Gegenelektrode lagen typisch im Bereich $300 \Omega - 2 \text{ k}\Omega$. Die "ohmschen" Leckströme waren typisch kleiner als 1% des normalen Tunnelstromes. Die Tatsache, daß Blei die höchsten Tunnelwiderstände erzeugt, ist konsistent mit der Beobachtung von Liehr (1982) an Dioden von Typ Metall/Al-Oxid/Pb. Die Deutung ist, daß Pb sich über monomolekulare Lagen organischer Verunreinigungen auf der Schichtoberfläche (z.B. Ameisensäure aus der Laborluft oder Pumpenöl aus dem Aufdampfpumpstand) legt, während Al und In in diese

monomolekulare Schicht eindringen. So ist der Peak im Energiebereich zwischen 370 und 380 meV (bei derselben Energie liegt das Signal der C-H-Streckschwingung) in der zweiten Ableitung einer Normalleiter-Normalleiter-Diode mit Bleigegegenelektroden stärker als beispielsweise mit Indiumgegenelektroden.

4.2 Tunnelrohdaten und reduzierte Zustandsdichten

4.2.1 Messungen im Bereich der Energielücke

Abbildung 4.2.1 a zeigt die $\frac{dI}{dV}$ -Charakteristik einer der hinsichtlich der Leckströme besten Tunnelioden dieser Arbeit im Spannungsbereich der Energielücke, sowohl für den Fall der supraleitenden als auch der normalleitenden Bleigegegenelektrode. Bei $U=0$ mV isoliert die Barriere nahezu ideal. Der Fremdphasenleckstrom ist kleiner als 1 % der Tunnelleitfähigkeit im normalleitenden Zustand der Diode.

Abbildung 4.2.1 b zeigt die I-V-Charakteristik derselben Diode. Der Tunnelstrom weit oberhalb des Energiegaps (extrapoliert in den Gapbereich) ist 10^4 mal größer als der "ohmsche" Leckstrom. Oberhalb der Gapsumme $\Delta_{Pb} + \Delta_{Nb_3Sn} \approx 5$ meV tritt kein "Proximity-Knie" auf, d.h., der Proximity-Effekt dieser Probe ist deutlich kleiner als bei den Nb_3Sn -Dioden von Shen (1972) oder Moore (1978, 1980) beispielsweise, deren Dioden mit natürlichen Oxidbarrieren ein deutliches "Proximity-Knie" in den I-V-Charakteristiken aufwiesen. Diese Struktur wurde auch bei den Tunnelcharakteristiken der Dioden von Rudman (1982) beobachtet, der künstliche Si-Oxid-Barrieren auf Nb_3Sn verwendete.

Neben der in Kapitel 3.2.2 beschriebenen Methode der Entfaltung der Gaphäufigkeitsverteilung kann das Energiegap von Nb_3Sn aus der $\frac{dI}{dV}$ -Charakteristik direkt bestimmt werden. Der Abstand der beiden Leitfähigkeitsspitzen der Supraleiter-Supraleiter-Charakteristik in Abbildung 4.2.1 c ist $2 \cdot (\Delta_{Nb_3Sn} + \Delta_{Pb})$. Das Bleigap wurde an einer Pb-Al-Diode möglichst genau bestimmt, es ergab sich ein Gapwert von $\Delta_{Pb} = 1.37$ meV. Dieser Gapwert ist für Blei auf 0.01 meV reproduzierbar. Für das Nb_3Sn -Gap in der Abbildung folgt $\Delta_{Nb_3Sn} = 3.15$ meV.

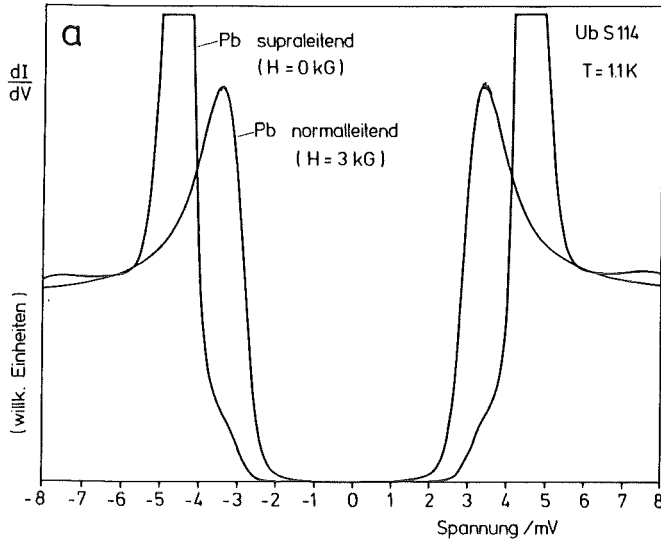
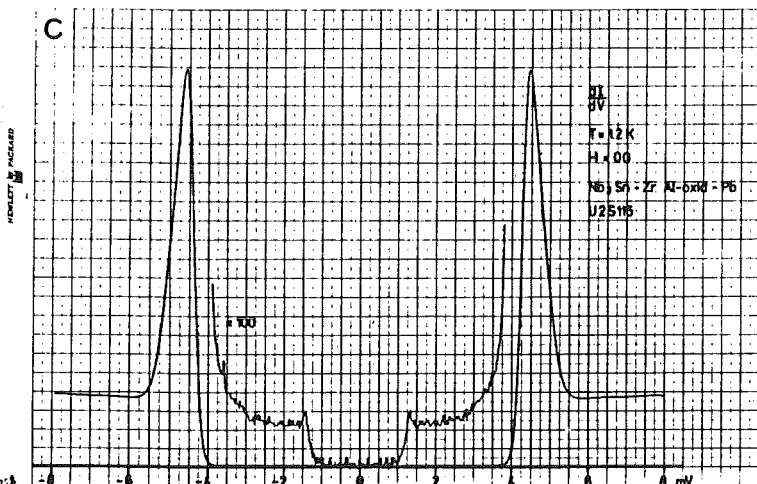
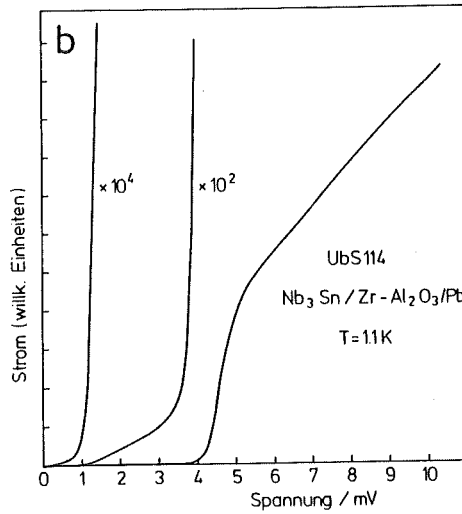


Abb. 4.2.1:

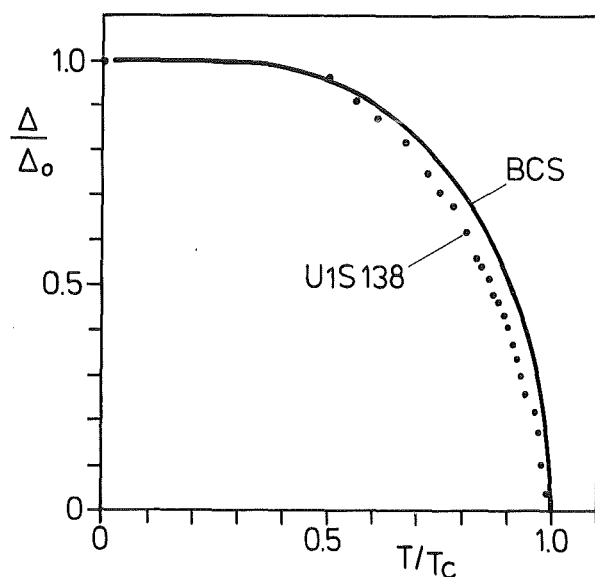
$\frac{dI}{dV}$ -Charakteristik einer Nb_3Sn -Diode (a)

I-V-Charakteristik derselben Diode (b)

$\frac{dI}{dV}$ -Charakteristik einer Nb_3Sn -Diode mit supraleitender Gegenelektrode (c)



Die Temperaturabhängigkeit des Energiegaps kann zur Bestimmung der Übergangstemperatur zur Supraleitung ausgenutzt werden. Bei bekannter Temperatur kann aus der Leitfähigkeit bei $V = 0$ mV der Wert des Energiegaps $\Delta(T)$ bestimmt werden (Bermon 1964). Diese Methode der Gapbestimmung ist nur bei Temperaturen nahe T_C geeignet. Im Idealfall liegt die Leitfähigkeit bei $V = 0$ mV als Funktion der Temperatur unterhalb von T_C auf einer Geraden, T_C ist der Temperaturwert, bei dem diese Gerade die parallel zur Abszisse verlaufende Gerade, die den Leitfähigkeitswert der Diode im normalleitenden Zustand darstellt, schneidet. Die Leitfähigkeitscharakteristiken der Nb_3Sn -Dioden weichen von diesem Idealfall ab. Abb. 4.2.2 zeigt die Abhängigkeit des reduzierten Gaps $\frac{\Delta(T)}{\Delta_0}$ einer Nb_3Sn -Diode von der reduzierten Temperatur $\frac{T}{T_C}$. Der Verlauf für einen BCS-Supraleiter (BCS, 1957) ist ebenfalls angegeben. Für starkkoppelnde Supraleiter ergibt sich ein Verlauf des reduzierten Gaps über der reduzierten Temperatur, der etwa um 1% von dem Verlauf für BCS-Supraleiter abweicht (Gasparovic 1966).



*Abb. 4.2.2:
Reduziertes Gap als
Funktion der reduzierten
Temperatur einer
stöchiometrischen Nb_3Sn -
Diode.*

Der Unterschied zwischen den Meßdaten und der theoretischen Kurve in Abb. 4.2.2 kann auf eine Verteilung der Energiegaps in der Nb_3Sn -Schicht zurückgeführt werden. Dies kann man in der folgenden Weise einsehen:

Abbildung 4.2.3 zeigt die Leitfähigkeit bei $V = 0$ mV der Diode aus Abbildung 4.2.2 als Funktion der Temperatur. Die gestrichelte und die gepunktete Kurve stellen den Verlauf der

Leitfähigkeit dar unter der Annahme eines einzigen Gaps bei 3.15 meV, d.h. einer Deltafunktion als Verteilung. Die gerechneten Kurven weichen stark von den Meßpunkten ab.

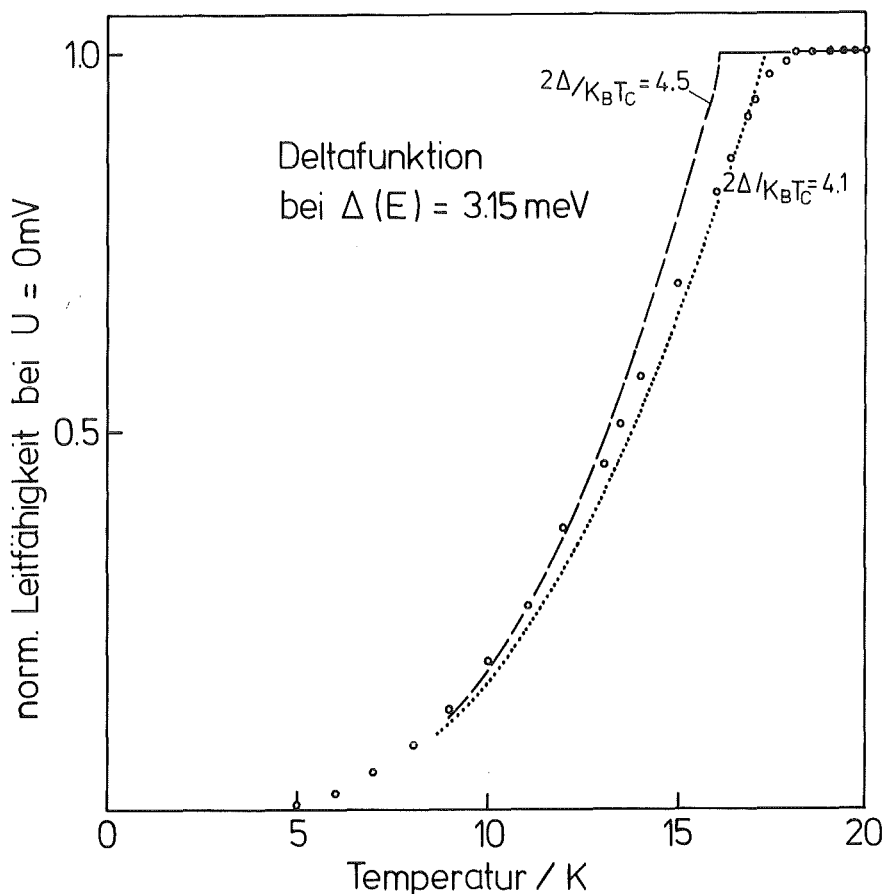


Abb. 4.2.3: Gerechnete und gemessene normierte Leitfähigkeit

In Abbildung 4.2.4 ist eine Simulation zu sehen, die die Meßpunkte sehr gut beschreibt und die unter Zugrundelegung einer Gapverteilungsfunktion der Nb₃Sn-Diode durchgeführt wurde.

Diese Übereinstimmung konnte jedoch nur durch Einführen zweier zusätzlicher Parameter erreicht werden. Der erste Parameter ist ein Abschneidewerte ($\Delta_{\text{cut off}}$) in der Gapverteilung (Abb. 4.2.5). Ein solcher Abschneidewert ist gerade bei Dioden mit hohem T_C vernünftig, da die aus der Messung bestimmte Energiegapverteilung einen Ausläufer zu hohen Gapwerten zeigt, der durch Ungenauigkeiten in der Entfaltungsprozedur zustandekommt.

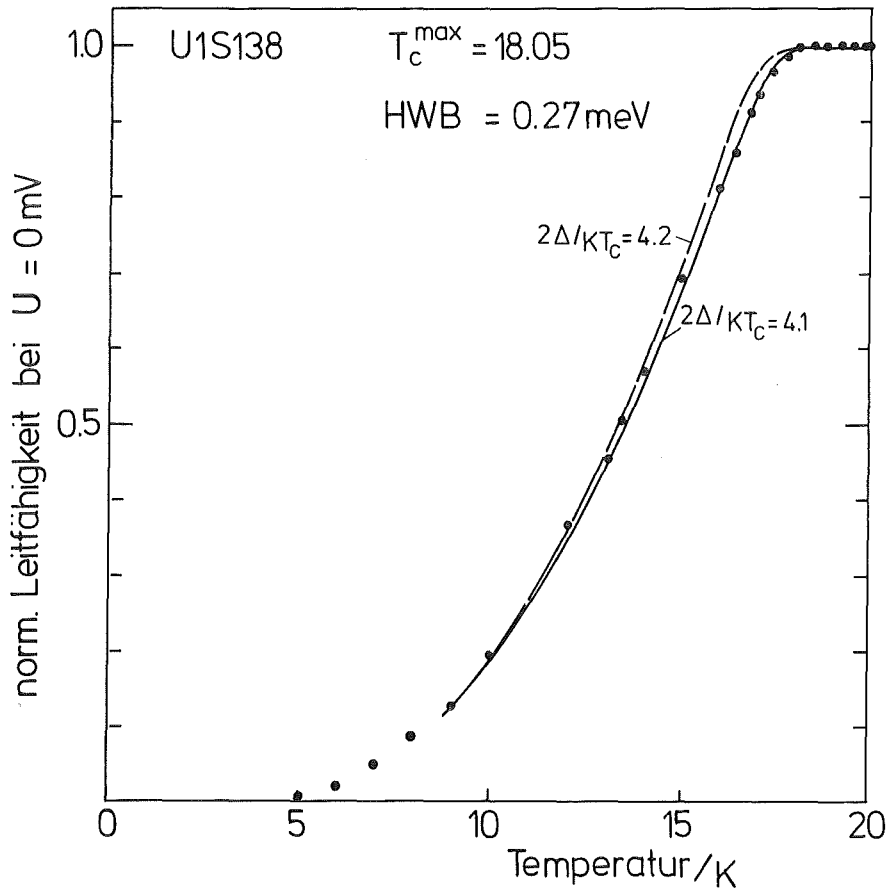


Abb. 4.2.4: Gerechnete und gemessene normierte Leitfähigkeit

Ohne Abschneidewert gäbe es in der Schicht Körner mit einem Gap von z.B. 4.2 meV und einem T_c von z.B. 25 K. Ein solcher Anteil im Material müßte sich als Effekt bei der induktiven und vor allem auch bei der resistiven T_c -Messung deutlich bemerkbar machen. Spuren von T_c -Werten oberhalb von 18.3 K wurden weder in dieser Arbeit gefunden noch ist solches in der Literatur für Nb_3Sn bekannt.

Der zweite Parameter der Rechnung in Abbildung 4.2.4 ist die wichtige physikalische Größe $\frac{2\Delta_0}{k_B T_c}$; weiter wurde angenommen, daß für jedes Gap in der Gapverteilung der Verlauf von Δ/Δ_0 über T/T_c für stark koppelnde Supraleiter gilt. Das Verhältnis $\frac{2\Delta_0}{k_B T_c}$ ist für das gezeigte Beispiel 4.1. Derselbe Wert ergibt sich für diese Diode, wenn in

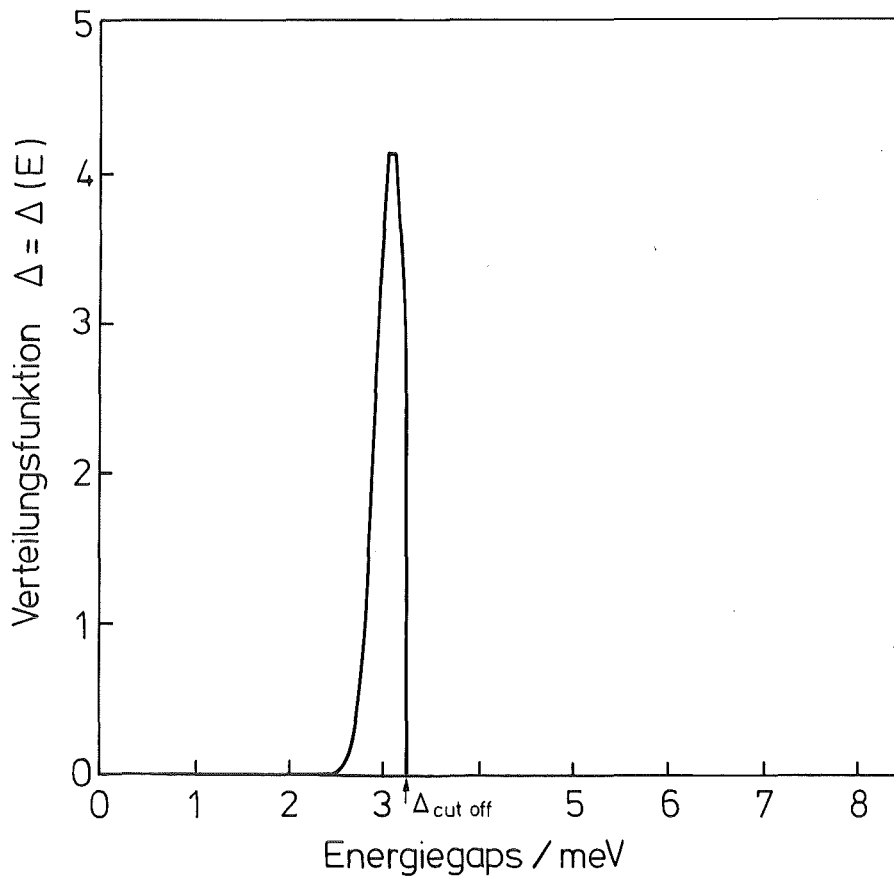


Abb. 4.2.5: Verteilungsfunktion des Gaps für die Kurven in Abb. 4.2.4.

dieses Verhältnis die gemessenen Gap- und T_c -Werte eingesetzt werden. Die Annahme eines anderen Wertes von $\frac{2\Delta_0}{k_B T_c}$ in der Rechnung führt zu keiner Übereinstimmung mit den Meßdaten.

4.2.2 Leitfähigkeiten im normalleitenden Zustand der Diode

Aus dem Verlauf der Leitfähigkeiten im normalleitenden Zustand bis zu hohen Spannungen kann man Aussagen über die effektive Höhe und die effektive Breite der Barriere erhalten.

In Abb. 4.2.6a ist $\frac{dI}{dV}$ für eine stöchiometrische Nb_3Sn -Diode aufgetragen. Das Leitfähigkeitsminimum, das bereits in Kapitel 3.2.2 diskutiert wurde, ist deutlich zu erkennen. Die untere, strukturlose Leitfähigkeitskurve gibt näherungs-

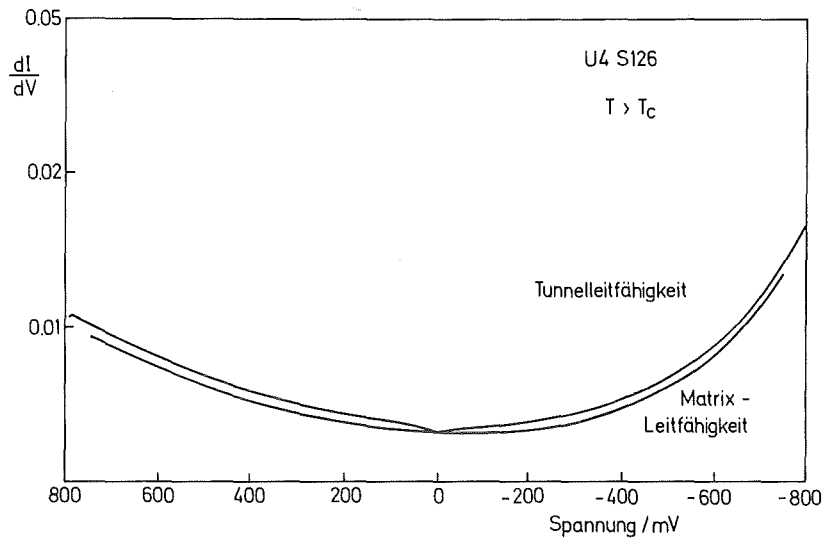


Abb. 4.2.6a: $\left. \frac{dI}{dV} \right|_n$ -Charakteristik einer stöchiometrischen Diode mit dem näherungsweise bestimmten Leitfähigkeitsuntergrund des Tunnelmatrizelementes.

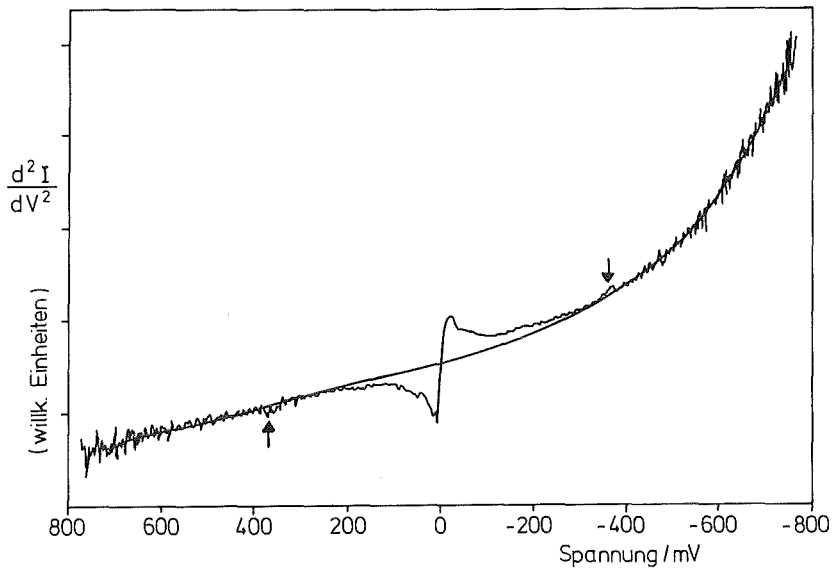


Abb. 4.2.6b: Quantitative zweite Ableitung, die durch numerische Differentiation der gemessenen $\left. \frac{dI}{dV} \right|_n$ -Charakteristik erhalten wurde. Die Integralfunktion der strukturlosen Kurve ist die strukturlose Kurve in 4.2.6a.

weise die Energieabhängigkeit des Tunnelmatrixelements an (in der Abbildung "Matrix-Leitfähigkeit" genannt). In Abbildung 4.2.6b wird skizziert, wie diese Leitfähigkeit bestimmt wird. Die strukturierte Kurve ist die zweite Ableitung $\frac{d^2 I}{dV^2}$, die durch numerische Differentiation der ersten Ableitung aus 4.2.6a gewonnen wurde. Die Strukturen von geraden und ungeraden Anteilen in der Leitfähigkeit in Bezug auf die Spannung sind in $\frac{d^2 I}{dV^2}$ deutlicher zu erkennen. Gerade Anteile in $\frac{dI}{dV}$ bei Spiegelung am Nullpunkt der Spannungsachse sind ungerade in $\frac{d^2 I}{dV^2}$, während ungerade Anteile in $\frac{dI}{dV}$ gerade Anteile in $\frac{d^2 I}{dV^2}$ sind. Gerade Anteile in $\frac{d^2 I}{dV^2}$ spiegeln unter gewissen Einschränkungen die Energieabhängigkeit der Selbstenergie wieder (Hermann und Schmid, 1968). Diese Beiträge sind jedoch sehr klein gegenüber den ungeraden Anteilen in der zweiten Ableitung. Ungerade Anteile in $\frac{d^2 I}{dV^2}$ sind inelastische Prozesse wie die Anregung von Barrierephononen, die Anregung von Phononen in der Oberfläche der Nb₃Sn-Schicht und der Blei-Gegenelektrode und die Anregung von Molekülschwingungen von adsorbierten Molekülen auf der Barrierenoberfläche. Die Struktur in $\frac{d^2 I}{dV^2}$ bei kleinen Energien (± 30 meV) wird auf die Anregung von Phononen in den Metalloberflächen von Nb₃Sn und Pb zurückgeführt. Eine solche Struktur ist gleichfalls bei Pb-, In-, Al- und Sn-Dioden beobachtet worden (Rowell et al. 1969). Abbildung 4.2.7 zeigt einen Ausschnitt einer gemessenen $\frac{d^2 I}{dV^2} \Big|_n$ -Charakteristik in einem Spannungsbereich von ± 80 mV. Es sind zwei Charakteristiken zu sehen, von denen die der unterstöchiometrischen Diode (U2S139, $\Delta_0 = 0.93$ meV) bei etwa 10 K, die der stöchiometrischen Diode (U2S111, $\Delta_0 = 3.25$ meV) bei etwa 20 K gemessen wurde. Aufgrund der geringeren Meßtemperatur (d.h. der geringeren Verschmierung der Fermiverteilungen der beiden Elektroden) sind in der Charakteristik der unterstöchiometrischen Diode Feinstrukturen zu erkennen, die im gleichen Energiebereich liegen wie die Hauptstrukturen der Nb₃Sn- und Blei-Phononen in den entsprechenden $\alpha^2(\omega)F(\omega)$ -Kurven. Abbildung 4.2.8 zeigt einen Vergleich der Struktur in $\frac{d^2 I}{dV^2}$ im Phononenenergiebereich mit dem Verlauf einer $\alpha^2 F(\omega)$ -Kurve einer stöchiometrischen Nb₃Sn-Diode mit Proximity-Effekt. Die beiden Kurven liegen offensichtlich

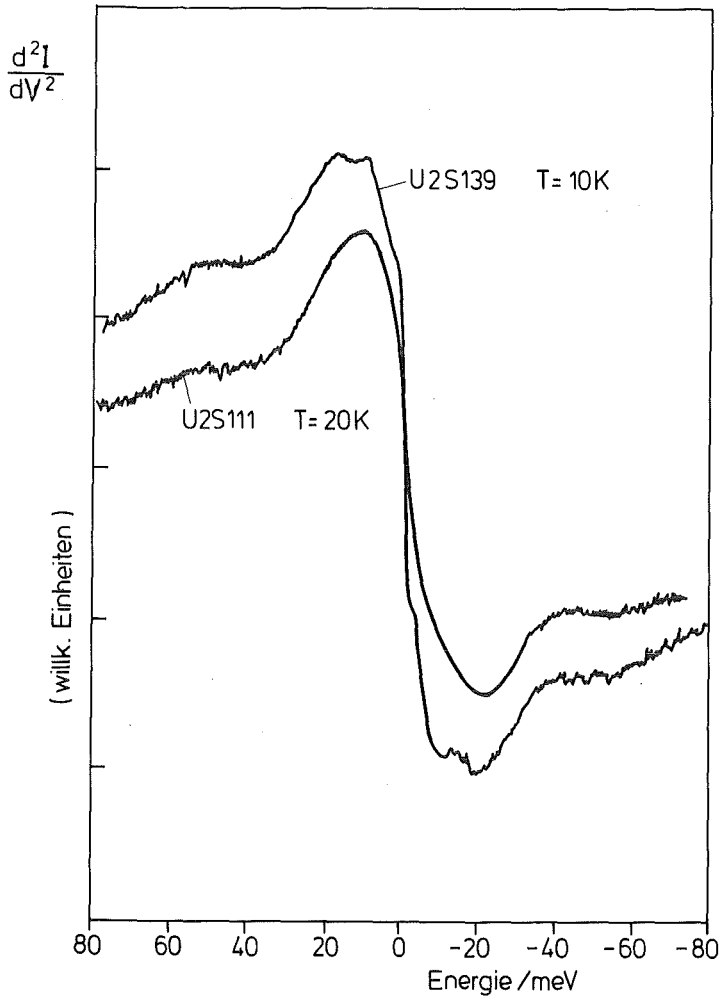


Abb. 4.2.7:
 $\frac{d^2 I}{dV^2}$ -Charakteristiken
 im normalleitenden Zu-
 stand für eine unter-
 stöchiometrische Diode
 (U2S139, $T_C < 10$ K)
 und für eine stöchiome-
 trische Diode (U2S111,
 $T_C = 18$ K).

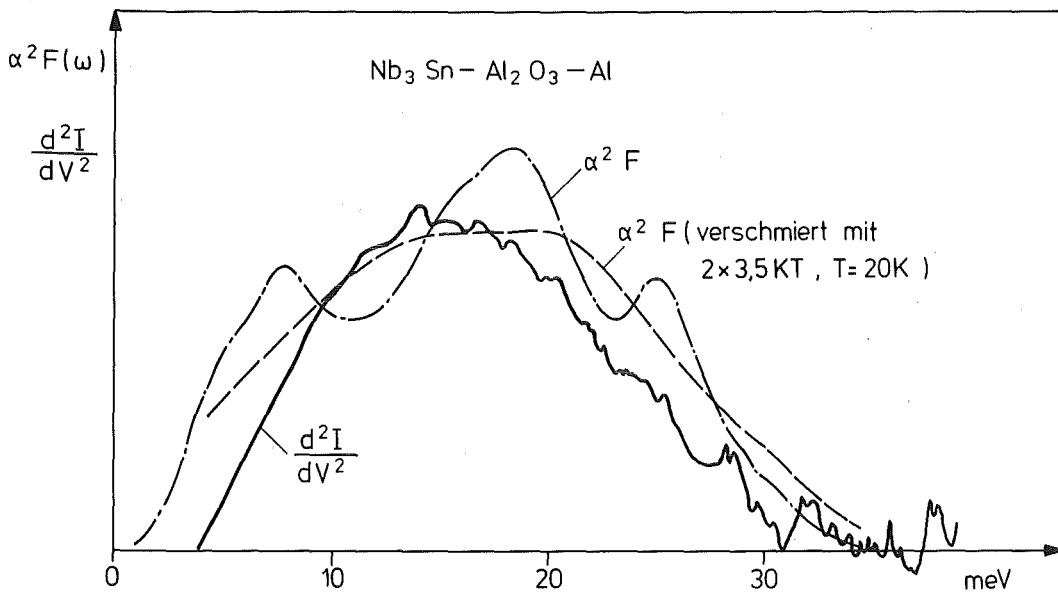


Abb. 4.2.8: Vergleich des Maximums in der normalleitenden $\frac{d^2 I}{dV^2}$ -Charakteristik mit dem Verlauf von $\alpha^2(\omega)F(\omega)$ und einem thermisch verbreiterten $\alpha^2(\omega)F(\omega)$ -Spektrum.

im gleichen Energiebereich. Die gestrichelte Kurve, die eine Faltung der $\alpha^2 F(\omega)$ -Kurve mit einer Gaußfunktion von der Breite $3.5 k_B T$ darstellt, zeigt eine gewisse Ähnlichkeit mit der Struktur in der zweiten Ableitung. Eine ähnliche Übereinstimmung von $\alpha^2 F(\omega)$ und dieser Struktur findet man auch bei Nb-Tunnelcharakteristiken (Geerk 1983, wird veröffentlicht).

Außerhalb des Nb_3Sn - und Pb-Phononenenergiebereichs in Abbildung 4.2.6b findet man bis etwa 150 mV Beiträge von Aluminiumoxidphononen der Barriere (Liehr 1982). Bei höheren Spannungen zwischen 360 und 370 mV ist ein definierter Peak zu erkennen, der bei der Energie der C-H-Streckschwingung (366 meV) liegt. Dies zeigt, daß vor dem Aufdampfen der Gegenelektrode Spuren organischer Moleküle aus der umgebenden Atmosphäre an der Schichtoberfläche adsorbiert wurden. Das Vorhandensein dieses Peaks ist außerdem ein Beweis dafür, daß zumindest bis zu dieser Spannung der weit überwiegende Teil der Leitfähigkeit tatsächlich eine Tunnelleitfähigkeit ist.

Oberhalb von etwa 400 mV ist die zweite Ableitung in Abb. 4.2.6b praktisch strukturlos, und man kann annehmen, daß der Verlauf dieser Kurve nun den Verlauf angibt, der durch das Tunnelmatrixelement hervorgerufen wird. Die glatte Kurve in Abb. 4.2.6b, die in der in Kapitel 3.2.2 beschriebenen Weise bestimmt wurde, beschreibt näherungsweise die Energieabhängigkeit des Tunnelmatrixelements über den gesamten Spannungsbereich. Die Integralfunktion dieser Krueve ist die strukturlose Leitfähigkeitskurve in Abb. 4.2.6a. Im Idealfall einer Rechteckbarriere hängt diese Leitfähigkeit quadratisch von der angelegten Spannung ab; die Ableitung dieser Leitfähigkeit nach der Spannung ist eine Gerade. Die Abbildungen 4.2.6a,b und Abbildung 4.2.9 zeigen, daß die Tunnelbarrieren der Nb_3Sn -Dioden in Wirklichkeit eine wesentlich kompliziertere Form haben.

In Abbildung 4.2.9 sind die hinsichtlich der inelastischen Phononenprozesse (und der ungeraden Anteile in der Leitfähigkeit) korrigierten Leitfähigkeiten einer Schar von Dioden des Typs $Nb_3Sn/ZrAl$ -Oxid/Pb dargestellt. Trotz der deutlichen Abweichung der Leitfähigkeiten vom quadratischen Verlauf wurden nach der einfachen Simmons-Formel (1963, Rowell 1969, Brinkman et al. 1970) die Höhe

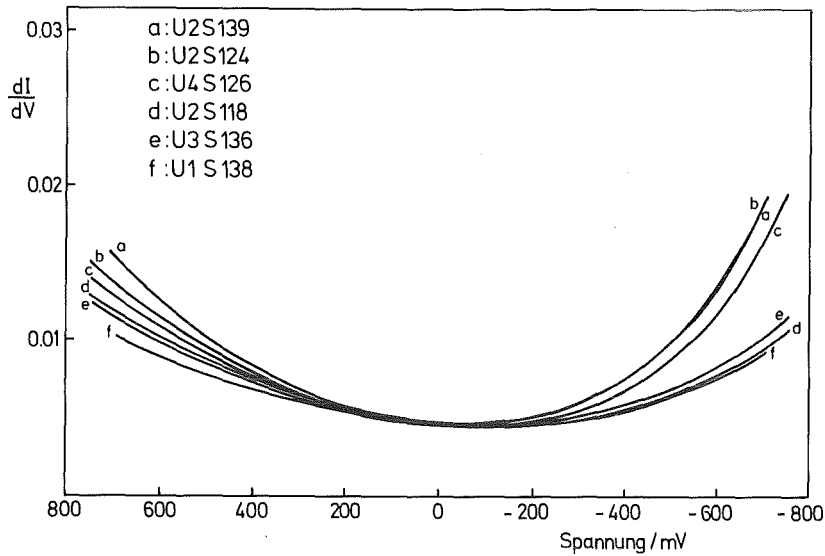


Abb. 4.2.9: Korrigierte Leitfähigkeiten für verschiedene Nb_3Sn -Dioden.

und die Breite der Barrieren über einen einfachen Parabelfit bei kleinen Spannungen abgeschätzt. Die so erhaltenen Werte sind in Tabelle 3 zusammengestellt. Die Dioden mit den größten Abweichungen vom Parabelverlauf sind mit einem * gekennzeichnet. In der positiven Spannungsrichtung haben alle Dioden ungefähr dieselbe effektive Höhe, in der negativen Spannungsrichtung sind die effektiven Höhen, besonders bei den mit * gekennzeichneten Dioden, geringer als in der Tabelle angegeben. Moodera (1982) erhält für reine Al_2O_3 -Barrieren Werte für die Höhe und die Breite der Barrieren ($\phi = 2.4 \text{ eV}$, $d = 10 \text{ \AA}$), die mit den abgeschätzten Barrieredaten in Tabelle 3 gut übereinstimmen. Das Leitfähigkeitsminimum, durch Anregungsprozesse von Phononen in der Nb_3Sn - und der Blei-Elektrode verursacht, hat dieselbe Stärke wie die phononeninduzierten Strukturen in der Supraleiter-Charakteristik. Es zeigt sich, daß unterschiedliche Barrierenhöhen und unterschiedliche Leckströme der Dioden keinen merklichen Einfluß auf die Stärke des Minimums haben. Dies in Abbildung 4.2.10 zu erkennen. Die $\left. \frac{dI}{dV} \right|_n$ -Charakteristik der unterstöchiometrischen Diode (U2S139) verläuft steiler als die der stöchiometrischen Diode (U1S138).

Tabelle 3 Barrieredaten einiger Nb₃Sn-Dioden, die unter optimalen Bedingungen präpariert wurden.

Probe	Gap (meV)	Barrieren- dicke (Å)	Barriere- höhe (eV)	Parabelscheitel bei (mV)	nominale Barrieren- dicke Zr+Al	Verhältnis Zr:Al
*U22S139	0.93	13.7	2.4	-41	120	75:25
*U2S124	1.58	15	2.1	-46	120	50:50
U3S136	2.0	13.4	2.7	-62.5	100	75:25
U2S118	3.0	13.8	2.4	-107.5	70	50:50
U1S138	3.15	14.8	2.1	- 92.5	120	75:25
*U4S126	3.2	14.8	2.0	- 61.3	120	50:50

Die Differenz zwischen der Tunnelleitfähigkeit und der korrigierten Leitfähigkeit ist jedoch bei beiden Dioden gleich groß. Beide Dioden wurden unter optimalen Bedingungen präpariert, und die ohmschen Leckströme der Dioden sind $< 1\%$ der Normalleitfähigkeit. Die durch Fremdphasen in Nb_3Sn hervorgerufenen Leckströme sind für beide Dioden ebenfalls gering ($< 1\%$). Andere Erklärungsversuche dieses Leitfähigkeitsminimums, etwa durch lokalisierte Zustände in der Barriere (Halbritter 1982), verlangen meines Erachtens jedoch eine starke Abhängigkeit der Form des Minimums von der Stärke der Leckströme und auch von den Barrierenhöhen und -formen. Eine solche Abhängigkeit wurde jedoch weder bei Nb_3Sn -Dioden noch bei Nb-Dioden (Geerk et al., wird veröffentlicht) beobachtet.

Anders als bei den Messungen von Rowell et al. (1969) an Blei-Dioden zeigt sich, daß die Korrektur der Leitfähigkeiten in der oben beschriebenen Weise für Nb_3Sn -Dioden einen merklichen Einfluß auf die reduzierte Zustandsdichte hat. Dies liegt sowohl an der Stärke der inelastischen Phononenprozesse als auch an der großen Energielücke von Nb_3Sn , die zu einer relativ großen Verschiebung der inelastischen Phononenbeiträge bei der Korrektur der Leitfähigkeit im supraleitenden Zustand der Diode führt.

Der größte Effekt auf die reduzierte Zustandsdichte wurde bei unterstöchiometrischen Nb_3Sn -Dioden beobachtet. In Abb. 4.2.11 sind reduzierte Zustandsdichten für eine Nb_3Sn -Diode mit 19 at% Sn ($\Delta_0 = 0.93$ meV) aufgetragen, die mit und ohne Korrektur der Leitfähigkeiten (im wesentlichen hinsichtlich der inelastischen Phononenprozesse) erzeugt wurden. Die Korrektur führt zu einer Verschiebung der reduzierten Zustandsdichte zu positiven Werten und zu einer Verstärkung des Überschwingens in N_{red} bei hohen Energien. Die Stufenhöhen in N_{red} bleiben jedoch unverändert. Es zeigt sich, daß bei unterstöchiometrischen Dioden die Größe

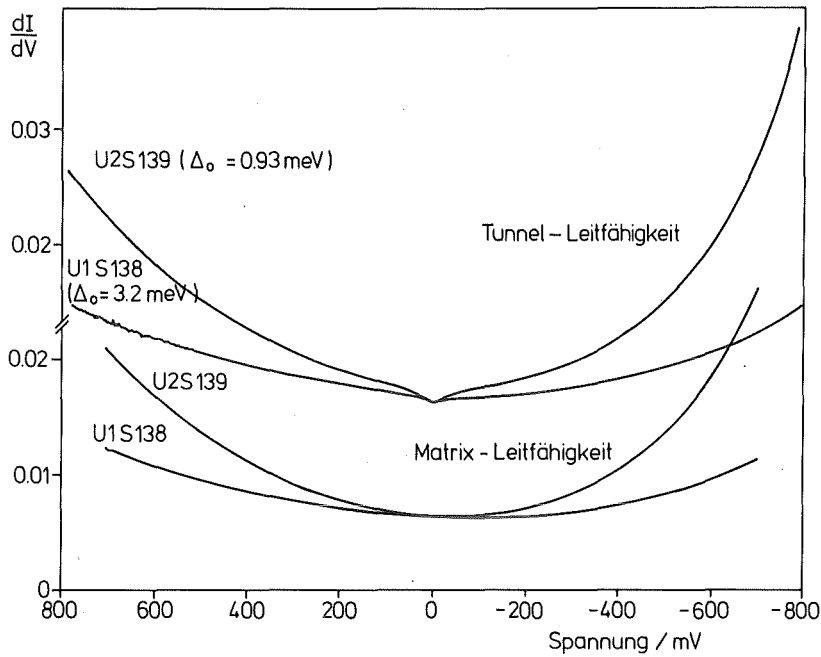


Abb. 4.2.10: Vergleich der Leitfähigkeiten einer stöchiometrischen und einer unterstöchiometrischen Diode

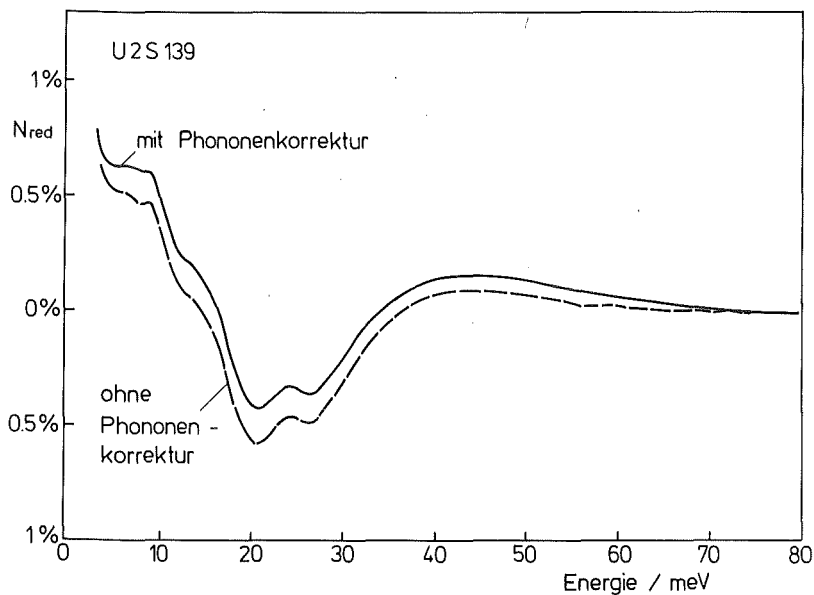


Abb. 4.2.11: Reduzierte Tunnelzustandsdichte einer unterstöchiometrischen Diode mit 19 at%Sn ($\Delta_0 = 0.93$ meV) mit und ohne Korrektur der Leitfähigkeit hinsichtlich inelastischer Phononenprozesse.

der inelastischen Phononenbeiträge etwas überschätzt wird. Möglicherweise spielen bei den unterstöchiometrischen Dioden Anderson-Lokalisierungseffekte im Supraleiter (Abrahams et al. 1979) eine gewisse Rolle. Bei Nb_3Al -Dioden (Geerk, priv. Mitt.) mit starkem Proximity-Effekt (Proximityschicht-Dicke $d \approx 30 \text{ \AA}$) zeigen die $\left. \frac{dI}{dV} \right|_n$ -Kurven ähnliche Charakteristiken wie bei solchen Lokalisierungseffekten (z.B. McMillan und Mochel, 1981).

Bei stöchiometrischen Nb_3Sn -Dioden schließlich hat die Korrektur keine derart starken Auswirkungen hinsichtlich der reduzierten Tunnelzustandsdichte.

4.2.3 Leitfähigkeiten im supraleitenden Zustand der Diode

Abbildung 4.2.12 zeigt die im supraleitenden und normaleitenden Zustand gemessenen $\frac{dV}{dI}$ -Charakteristiken zweier Dioden. Der Maßstab ist für beide Kurvenpaare gleich, das untere Kurvenpaar wurde der Klarheit wegen verschoben. Die Normalleitfähigkeit der Diode mit natürlicher Nb-Sn-Oxidbarriere ist wesentlich stärker gekrümmt als die Charakteristik der Diode mit Al-Oxidbarriere, was auf eine wesentlich geringere Höhe der natürlichen Nb-Sn-Oxidbarriere schließen läßt. Außerdem sind die phononeninduzierten Strukturen im supraleitenden Zustand dieser Diode strukturloser und schwächer als bei der Diode mit künstlicher Barriere, was auf massive Proximity-Effekte bei der Diode mit natürlicher Oxidbarriere hinweist.

Wesentlich mehr Feinstruktur als in den ersten Ableitungen läßt sich in den zweiten Ableitungen $\frac{d^2I}{dV^2}$ auflösen. Abbildung 4.2.13 zeigt eine verfeinerte Art der zweiten Ableitung, aus der die normaleitenden und die BCS-Untergründe eliminiert wurden. Dies ist die Ableitung der reduzierten Zustandsdichte, die auf die in Kapitel 3.2.2 beschriebenen Weise durch Anpassung der gemessenen zweiten Ableitung an die erste Ableitung erzeugt wurde.

Die beiden Peaks bei 24.8 meV und bei 8.6 meV sowie das breite Maximum um 18 meV sind bereits als Peaks in $\alpha^2F(\omega)$ (z.B. Shen 1972, Moore 1978) bekannt. Zusätzlich kann jedoch bei einer Energie von 5.5 meV eine Struktur lokalisiert werden, die durch die alleinige

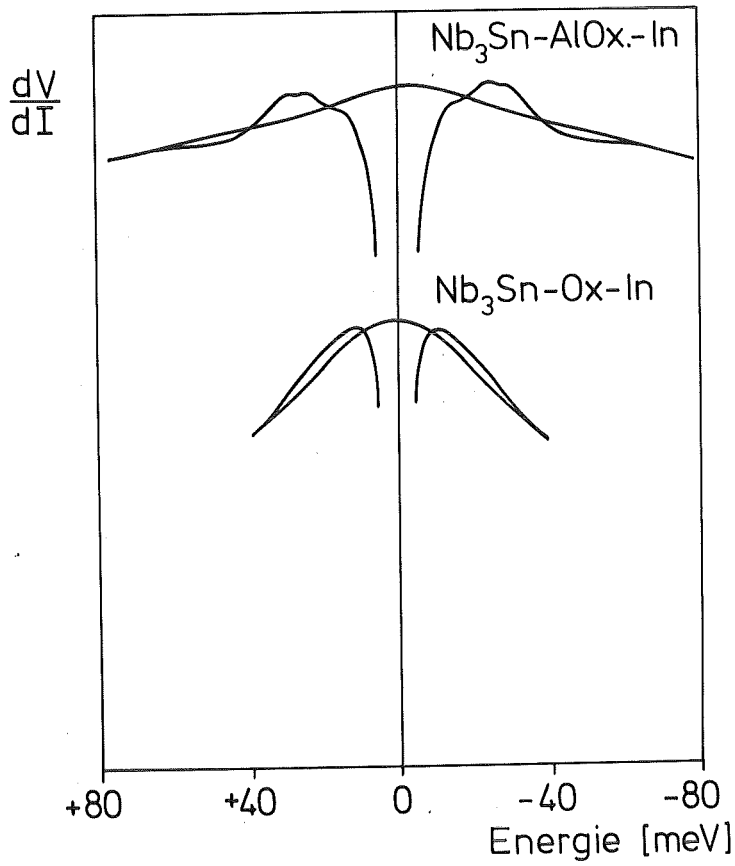


Abb. 4.2.12:

$\frac{dV}{dI}$ Charakteristik im supra- und normaleitenden Zustand

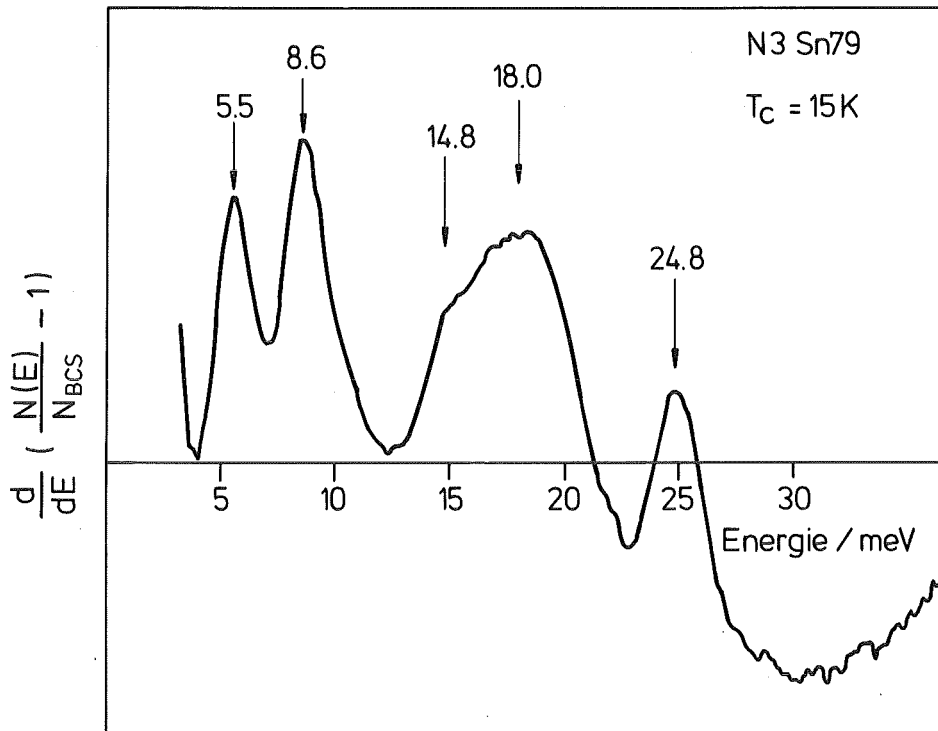


Abb. 4.2.13: Verfeinerte zweite Ableitung einer Nb_3Sn -Diode

Messung der ersten Ableitung nicht aufgelöst werden kann. Diese Struktur bildet einen Doppelpeak mit der 8.6 meV-Struktur, die selbst in der ersten Ableitung nur als eine schwache Stufe auf einem sehr steilen Untergrund zu erkennen ist. Phononendispersionsrechnungen von Weber (1983) sagen eine Anomalie des untersten LA-Zweiges der λ_1 -Phononen in der Mitte der Brillouin-Zone vorher, die in $\alpha^2 F(\omega)$ zu einer Struktur bei etwa 6 meV führen soll. Neutronenstreuungsmessungen an Nb_3Sn bei Raumtemperatur (Pintschovius 1983, wird veröffentlicht, Axe und Shirane 1983) konnten eine solche Anomalie nicht bestätigen. Bei anderen A15-Supraleitern wie z.B. Nb_3Ga wurde jedoch bei verschiedenen Phononenzweigen eine Energieabsenkung von bis zu 20% bei Tieftemperaturmessungen beobachtet, so daß bei Nb_3Sn die Ursache für den 5.5 meV-Peak in der zweiten Ableitung noch nicht geklärt werden kann.

Nach Weber soll die durch die λ_1 -Anomalie hervorgerufene Struktur noch im Bereich hoher Elektron-Phonon-Kopplung liegen. Dies scheint auch für die im Tunnelexperiment gefundene Struktur der Fall zu sein. In Abbildung 4.2.14 ist die verfeinerte zweite Ableitung einer stöchiometrischen Diode mit Proximity-Effekt aufgetragen und mit dem Verlauf einer Funktion $\tilde{\alpha}^2(\omega)$ verglichen, die durch Division von $\alpha^2 F(\omega)$ durch $F(\omega)$ erhalten wurde und die den Verlauf einer Elektron-Phonon-Kopplungsfunktion widerspiegelt, die einen Mittelwert über alle bei der Energie ω vorkommenden Phononen darstellt. Der Verlauf dieser $\tilde{\alpha}^2(\omega)$ -Kurve läßt auf eine hohe Elektron-Phonon-Kopplung im Bereich kleiner Energien schließen. Auf diese Kurven wird in der weiteren Diskussion noch eingegangen.

Ein weiterer Hinweis auf die Stärke der Elektron-Phonon-Kopplung in diesem Energiebereich ist das Verhalten der phononeninduzierten Strukturen als Funktion des Sn-Gehaltes. Sprungtemperatur und Sn-Gehalt sind korreliert: mit wachsender Unterstöchiometrie nimmt T_c ab (s. z.B. Devantay et al. 1981).

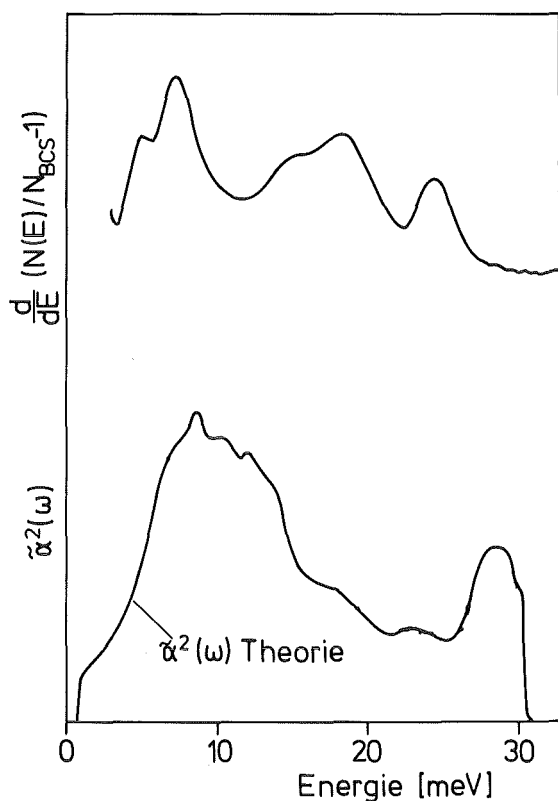


Abb. 4.2.14: Vergleich der Feinstruktur in der zweiten Ableitung mit dem Verlauf der Quotientenfunktion $\alpha^2(\omega)$ nach Weber (1983).

Abbildung 4.2.15 zeigt die verfeinerten zweiten Ableitungen von vier Nb_3Sn -Dioden mit unterschiedlichen Übergangstemperaturen zur Supraleitung. Die Schichtdaten lauten von oben nach unten: $T_c \cong 4.5 \text{ K}$, $\Delta_0 = 0.55 \text{ meV}$, 18 at% Sn; $T_c = 10.5 \text{ K}$, $\Delta_0 = 1.58 \text{ meV}$, 20 at% Sn; $T_c = 14 \text{ K}$, $\Delta_0 = 2 \text{ meV}$, 23 at% Sn $T_c = 18.3 \text{ K}$, $\Delta_0 = 3.2 \text{ meV}$, 25 at% Sn.

Die energetische Lage der beiden hinteren Peaks ändert sich nicht, nur die Feinstruktur im breiten Maximum zwischen 14 und 20 meV ändert sich in Abhängigkeit von der Zusammensetzung. Der Peak bei 8 meV bei der stöchiometrischen Probe ändert seine Lage stark und liegt bei der unterstöchiometrischen Diode mit einem Sn-Gehalt von etwa 18 at% bei einer Energie von etwa 11 meV. Die Verschiebung der Lage der niederenergetischen Struktur ist nicht so drastisch, die Peaklage verschiebt von 5.5 meV bei der stöchiometrischen Diode nach 6.5 meV bei der unterstöchiometrischen Diode. Für die Phononen, die zu den beiden niederenergetischen Peaks in $\frac{d^2 I}{dV^2}$ beitragen, kann man aus diesem Verhalten im Mittel eine höhere Elektron-Phononkopplung erwarten als für die Phononen, die zu den anderen Peaks in $\frac{d^2 I}{dV^2}$ beitragen. Das Vorliegen einer niederenergetischen Struktur in Nb_3Sn ist ein Hinweis auf

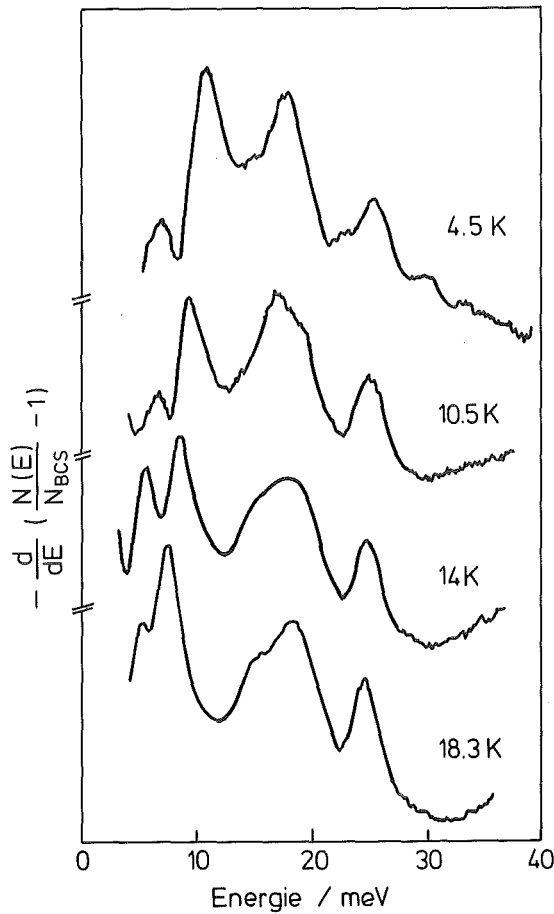


Abb. 4.2.15:

Verfeinerte zweite Ableitungen von Dioden mit unterschiedlichem Sn-Gehalt. Parameter ist die Übergangstemperatur zur Supraleitung.

eine Neigung zur Gitterinstabilität der Struktur. Stöchiometrisches Nb_3Sn zeigt bei einer Temperatur von ca. 40 K einen Übergang in eine leicht tetragonal verzerrte Kristallstruktur (Malifert 1967, Batterman und Barrett 1964, 1966, Flükiger 1980).

Vergleicht man die zweite Ableitung von Nb_3Sn mit der eines anderen A15-Supraleiters mit hoher Übergangstemperatur, z.B. Nb_3Ge (Geerk et al. 1982), so erkennt man einen qualitativ ähnlichen Verlauf dieser Kurven (Abb. 4.2.16). Die Strukturen im Energiebereich oberhalb von 15 meV liegen bei denselben Energien. Wie bei Nb_3Sn erkennt man auch bei Nb_3Ge eine Doppelpeakstruktur im Bereich kleiner Energien. Die Zuordnung dieser Struktur zu der in Nb_3Sn scheint deshalb gerechtfertigt, weil diese Doppelpeakstruktur bei Nb_3Ge eine ähnliche Stöchiometrieabhängigkeit zeigt wie bei Nb_3Sn .

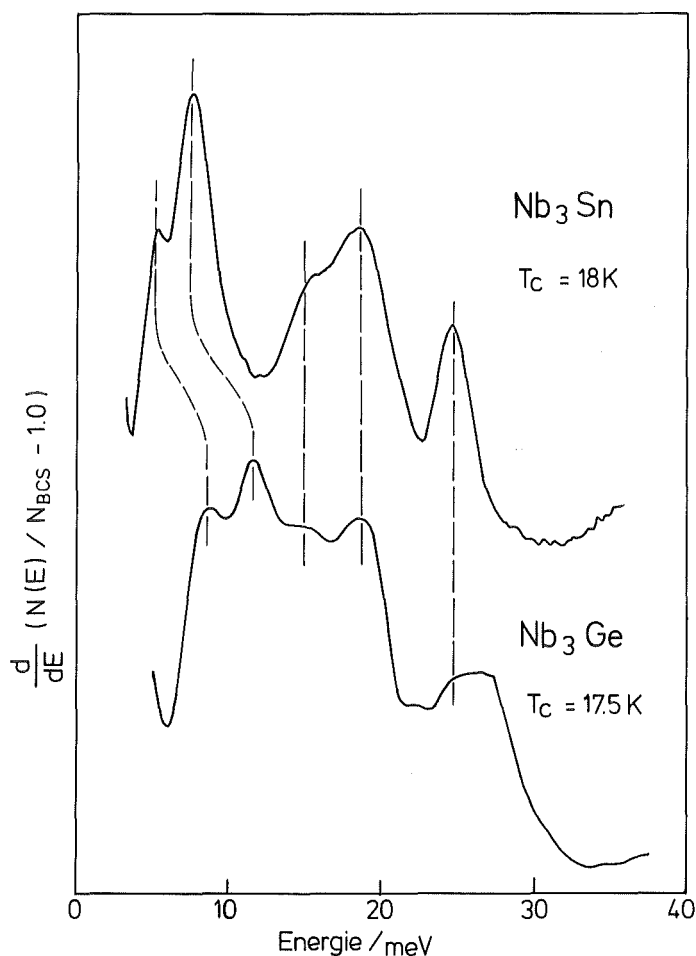


Abb. 4.2.16: Vergleich der zweiten Ableitungen von Nb₃Ge (Geerk et al. 1982) und Nb₃Sn.

4.2.4 Reduzierte Zustandsdichten

Die zentrale Größe des Tunnelexperiments ist die reduzierte Zustandsdichte. In Abbildung 4.2.17 sind die reduzierten Zustandsdichten zweier Dioden mit unterschiedlichen Stärken des Proximity-Effektes dargestellt. Im Verlauf der unteren Kurve (N3Sn79) sind deutlich Deformationen zu erkennen, die auf das Vorhandensein eines starken Proximity-Effektes schließen lassen: im Bereich unterhalb von 20 meV ist die Struktur nach negativen Werten verschoben und in der Stärke abgeschwächt, oberhalb von 20 meV steigt die Kurve sehr steil an. Die gestrichelte Kurve (U3S136) zeigt diese Deformationen nicht. Anhand eines Flächenarguments läßt sich zeigen, daß die reduzierte Zustandsdichte dieser Diode (U3S136) überhaupt frei von Deformationen herrührend von Proximity-Effekten ist:

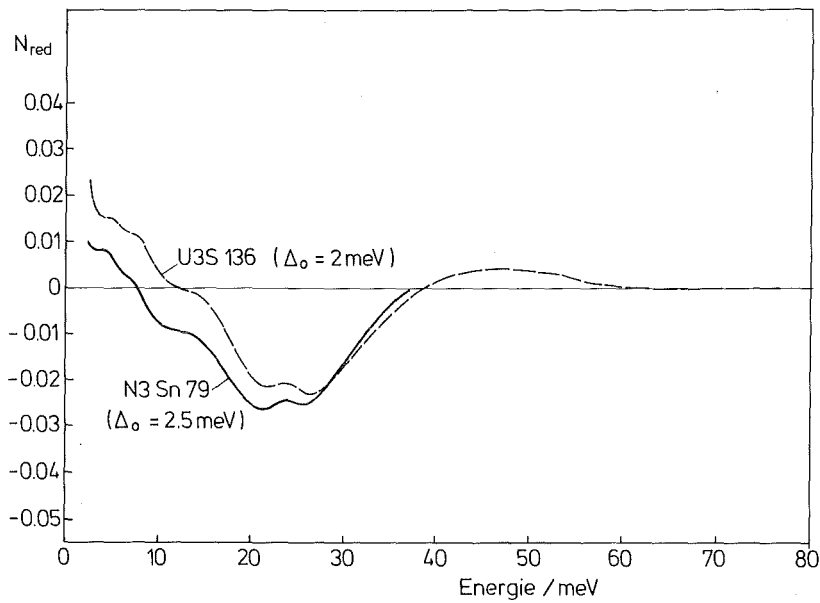


Abb. 4.2.17: Reduzierte Zustandsdichten einer optimalen Nb_3Sn -Diode (U3S136) und einer Nb_3Sn -Diode mit Proximity-Effekt (Nb_3Sn 79)

Wegen der Teilchenzahlerhaltung gilt für die Tunnelzustandsdichte einer idealen Diode:

$$\int_0^{\omega_c} N_T(\omega) d\omega = \omega_c \quad (\omega_c \text{ ist eine Frequenz weit oberhalb der Phononenenergien, z.B. } 80 \text{ meV}).$$

Dies gilt speziell auch für die BCS-Zustandsdichte

$$\int_0^{\omega_c} N_{BCS}(\omega) d\omega = \omega_c.$$

Mit $N_{red}(\omega) = \frac{N_T(\omega)}{N_{BCS}(\omega)} - 1$ ergibt sich schließlich

$$\int_0^{\omega_c} N_{red}(\omega) \cdot N_{BCS}(\omega) = 0 \quad (4.2.1)$$

Die Nb_3Sn -Dioden, für die diese Flächennorm erfüllt ist, werden in dieser Arbeit als optimal präparierte oder optimale Dioden bezeichnet.

In Abbildung 4.2.17 ergibt dieses Integral (4.2.1) für die Diode mit Proximity-Effekt einen Wert von -0.4 ± 0.02 , für die Diode U3S136 ergibt sich ein Wert von -0.02 ± 0.02 . Diese Diode ist also eine optimal präparierte Diode.

Anhand dieser Flächennorm läßt sich der eigentliche Fortschritt dieser Arbeit zeigen: die reduzierten Zustandsdichten von Dioden mit reiner Al-Overlayer zeigten immer einen negativen Wert dieser Norm von z.B. -0.4 (wie die Diode Nb3SN79 in Abb. 4.2.17 beispielsweise) oder noch größere negative Werte. Erst durch die Anwendung einer gemischten Zr-Al-Oxidbarriere konnten Dioden präpariert werden, für die diese Flächennorm ~ 0 ergab.

Das Ergebnis, daß für Proximity-Dioden die Flächennorm nicht erfüllt ist, bedeutet jedoch nicht, daß die Teilchenzahlerhaltung verletzt ist. Es ist vielmehr darauf zurückzuführen, daß sich ein Teil der Elektronen in Zuständen unterhalb des Energiegaps befindet (Arnold und Wolf 1978-1980). Weiter führt der Faktor $e^{-2d/l}$ in der Tunnelzustandsdichte (Kapitel 2.4) zu einer Abschwächung der Struktur bei kleinen Energien und damit zu einem Übergewicht der negativen Flächenanteile im mittleren Energiebereich.

Für die weitere Auswertung der reduzierten Zustandsdichten mittels des MMR-Inversionsprogramms ist die Kenntnis des Verlaufs von N_{red} bei kleinen Energien nahe 0 meV besonders interessant, da die quantitativen Ergebnisse der Analyse sehr empfindlich auf diesen Verlauf reagieren. Die Tunnelcharakteristiken werden daher, wie in Kapitel 3.2.2 beschrieben, bis in die Energielücke hinein gemessen. Nach der Auswertung der Charakteristiken von Nb₃Sn-Dioden wurde stets ein Anstieg von N_{red} unterhalb von etwa 3-4 meV beobachtet. Dies ist für drei stöchiometrische Dioden in Abb. 4.2.18 dargestellt. Offensichtlich skaliert die Stärke des Peaks unterhalb von 4 meV mit der Stärke des Proximity-Effektes der Diode, wie aus den angegebenen Proximity-Parametern abzulesen ist.

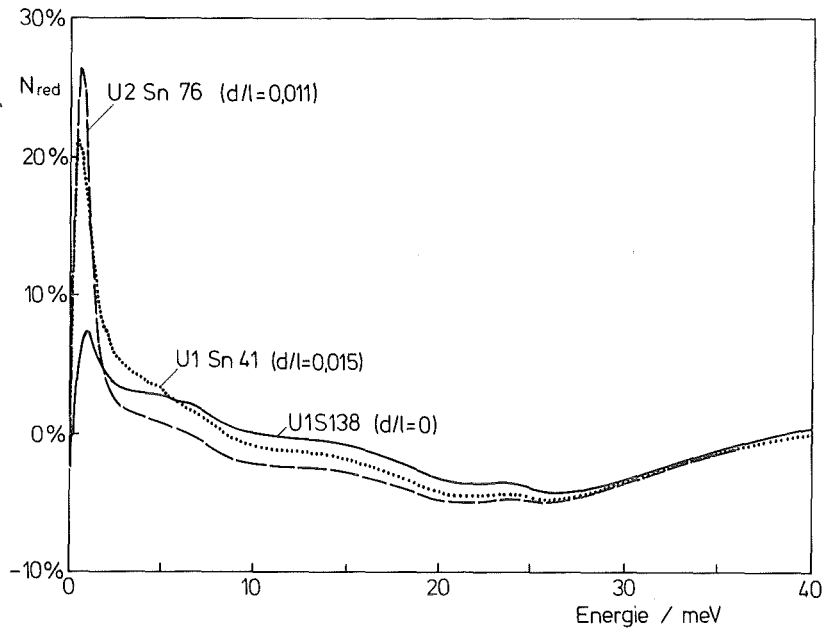


Abb. 4.2.18: Reduzierte Zustandsdichten von stöchiometrischen Nb₃Sn-Dioden mit unterschiedlicher Stärke des Proximity-Effektes

Aus diesem Grund ist es unwahrscheinlich, daß dieser Peak in N_{red} durch Phononen induziert wird. Es ist nicht auszuschließen, daß der Peak auf Normierungsprobleme bei der Auswertung zurückzuführen ist, obwohl beispielsweise Bleispektren, die denselben Auswerte- und Korrekturverfahren unterzogen wurden wie die Nb₃Sn-Spektren, diesen niederenergetischen Anstieg nicht zeigten.

Da die Herkunft des Peaks unterhalb von 4 meV noch nicht geklärt werden konnte, wurde in der MMR-Auswertung unterhalb dieser Energie ein quadratischer Verlauf für $\alpha^2 F(\omega)$ angenommen.

Bei der Berechnung der Flächennorm wurde die reduzierte Zustandsdichte unterhalb von 4 meV als konstant angenommen.

4.3 MMR-Inversionsergebnisse

In Abb. 4.3.1 werden die Eliashbergfunktionen von Nb_3Sn -Dioden mit starkem ($d/\ell = 0.13$) und schwächerem ($d/\ell = 0.02$) Proximity-Effekt verglichen. Das Ergebnis für die Diode mit $d/\ell = 0.13$ wurde von Wolf et al. (1980) veröffentlicht, die Diode mit $d/\ell = 0.02$ wurde im Rahmen dieser Arbeit hergestellt und ist eine Diode mit reiner Al-Oxidbarriere. Die beiden Kurven stimmen sowohl hinsichtlich der Stärke als auch hinsichtlich der Peaklagen sehr gut überein. Die kleine Beule bei etwa 5-6 meV in der niederenergetischen Flanke der durchgezogenen $\alpha^2 F(\omega)$ -Kurve ist der Beitrag der niederenergetischen Struktur, die durch Messung der zweiten Ableitung in den Nb_3Sn -Tunnelcharakteristiken lokalisiert werden konnte. Die Wolfsche Kurve wurde nur bis etwa 7 meV experimentell bestimmt und unterhalb dieser Energie durch einen quadratischen Verlauf angenähert. Die geringe Streuung der Meßkurve der Diode N1Sn79 im Vergleich zu den Daten von Wolf et al. zeigt, welcher Gewinn an Auflösung, neben der Lokalisierung von Feinstrukturen, durch die Messung und Verarbeitung der zweiten Ableitungen der Strom-Spannungs-Charakteristik von Tunnelkondensatoren möglich ist.

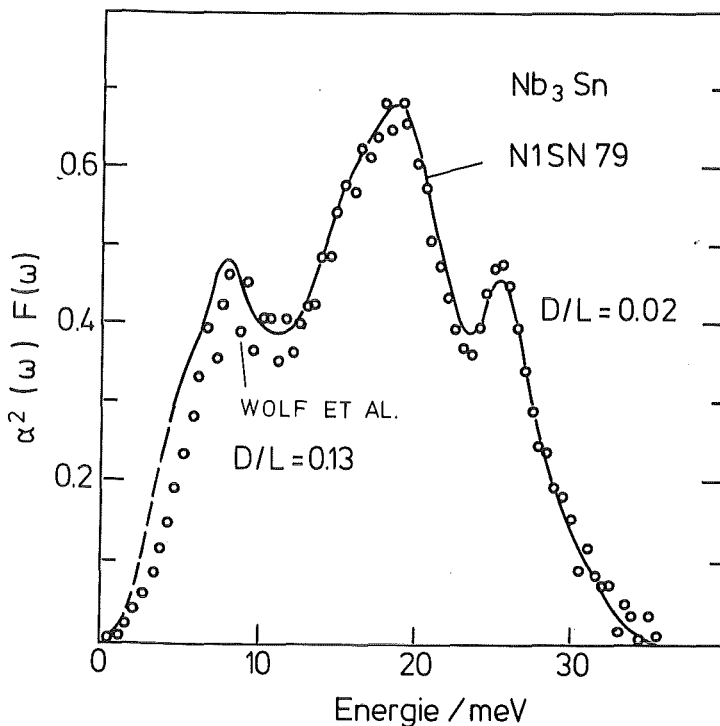


Abb. 4.3.1:
Eliashbergfunktionen für stöchiometrische Nb_3Sn -Dioden mit Proximity-Effekt von Wolf et al. (Punkte) und für eine Diode (N1Sn79) aus dieser Arbeit (durchgezogene Linie).

Im folgenden werden die Ergebnisse für optimal präparierte Nb_3Sn -Dioden dargestellt, d.h. von im Sinne von im Abschnitt 4.2.4 definierten Nb_3Sn -Dioden.

Zuerst werden die Ergebnisse für unterstöchiometrische Nb_3Sn -Dioden diskutiert. Abb. 4.3.2 zeigt die gemessene reduzierte Zustandsdichte einer optimalen Nb_3Sn -Diode mit etwa 19 at% Sn (durchgezogene Linie) und das im MMR-Programm generierte Spektrum (gepunktete Linie). Die Meßkurve wird durch die gerechnete Kurve sehr gut reproduziert, die reduzierte Zustandsdichte dieser Diode kann ohne jede Korrektur (hinsichtlich von Proximity-Effekten) durch die Eliashberggleichungen beschrieben werden, wie dies bisher nur für Nichtübergangsmetalle wie In, Sn oder Pb beispielsweise möglich war.

Die reduzierte Zustandsdichte dieser Diode wurde ohne die in Kapitel 3.2.2 beschriebene Korrektur hinsichtlich inelastischer

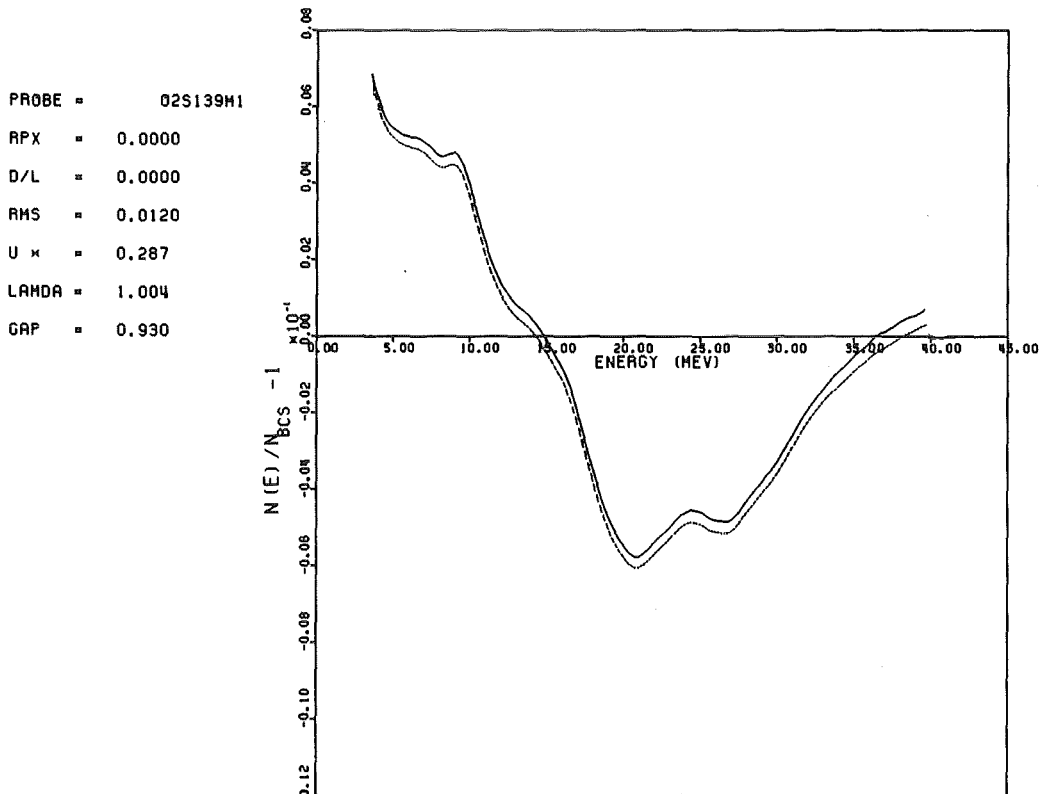


Abb. 4.3.2: MMR-Inversionsergebnis für eine optimale, unterstöchiometrische Nb_3Sn -Diode.

Phononenprozesse erzeugt. Wird diese Korrektur durchgeführt, reproduziert das MMR-Programm die Eingangsdaten ebenfalls gut bis auf eine (zulässige) Parallelverschiebung des generierten Spektrums. Die Ergebnisse für μ^* , λ , $\langle\omega\rangle$ und $\langle\omega^2\rangle$ ändern sich geringfügig, die Änderung ist in derselben Größenordnung wie die Unsicherheit, die im Tunnelexperiment auftritt bei einer unterschiedlichen Wahl des unteren Energie-Abschneidewertes des Eingangsspektrums, unterhalb dessen ein quadratischer Verlauf von $\alpha^2 F(\omega)$ angenommen wird.

In Abb. 4.3.3 sind zwei Eliashbergfunktionen dargestellt, die für zwei optimale unterstöchiometrische Dioden (19 at% bzw. 22 at% Sn) aus der MMR-Inversion (ohne Proximity-Korrektur) bestimmt wurden. Die reduzierten Zustandsdichten wurden unter Berücksichtigung der "Phononenkorrektur" (Kap. 3.2.2) ausgewertet.

Für die optimalen, unterstöchiometrischen Dioden ergeben sich die Werte, die in Tabelle 4 zusammengestellt sind.

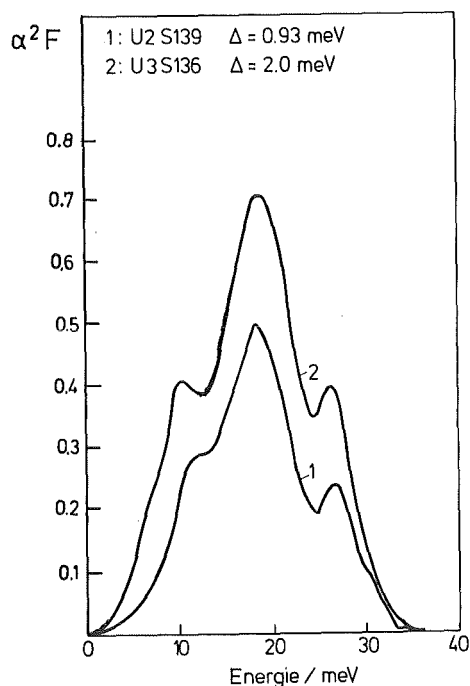


Abb. 4.3.3:
Eliashbergfunktionen
für unterstöchiometrische
Nb₃Sn-Dioden ohne
Proximity-Effekt

Tabelle 4 Einige Daten aus der MMR-Auswertung unterstöchiometrischer Proben

Probe	Gap/meV	T_c^{gemessen} /K	$T_c^{\text{gerechn.}}$ /K	rpx	d/l	ω_{co} /meV	ω_{ph} /meV	$\mu^*(\omega_{\text{co}})$	λ	$\langle \omega \rangle$	$\langle \omega^2 \rangle$
Ubs123	0.55	5.8(ind.)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
U2S139	0.93	7 (ind.)	7.58	0	0	119.4	32	0.2159	0.878	15.08	265.84
ohne Phononenkorrektur								0.2869	1.0	14.19	244.03
U2S124	1.58	10.5	11.6	0.005	0	119.4	33	0.2461	1.174	14.44	253.2
U3S136	2.0	14	14.68	0.005	0	119.4	33	0.342	1.497	14.08	243.21

Während die reduzierten Zustandsdichten der optimalen, unterstöchiometrischen Nb_3Sn -Dioden im Rahmen der Eliashberggleichungen zu verstehen sind, ergeben sich bei derselben Auswertung der Spektren optimaler, stöchiometrischer Dioden widersprüchliche Aussagen.

Ein erstes Ergebnis für die optimalen, stöchiometrischen Dioden ist, daß die Meßdaten nicht durch das MMR-Programm reproduziert werden können: die Eliashberggleichungen beschreiben diese reduzierten Tunnelzustandsdichten nicht. Dieser Sachverhalt ist in Abb. 4.3.4 zu erkennen.

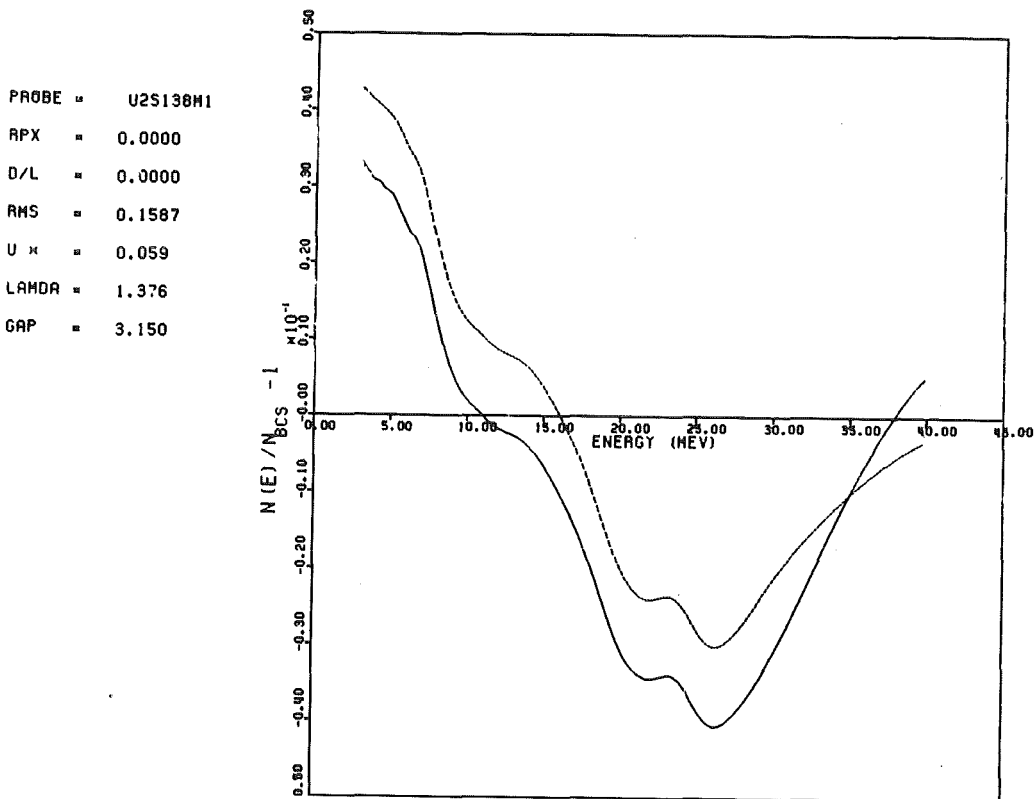


Abb. 4.3.4: Reduzierte Zustandsdichte einer optimalen, stöchiometrischen Nb_3Sn -Diode. Meßdaten: durchgezogene Linie, generiertes Spektrum: gestrichelte Linie.

Neben einer Parallelverschiebung, die im Rahmen des Inversionsprogramms zulässig ist, weicht die generierte Kurve von den Meßdaten im Bereich großer Energien (> 30 meV) deutlich ab. Das generierte Spektrum verläuft hier wesentlich flacher als die Meßdaten. Der steile Anstieg der gemessenen reduzierten Zustandsdichte in diesem Energiebereich (im folgenden als "Überschwinger" bezeichnet) ist jedoch charakteristisch für alle optimalen, stöchiometrischen Nb_3Sn -Dioden, wie in Abb. 4.3.5 gezeigt wird (die Kurven in der Abbildung sind der Klarheit wegen gegeneinander verschoben. Oberhalb von $E = 70$ meV ist $N_{red} = 0$).

Für eine solche mangelnde Übereinstimmung wie in Abb. 4.3.4 wurden bisher immer Proximity-Effekte verantwortlich gemacht. Die reduzierten Zustandsdichten der optimalen, stöchiometrischen Dioden erfüllen das wichtige Flächenargument (Kap. 4.2) jedoch so gut, daß man zu der Ansicht kommen kann, daß die Deformationen in N_{red} nicht durch Proximity-Effekte hervorgerufen werden, sondern auf Effekte anderer physikalischer Natur zurückzuführen sind.

Trotz dieses Widerspruchs wurden die reduzierten Tunnel-

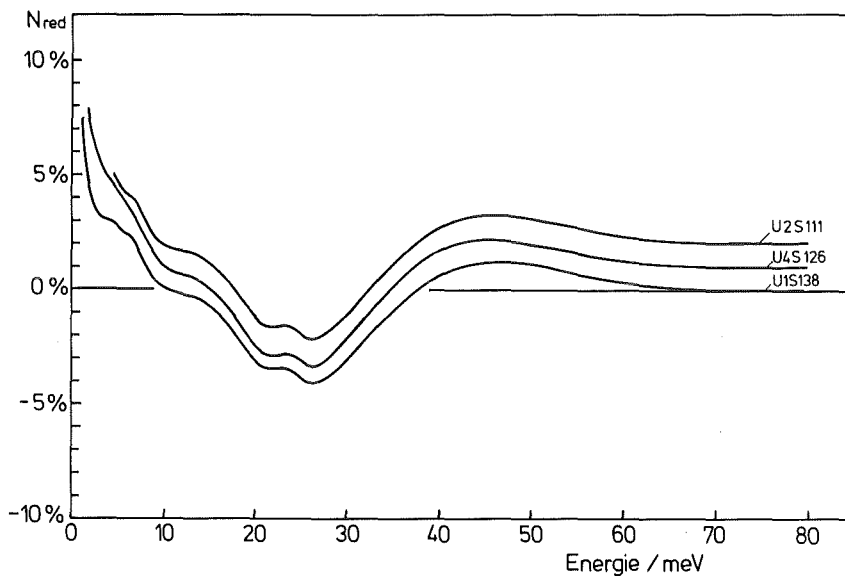


Abb. 4.3.5: Reduzierte Zustandsdichten von optimalen, stöchiometrischen Nb_3Sn -Dioden. Die Kurven sind der Klarheit wegen verschoben.

zustandsdichten dieser optimalen, stöchiometrischen Dioden formal so invertiert, als ob ein Proximity-Effekt vorläge. Damit gelang tatsächlich ein Fit der Meßdaten, wie in Abb. 4.3.6 eindrucksvoll bestätigt wird.

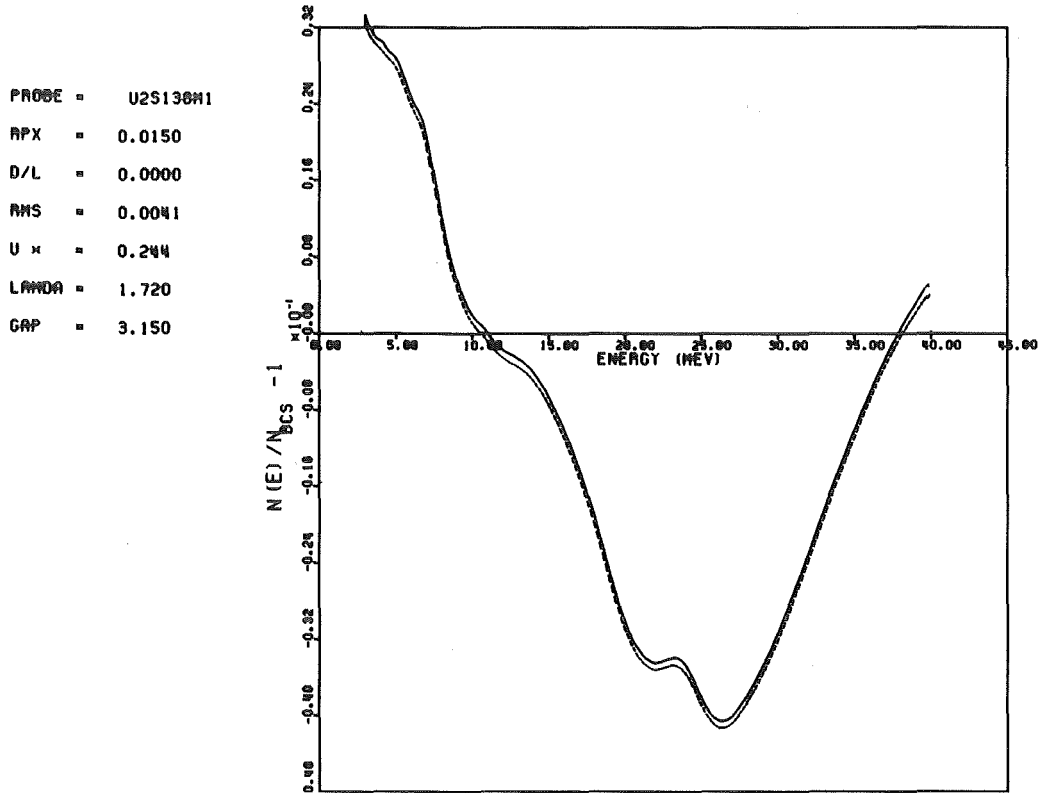


Abb. 4.3.6: MMR-Ergebnis für die optimale, stöchiometrische Diode aus Abb. 4.3.4 unter Verwendung von Proximity-Parametern.

Obwohl die beiden Spektren in Abb. 4.3.6 nahezu identisch sind, ergeben sich - und dies ist charakteristisch für alle optimalen, stöchiometrischen Dioden - überraschende Ergebnisse:

Es zeigt sich für diese Dioden typisch, daß $d/l = 0$ und $rpx \neq 0$ ist.

Ein endlicher rpx -Wert bedeutet eine endliche Dicke d der Proximity-Schicht, da (s. Kap. 2.4) $rpx \propto \frac{d}{v_F^*}$ gilt. Aus $d/l = 0$ folgt jedoch, daß $d \equiv 0$ ist. Man kann sich zwar einen endlichen rpx -Wert dadurch konstruieren, daß man mit abnehmender Dicke d eine Abnahme der Fermigeschwindigkeit v_F^*

in der Proximity-Schicht annimmt, ein solches Verhalten wurde bisher aber bei keinem System beobachtet. Bei Nb-Dioden (z.B. Geerk et al. 1982) zeigte sich im Gegenteil, daß mit abnehmendem Proximity-Effekt beide Proximity-Parameter gleichmäßig abnehmen und bei idealen Nb-Dioden verschwunden sind.

Bei den optimalen, stöchiometrischen Nb₃Sn-Dioden zeigt sich nicht nur ein endlicher rpx-Wert. Dieser Wert bleibt auch, bei unterschiedlichen d/l-Werten, nahezu konstant. rpx wird bei verschwindendem d/l sogar eher etwas größer als bei Dioden mit endlichen d/l -Werten. Bleibt man im Rahmen der Theorie von Arnold und Wolf, so würde dies bedeuten, daß v_F^* sogar überproportional mit der Dicke der Proximity-Schicht abnehmen sollte.

Es zeigt sich, daß bereits bei Dioden mit einem Gap >1.5 meV ein endlicher rpx-Wert angenommen werden muß (s. Tabelle 4 auf Seite 71), um die Meßdaten zu reproduzieren, dieser Wert ist jedoch viel kleiner als bei stöchiometrischen Dioden.

Neben diesem Widerspruch der beiden Proximity-Parameter ist ein weiteres Ergebnis der Proximity-Auswertung von Spektren optimaler, stöchiometrischer Nb₃Sn-Dioden, daß die Form von $\alpha^2 F(\omega)$ von der Stärke des Proximity-Effektes abhängt.

In Abbildung 4.3.7 sind zwei $\alpha^2 F(\omega)$ -Kurven für eine Diode mit Proximity-Effekt (U2Sn46) und für eine optimale Diode (U2S111) aufgetragen (beide Dioden sind stöchiometrisch). Die gestrichelte Kurve ist die Phononenfrequenzverteilung $F(\omega)$ (Renker et al. 1975), die nach dem Modell von Weber hinsichtlich der unterschiedlichen Wirkungsquerschnitte von Nb und Sn korrigiert wurden (Weber 1983).

Die Peaklagen von $\alpha^2 F(\omega)$ der Proximity-Diode stimmen gut mit denen in $F(\omega)$ überein, und die Abschneideflanke ist für $F(\omega)$ und $\alpha^2 F(\omega)$ nahezu identisch. Dagegen ist im Verlauf von $\alpha^2 F(\omega)$ der optimalen Diode zu erkennen, daß die energetische Lage der beiden hinteren Peaks relativ zu $F(\omega)$ verschoben ist. Außerdem ist die Abschneideflanke von $\alpha^2 F(\omega)$ hier zu hohen Energien verschoben.

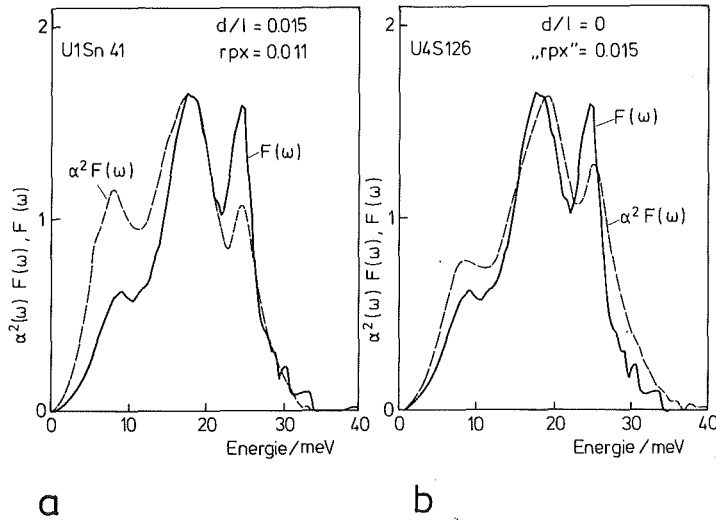


Abb. 4.3.7: $\alpha^2 F(\omega)$ zweier stöchiometrischer Dioden verglichen mit $F(\omega)$
 a. Diode mit Proximity-Effekt
 b. optimale Diode.

Ein solches "Ausschmieren" der Abschneideflanke ist eher für Dioden mit Proximity-Effekt zu erwarten als für optimale Dioden, wie dies auch bei Nb-Dioden beobachtet wird (Geerk et al., wird veröffentlicht): die Abschneideflanke von $\alpha^2 F(\omega)$ wird mit abnehmendem Proximity-Effekt schärfer.

Abbildung 4.3.8 verdeutlicht die Änderungen im Verlauf von $\alpha^2 F(\omega)$ in Abhängigkeit von der Stärke des Proximity-Effektes.

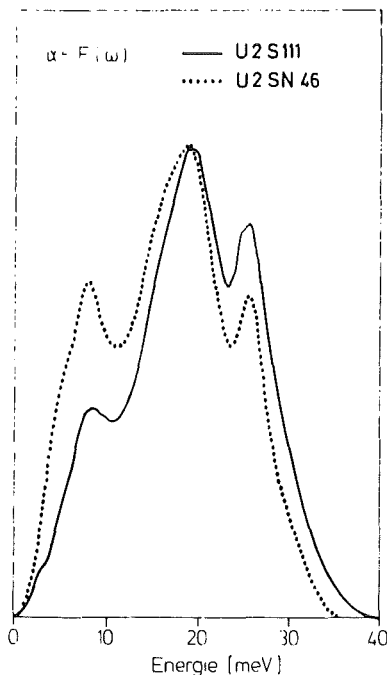


Abb. 4.3.8:
 $\alpha^2 F(\omega)$ -Kurven zweier stöchiometrischer Nb_3Sn -Dioden aus der MMR-Ionversion
 Diode mit Proximity-Effekt: U2Sn46
 Optimale Diode: U2S111

Die gepunktete Kurve in Abb. 4.3.8 ist das Ergebnis für die Proximity-Diode (U2Sn46), die durchgezogene Kurve ist das Ergebnis für die optimale Diode (U2S111). Beide Kurven sind auf die Höhe des mittleren Peaks normiert.

Neben der Verschiebung der Peaklagen erkennt man deutlich eine Änderung in den Peakverhältnissen in $\alpha^2 F(\omega)$ der optimalen Diode: der vordere Peak verliert stark an Intensität, während der hintere Peak leicht zunimmt.

Die Abhängigkeit der Form von $\alpha^2 F(\omega)$ von der Stärke des Proximity-Effektes ist (neben den Ergebnissen hinsichtlich der Proximity-Parameter) ein weiterer Widerspruch: eine solche Abhängigkeit der Eliashbergfunktionen von der Diodenqualität soll ja gerade durch die Proximity-Korrekturen nach Arnold und Wolf korrigiert werden.

Bisher hat (bei anderen Supraleitern mit Proximity-Effekt) diese Proximity-Theorie sehr zuverlässige Ergebnisse hinsichtlich $\alpha^2 F(\omega)$ geliefert, wie die Messungen von Geerk et al. (1982, 1983) und Khim et al. (1981) an Nb-Tunneldioden beweisen. Obwohl diese Nb-Dioden sehr unterschiedliche Stärken des Proximity-Effektes aufweisen, ergibt die Proximity-Auswertung der Spektren denselben Verlauf der Eliashbergfunktion; besonders gilt dies auch für den Vergleich der Ergebnisse von Nb-Dioden ohne Proximity-Effekt mit den Ergebnissen für Nb-Dioden mit Proximity-Effekt.

Die Ergebnisse der McMillan-Rowell-Inversion der Tunnel-spektren optimaler Nb₃Sn-Dioden lassen sich wie folgt zusammenfassen:

1. Die reduzierten Zustandsdichten optimaler stöchiometrischer Nb₃Sn-Dioden lassen sich nicht durch die dem McMillan-Rowell-Programm zugrundeliegenden Eliashberggleichungen beschreiben.

2. Eine Auswertung der Tunnelspektren der optimalen, stöchiometrischen Dioden unter Verwendung der Proximity-Effekt-Korrektur nach Arnold und Wolf führt zu widersprüchlichen Proximity-Parametern.
3. Es zeigt sich eine Abhängigkeit der Form von $\alpha^2 F(\omega)$ von der Stärke des Proximity-Effektes (bei stöchiometrischen Dioden).
4. Unterstöchiometrische, optimale Nb_3Sn -Dioden lassen sich problemlos (ohne Proximity-Korrekturen) im Rahmen der Eliashberggleichungen verstehen.

Diese Ergebnisse führen schließlich zu der Frage, ob in den Tunnelzustandsdichten von optimalen, stöchiometrischen Nb_3Sn -Dioden Deformationen vorhanden sind, die andere Ursachen als einen Proximity-Effekt haben. Eine gänzliche andere Art von Deformationen in der Tunnelzustandsdichte wird durch erst kürzlich veröffentlichte Arbeiten beschrieben (Horsch und Rietschel 1977, Kieselmann und Rietschel 1982), die eine Feinstruktur in der elektronischen Bandstrukturzustandsdichte von Nb_3Sn in die Eliashberggleichungen mit einbeziehen. Auf solche Deformationen wird im nächsten Kapitel eingegangen.

4.4 Einflüsse der elektronischen Bandstrukturzustandsdichte auf die Tunnelzustandsdichte

Während die Proximity-Theorie von Arnold und Wolf Deformationen in der reduzierten Tunnelzustandsdichte beschreibt, die auf nicht-ideale Tunneldioden zurückzuführen sind, wurden von Kieselmann und Rietschel (1982) Rechnungen für Nb_3Sn durchgeführt, die sich mit Einflüssen der elektronischen Bandstruktur auf die Tunnelzustandsdichte idealer Nb_3Sn -Dioden befassen. Die Dioden sind ideal in dem Sinne, daß mit der Tunneldiode (ohne Verunreinigungsprobleme) die Tunnelzustandsdichte des kompakten Materials gemessen werden kann.

Die Eliashberggleichungen, wie sie dem Inversionsprogramm von McMillan und Rowell zugrundeliegen, gelten unter der Voraussetzung, daß die elektronische Zustandsdichte im Bereich von

Phononenenergien um die Fermikante konstant ist. Dies wurde bereits in Kap. 2.2 beschrieben.

Bei manchen A15-Supraleitern und besonders bei Nb_3Sn ergeben Bandstrukturrechnungen (z.B. Klein et al. 1978, Mattheiss und Weber 1982), daß die Voraussetzung einer konstanten elektronischen Bandstrukturzustandsdichte nicht zutrifft, sondern daß die elektronische Zustandsdichte in diesem Energiebereich eine ausgeprägte Feinstruktur aufweist. Die Tunnelzustandsdichten dieser Supraleiter können dann nicht mehr im Rahmen der bisher benutzten Eliashberggleichungen beschrieben werden.

Horsch und Rietschel (1977) stellten Gapgleichungen auf, die explizit die elektronische Bandstrukturzustandsdichte enthalten. Um deren Einflüsse auf die Tunnelzustandsdichte von Nb_3Sn zu untersuchen, wurde mit diesen modifizierten Eliashberggleichungen von Kieselmann und Rietschel (1982) ein Computerprogramm erstellt, das aus der Eliashbergfunktion unter Vorgabe der elektronischen Bandstrukturzustandsdichte den Verlauf der reduzierten Tunnelzustandsdichte berechnet. Ein wichtiges Ergebnis war, daß bei gegebenem $\alpha^2F(\omega)$ die Ergebnisse für N_{red} charakteristisch auf die Form dieser elektronischen Zustandsdichte reagieren. Abbildung 4.3.9 zeigt ein typisches Ergebnis für Tunnelzustandsdichten und wurde der Arbeit von Kieselmann und Rietschel (1982) entnommen.

Kurve 1 wurde unter Annahme einer konstanten Zustandsdichte berechnet, während bei der Berechnung von Kurve 2 die elektronische Bandstrukturzustandsdichte nach Mattheiss und Weber (1982) verwendet wurde, die unterhalb von E_F einen etwa 20 meV breiten Peak aufweist.

Kurve 2 ist gegenüber Kurve 1 stärker ausgeprägt. Das besondere Charakteristikum für Kurve 2 ist ein steiler Anstieg von N_{red} bei Energien oberhalb von 30 meV, der zu einem Überschwingen von N_{red} führt.

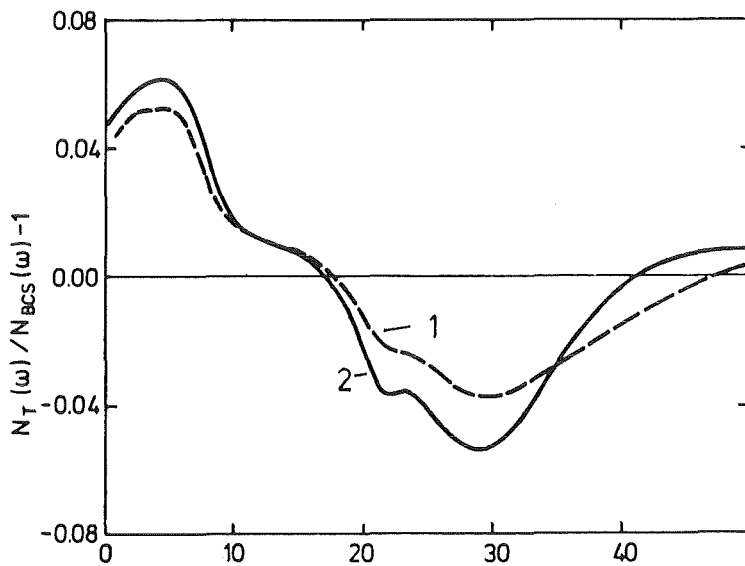


Abb. 4.3.9: Reduzierte Tunnelzustandsdichten mit unterschiedlichen elektronischen Bandstrukturzustandsdichten aus der Arbeit von Kieselmann und Rietschel (1982)

Ein solcher Überschwinger ist auch in den experimentellen Kurven optimaler, stöchiometrischer Nb_3Sn -Dioden vorhanden (Kap. 4.3) und war dort die Ursache der Schwierigkeiten, diese reduzierten Zustandsdichten mit der MMR-Inversion zu beschreiben. Der Klarheit wegen soll hier noch erwähnt werden, daß die in Abb. 4.3.9 gezeigten reduzierten Zustandsdichten nur den Teil der Quasiteilchenzustandsdichte darstellen, der auch im Tunnalexperiment bestimmt wird: $N_T(E)$. Die (strukturierte) Bandstrukturzustandsdichte der Elektronen ist nicht mehr darin enthalten.

Mit Hilfe des Programms von Kieselmann wurde versucht, unter Zugrundelegung der elektronischen Bandstrukturzustandsdichte nach Weber (1982) einen Verlauf von $\alpha^2 F(\omega)$ zu finden, der zu einer Tunnelzustandsdichte führt, die die Meßkurve für eine optimale, stöchiometrische Nb_3Sn -Diode reproduziert. Leider ist das Programm kein Inversionsprogramm: $\alpha^2 F(\omega)$ dient als Eingabefeld und muß nach Gefühl von Hand variiert werden, bis eine zufriedenstellende Übereinstimmung erreicht ist.

Ein erstes Ergebnis, das aus diesem Grunde bisher nur einen Trend angeben kann, ist in Abb. 4.3.10 zu sehen (Rietschel 1983, priv. Mitteilung).

In Abb. 4.3.10a ist der beste bisher erreichte Fit für N_{red} unter der Annahme der Weberschen Bandstrukturzustandsdichte zusammen mit der gemessenen N_{red} -Kurve aufgetragen (beide Kurven sind der Klarheit wegen gegeneinander verschoben). Man erkennt, daß die gerechnete Kurve ebenfalls einen Überschwinger zeigt und daß die Stärke der resonanzartigen Stufen in N_{red} , die die Peakverhältnisse in $\alpha^2 F(\omega)$ widerspiegeln, gut wiedergegeben wird. Der Überschwinger ist allerdings deutlich zu schwach ausgeprägt. Da die Rechnung zeigt, daß die Stärke des Überschwingers in N_{red} in direktem Zusammenhang mit der Stärke der Feinstruktur in der elektronischen Bandstrukturzustandsdichte steht, kann man schließen, daß, um eine bessere Übereinstimmung mit den Meßdaten zu erhalten, sogar eine stärkere Feinstruktur als in der Weberschen Rechnung angenommen werden muß.

Abb. 4.3.10b zeigt den Verlauf von $\alpha^2 F(\omega)$, der der berechneten Kurve N_{red} in 4.3.10a zugrundeliegt (gestrichelte Kurve). Aus dem Vergleich mit der $\alpha^2 F(\omega)$ -Kurve aus der MMR-Proximity-Auswertung von Kapitel 4.3 (durchgezogene Kurve) erkennt man sofort die charakteristischen Unterschiede der beiden Kurven. In der Abbildung sind diese durch Pfeile angedeutet. Verglichen mit dem

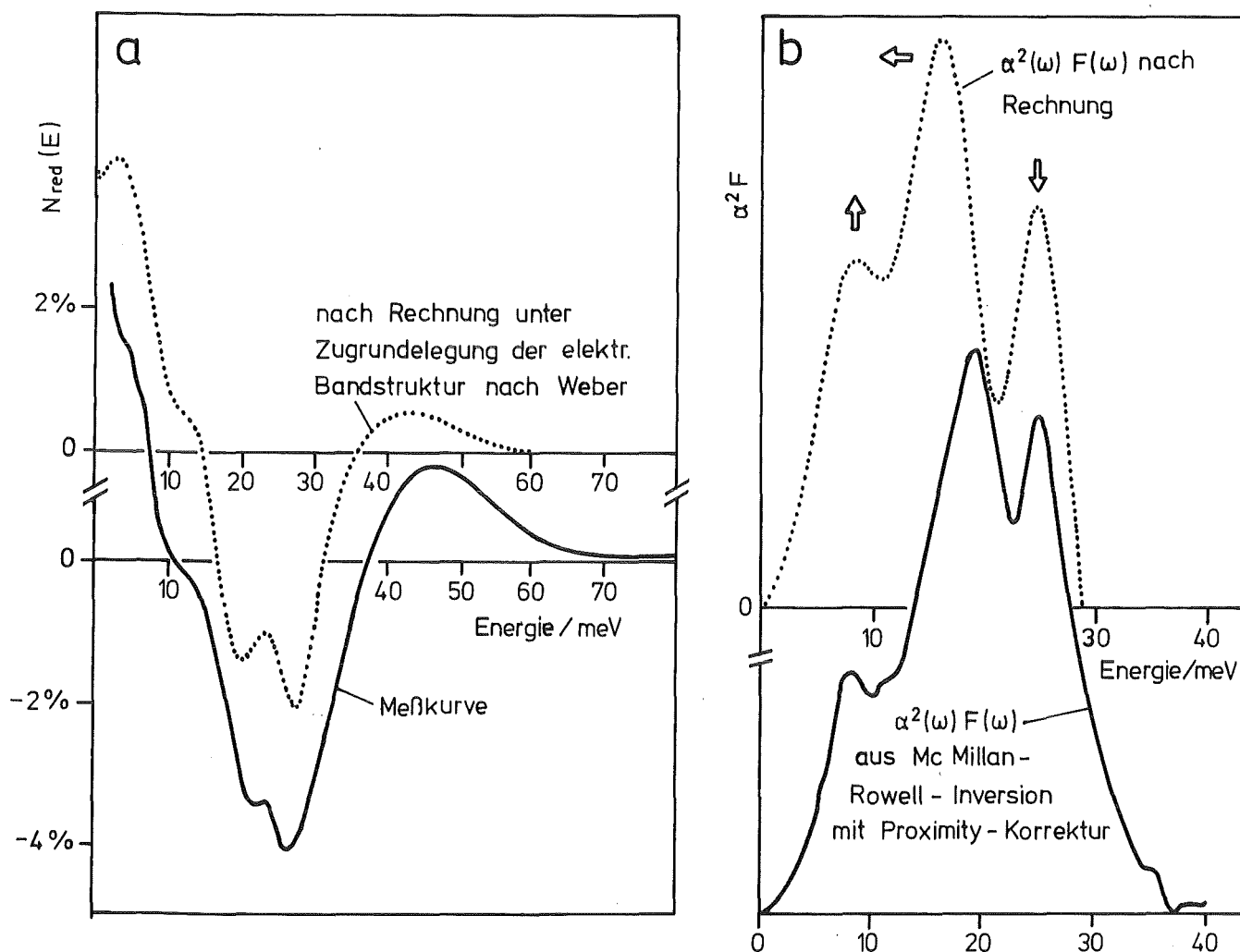


Abb. 4.3.10: a. Reduzierte Zustandsdichten

Meßkurve (durchgezogene Linie) und Ergebnis der Rechnung nach Kieselmann (gepunktete Kurve)

b. Eliashbergfunktionen; Ergebnis aus der MMR-Inversion (durchgezogene Kurve) und die der gerechneten reduzierten Zustandsdichte in Abb. 4.3.10a zugrundeliegende Eliashbergfunktion (gepunktete Kurve).

Ergebnis aus der MMR-Inversion gewinnt der vordere Peak (~ 8 meV) sehr an Intensität, der hintere Peak (~ 26 meV) wird etwas kleiner, der mittlere Peak verschiebt sich zu kleineren Energien. Die Form von $\alpha^2 F(\omega)$ und besonders das Peakverhältnis des vorderen und des hinteren Peaks entspricht ungefähr dem Ergebnis, das für unterstöchiometrische, optimale Nb_3Sn -Dioden gewonnen wurde (Abb. 4.3.3).

4.5 Vergleich und Wertung der Auswertemodelle

Es zeigt sich, daß die Auswertung der Tunnelspektren optimaler, stöchiometrischer Nb_3Sn -Dioden auf zwei verschiedenen Wegen erfolgen kann.

Der erste Weg, die Proximity-Auswertung mit der McMillan-Rowell-Inversion, führt zwar zu einem Fit der Meßdaten, die physikalischen Aussagen dieser Auswertung sind jedoch widersprüchlich, wie in Kapitel 4.3 bereits diskutiert wurde.

Der zweite Auswerteweg, der in Kapitel 4.4 beschrieben wurde, berücksichtigt die Energieabhängigkeit der elektronischen Bandstrukturzustandsdichte im Bereich von Phononenenergien um die Fermienergie, die durch Bandstrukturrechnungen von Weber (1982) bekannt ist.

Für diese Art der Auswertung der Tunnelspektren optimaler, stöchiometrischer Nb_3Sn -Dioden sprechen mehrere Argumente:

1. Rechnungen der elektronischen Bandstruktur lassen Zustandsdichteeffekte, z.B. in der Tunnelzustandsdichte von Nb_3Sn erwarten.
2. Die Temperaturabhängigkeit der magnetischen Suszeptibilität von Nb_3Sn (z.B. Clogston und Jaccarino 1961) bestätigt das Vorhandensein einer Feinstruktur in der elektronischen Zustandsdichte.
3. Die Meßdaten optimaler, stöchiometrischer Nb_3Sn -Dioden lassen sich bereits jetzt schon zufriedenstellend durch das Programm von Kieselmann und Rietschel beschreiben. Eine quantitative Übereinstimmung von Meßdaten und Rechnung wird für den Fall erwartet, daß das Programm in invertierter Form vorliegt.
4. Bei Unterstöchiometrie von Nb_3Sn wird eine Abnahme der Feinstruktur in der elektronischen Bandstrukturzustandsdichte erwartet, da Messungen der spezifischen Wärme an Nb_3Sn (Junod et al. 1978) zeigen, daß die spezifische Wärme für unterstöchiometrisches Nb_3Sn niedriger ist als für stöchiometrisches Material, d.h., daß die elektronische Zustandsdichte bei stöchiometrischem Nb_3Sn höher ist. Das Verschwinden

der Feinstruktur erklärt, warum die Spektren der unterstöchiometrischen Nb_3Sn -Dioden durch das MMR-Programm fitbar sind.

Aus diesen Argumenten und den Widersprüchen, die die Proximity-Auswertung in Kap. 4.3 aufwirft, wird geschlossen, daß die in den (in dieser Arbeit gemessenen) reduzierten Zustandsdichten optimaler stöchiometrischer Nb_3Sn -Dioden enthaltenen Deformationen, die eine Beschreibung mit den klassischen Eliashberggleichungen unmöglich machten, nicht durch Proximity-Effekte, sondern durch Effekte der elektronischen Bandstruktur im Rahmen der Theorie von Kieselmann und Rietschel verursacht werden.

Die Tatsache, daß die vorhergehende Argumentation in derart eingehender Weise geführt werden mußte, liegt an dem unglücklichen Zufall, daß die durch Bandstruktureffekte hervorgerufenen charakteristischen Deformationen (der Überschwinger oberhalb von ω_D) durch den r_{px} -Parameter in der Proximity-Theorie von Arnold und Wolf fitbar sind, der die Andreev-Oszillationen beschreibt.

Es folgt, daß glaubwürdige Ergebnisse für λ , μ^* , $\langle\omega\rangle$ und $\langle\omega^2\rangle$ erst dann vorliegen, wenn die Tunnelspektren von stöchiometrischen Nb_3Sn -Dioden unter Berücksichtigung der Feinstruktur in der elektronischen Bandstrukturzustandsdichte invertiert werden können.

Eine Beschreibung von Dioden mit wirklichem Proximity-Effekt mit dem hinsichtlich der Proximity-Korrektur modifizierten MMR-Programm liefert ebenfalls eine verfälschte $\alpha^2_F(\omega)$ -Kurve, obwohl hier durch zufällige Kompensationseffekte, die durch ein Zusammenspiel der Proximity-Deformation und der Deformation durch Bandstruktureffekte, zumindest die Peakverhältnisse der $\alpha^2_F(\omega)$ -Ergebnisse sich dem $\alpha^2_F(\omega)$ nähern, das die Kieselmann-Rietschel-Auswertung ergibt. Dies wird deutlich durch einen Vergleich der gestrichelten Kurve in Abb. 4.3.10b und Abb. 4.3.1.

Als ein letztes Ergebnis der in Kapitel 4.4 beschriebenen Auswertung soll die experimentell bestimmte Quotientenfunktion $\tilde{\alpha}^2(\omega)$ mit dem Ergebnis der Rechnung von Weber (1983) verglichen werden.

In Abb. 4.3.11 sind die experimentellen Ergebnisse für $\alpha^2 F(\omega)$, $F(\omega)$ und $\tilde{\alpha}^2(\omega)$ aufgetragen. Die Quotientenfunktion zeigt bei Energien um 10 meV hohe Intensität, zwischen 15 und 25 meV durchläuft die Kurve ein Minimum und steigt oberhalb von 25 meV wieder deutlich an.

Die Quotientenfunktion nach Weber ist in Abb. 4.3.12 dargestellt. Die große Intensität von $\tilde{\alpha}^2(\omega)$ zwischen 5 und 15 meV deutet auf eine sehr starke Elektron-Phonon-Kopplung in diesem Energiebereich hin, während im mittleren Energiebereich die Elektron-Phonon-Kopplung insgesamt schwächer ist. Die große Intensität des vorderen Peaks der $\alpha^2 F(\omega)$ -Kurve kann durch

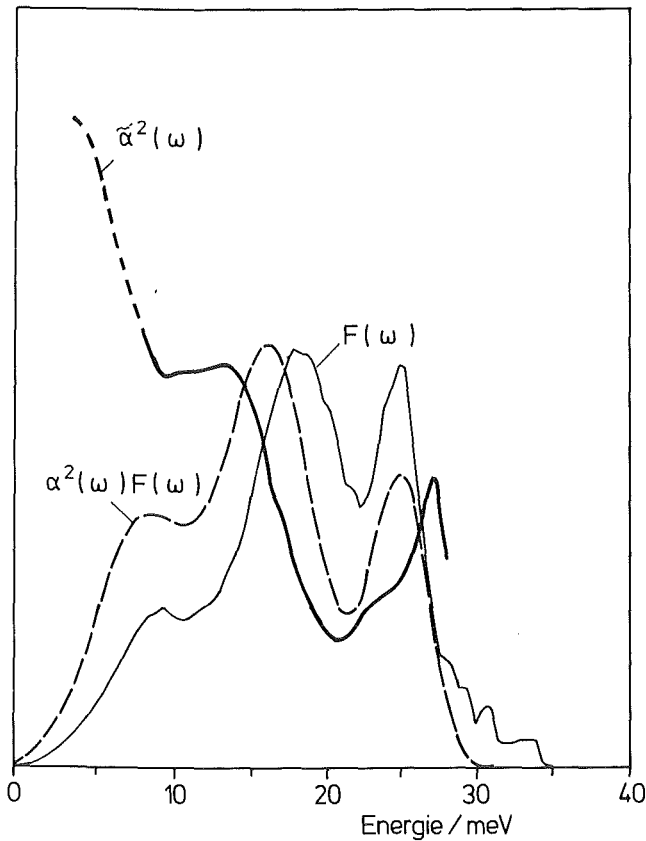


Abb. 4.3.11: Verlauf von $\alpha^2 F(\omega)$ nach Rietschel, $F(\omega)$ und Quotientenfunktion.

Unsicherheiten in der Rechnung hervorgerufen werden, da gerade in diesem Energiebereich Phononen mit hoher Elektron-Phonon-Kopplung besonders stark beitragen.

Man erkennt eine gewisse Ähnlichkeit im Verlauf der theoretischen $\tilde{\alpha}^2(\omega)$ -Kurve und der experimentellen Kurve. Beide zeigen im Bereich des 8 meV-Peaks eine stark überhöhte Intensität.

Der experimentelle Verlauf von $\tilde{\alpha}^2(\omega)$ unterhalb von etwa 8 meV kann leider nicht gesichert angegeben werden, da unterhalb dieser Energie der Verlauf der Phononenzustandsdichte $F(\omega)$ (Renker et al. 1975) durch eine quadratische Energieabhängigkeit angenähert wurde. Da sowohl die Messung von $F(\omega)$ als auch der Tunnelspektren bei kleinen Energien schwierig ist (siehe z.B. Kap. 4.2.4) kann in absehbarer Zeit nicht geklärt werden, ob $\tilde{\alpha}^2(\omega)$ tatsächlich, wie von der Theorie vorhergesagt, für kleine Energien gegen null geht.

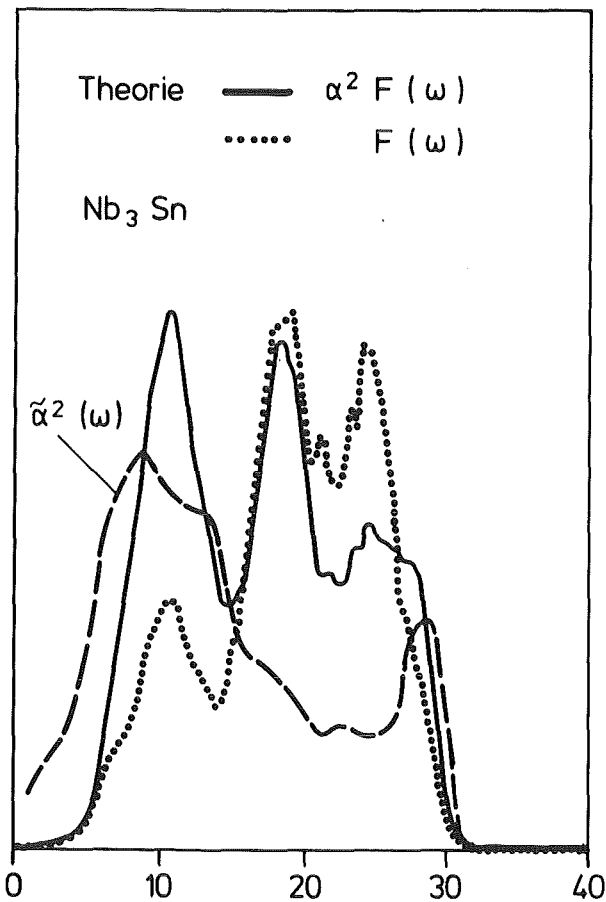


Abb. 4.3.12: Ergebnisse der Rechnungen von Weber (1983)

LITERATURVERZEICHNIS

- E. Abrahams, P.W. Anderson, D.C. Licciardello und T.V. Ramakrishnan, Phys. Rev. Lett. 42, 673 (1979)
- J.G. Adler und J. Jackson, Rev. Sci. Instrum. 37, 1046 (1966)
- A.F. Andreev, Sov. Phys. JETP 19, 1228 (1964)
- G.B. Arnold, Phys. Rev. B 18, 1076 (1978)
- G.B. Arnold, J. Zasadzinski, J.W. Osmon und E.L. Wolf, J. Low Temp. Phys. 40, 225 (1980)
- G.B. Arnold, Phys. Rev. B 23, 1171 (1981)
- J.D. Axe und G. Shirane, Phys. Rev. B 28(8), 4829 (1983)
- B.W. Batterman, C.S. Barrett, Phys. Rev. Lett. 13, 390 (1964)
- B.W. Batterman, C.S. Barrett, Phys. Rev. 145, 296 (1966)
- J. Bardeen, Phys. Rev. Lett. 9, 147 (1962)
- J. Bardeen, L.N. Cooper und J.R. Schrieffer, Phys. Rev. 108, 1175 (1957)
- S. Bermon, Techn. Rep. 1, University of Illinois, Urbana, National Science Foundation Grant NSF GP 1100 (1964)
- B.L. Blackford, Rev. Sci. Instrum. 42, 1198 (1971)
- W.F. Brinkman, R.C. Dynes und J.M. Rowell, J. Appl. Phys. 41(5) 1915 (1970)
- J.P. Carbotte, Superconductivity in d- and f-Band Metals, (ed. W. Buckel, W. Weber), Karlsruhe (1982)
- L.N. Cooper, Phys. Rev. 104, 1189 (1956)

- P.G. de Gennes und D. Saint-James, *Phys. Lett.* 4, 151 (1963)
- H. Devantay, J.L. Jorda, M. Decroux, J. Muller und R. Flükiger,
J. Mat. Sci. 16, 2145 (1981)
- G.M. Eliashberg, *Sov. Phys. JETP* 11, 696 (1960)
- G.M. Eliashberg, *Sov. Phys. JETP* 12, 1000 (1961)
- R.F. Gasparovic, R.N. Taylor und R.E. Eck, *Solid State Commun.*
4, 59 (1966)
- J. Geerk, KfK-Bericht Nr. 2150 des Kernforschungszentrums
Karlsruhe (1975)
- J. Geerk, M. Gurvitch, D.B. McWhan und J.M. Rowell, *Physica C*
109, 1775 (1982)
- J. Geerk, J.M. Rowell, P.H. Schmidt, F. Wüchner, W. Schauer,
Superconductivity in d- and f-Band Metals (ed. W. Buckel,
and W. Weber, Karlsruhe 1982)
- J. Halbritter, *Surface Science* 122, 80 (1982)
- W.A. Harrison, *Phys. Rev.* 123, 85 (1961)
- H. Hermann and A. Schmid, *Z. Phys.* 211, 313 (1968)
- W.N. Hubin, Tech. Rep. 182, ARPA SD-131, Dept. of Physics,
University of Illinois
- P. Horsch and H. Rietschel, *Z. Phys. B* 27, 153 (1977)
- Ion Beam Handbook for Material Analysis (ed. J.W. Mayer,
E. Rimini, Academic Press, London) (1979)
- Z.G. Khim, D. Burnell und E.L. Wolf, *Solid State Commun.* 39,
159 (1981)

- G. Kieselmann und H. Rietschel, J. Low. Temp. Phys. 46 (112)
27, (1982)
- D. Kimhi, Ph. D. Thesis, Stanford Univ. (1980)
- B.M. Klein, L.L. Boyer, D.A. Papaconstantopoulos, L.F. Mattheiss,
Phys. Rev. B 18 (12), 6411 (1978)
- J. Kwo und T.H. Geballe, Phys. Rev. B 23 (7), 3230 (1981)
- J. Kwo, G.K. Wertheim, M. Gurvitch und D.N.E. Buchanan,
Appl. Phys. Lett. 40 (8), 675 (1982)
- M. Liehr, Dissertation, Univ. Aachen (1982)
- R. Malifert, B.W. Batterman und J.J. Hanak, Phys. Lett. 24A,
315 (1967)
- L.F. Mattheiss und W. Weber, Phys. Rev. B 25, 2248 (1982)
- W.L. McMillan and J. Mochel, Phys. Rev. Lett. 46 (8), 556
(1981)
- W.L. McMillan und J.M. Rowell in "Superconductivity" Vol. 1
(ed. R.D. Parks, Dekker, New York) 561 (1969)
- A.B. Migdal, Sov. Phys. JETP 7, 996 (1958)
- J.S. Moodera, R. Meservey, P.M. Tedrow, Appl. Phys. Lett.
41 (5) 488 (1982)
- D. Moore, M.R. Beasley und J.M. Rowell, J. de Physique,
Coll. C6 (Suppl. zu Vol 39(8)) 1390 (1978)
- D. Moore, R.B. Zubeck, J.M. Rowell, M.R. Beasley, Phys. Rev.
B 20, 2721 (1979)

- R.J. Noer, Phys. Rev. B 12, 4882 (1975)
- W.E. Pickett und B.M. Klein, Superconductivity in d- and f-Band Metals (ed. W. Buckel, W. Weber, KfK Karlsruhe), 97 (1982)
- J.M. Rowell in "Tunneling Phenomena in Solids " (ed. E. Burstein und S. Lundquist, Plenum Press, N.Y.) 385 (1969)
- J.M. Rowell und W.L. McMillan, Phys. Rev. Lett. 16, 453 (1966)
- J.M. Rowell, W.L. McMillan und W.L. Feldman, Phys. Rev. 180 (3), 180 (1969)
- J.M. Rowell, M. Gurvitch und J. Geerk, Phys. Rev. B 24, 2278 (1981)
- D. Rudman, Ph. D. Thesis, Stanford Univ. (1982)
- D.J. Scalapino, Superconductivity, Vol. 1 (ed. R.D. Parks, Dekker, N.Y.), 449 (1969)
- B.P. Schweiss, B. Renker, E. Schneider, W. Reichardt, Superconductivity in d- and f-Band Metals (ed. D.H. Douglass, Plenum Press, N.Y.), 189 (1976)
- L.J.L. Shen, Phys. Rev. Lett. 29, 1082 (1972)
- J.G. Simmons, J. Appl. Phys. 34, 238 und 1793 (1963)
- J.R. Schrieffer, D.J. Scalapino, J.W. Wilkins, Phys. Rev. Lett. 11, 336 (1963)

G.R. Stewart, B. Cort und G.W. Webb, Phys. Rev. B 24,
3841 (1981)

W.J. Tomash, Phys. Rev. Lett. 15, 672 (1965)

W.J. Tomash, Phys. Rev. Lett. 16, 16 (1966)

C.P. Umbach, A.M. Goldman und L.E. Toth, Appl. Phys. Lett.
40 (1), 81 (1982)

W. Weber, Superconductivity in d- and f-Band Metals (ed.
W. Buckel und W. Weber, KfK Karlsruhe) 15 (1982)

W. Weber, Habilitation, Univ. Karlsruhe (1983)

P. Ziemann, Dissertation, KfK-Bericht 2562, Kernforschungs-
zentrum Karlsruhe (1977)