Forschungszentrum Karlsruhe

in der Helmholtz-Gemeinschaft Wissenschaftliche Berichte

FZKA 6753

Epitaktische SrTiO₃-Schichten zur Abstimmung von supraleitenden Mikrowellen-Bauelementen*

Markus Adam

Institut für Festkörperphysik

*Von der Fakultät für Physik der Universität Karlsruhe (TH) genehmigte Dissertation

 $For schungszentrum \ Karlsruhe \ GmbH, \ Karlsruhe$

Impressum der Print-Ausgabe:

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

Forschungszentrum Karlsruhe GmbH Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

Mitglied der Hermann von Helmholtz-Gemeinschaft Deutscher Forschungszentren (HGF)

ISSN 0947-8620

Epitaktische SrTiO₃-Schichten zur Abstimmung von supraleitenden Mikrowellen-Bauelementen

Zur Erlangung des akademischen Grades eines

DOKTORS DER NATURWISSENSCHAFTEN

von der Fakultät für Physik der Universität (TH) Karlsruhe

genehmigte

DISSERTATION

von

Dipl.-Phys. Markus Adam aus Trier

Tag der mündlichen Prüfung:	7. Juni 2002
Referent:	Prof. Dr. Helmut Wühl
Korreferent:	Prof. DrIng. Wilhelm Jutzi

Kurzzusammenfassung

Zur Untersuchung der dielektrischen Eigenschaften von SrTiO₃(STO)-Schichten im Temperaturbereich T < 90 K und zur Demonstration abstimmbarer supraleitender Mikrowellenbauelemente wurden koplanare Phasenschieber und Ringresonatoren hergestellt. Die notwendigen epitaktischen Schichten aus STO und YBa₂Cu₃O_{7- δ} (YBCO) wurden mittels Kathodenzerstäubung auf LaAlO₃-Substrate deponiert. Eine ausführliche Charakterisierung der Hochfrequenzeigenschaften der 210 nm dicken YBCO-Schichten ergab einen Oberflächenwiderstand von $R_S = 200 \ \mu\Omega$ und eine Londonsche Eindringtiefe von $\lambda_L = 352$ nm bei 77 K und 10 GHz. Hierbei zeigte sich kein signifikanter Unterschied zwischen YBCO-Schichten, die direkt auf dem Substrat oder mit einer STO-Zwischenschicht hergestellt wurden.

Um das Anwendungspotenzial der STO-Schichten bezüglich abstimmbarer Mikrowellenbauelemente zu steigern, wurden die Schichten hinsichtlich niedriger Hochfrequenzverluste und hoher Abstimmbarkeit optimiert. Zur Bestimmung der komplexen Permittivität der STO-Schichten aus dem Hochfrequenzverhalten der Mikrowellenbauelemente wurde eine Methode entwickelt, mit der der Einfluss des Elektrodenmaterials YBCO auf die Permittivitätsmessung eliminiert werden konnte.

Die dielektrischen Eigenschaften der STO-Schicht hingen stark von der Depositionstemperatur ab, die zwischen 710 und 810°C variiert wurde. Mit zunehmender Depositionstemperatur stieg die Permittivitätszahl bei 77 K von $\varepsilon_r = 234$ auf 424 an. Die zusätzliche Temperung der bei 810°C hergestellten Schicht bei 1200°C für 2 h in 1 bar Sauerstoffatmosphäre bewirkte eine weitere Steigerung auf $\varepsilon_r = 613$, jedoch nahmen auch die Verluste von tan $\delta = 0,006$ auf 0,026 zu. Obwohl der niedrigste Verlusttangens in der bei 710°C deponierten Schicht auftrat, wurde in der getemperten Schicht bei einer Reduktion der Permittivität von 71% bei 120 kV/cm das beste Verhältnis von Abstimmbarkeit zu Verlust erreicht. Dieses Verhältnis war um so größer, je näher Gitterparameter und Zusammensetzung der STO-Schichten an den Werten eines STO-Einkristalls lagen.

Hauptverantwortlich für das Verhalten der Permittivität sind vermutlich inhomogene Gitterverspannungen, durch die lokale elektrische Felder verursacht werden. Eine Analyse der Verluste anhand eines phänomenologischen Modells ergab, dass im anwendungsrelevanten Temperaturbereich T > 50 K und in elektrischen Feldern E < 40 kV/cm die auftretenden Verluste überwiegend durch Multiphononenstreuung verursacht werden, während bei hohen Felderstärken E > 90 kV/cm Debye-Mechanismen dominieren.

Epitaxial SrTiO₃ thin films for tunable superconducting microwave devices

Abstract

In order to study the nonlinear dielectric properties of SrTiO₃ (STO) thin films in the temperature range T < 90 K and to demonstrate the performance of superconducting microwave devices, tunable phase shifters and ring resonators were produced. The required epitaxial STO and YBa₂Cu₃O_{7- δ} (YBCO) double layers were deposited by sputtering on LaAlO₃ substrates. The characterization of the high-frequency properties of the YBCO-films revealed in a surface resistance of $R_S = 200 \ \mu\Omega$ and a London penetration depth of $\lambda_L = 352 \ \text{nm}$ at 77 K and 10 GHz. No significant difference was found between YBCO films direct sputtered on the substrate and films with an intermediate STO layer.

The potential of application was increased by optimizing the STO thin films with respect to low microwave losses and high tunability. In order to evaluate the complex permittivity of the STO films from the behaviour of the microwave devices, a method was developed to eliminate the influence of the electrode material on the permittivity measurement.

The dielectric properties sensitively depended on the deposition temperature of the STO layers which was varied from 710 to 810°C. With increasing deposition temperature the permittivity at 77 K raised from $\varepsilon_r = 234$ to 424. Annealing a film deposited at 810°C in 1 bar oxygen for 2 hours at 1200°C resulted in an additional increase to $\varepsilon_r = 613$. However, the loss also increased up to $\tan \delta = 0.026$. The highest tunability with a 71% reduction of the permittivity at 120 kV/cm was reached in the annealed layer, too. Although the lowest loss tangent of $\tan \delta = 0.006$ at 77 K was found for the layer deposited at 710°C, the annealed layer had the best tunability to loss ratio. The highest values of this ratio were obtained for STO layers with cation composition and lattice parameter close to the single crystal values.

Inhomogeneous strain causing localized electric fields are likely to be responsible for the measured dielectric properties. The analysis of the loss tangent with a phenomenological model elucidates that in the temperature range relevant for applications T > 50 K at low electric fields E < 40 kV/cm the loss is mainly caused by multiphonon scattering whereas at E > 90 kV/cm Debye-mechanisms are dominant.

Inhaltsverzeichnis

\mathbf{S} y	ymbc	olverze	ichnis	\mathbf{v}
1	Ein	leitung	5	1
2	Gru	undlag	en	5
	2.1	Dielek	trika	5
		2.1.1	Modellbeschreibung der Permittivität	9
		2.1.2	Dielektrische Verluste	13
		2.1.3	Modellierung der Verlustmechanismen	19
	2.2	Supra	leitung	19
		2.2.1	Zweiflüssigkeitsmodell	19
		2.2.2	Londonsche Eindringtiefe	21
		2.2.3	Oberflächenimpedanz	23
	2.3	Theor	ie der Mikrowellenleitung	24
		2.3.1	Das Modell der TEM-Leitung	25
		2.3.2	Schichtsysteme	28
	2.4	Eigen	schaften der verwendeten Oxide	31
		2.4.1	Geeignete Substratmaterialien	31
		2.4.2	Lanthanaluminat	32
		2.4.3	Strontiumtitanat	34
		2.4.4	$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	38

3	Mes	ssmeth	ode und Versuchsaufbau	41
	3.1	Herste	ellung von Schichtsystemen	41
		3.1.1	Deposition	41
		3.1.2	Strukturierung	43
	3.2	Kalibı	rierung	44
	3.3	Phase	nschieber	46
	3.4	Asym	metrischer Ringresonator	49
		3.4.1	Aufbau	49
		3.4.2	Stromverteilung	52
		3.4.3	Messgrößen	57
		3.4.4	Bestimmung der komplexen Permittivität	59
	3.5	Hochf	requenzmessstand	65
4	\mathbf{Erg}	ebniss	e und Diskussion	67
	4.1	Supra	leitende Eigenschaften von YBCO	67
		4.1.1	Kritische Temperatur	67
		4.1.2	Londonsche Eindringtiefe	68
		4.1.3	Oberflächenwiderstand	70
	4.2	Strukt	urelle und DC-Eigenschaften von STO	73
		4.2.1	Einfluss des Prozessgasdruckes	73
		4.2.2	Gleichstromtransporteigenschaften	78
		4.2.3	Variation der Depositionstemperatur	81
	4.3	Dielek	trische Eigenschaften im HF-Bereich	86
		4.3.1	Messungen an Phasenschiebern	86
		4.3.2	Messungen an koplanaren Ringresonatoren	88
		4.3.3	Modellierung der Permittivität	97
		4.3.4	Modellierung der Verluste	101
		4.3.5	Diskussion der Ergebnisse	110

5 Zusammenfassung

\mathbf{A}	Kop	lanare Leiterstrukturen	117
	A.1	Symmetrische Koplanarleitung	117
	A.2	Asymmetrische Koplanarleitung	119
	A.3	Interdigitalkondensator	121
Li	terat	urverzeichnis	125
Da	anksa	agung	137

${f Symbol verzeichnis}$

A	Oberfläche	m^2
C	Kapazität	F
C'	Kapazitätsbelag	Fm^{-1}
\vec{D}	elektrische Verschiebungsdichte	Cm^{-2}
\vec{E}	elektrische Feldstärke	Vm^{-1}
E^*	charakteristische elektrische Feldstärke für VHR	Vm^{-1}
e_{ij}	Streuparameter der Zuleitungen $i, j \in \{0, 1\}$ oder $\{2, 3\}$	dB
f	Frequenz	Hz
f_R	Resonanzfrequenz	Hz
g	Dichte lokalisierter Zustände	$(eV)^{-1}cm^{-3}$
G	freie Enthalpie	Nm
G'	Leitwertsbelag einer Leitung	$\Omega^{-1} \mathrm{m}^{-1}$
h	Dicke von dielektrischen Filmen oder Substraten	m
\vec{j}	Stromdichte	$\rm Acm^{-2}$
j_C	kritische Stromdichte eines Supraleiters	$\rm Acm^{-2}$
k	Federkonstante	Nm^{-1}
\vec{k}	Wellenvektor	$\rm radm^{-1}$
l	Leiterlänge	m
L'	Induktivitätsbelag	Hm^{-1}
n	Abstimmbarkeit $n = \varepsilon_r(0)/\varepsilon_r(E_{max})$	1
n	Ladungsträgerkonzentration	cm^{-3}
n_{V_O}	Dichte von Sauerstoffleerstellen	cm^{-3}
N_D	Defektdichte	cm^{-3}
\vec{P}	dielektrische Polarisation	Cm^{-2}
P	Leistung	W
\vec{p}	Dipolmoment	Cm
Q,q	Ladung	С
Q	Güte eines belasteten Resonators	1
Q_0	unbelastete Güte eines frei schwingenden Resonators	1
Q_{Leit}	Leitergüte	1
R'	Widerstandsbelag einer Leitung	$\Omega \mathrm{m}^{-1}$
R_S	intrinsischer Oberflächenwiderstand	Ω
R_a	mittlere Oberflächenrauigkeit	m
S_{ij}	Streuparameter des DUT mit $i, j \in \{1, 2\}$	dB
S_{ij}^M	mit dem NWA gemessene Streuparameter	dB

Weitere Symbole

t	Dicke leitfähiger Filme	m
T	Temperatur	$K,^{\circ}\mathrm{C}$
T_C	Übergangstemperatur zur Supraleitung	Κ
T_D	Depositionstemperatur	Κ
U	Elektrische Spannung	V
\vec{v}	Geschwindigkeit	${\rm ms}^{-1}$
v_P	Phasengeschwindigkeit	ms^{-1}
x	Ti-Konzentration in $SrTi_xO_3$	1
X_S	Oberflächenreaktanz	Ω
Z	Wellenwiderstand einer Leitung	Ω
Z_S	${ m Oberfl\"a}{ m chenimped}{ m anz}$	Ω

Griechische Symbole

α	Dämpfungsbelag einer Wellenleitung	${ m Np}{ m m}^{-1}$
α^{-1}	Lokalisierungslänge	m
β	Phasenbelag einer Leitung	$ m radm^{-1}$
γ	Ausbreitungskonstante einer Wellenleitung	$ m radm^{-1}$
δ	Sauerstoffdefizit von $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	1
δ	Verlustwinkel	grad
$ an \delta$	Verlusttangens	1
ε	Permittivität	$AsV^{-1}m^{-1}$
$\tilde{\varepsilon}$	komplexe Permittivität	$AsV^{-1}m^{-1}$
ε_r	Permittivitätszahl	1
$\varepsilon_{e\!ff}$	effektive Permittivitätszahl von Leitungen mit	
	inhomogenem Dielektrikum	1
λ_L	Londonsche Eindringtiefe	m
μ	Permeabilität	$VsA^{-1}m^{-1}$
$ ilde{\mu}$	komplexe Permeabilität	$VsA^{-1}m^{-1}$
μ_r	Permeabilitätszahl	1
$ u_F$	Fermifrequenz	Hz
ξ	Kohärenzlänge	m
ho	elektrische Ladungsdichte	Cm^{-3}
σ	Leitfähigkeit	Sm^{-1}
$\tilde{\sigma}$	komplexe Leitfähigkeit $\tilde{\sigma} = \sigma' - i\sigma''$	Sm^{-1}
φ	Phasenwinkel	rad
χ	elektrische Suszeptibilität	1
Υ	Ätzkonstante	1
ψ	Verzwilligungswinkel	grad
ω	Kreisfrequenz $\omega = 2\pi f$	1/s
ω_D	Debye-Frequenz	1/s

<u>Modellkonstanten</u>

ε_{00}	Proportionalitätsfaktor der Permittivität	1
θ_D	Debye-Temperatur	Κ
ξ_B	normierte äußere Feldstärke	1
ξ_S	normierte defektinduzierte Feldstärke	1
E_N	Normierungsfeldstärke	Vm^{-1}
T_C	Curie-Temperatur	Κ
A_{MP}, A_{FD}, A_Q	Proportionalitätsfaktoren	\mathbf{S}
A_D	Proportionalitätsfaktor der Deybe-Verluste	Κ
W	Aktivierungsenergie	eV
au	Deybe-Relaxationszeit	\mathbf{S}
$ au_{\infty}$	Relaxationszeit für $T\to\infty$	\mathbf{S}

Mathematische Symbole

Imaginäre Einheit
Realteil einer komplexen Größe
Imaginärteil einer komplexen Größe
Argument der komplexen Zahl \tilde{z}
vollständiges elliptisches Integral erster Gattung
vollständiges elliptisches Integral erster Gattung
von dem komplementären Modul $k' = \sqrt{1 - k^2}$
Modul des elliptischen Integrals
Rotationsoperator
Verstärkungsfaktor bezogen auf die Leistung
Verstärkungsfaktor bezogen auf die Amplitude
Neper

<u>Naturkonstanten</u>

π	$= 3,141592654\ldots$	Umfang des Einheitskreises
c_0	$= 2,99792456 \cdot 10^8 \mathrm{m/s}$	${ m Lichtgeschwindigkeit}$
e	$= 1,6021917 \cdot 10^{-19} \mathrm{As}$	${ m Elementarladung}$
m_e	$=9,10953\cdot 10^{-31}\mathrm{kg}$	${ m Elektronenmasse}$
ε_0	$= 8,8541843 \cdot 10^{-12} \mathrm{AsV^{-1}m^{-1}}$	Influenzkonstante
μ_0	$= 4\pi \cdot 10^{-7} \mathrm{VsA^{-1}m^{-1}}$	${ m Induktionskonstante}$
k_B	$= 1,38066 \cdot 10^{-23} \mathrm{JK}^{-1}$	Boltzmann-Konstante
\hbar	$= 1.054573 \cdot 10^{-34} \mathrm{Js}$	Planck-Konstante

Abkürzungen

AC	Wechselstrom (alternating current)
AFM	Rasterkraftmikroskop (atomic force microscope)
\mathbf{CS}	Scherebenen
DC	Gleichstrom (direct current)
DUT	Messobjekt (device under test)
EDX	energiedispersive Röntgenanalyse
$_{ m HF}$	Hochfrequenz
LAO	$LaAlO_3$ Lanthanaluminat
NWA	Netzwerkanalysator
RBS	Rutherford Rückstreuung
STO	$SrTiO_3$ Strontiumtitanat
TEM	${\it Transmissionselektronenmikroskop}$
TEM	Transversal elektromagnetisch
VRH	"Variable-Range-Hopping"
YBCO	YBa ₂ Cu ₃ O _{7-δ} Yttriumbariumkupferoxid

XRD Röntgendiffraktion (X-ray diffraction)

Kapitel 1

Einleitung

Strontiumtitanat SrTiO₃ (STO) ist als nichtlineares Dielektrikum sowohl für technische Anwendungen als auch aus physikalischer Sicht ein interessantes Material und wird seit ungefähr 40 Jahren im Mikrowellenbereich untersucht [1, 2]. Ein STO-Einkristall bietet mit einer hohen Permittivitätszahl von $\varepsilon_r \approx 24000$ bei 4,2 K, welche sich mit einem elektrischen Feld von E = 4 kV/cm über 80% reduzieren lässt, sowie geringen Wechselstromverlusten von tan $\delta < 10^{-4}$ vielversprechende Hochfrequenzeigenschaften mit großem Anwendungspotenzial [3, 4].

Die Entdeckung des Hochtemperatursupraleiters YBa₂Cu₃O_{7- δ} (YBCO) durch Wu *et al.* [5] mit einer Sprungtemperatur von $T_C = 92$ K ermöglichte es unter Verwendung epitaktischer YBCO-Filme aufgrund sehr niedriger Oberflächenwiderstände ($R_S < 500 \ \mu\Omega$ bei 10 GHz und 77 K [6]) die Eigenschaften von passiven Mikrowellenbauelementen, wie Filter oder Phasenschieber, bezüglich der Hochfrequenzverluste erheblich zu verbessern, und gleichzeitig deren Größe und Gewicht stark zu reduzieren, wodurch diese Technologie attraktiv für Anwendungsbereiche wie z. B. die Satellitenkommunikation wird.

Um den steigenden Anforderungen zukünftiger Anwendungsbereiche gerecht zu werden, sind Hochfrequenzbauelemente erforderlich, die durch Anlegen einer Spannung schnell und ohne mechanische Teile in ihrem Verhalten variiert werden können. Hierfür ist STO bei tiefen Temperaturen das favorisierte Material, da es mit YBCO chemisch verträglich ist und eine Perowskitstruktur mit ähnlichen Gitterparametern besitzt. Die strukturelle Verwandtschaft ermöglicht eine relativ einfache Kombination bzw. Integration dünner STO-Schichten in Bauteilstrukturen auf YBCO-Basis [7, 8]. Als Anwendungsbeispiele supraleitender Bauelemente können mit nichtlinearen dielektrischen Schichten frequenzagile Resonatoren und damit Mikrowellen-Filter hoher Trennschärfe realisiert werden, die über einen gewissen Frequenzbereich durchstimmbar sind [9–11]. Eine weitere Anwendung ist in supraleitenden Antennenfeldern denkbar, bei denen mittels Phasenschiebern [12,13] die Phase jeder Einzelantenne separat eingestellt werden kann, um den Raumwinkel der Sende- bzw. Empfangsrichtung auszuwählen [14]. Obige Bauelemente werden im Allgemeinen so konstruiert, dass die Form des Mikrowellensignals möglichst nicht durch die Nichtlinearität des Dielektrikums verzerrt wird. Neuartige technologische Konzepte wie etwa das "pulse shaping" machen sich gerade diese Eigenschaft für die gezielte Verformung von Mikrowellenimpulsen zunutze [15].

Ein Grund, der den Einsatz von Mikrowellenbauelementen auf YBCO-Basis in der Praxis mindert, ist, dass trotz sorgfältigem Entwurf und fehlerfreier Herstellung komplexer Strukturen, wie z. B. mehrpolige Bandpassfilter, meist eine Feinabstimmung der einzelnen Resonanzkreise notwendig ist, um das geforderte Verhalten zu erreichen [8]. Gegenüber der gängigen Methode, dies mit Abstimmschrauben manuell vorzunehmen, bringt die elektrische Abstimmung mittels einer STO-Schicht erhebliche Vorteile.

Das dielektrische Verhalten dünner STO-Schichten, wie sie für HF-Bauelemente benötigt werden, unterscheidet sich jedoch wesentlich von den Eigenschaften eines Einkristalls: Die relative Permittivitätszahl beträgt bei tiefen Temperaturen nur einige hundert bis tausend, also etwa eine Größenordnung unter dem Einkristallwert, während die Verluste meist sogar um zwei Größenordnungen höher sind. Ebenso nimmt die Abstimmbarkeit drastisch ab. Ziel dieser Arbeit ist es, mögliche Ursachen für die Unterschiede zwischen Einkristallen und dünnen Schichten zu beleuchten und Wege zu finden, diese zu minimieren. Hierzu wurden STO-Schichten hergestellt und deren Eigenschaften hinsichtlich der kristallographischen Struktur, der Mikrostruktur, der Oberflächenmorphologie sowie der dielektrischen Eigenschaften wie Permittivität und dielektrische Verluste charakterisiert.

Die Arbeit gliedert sich in fünf Kapitel. Nach einer kurzen Einführung in das allgemeine Verhalten von Dielektrika wird ein speziell für STO entwickeltes theoretisches Modell nach O. G. Vendik *et al.* [16] zur Beschreibung der temperatur- und feldstärkeabhängigen Permittivität defektbehafteter Kristalle vorgestellt. Das Modell erlaubt Rückschlüsse auf verschiedene Verlustmechanismen in den STO-Schichten zu ziehen und diese quantitativ zu beurteilen. Danach folgt ein Abschnitt über Hochfrequenztechnik, in dem auf das Verhalten von Supraleitern im Wechselfeld sowie auf charakteristische Größen koplanarer Mikrowelenleitungen eingegangen wird. Nachfolgend sind die aus der Literatur bekannten strukturellen und dielektrischen Eigenschaften der verwendeten Perowskite zusammengestellt; unter anderem werden die Vorzüge von LaAlO₃ (LAO) gegenüber anderen Substratmaterialien aufgezeigt und die Besonderheiten von STO-Einkristallen erläutert.

Bei der Mehrzahl von Arbeitsgruppen wurden die Schichtfolgen zur Herstellung passiver Mikrowellenbauelemente mittels Laserablation hergestellt [14, 17–22], in dieser Arbeit wurde das Verfahren der Kathodenzerstäubung ("Sputtern") verwendet. Zur Demonstration der Funktion einer STO/Au bzw. STO/YBCO-Mehrlagentechnologie und zur Untersuchung des dielektrischen Verhaltens der STO-Schicht wurden als Prototypen abstimmbarer supraleitender Mikrowellenbauelemente Phasenschieber und koplanare Ringresonatoren entworfen und hergestellt. Die zur Auswertung erforderliche Hochfrequenzmesstechnik wird erklärt und ein neues Verfahren zur präzisen Bestimmung der dielektrischen Verluste vorgestellt.

Bevor auf die Untersuchung von STO-Schichten eingegangen wird, werden die supraleitenden und für Hochfrequenzanwendungen relevanten Eigenschaften der YBCO-Schichtelektroden ausführlich charakterisiert. Es folgt eine strukturelle Analyse der STO-Schicht: Gitterparameter und Gleichstromtransporteigenschaften werden in Abhängigkeit von Depositionstemperatur und Prozessgasdruck untersucht.

Der Hauptteil der Arbeit ist der Untersuchung des dielektrischen Verhaltens dünner STO-Filme im Mikrowellenbereich gewidmet. Untersucht wird die Temperatur- und Spannungsabhängigkeit der Permittivität im Frequenzbereich zwischen 50 MHz und 18 GHz sowie im Temperaturbereich von 4,2 bis 300 K an koplaren Phasenschiebern. Die dielektrischen Wechselstromverluste werden mittels koplanarer Ringresonatoren mit Resonanzfrequenzen im Bereich zwischen 5 und 6 GHz charakterisiert und interpretiert. Hierfür wurde eine eigene Resonatorstruktur entworfen und ein Verfahren entwickelt, die komplexe Permittivität der STO-Schicht unabhängig von dem verwendeten Leitermaterial zu bestimmen. Besondere Aufmerksamkeit wird hierbei der qualitativen und quantitativen Analyse der Verlustmechanismen zuteil, wobei mögliche Ursachen für das beobachtete Verhalten erörtert werden. Zuletzt werden die Ergebnisse mit denen anderer Gruppen verglichen und das Anwendungspotenzial der hergestellten STO-Schichten abgeschätzt.

Diese Arbeit entstand im Rahmen des DFG-Graduiertenkollegs 329 "Anwendungen der Supraleitung" und ist eingegliedert in das HGF-Strategiefondsprojekt "Supraleiter für die Kommunikationstechnik der Zukunft".

Kapitel 2

Grundlagen

Da die physikalischen Eigenschaften oxidischer Materialien mit Methoden der Elektrotechnik analysiert werden, soll dieses Kapitel die verwendete Hochfrequenzmesstechnik veranschaulichen und eine Einführung in das Verhalten von Dielektrika geben. Zunächst wird auf die Grundlagen von dielektrischen Materialien eingegangen und Modelle zur Beschreibung der Permittivität und der dielektrischen Verluste erläutert. Anschließend folgt ein Abschnitt über das Hochfrequenzverhalten von Supraleitern, da der Hochtemperatursupraleiter YBCO als Leitermaterial zur Charakterisierung der dielektrischen Schichteigenschaften eine wesentliche Rolle spielt. Mit einer Einführung in koplanare Mikrowellenleitungen endet das Kapitel, denn erst die genaue Kenntnis darüber, wie sich eine elektromagnetische Welle entlang einer solchen Leitung ausbreitet, erlaubt Rückschlüsse auf die Eigenschaften der untersuchten dielektrischen Schichten.

2.1 Dielektrika

Dielektrika sind Materialien, die von einem elektrischem Feld durchdrungen werden können (dia = durch). Eine Voraussetzung hierfür sind gute Isolationseigenschaften, da ein elektrisches Feld im Inneren durch die Umordnung von frei beweglichen Ladungsträgern unterdrückt wird. Das elektrische Feld \vec{E} resultiert aus der Verteilung der elektrischen Ladungsdichte $\rho(\vec{r})$ im Raum [23]:

$$\vec{E}(\vec{r}) = \iiint \varrho(\vec{r}') \frac{\vec{r} - \vec{r}'}{|\vec{r} - \vec{r}'|^3} d^3 r'$$
(2.1)

Bei einer äußeren Verschiebungsdichte $\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E_0}$, die durch Ladungen außerhalb des Dielektrikums erzeugt wird, bewirkt die Coulombkraft eine Verschiebung der

im Festkörper vorhandenen Ladungen. Diese vom Festkörper ausgehende Verschiebungsdichte (Dipolmoment pro Volumen) wird dielektrische Polarisation \vec{P} genannt und ist der äußeren Verschiebungsdichte \vec{D} entgegengerichtet. Für das elektrische Feld im Materialinneren gilt demnach:

$$\varepsilon_0 \vec{E} = \vec{D} - \vec{P} \tag{2.2}$$

Wird ein elektrisches Feld mit einem Dielektrikum gefüllt, sinkt die elektrische Feldstärke von $\vec{E_0}$ durch die Polarisation auf \vec{E} ab. Das Verhältnis zwischen $|\vec{E_0}|$ und $|\vec{E}|$ gibt die Permittivitätszahl ε_r an:

$$\varepsilon_r = \frac{|\vec{E}_0|}{|\vec{E}|} = \frac{|\vec{D}|}{\varepsilon_0 |\vec{E}|} \tag{2.3}$$

Das Produkt $\varepsilon_0 \varepsilon_r$ wird als Permittivität ε bezeichnet. Das physikalisch auf Ladungen wirkende und damit messbare Feld ist ausschließlich das elektrische Feld \vec{E} . Die Felder \vec{P} und \vec{D} sind Hilfsfelder, die zur Beschreibung der Gegebenheiten in einem Festkörper dienlich sind.

Mikroskopisch gesehen beruhen die dielektrischen Eigenschaften von Festkörpern auf zwei Hauptmechanismen: Verschiebungspolarisation und Orientierungspolarisation [24]:

• In einem neutralen Kristallgitter sind die auf die Ionen wirkenden Kräfte in erster Näherung proportional zu deren Auslenkung aus der Ruhelage. Ein äußeres elektrisches Feld übt auf eine solche Ladung q die Kraft $q\vec{E}$ aus und verschiebt sie damit um $\vec{x} = \vec{F}/k = q\vec{E}/k$, woraus folgendes Dipolmoment hervorgeht:

$$\vec{p} = q\vec{x} = \frac{q^2}{k}\vec{E}$$
(2.4)

Unter der Wirkung eines äußeren elektrischen Feldes kommt es in einem Festkörper neben der Verschiebung von Ionen auch zu einer Umverteilung der Elektronendichte. Die Einstellzeiten der Verschiebungspolarisation sind meist $< 10^{-14}$ s, dies entspricht Frequenzen f > 10 THz.

• Die Orientierungspolarisation hat ihren Ursprung in der Ausrichtung von Dipolen, die schon vor Anlegen des elektrischen Feldes vorhandenen sind. Da die Wärmebewegung die Richtung einer großen Zahl solcher Dipole wahllos verteilt, besteht ohne angelegtes Feld in der Regel keine dielektrische Polarisation. Ein elektrisches Feld zwingt die Momente in die Vorzugsrichtung, und zwar um so mehr, je stärker das Feld und je niedriger die Temperatur ist. In einem Wechselfeld gleichen sich die molekularen Dipole nicht instantan der sich ändernden Feldstärke an, sondern mit einer gewissen Relaxationszeit τ , wodurch die Permittivitätszahl mit steigender



Abbildung 2.1: Definition der elektrischen Suszeptibilität bei einem nicht linearen Zusammenhang zwischen Polarisation \vec{P} und elektrischer Feldstärke \vec{E} .

Frequenz abnimmt. Bei Frequenzen um $1/\tau$ werden die dielektrischen Verluste maximal. Zur Beschreibung der Orientierungspolarisation werden die in Abschnitt 2.1.2 vorgestellten Debye-Gleichungen (2.36) verwendet [25].

Als weiterer Verlustmechanismus in einem Festkörper seien hier die ohmschen Verluste genannt, die dann auftreten, wenn elektromagnetische Felder "quasifreie" elektrische Ladungen zum Fließen bringen. Der einfachste Fall eines solchen Transportvorgangs ist das Fließen eines elektrischen Stromes im Metall. Phänomenologisch führt die Beschreibung auf die Angabe einer materialspezifischen elektrischen Leitfähigkeit σ .

Den Zusammenhang zwischen Polarisation und elektrischer Feldstärke gibt die integrale Suszeptibilität χ_I an (siehe Abbildung 2.1):

$$\chi_I = (\varepsilon_r - 1) \,\varepsilon_0 = \frac{|\vec{P}|}{|\vec{E}|} \tag{2.5}$$

Bei genügend kleinen Feldstärken ist die Beziehung zwischen der Polarisation und dem \vec{E} -Feld zunächst linear. Da Ladungsverteilungen in einem Dielektrikum nicht beliebig gegeneinander verschoben werden können, wird die Polarisation mit steigendem elektrischen Feld nicht uneingeschränkt zunehmen können, wodurch die Polarisation einen Sättigungseffekt zeigt und die Suszeptibilität abnimmt. In STO tritt dieses Verhalten im Vergleich zu "normalen" Dielektrika wie z. B.



Abbildung 2.2: Ersatzschaltbild eines verlustbehafteten Dielektrikums.

 $LaAlO_3$ schon bei relativ geringen Feldstärken ab etwa 1 kV/cm auf, weshalb hier von einem nicht linearen Dielektrikum gesprochen wird. Wird die Feldstärke weiter erhöht, übersteigt schließlich die Coulombkraft die Bindungskräfte, und es kommt zu einem dielektrischen Durchbruch, bei dem das Dielektrikum meist einen irreparablen Schaden nimmt.

Die einfachste Möglichkeit, den Zusammenhang zwischen \vec{E} und \vec{P} eines realen Dielektrikums zu bestimmen, ist, das Dielektrikum zwischen zwei Kondensatorplatten mit dem Abstand d und der Fläche A zu platzieren und aus Kapazitätsmessungen mit Hilfe der Beziehung

$$C = \varepsilon_0 \varepsilon_r \frac{A}{d} = \varepsilon_0 (\chi + 1) \frac{A}{d}$$
(2.6)

Rückschlüsse auf χ zu ziehen. Wird diese Messung mit einer in der Amplitude steigenden Wechselspannung durchgeführt, ergibt sich für χ die mit Gleichung (2.5) definierte integrale Suszeptibilität $\chi_I(E)$. Zur Bestimmung der differentiellen oder Kleinsignalsuszeptibilität,

$$\chi_D = (\varepsilon_r - 1) \,\varepsilon_0 = \frac{\partial P}{\partial E} \tag{2.7}$$

wird ein kleines Wechselspannungssignal ΔU verwendet, welches im Idealfall genügend klein ist, so dass sich die Steigung der Kurve im Bereich $U_{DC} \pm \Delta U$ nur unwesentlich verändert. Das eigentliche elektrische Feld zur Aufnahme der $\chi_D(E)$ -Kurve wird mit einer der Kleinsignalspannung ΔU überlagerten Gleichspannung U_{DC} zwischen den Kondensatorplatten eingestellt.

Um das Verhalten eines Dielektrikums elektrotechnisch zu erfassen, dient das Ersatzschaltbild aus der Parallelschaltung eines Kondensators mit einem Widerstand (Abbildung 2.2). Der Kondensator symbolisiert das ideale Dielektrikum,

2.1. DIELEKTRIKA

während sämtliche Verluste, die durch dissipative Mechanismen verursacht werden, einem Leckstrom gleichgestellt werden können, dessen Fließen im Modell durch einen endlichen Widerstand erlaubt wird. Für den Stromfluss durch eine solche Schaltung ergibt sich:

$$I = \left(\frac{1}{R} + i\omega C\right) U \tag{2.8}$$

٦

R und C können bei vorliegender Geometrie durch die Materialkonstanten des Dielektrikums, die Permittivitätszahl ε_r und die spezifische Leitfähigkeit σ , ausgedrückt werden:

$$I = \left(\sigma \frac{A}{d} + i\omega\varepsilon_0\varepsilon_r \frac{A}{d}\right)U = \left[i\omega\underbrace{\left(\varepsilon_0\varepsilon_r - i\frac{\sigma}{\omega}\right)}_{\tilde{\varepsilon}}\frac{A}{d}\right]U$$
(2.9)

Hiermit kann die komplexe Permittivität $\tilde{\varepsilon}$ definiert werden:

$$\tilde{\varepsilon} := \varepsilon_0 \varepsilon_r - i \frac{\sigma}{\omega} = \varepsilon' - i \varepsilon'' \tag{2.10}$$

Durch den Imaginär- ε'' bzw. Realteil ε' der Permittivität wird eine Phasenverschiebung φ zwischen Strom und Spannung beschrieben:

$$\tan \varphi = R\omega C = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r \omega}{\sigma} = \frac{\varepsilon'}{\varepsilon''} \tag{2.11}$$

Bei einem guten Isolator liegt φ bei ~ 90° und der Nenner geht gegen Null. Aus diesem Grunde wird bei geringen dielektrischen Verlusten anstatt φ meist der Verlustwinkel δ verwendet.

$$\tan \delta = \tan \left(90^{\circ} - \varphi\right) = \frac{1}{\tan \varphi} = \frac{\varepsilon''}{\varepsilon'} = \frac{\sigma}{\varepsilon_0 \varepsilon_r \omega}$$
(2.12)

2.1.1Modellbeschreibung der Permittivität

Die klassische Theorie zur Beschreibung der Feldstärkeabhängigkeit der Permittivität eines Dielektrikums ist eine von Ginzburg [26] und Devonshire [27] aufgestellte phänomenologische Theorie, die aus der London Theorie der Phasenübergänge 2. Ordnung [28] resultiert. Für die Temperaturabhängigkeit wird meist ein Curie-Weiss-Gesetz angenommen. Eine Möglichkeit zur Kombination beider Modelle, mit der eine Vorhersage des temperatur- und feldstärkeabhängigen Verhaltens der Permittivität möglich wird, wurde von O. G. Vendik et al. [16]

vorgeschlagen. Neben der Eigenschaft von STO, dass der ferroelektrische Phasenübergang bei tiefen Temperaturen durch Quantenoszillationen unterdrückt wird (näheres dazu in Kapitel 2.4.3), geht zusätzlich der Einfluss statistisch verteilter Dipolmomente, die aus Ladungsdefekten oder Gitterfehlstellen resultieren, durch die Einführung einer neuen Defektkonstanten in das Modell mit ein. Die Gültigkeit dieses phänomenologischen Modells wird durch mehrere von Publikationen untermauert [29–31].

Ginzburg und Devonshire beschreiben die Polarisation eines Dielektrikums mit der Theorie von Landau, indem sie die freie Enthalpie G (oder auch Gibbssche frei Energie) nach höheren Ordnungen der Polarisation P entwickeln, wobei α und β phänomenologische Konstanten sind:

$$G(P) = G_0 + \frac{\alpha}{2}P^2 + \frac{\beta}{4}P^4$$
 (2.13)

Da obige Gleichung kein elektrisches Feld im Innern des Festkörpers berücksichtigt, ist es aufgrund der Beziehung $\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$ sinnvoll, an Stelle der Polarisation die Verschiebungsdichte D als Ordnungsparameter zu verwenden [32], wobei als Entwicklungskoeffizienten die Permittivitätszahl ε_r und die spontane Verschiebung D_N verwendet werden:

$$G(D) = G_0 + \frac{1}{2\varepsilon_r\varepsilon_0}D^2 + \frac{1}{4\varepsilon_0 D_N^2}D^4$$
(2.14)

Für das elektrische Feld im Dielektrikum ergibt sich durch Ableiten obiger Gleichung nach D:

$$\varepsilon_0 E := \varepsilon_0 \frac{\partial G}{\partial D} = \frac{1}{\varepsilon_r(T)} D + \frac{1}{D_N^2} D^3$$
(2.15)

Im Folgenden soll ein mit Dielektrikum gefüllter Plattenkondensator mit der Fläche A und dem Plattenabstand h betrachtet werden, dessen relevante physikalische Größen die Ladung Q und die Spannung U sind. Eine Beziehung zwischen diesen von außen zugänglichen Größen gibt Gleichung (2.15), indem die Verschiebungsdichte durch D = Q/A und die elektrische Feldstärke durch E = U/h ersetzt wird:

$$Q + Q^3 \frac{\varepsilon_r(T)}{\left(D_N A\right)^2} = \varepsilon_0 \varepsilon_r(T) A \frac{U}{h}$$
(2.16)

Eine Substitution mit den folgenden, dimensionslosen Variablen

$$y := \frac{Q}{D_N A} \sqrt{3\varepsilon_{00}},$$

$$\xi_B := \frac{U}{E_N h} = \frac{E}{E_N}$$

$$\eta(T) := \frac{\varepsilon_{00}}{\varepsilon_r(T)}$$

$$E_N := \frac{2D_N}{\varepsilon_r (3\varepsilon_{00})^{3/2}}$$

(2.17)

bringt Gleichung (2.16) in die Form:

$$y^{3} + 3\eta(T)y - 2\xi_{B}(E) = 0$$
(2.18)

Hierbei ist ε_{00} eine Modellkonstante. Die normierten Größen y und ξ_B sind proportional zur Verschiebungsdichte bzw. zur elektrischen Feldstärke. E_N bestimmt die Feldstärkenempfindlichkeit von y und die Funktion $\eta(T)$, die nachfolgend behandelt wird, enthält die Temperaturabhängigkeit der Permittivitätszahl.

Wie schon angedeutet, verhält sich Strontiumtitanat wie ein Ferroelektrikum, bei dem der ferroelektrische Phasenübergang durch Quantenoszillationen des Kristallgitters unterdrückt wird. Hierdurch ist im unteren Temperaturbereich das Curie-Weiss-Gesetz nicht mehr erfüllt. Die resultierende Temperaturabhängigkeit der reziproken Permittivitätszahl folgt der Funktion [33]

$$\eta(T) = \frac{\theta_D}{T_C} \Psi\left(\frac{T}{\theta_D}\right) - 1 \tag{2.19}$$

mit dem Debye-Integral

$$\Psi(z) = \frac{1}{4} + z^2 \int_0^{1/z} \frac{x}{\exp(x) - 1} \, dx, \qquad z = \frac{T}{\theta_D} \qquad . \tag{2.20}$$

 $\theta_D = h\nu_F/k_B$ ist ein Parameter analog zur Debye-Temperatur der Untergitteroszillationen, die für die ferroelektrische Polarisation verantwortlich sind. ν_F ist die zugehörige Abschneidefrequenz des Debyespektrums und T_C das Analogon zur Curie-Temperatur.

Mit der Verwendung mathematischer Näherungen lässt sich Gleichung (2.19) in der Form

$$\eta(T) = \frac{\theta_D}{T_C} \sqrt{\frac{1}{16} + \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^2} - 1$$
(2.21)

ausdrücken. Im Temperaturbereich $0 \leq (T/\theta_D) \leq 2$ ist der Näherungsfehler im Vergleich zum Deybe-Integral < 0,1%. Für hohe Temperaturen $T > \theta_D$ nähert sich Gleichung (2.21) einem Curie-Weiss-Verhalten an:

$$\varepsilon_r(T) = \frac{\varepsilon_{00}}{\eta(T)} \approx \frac{\varepsilon_{00}}{\frac{T}{T_C} - 1} = \frac{\varepsilon_{00}T_C}{T - T_C}$$
(2.22)

Die Größe $C = \varepsilon_{00} T_C$ entspricht der Curie-Konstanten.

Unter der Voraussetzung, dass das Dielektrikum sich in der paraelektrischen Phase befindet, was der Bedingung

$$\xi_B^2 + \eta^3(T) > 0 \tag{2.23}$$

entspricht, kann Gleichung (2.18) nach der normierten dielektrischen Verschiebung y aufgelöst werden:

$$y = \left[\left(\xi_B^2 + \eta^3 \right)^{1/2} + \xi_B \right]^{1/3} - \left[\left(\xi_B^2 + \eta^3 \right)^{1/2} - \xi_B \right]^{1/3}$$
(2.24)

In realen Systemen kann nicht vorausgesetzt werden, dass die elektrische Feldstärke im ganzen Volumen konstant ist. Ladungsdefekte, Defektdipole, Stapelfehler, Versetzungen oder mechanische Spannungen können die dielektrische Polarisation und damit das resultierende elektrische Feld lokal beeinflussen. Um solchen statistisch verteilten "Störzentren" Rechnung zu tragen, wird für das reale elektrische Feld eine Gaussverteilung mit dem Mittelwert ξ_B und der Standardabweichung ξ_S angenommen, wobei $\xi_B = U/(E_N h)$ durch die von außen anliegende Spannung gegeben ist und die strukturelle Defektkonstante ξ_S ein Maß für die Schichtqualität darstellt. Eine solche Verteilung wird berücksichtigt, indem das Quadrat der normierten Verschiebungsdichte aus Gleichung (2.24)

$$y^{2}\left(\xi_{B},\eta\right) = \left[\left(\xi_{B}^{2}+\eta^{3}\right)^{1/2}+\xi_{B}\right]^{2/3}+\left[\left(\xi_{B}^{2}+\eta^{3}\right)^{1/2}-\xi_{B}\right]^{2/3}-2\eta\qquad(2.25)$$

über die gaussverteilte Feldstärke gemittelt wird:

$$\langle y^2 \rangle \left(\eta, \xi_B, \xi_S\right) = \frac{1}{2\xi_S \sqrt{\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} y^2 \left(E', \eta\right) \exp\left[-\left(\frac{E' - \xi_B}{2\xi_S}\right)^2\right] dE' \qquad (2.26)$$

Hierbei ist E' die Integrationsvariable des Integrals über die Feldstärke. Numerische Simulationen zeigen [16], dass $\langle y^2 \rangle$ in guter Übereinstimmung (Abweichungen < 6%) genähert werden kann, indem ξ_B in Gleichung (2.25) durch den Ausdruck

$$\xi = \sqrt{\xi_S^2 + \xi_B^2} \tag{2.27}$$

2.1. DIELEKTRIKA

ersetzt wird:

$$\langle y^2 \rangle \left(\eta, \xi_B, \xi_S\right) = y^2 \left(\xi, \eta\right)$$
 (2.28)

Die Kleinsignalkapazität C_{ac} eines mit Dielektrikum gefüllten Plattenkondensators ergibt sich aus der Ableitung von Gleichung (2.16) nach der Ladung Q:

$$C_{ac}(U) = \frac{1}{\frac{\partial U}{\partial Q}} = \frac{\varepsilon_0 A}{h} \cdot \frac{1}{\frac{1}{\varepsilon_r(T)} + 3\left(\frac{Q_{dc}}{D_N A}\right)^2}$$
(2.29)

Unter Verwendung der Notationen 2.17 resultiert:

$$C_{ac}(U) = \frac{\varepsilon_0 A}{h} \cdot \underbrace{\frac{\varepsilon_{00}}{\eta(T) + y^2}}_{\varepsilon_{eff}}$$
(2.30)

Hieraus ergibt sich schließlich durch Einsetzen der gemittelten normierten Verschiebungsdichte $\langle y^2 \rangle$ für y^2 die effektive Permittivitätszahl des nichtlinearen Dielektrikums:

$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon_{00} \mathcal{G} \left(T, E \right) = \frac{\varepsilon_{00}}{\left[\left(\xi^2 + \eta^3 \right)^{1/2} + \xi \right]^{2/3} + \left[\left(\xi^2 + \eta^3 \right)^{1/2} - \xi \right]^{2/3} - \eta}$$
(2.31)

 mit

$$\xi(E) = \sqrt{\xi_S^2 + \left(\frac{E}{E_N}\right)^2} \quad \text{und} \quad \eta(T) = \frac{\theta_D}{T_C} \sqrt{\frac{1}{16} + \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^2} - 1$$

Die Funktion $\mathcal{G}(T, E)$ des Vendik-Modells bietet somit die Möglichkeit, die Temperatur- und Feldstärkeabhängigkeit der Permittivitätszahl phänomenologisch zu beschreiben, womit z. B. die numerische Simulation von Bauelementstrukturen erheblich erleichtert wird.

2.1.2 Dielektrische Verluste

Die Wechselwirkung einer elektromagnetischen Welle mit Materie besteht darin, dass die mit dem elektrischen Feld verbundene Coulombkraft und magnetische Induktion auf die Ladungsverteilung des Festkörpers einwirken. Dielektrische Verluste treten erst dann auf, wenn Mikrowellen-Photonen vom Festkörper absorbiert werden. Dies kann z. B. durch die Wechselwirkung mit Gitterschwingungen (Phononen) verursacht werden. Auch die Anwesenheit von Defektdipolen in Form "gebundener Ladungen" liefern durch Relaxation einen eigenständigen Beitrag zu den Mikrowellenverlusten. Ein anderer Verlustmechanismus besteht



Abbildung 2.3: Schematische Darstellung eines transversal akustischen und eines transversal optischen Phononenastes. Das Vektordiagramm rechts kennzeichnet einen Zwei-Phononen-Differenzprozess, der den größten Beitrag zur Phononenrelaxationsrate leistet. Die Lorentz-Kurven am Rand der Brillouin-Zone deuten die Unschärfe der Phononenfrequenzen an.

darin, dass Defekte zur Anwesenheit "freier Ladungsträger" und damit zu dissipativer elektrischer Leitung führen. Im Laufe der Untersuchungen an STO hat sich herausgestellt, dass mit hoher Wahrscheinlichkeit der Ursprung der sowohl in dünnen Schichten als auch im Einkristall auftretenden Verluste im wesentlichen auf die im Folgenden beschriebenen vier Mechanismen zurückgeführt werden kann.

2.1.2.1 Verluste durch Multiphononenstreuung

Dielektrische Verluste entstehen dadurch, dass der elektromagnetischen Welle durch Absorption eines Photons Energie entzogen und dem Kristallgitter in Form von Phononen zugeführt wird. Aufgrund verschiedener möglicher Schwingungsmoden des Kristallgitters wird zwischen vier Klassen von Phononen unterschieden. Bei optischen Phononen schwingen die Atome der Einheitszelle gegenphasig, wodurch eine wechselnde Polarisation des Gitters bewirkt wird, auf die eine elektromagnetische Welle wirken kann. Bei <u>a</u>kustischen Phononen bewegen sich die Ionen im Wesentlichen in Phase, wodurch die Polarisationsänderung vergleichsweise schwach ist. Beide Schwingungsmoden werden nochmals in <u>t</u>ransversale oder <u>l</u>ongitudinale Phononen unterteilt. Da Photonen transversal polarisiert sind, kann eine elektromagnetische Welle in einem perfekten Kristall nur mit TO-Phononen wechselwirken [34].

Bei einem Photonen-Absorptionsprozess gilt sowohl Energie- als auch Impulserhaltung. Photonen besitzen den Impuls $\hbar k_0 = \hbar \omega / c$, der wegen der hohen Lichtgeschwindigkeit c um Größenordnungen kleiner ist als der Impuls $\hbar k_1 = \hbar \omega_{TO}/v$

2.1. DIELEKTRIKA

von optischen Phononen [34]. Ein Ein-Phononen-Prozess, bei dem ein Photon absorbiert und ein Phonon erzeugt wird, ist deshalb nur im Zentrum der Brillouin-Zone mit $k \approx 0$ möglich, aber wegen der im Vergleich zur Phononenenergie mit $\omega_{TO} > 10^{12} \text{ s}^{-1}$ viel kleineren Energie der Mikrowellen-Photonen unwahrscheinlich. Der wahrscheinlichste Fall einer Wechselwirkung ist ein Zwei-Phononen-Differenzprozess, der in Abbildung 2.3 skizziert ist. Hierbei kann ein TO-Phonon aus einem TA-Phonon mit niedrigerer Energie, aber etwa gleichem Impuls ($\hbar \vec{k}_1 \approx \hbar \vec{k}_2$) durch die Vernichtung des Photons hervorgehen. Normalerweise reicht die Energie eines Mikrowellen-Photons im GHz-Bereich für einen solchen Übergang nicht aus, da die Energiebänder beider Phononenzweige zu weit auseinander liegen. Wird jedoch für die Phononen eine endliche Halbwertszeit τ angenommen, kann die resultierende Energieverschmierung aufgrund der Unschärferelation $\Delta E \Delta \tau \geq \hbar$ einen Übergang ermöglichen.

Ausführlichere Erläuterungen bezüglich Phononenmoden in perfekten Kristallgittern sind in [35] zu finden. Theoretische Rechnungen zu Multiphononenstreuung in STO von Balagurov *et al.* [36] berücksichtigen Übergänge, an denen bis zu vier Phononen gleichzeitig beteiligt sind. Hiernach sollte sich der Verlustfaktor tan δ wie folgt verhalten:

$$\tan \delta_{MP} \sim \omega T^P \left(\underbrace{\frac{C}{T - T_C}}_{\sim \varepsilon_r} \right)^{3/2} \quad \text{mit} \quad P = 2$$
(2.32)

In obiger Gleichung ist ein Curie-Weiss-Gesetz mit der Curie-Konstante C zu erkennen, welches den temperaturabhängigen Verlauf der Permittivität für Ferroelektrika oberhalb der Curie-Temperatur beschreibt. Um das in Kapitel 2.1.1 vorgestellt Vendik-Modell zu berücksichtigen, wird der Klammerausdruck durch die Funktion \mathcal{G} ersetzt, welche das Curie-Weiss-Gesetz in modifizierter Form enthält [37]:

$$\tan \delta_{MP} = A_{MP} \left(\frac{T}{T_C}\right)^P \mathcal{G}^{3/2} \omega \qquad (2.33)$$

 A_{MP} ist die Proportionalitätskonstante. Die Theorie der Multiphononenstreuung gilt jedoch nur für den Fall eines perfekten Kristallgitters. Defekte im Gitter können den Exponenten P der Temperaturabhängigkeit bis hin zu P = 0 herabsenken [38]. Aus diesem Grunde wurde der Exponent als weiterer Modellparameter zugelassen. Wie die Auswertung der Messdaten in Kapitel 4.3.4 ergibt, zeigen die meisten STO-Schichten ein von P = 2 abweichendes Verhalten der Verluste.

2.1.2.2 Mikrowellenabsorption durch ferroelektrische Domänen

Auch in einem paraelektrischen Medium können sich, besonders in der Nähe des ferroelektrischen Phasenübergangs, Domänen mit spontaner (ferroelektrischer) Polarisation ausbilden, jedoch verhindert die thermische Energie $(T > T_C)$ eine langreichweitige Ordnung. Letztere ist wegen der durch die hohe Polarisierbarkeit begrenzten Reichweite des Coulombfeldes stark abgeschirmt, so dass schon relativ kleine Kristallbereiche bezüglich ihres Polarisationszustandes autonom sind [39]. Nach dem Abschalten eines äußeren Feldes wird durch thermische Aktivierung die gemittelte Volumenpolarisation auf Null relaxieren. Derartige Domänen mit Polarisations-Fluktuationen sind von Känzig [40] in BaTiO₃-Einkristallen anhand von Anomalien des integralen Röntgen-Reflexionsvermögens gefunden worden und haben dort Durchmesser von 10 bis 100 nm.

Theoretische Betrachtungen [41] zeigen, dass eine elektromagnetische Welle mit den ferroelektrischen Domänen wechselwirken kann, wodurch akustische Phononen beliebig kleiner Energien im Zentrum der Brillouin-Zone angeregt werden können. Dies gelingt um so besser, je größer das Dipolmoment ist und je homogener die Dipole durch äußere Felder ausgerichtet werden. Für die dielektrischen Verluste ergibt sich aus der Theorie folgender Zusammenhang, hier ausgedrückt durch die normierte Verschiebungsdichte y und dem Modellfaktor A_{FD} :

$$\tan \delta_{FD} = A_{FD} \,\omega y^2 \mathcal{G} \tag{2.34}$$

2.1.2.3 Verluste durch Ladungsdefekte

In vielen Fällen führen Abweichung von der idealen Kristallordnung zu Raumladungen. Neben Punktdefekten wie z. B. Fehlstellen, Frenkel-Defekte oder Verunreinigungen können Flächenversetzungen an Korngrenzen oder Verzwillingungen lokalisierte Raumladungen verursachen. Ein elektromagnetisches Wechselfeld kann mit diesen Ladungsträgern wechselwirken und akustische Phononen derselben Frequenz im Festkörper anregen. Die dielektrischen Verluste sind nach diesem einfachen Modell proportional zur Defektdichte N_D , der Polarisierbarkeit (~ \mathcal{G}) und der Frequenz [42]:

$$\tan \delta_Q = A_Q N_D \,\omega \mathcal{G} \tag{2.35}$$

 A_Q ist der zugehörige Proportionalitätsfaktor.

2.1.2.4 Debyeartige Verlustmechanismen

Mit dem Debye-Modell können physikalische Mechanismen beschrieben werden, bei denen die Polarisierung nach dem Abschalten des elektrischen Feldes nach dem Gesetz $P(t) = P_0 \exp(-t/\tau)$ exponentiell abklingt [43]. Die Zeitkonstante τ wird als Debye-Relaxationszeit bezeichnet.

Verlustbehaftete Systeme, die mit dem Debye-Modell beschrieben werden können, sind z. B.: 1. Ein frei drehbarer, trägheitsloser molekularer Dipol in einem viskosen

2.1. DIELEKTRIKA

Medium; 2. eine isolierte Ladung, die aufgrund thermischer Aktivierung zwischen zwei lokalisierten Zuständen wechseln kann; 3. ein Dipol, der zwei diskrete Orientierungen im Raum bevorzugt und 4. die Parallelschaltung einer Kapazität mit einem Widerstand.

Für die komplexe Permittivitätszahl ergibt sich jeweils die Abhängigkeit:

$$\varepsilon_r = \varepsilon_r^{\infty} + \underbrace{\left(\varepsilon_r^S - \varepsilon_r^{\infty}\right)}_{\varepsilon_r^{\Delta}} \cdot \left[\frac{1}{1 + \omega^2 \tau^2} + i \frac{\omega \tau}{1 + \omega^2 \tau^2}\right]$$
(2.36)

Sobald die angelegte Kreisfrequenz ω in die Größenordnung von τ^{-1} kommt, können die elektrischen Dipole nicht mehr schnell genug dem Feld folgen. Dies bedingt ein Absinken der Permittivitätszahl und eine verstärkte Absorption von Energie aus dem Feld, die bei noch höherer Frequenz wieder absinkt, während der Realteil der Permittivitätszahl den niedrigeren Wert beibehält. Die Gleichstrompermittivität ε_r^S sinkt also mit steigender Frequenz in der Nähe der Relaxationsfrequenz $1/\tau$ auf die Restpermittivität ε_r^∞ ab. Da die Relaxationsprozesse meist thermisch aktiviert sind, folgt die Temperaturabhängigkeit der Relaxationszeit τ einem Arrhenius-Gesetz:

$$\tau = \frac{1}{\omega_p} = \tau_\infty \exp\left(\frac{W}{k_B T}\right) \tag{2.37}$$

Hierbei ist W die Aktivierungsenergie, T die Temperatur und τ_{∞} die Relaxationszeit für $T \to \infty$.

Bei der Kreisfrequenz ω_p werden die Verluste maximal. Für den Verlustfaktor tan δ bei beliebiger Temperatur und Frequenz bedeutet Gleichung (2.36) unter der Annahme $\varepsilon_r^{\infty} \gg \varepsilon_r^{\Delta}$:

$$\tan \delta_D = \frac{\varepsilon_r''}{\varepsilon_r'} \approx \frac{\varepsilon_r^{\Delta}}{\varepsilon_r} \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2 \tau^2} = A_D \frac{1}{T\mathcal{G}} \frac{\omega\tau}{1 + \omega^2 \tau^2}$$
(2.38)

Der Modellparameter $A_D = \varepsilon_r^{\Delta} / \varepsilon_{00}$ beinhaltet den Beitrag ε_r^{Δ} der Defektdipole an der Gesamtpermittivität, der sich wie folgt zusammensetzt:

$$\varepsilon_r^{\Delta} = \frac{\eta N p^2}{\varepsilon_0 k_B T} \tag{2.39}$$

N ist die Konzentration der Defektdipole mit dem Dipolmoment p und $\eta \geq 1$ ein Korrekturfaktor der Größenordnung 1 zur Berücksichtigung des inneren Feldes [44].



Abbildung 2.4: Auf $\tan \delta_{max}$ normierte Darstellung des $\tan \delta(T, E)$ -Verhaltens der vier Verlustmechanismen.

Mechanismus	$T\uparrow$	$E\uparrow$
Multiphononenstreuung	\uparrow	\downarrow
Ferroelektrische Domänen	\downarrow	\uparrow
Ladungsdefekte	\uparrow	\downarrow
Debye-Verluste	\uparrow	\uparrow

Tabelle 2.1: Fallende (\downarrow) oder steigende (\uparrow) Tendenz von tan δ mit zunehmender Temperatur T oder elektrischer Feldstärke E.

2.1.3 Modellierung der Verlustmechanismen

Da der Ursprung der Verluste jeweils verschieden ist, und damit alle Verluste von einander unabhängig sind, sollten sich alle tan δ -Werte zum Gesamtverlust aufsummieren. In Abbildung 2.4 ist das temperatur- und feldstärkenabhängige Verhalten der vier Mechanismen in normierter Auftragung dargestellt. Als Grundlage für die Berechnung wurde die Funktion \mathcal{G} gewählt, die anhand realer Messungen an einer STO-Schicht (Depositionstemperatur 810°C, siehe Kapitel 4.3.2) bestimmt wurde. In Tabelle 2.1 ist nochmals zur Übersicht zusammengestellt, wie sich tan δ nach den theoretischen Vorhersagen mit zunehmender Temperatur und Feldstärke entwickeln sollte.

Aufgrund der Tatsache, dass jeder Verlustmechanismus ein anderes $\tan \delta(T, E)$ -Verhalten zeigt, werden Rückschlüsse auf die Ursachen der beobachteten Verluste möglich und es können die Anteile der Mechanismen am Gesamtverlust quantitativ bestimmt werden.

2.2 Supraleitung

2.2.1 Zweiflüssigkeitsmodell

Ein erfolgreiches Modell zur Beschreibung von Ladungstransport durch einen Supraleiter ist das Zweiflüssigkeitsmodell nach Gorter und Casimir [45]. Der Ladungstransport wird hierbei zum einen von normalleitenden Elektronen der Dichte n_n und der Geschwindigkeit \vec{v}_n getragen. Zum anderen addiert sich ein supraleitender Stromanteil \vec{j}_s aus Cooper-Paaren der Dichte $n_s/2$, so dass die Gesamtstromdichte \vec{j} lautet:

$$\vec{j} = \vec{j}_n + \vec{j}_s = -n_n e \vec{v}_n - n_s e \vec{v}_s \quad \text{mit} \quad n = n_n + n_s$$
 (2.40)

Da Cooper-Paare aus zwei korrelierten Elektronen bestehen, tragen sie die doppelte Elementarladung 2e und die zweifache Elektronenmasse $2m_e$. Beide Ströme fließen unabhängig voneinander und beeinflussen sich gegenseitig nicht. Während



Abbildung 2.5: Ersatzschaltbild eines Supraleiters. Der imaginäre Anteil der Leitfähigkeit entspricht dem Stromfluß durch die Induktivität.

die Cooper-Paare reibungslos im Supraleiter beschleunigt werden und so der Bewegungsgleichung

$$2m_e \frac{d\vec{v}_s}{dt} = -2e\vec{E} \tag{2.41}$$

gehorchen, wird die Bewegung der normalleitenden Elektronen aufgrund einer endlichen mittleren Stoßzeit τ behindert [46]:

$$m_e \frac{d\vec{v}_n}{dt} + m_e \frac{\vec{v}_n}{\tau} = -e\vec{E}$$
(2.42)

Das Ohmsche Gesetz

$$\vec{j}_n + \vec{j}_s = \vec{j} = \tilde{\sigma}\vec{E} = (\sigma' - i\sigma'')\vec{E}$$
(2.43)

liefert aus obigen Differentialgleichungen mit dem periodischen Ansatz

$$\vec{j}_s = \vec{j}_{s0} e^{i\omega t} \quad \vec{j}_n = \vec{j}_{n0} e^{i\omega t} \quad \text{und} \quad \vec{E} = \vec{E}_0 e^{i\omega t} \tag{2.44}$$

für die komplexen Anteile der Leitfähigkeit $\tilde{\sigma} = \sigma' - i\sigma''$ folgendes Ergebnis:

$$\sigma' = \frac{n_n e^2 \tau}{m_e \left(1 + \omega^2 \tau^2\right)} \tag{2.45}$$

$$\sigma'' = \frac{n_s e^2}{\omega m_e} + \frac{\omega n_n e^2 \tau^2}{m_e \left(1 + \omega^2 \tau^2\right)}$$
(2.46)

Zwar berücksichtigt dieses einfache Modell nicht den quantenmechanischen Ursprung der Supraleitung, doch wird das Konzept der komplexen Leitfähigkeit deutlich, das zum Verständnis des Hochfrequenzverhaltens von supraleitenden Materialien notwendig ist. Da im Temperaturbereich $T < 0.995T_C$ für die Ladungsträgerdichten $n_s \gg n_n$ gilt, kann der normalleitende Anteil der imaginären Leitfähigkeit vernachlässigt werden [46]. Mit der Näherung $\omega^2 \tau^2 \ll 1$, die für Frequenzen unterhalb 100 GHz bei YBCO gültig ist ($\tau < 10^{-12}$ s [47]), vereinfachen sich die Gleichungen (2.45) und (2.46) zu:

$$\sigma' = \frac{n_n e^2 \tau}{m_e} \tag{2.47}$$

$$\sigma'' = \frac{n_s e^2}{\omega m_e} \tag{2.48}$$

Eine anschauliche Vorstellung der komplexen Leitfähigkeit kann das Ersatzschaltbild 2.5 aus einem Widerstand und einer parallelgeschalteten Induktivität geben, nach dem sich der Stromfluss durch einen Supraleiter wie folgt zusammensetzt:

$$I = \left(\frac{1}{R} - i\frac{1}{\omega L}\right)U = \left(\sigma' - i\sigma''\right)\frac{A}{l}U = \left(n_n\tau - i\frac{n_s}{\omega}\right)\frac{e^2}{m_e}\frac{A}{l}U \qquad (2.49)$$

Hierbei ist A die Querschnittsfläche und l die Länge des Leiters. Mit dem Einsetzen der Supraleitung schließt im Gleichstromfall der Cooper-Paar-Strom, welcher durch die Spule fließt, den Widerstand kurz. Mit zunehmender Frequenz steigt jedoch die Impedanz der Induktivität, wodurch über dem Widerstand eine Spannung abfällt und auch normalleitende Elektronen zum Fließen angeregt werden. Für Wechselströme ist demnach trotz Supraleitung kein verlustloser Ladungstransport möglich.

2.2.2 Londonsche Eindringtiefe

Die wichtigsten Eigenschaften eines Supraleiters, nämlich ein verschwindender Gleichstromwiderstand und der Meissner-Ochsenfeld-Effekt, werden phänomenologisch durch die zwei Londonschen Gleichungen ausgedrückt [48]. Mit der Variablensubstitution $\Lambda = m/(n_s e^2)$ und $j_s = -n_s e \vec{v}_s$ ist die erste Londonsche Gleichung äquivalent zu Gleichung (2.41):

$$\Lambda \frac{\partial \vec{j}_s}{\partial t} = \vec{E} \qquad 1. \text{ Londonsche Gleichung} \qquad (2.50)$$

Wird dieser Ausdruck mit dem Rotationsoperator erweitert

$$\Lambda \frac{\partial}{\partial t} \left(\nabla \times \vec{j}_s \right) = \nabla \times \vec{E} \quad , \qquad (2.51)$$

folgt zusammen mit dem Induktionsgesetz

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \tag{2.52}$$

die Beziehung

$$\Lambda \nabla \times \vec{j}_s = -\vec{B} + \vec{B}_0 \quad . \tag{2.53}$$

Der Meissner-Ochsenfeld-Effekt besagt, dass das Magnetfeld im Inneren eines ausgedehnten Supraleiters verschwindet. Dazu sind supraleitende Abschirmströme notwendig, die das Magnetfeld $-\vec{B}$ hervorrufen, wodurch ein von außen anliegendes Feld \vec{B} gerade kompensiert wird. Für die Integrationskonstante bedeutet dies $\vec{B}_0 = 0$, woraus die zweite Londonsche Gleichung resultiert:

$$\Lambda \nabla \times \vec{j}_s = -\vec{B}$$
 2. Londonsche Gleichung (2.54)

An der Grenzfläche zum Supraleiter kann das Magnetfeld jedoch nicht sprunghaft auf Null abfallen, da dies eine unendliche Stromdichte bedingen würde, aber nur endliche viele Cooper-Paare im Volumen vorhanden sind. Die wahren Verhältnisse lassen sich aus der 2. Londonschen Gleichung und der 1. Maxwellgleichung ($\nabla \times \vec{B} = \mu_0 \vec{j}_s$) herleiten:

$$\nabla \times \nabla \times \vec{B} = \mu_0 \nabla \times \vec{j}_s = -\frac{\mu_0}{\Lambda} \vec{B}$$
(2.55)

Für die in Abbildung 2.6 dargestellte Geometrie einer ebenen Oberfläche senkrecht zur x-Richtung und einem Magnetfeld parallel zur z-Richtung vereinfacht sich obige Gleichung zu:

$$\frac{d^2 B_z(x)}{dx^2} - \frac{\mu_0}{\Lambda} B_z(x) = 0$$
(2.56)

Diese Differentialgleichung hat die physikalische Lösung:

$$B_z(x) = B_z(0) \exp\left(-\frac{x}{\sqrt{\Lambda/\mu_0}}\right)$$
(2.57)

Das Magnetfeld fällt also innerhalb der Londonschen Eindringtiefe $\lambda_L = \sqrt{\Lambda/\mu_0}$ auf den 1/*e*-ten Teil ab.

Zur Herstellung von Bauelementen mittels dünner, supraleitender Schichten spielt λ_L eine zentrale Rolle, da besonders bei den HTSL-Materialien λ_L mit z. B. einem Wert für YBCO von $\lambda_L(0 \ K) \approx 150 \ \text{nm}$ [49] in der Größenordnung der Schichtdicke liegt, und somit entscheidenden Einfluss auf die elektrischen Eigenschaften nimmt.

Die wichtigen Größen eines Supraleiters sind zusammengefasst die Londonsche Eindringtiefe λ_L und die elektrische Leitfähigkeit der normalleitenden Elektronen σ' . Mit diesen Größen ergibt sich die komplexe Leitfähigkeit zu:

$$\tilde{\sigma} = \sigma' - i \frac{1}{\omega \mu_0 \lambda_L^2} \tag{2.58}$$



Abbildung 2.6: Abnahme des magnetischen Feldes in einem Supraleiter senkrecht zur Oberfläche.

2.2.3 Oberflächenimpedanz

Fließt Strom durch einen konventionellen Leiter, so ist im Gleichstromfall die Stromdichte j über den Leiterquerschnitt konstant. Die charakteristische Materialgröße, mit der sich der Leitungswiderstand beschreiben lässt, ist somit der spezifische Widerstand ρ . Diese Situation ändert sich grundlegend bei hochfrequenten Wechselströmen: Aufgrund des Skineffekts konzentriert sich der Stromfluss auf eine unmittelbar unter der Oberfläche liegende dünne Schicht. Eine ähnliche Stromverteilung tritt auch im Supraleiter, wie im vorherigen Kapitel beschrieben wurde, durch den Meissner-Ochsenfeld-Effekt auf.

Zur materialspezifischen Beschreibung der für Wechselströme relevanten Impedanz tritt an Stelle des spezifischen Widerstandes die komplexe spezifische, innere Oberflächenimpedanz Z_S :

$$Z_S = R_S + iX_S = \frac{U(t)}{I(t)} = \sqrt{\frac{\tilde{\mu}}{\tilde{\varepsilon}}} = \sqrt{\frac{i\omega\mu_0}{i\omega\varepsilon_0 + \tilde{\sigma}}}$$
(2.59)

Der Realteil ist der für die Leiterverluste verantwortliche Oberflächenwiderstand R_S , während die Oberflächenreaktanz X_S die Phasenverschiebung zwischen Strom und Spannung angibt. Wird für die spezifische Leitfähigkeit die komplexe Leitfähigkeit $\tilde{\sigma} = \sigma' - i\sigma''$ des Zweiflüssigkeitsmodells eingesetzt, lässt sich R_S und X_S



Abbildung 2.7: Symmetrische Koplanarleitung.

unter der Bedingung $\sigma'' \gg \sigma'$ wie folgt ausdrücken:

$$R_S = \frac{1}{2}\omega^2 \mu_0^2 \sigma' \lambda_L^3 \tag{2.60}$$

$$X_S = \omega \mu_0 \lambda_L \tag{2.61}$$

2.3 Theorie der Mikrowellenleitung

Die in einer idealen TEM-Leitung auftretende Welle besitzt ausschließlich <u>t</u>ransversal zur Ausbreitungsrichtung gerichtete <u>e</u>lektrische und <u>m</u>agnetische Feldkomponenten, wie es beispielhaft für eine symmetrische Koplanarleitung in Abbildung 2.7 dargestellt ist. Alle Feldlinien liegen in der Querschnittsebene der Leitung. Auf den Elektroden fließen nur Ströme längs der Ausbreitungsrichtung der Welle, d. h. die Leiterquerschnitte senkrecht zur Ausbreitungsrichtung sind Äquipotenzialflächen. Diese Verhältnisse liegen jedoch nur dann vor, wenn der gesamte felderfüllte Leitungsquerschnitt mit einem homogenen Dielektrikum gefüllt ist. Ist dies nicht der Fall, treten sowohl im Magnetfeld als auch im elektrischen Feld längsgerichtete Feldkomponenten auf. Ist die Vakuumwellenlänge λ_0 jedoch groß gegenüber der Querabmessung $S + 2G < 0.1 \lambda_0$, können diese Längskomponenten vernachlässigt werden [50]. Zur Analyse der Quasi-TEM-Leitung können deshalb statische TEM-Modelle benutzt werden, wie sie im Anhang A aufgeführt sind.


Abbildung 2.8: Differentielles Ersatzschaltbild einer TEM-Leitung und die Bedeutung der Leitungsbeläge. Bei einem Supraleiter ist der Widerstandsbelag R' gemäß Kapitel 2.2.1 komplex. Der imaginäre Anteil kann als ein zusätzlicher Induktivitätsbelag (gestrichelt dargestellt) aufgefasst werden.

2.3.1 Das Modell der TEM-Leitung

Eine eindimensionale TEM-Leitung wird durch ein differentielles Ersatzschaltbild aus hintereinandergeschalteten, infinitesimal kleinen Netzwerken, wie sie in Abbildung 2.8 dargestellt sind, beschrieben [50]. Charakteristische Größen des Leitermaterials sind der Längswiderstandsbelag R' und der Induktivitätsbelag L'. Die Eigenschaften des Substratmaterials gehen in den Kapazitätsbelag C' sowie in den Querleitwertsbelag G' ein. Alle vier Größen sind von der Geometrie des Leiterquerschnitts abhängig. Aus dem Ersatzschaltbild 2.8 lassen sich die zugehörigen Differentialgleichungen ablesen:

$$\frac{\partial I}{\partial x} = -U G' - \frac{\partial U}{\partial t} C' \qquad \frac{\partial U}{\partial x} = -I R' - \frac{\partial I}{\partial t} L' \qquad (2.62)$$

Diese so genannten Telegraphengleichungen haben die Lösung:

$$U(x) = K_0 e^{-\gamma x} + K_1 e^{\gamma x}$$
(2.63)

 mit

$$\gamma = \alpha + i\beta = \sqrt{(R' + i\omega L')(G' + i\omega C')}$$
(2.64)

Die komplexe Ausbreitungskonstante γ setzt sich zusammen aus dem Dämpfungsbelag α und dem Phasenbelag β . Während sich die Welle entlang der Wellenleitung in x-Richtung ausbreitet, wird die Spannungs- bzw. Stromamplitude um $\exp(-\alpha x)$ abgeschwächt und die Phase um den Winkel $\varphi = \beta x$ gedreht. Die Phasengeschwindigkeit, mit der sich die Welle entlang der Wellenleitung bewegt, ergibt sich aus dem Phasenbelag und der Kreisfrequenz zu:

$$v_P = \frac{\omega}{\beta} \tag{2.65}$$

Das Verhältnis zwischen Spannung und Strom ist durch den Wellenwiderstand Z_0 der Wellenleitung gegeben:

$$\frac{U(x,t)}{I(x,t)} = Z_0 = \sqrt{\frac{R' + i\omega L'}{G' + i\omega C'}}$$

$$(2.66)$$

Da von den Messgrößen eines vektoriellen Netzwerkanalysators, nämlich der Phasenlage und der Dämpfung zwischen der aus- und einlaufenden Welle, auf die Eigenschaften des Schichtmaterials geschlossen werden soll, ist es notwendig, genauer auf die Abhängigkeiten der Ausbreitungskonstanten γ von den vier Größen der TEM-Leitung einzugehen. Für den Dämpfungsbelag und den Phasenbelag ergibt die Auflösung von Gleichung (2.64) nach Real- und Imaginärteil [51]:

$$\alpha = \left(\frac{R'}{2\sqrt{\frac{L'}{C'}}} + \frac{G'}{2}\sqrt{\frac{L'}{C'}}\right) \cdot \frac{1}{\cosh\frac{\delta_{Leit} - \delta_{Diel}}{2}}$$

$$= \omega\sqrt{L'C'}\frac{1}{2Q} \cdot \frac{1}{\cosh\frac{\delta_{Leit} - \delta_{Diel}}{2}}$$
(2.67)

$$\beta = \omega \sqrt{L'C'} \cdot \cosh \frac{\delta_{Leit} - \delta_{Diel}}{2}$$
(2.68)

mit den Größen

$$\sinh \delta_{Leit} = \frac{R'}{\omega L'}$$
 sowie $\sinh \delta_{Diel} = \frac{G'}{\omega C'}$ (2.69)

und der reziproken Güte

$$\frac{1}{Q} = \sinh \delta_{Leit} + \sinh \delta_{Diel} \tag{2.70}$$

In Gleichung (2.67) wird die Güte Q verwendet, da Q eine direkte Messgröße des in Kapitel 3.4 beschriebenen Ringresonators ist, die nach der Definition (3.20) antiproportional zu den auftretenden Verlusten ist.

2.3. THEORIE DER MIKROWELLENLEITUNG

Da δ_{Leit} und $\delta_{Diel} > 0$ sind, gilt folgende Ungleichung, mit der die cosh-Funktion in den Gleichungen (2.67) und (2.68) abgeschätzt werden kann:

$$\cosh\frac{1}{2Q} \ge \cosh\frac{\delta_{Leit} + \delta_{Diel}}{2} \ge \cosh\frac{\delta_{Leit} - \delta_{Diel}}{2} \ge 1$$
(2.71)

Für Q > 25 weicht der linke cosh-Term nur höchstens um 0.02% von 1 ab, womit obige Gleichungen vereinfacht werden können:

$$\alpha = \omega \sqrt{L'C'} \frac{1}{2Q} \tag{2.72}$$

$$\beta = \omega \sqrt{L'C'} \tag{2.73}$$

Alternativ zu Gleichung (2.64) kann die Ausbreitungskonstante auch durch die komplexe Permittivität und Permeabilität der Wellenleitung ausgedrückt werden. Hierbei gehen die Leitfähigkeit σ sowie die dielektrisch und magnetisch wirksamen Stoffeigenschaften des Dielektrikums zusammen mit dem spezifischen Widerstand ρ des Leitermaterials (Querschnittsfläche A) in die komplexen Anteile der jeweiligen Größen ein:

$$\gamma = \alpha + i\beta = \omega \sqrt{-\tilde{\varepsilon}\tilde{\mu}} = \omega \sqrt{-\left(\varepsilon_0 \varepsilon_r - i\frac{\sigma}{\omega}\right)\left(\mu_0 \mu_r - i\frac{\rho}{\omega A}\right)}$$
(2.74)

$$\alpha = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_r \mu_r} \frac{1}{2Q} \tag{2.75}$$

$$\beta = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_r \mu_r} \tag{2.76}$$

mit der Vakuumlichtgeschwindigkeit $c = 1/\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0}$ und

$$\frac{1}{Q} = \left(\frac{\sigma}{\omega \varepsilon_0 \varepsilon_r} + \frac{\rho}{\omega A \mu_0 \mu_r}\right) = \sinh \delta_{Diel} + \sinh \delta_{Leit}$$
(2.77)

Da die Feld- und Stromverteilung in den verwendeten Strukturen über dem Leiterquerschnitt nicht konstant sind und verschiedene Dielektrika gleichzeitig verwendet werden, geben die Permittivität und die Permeabilität als auch die Größen σ und ρ Durchschnittswerte der über die Leitergeometrie gemittelten Festkörperwerte an. Um Verwechslungen mit den Materialkonstanten ε_r und μ_r zu vermeiden, werden im Folgenden die effektiven relativen Permittivitäts- und Permeabilitätszahlen mit ε_{eff} und μ_{eff} bezeichnet.

Das Modell einer TEM-Leitung nach dem Ersatzschaltbild aus Abbildung 2.8 beschreibt ausschließlich Leiter- und dielektrische Verluste. In einer realen Leiterbahn können jedoch weitere Verluste wie z. B. Strahlungsverluste auftreten. Diese werden in Gleichung (2.77) durch die Addition eines zusätzlichen Verlustbeitrages $1/Q_{Strahl}$ zu der reziproken Güte 1/Q berücksichtigt.

2.3.2 Schichtsysteme

Die Mehrzahl der in der Literatur zu findenden Modelle zur Beschreibung von koplanaren Leiterstrukturen, wie sie z. B. im Anhang dieser Arbeit aufgeführt sind, gehen von einem einzigen, homogenen Substratmaterial aus. Bei gegebener Leitergeometrie lässt sich die effektive Permittivitätszahl $\varepsilon_{eff}(h, \varepsilon_r)$ mit den angegebenen Formeln aus der Dicke h des Substratmaterials unterhalb der leitenden Schicht sowie dessen relativer Permittivitätszahl ε_r berechnen.

Die in dieser Arbeit untersuchten Strukturen, wie sie schematisch in der linken Hälfte von Abbildung 2.9 angedeutet sind, bestehen jedoch aus zwei parallelen Schichten unterschiedlicher Dielektrika mit jeweils anderen Permittivitätszahlen. Um die effektive Permittivität dieses Mehrschichtsystems mit einem analytischen Näherungsausdruck zu berechnen, wird das Prinzip der Überlagerung von Kapazitäten [50, 52] angewendet, wonach sich das Multilagenpaket in mehrere Unterstrukturen mit nur einem Substratmaterial aufteilen lässt, die mit den gängigen Modellen [50,53–55] in geschlossener Form berechnet werden können. Bei der Zerlegung, in der auch negative Permittivitäten zugelassen sind, ist zu beachten, dass die Summe der Permittivitäten aller Unterstrukturen in jedem Volumenbereich mit den Permittivitäten der Mehrlagenanordnung übereinstimmt. Die effektive Gesamtpermittivität ergibt sich aus der Summe der jeweiligen ε_{eff} -Werte.

Die Vorgehensweise ist in Abbildung 2.9 nochmals genauer dargestellt. In der Zerlegung "1" wird die effektive Permittivität bestimmt, die sich aus dem Substratmaterial A mit der Gesamtdicke $h_A + h_B$ ergibt. Danach wird in "2" das obenliegende Dielektrikum mit der Dicke h_B berücksichtigt, indem in das Berechnungsmodell als Schichtpermittivität $\varepsilon_r^B - \varepsilon_r^A + 1$ eingesetzt wird. Da nun die Permittivität der Luft doppelt berücksichtigt wurde, muss der entsprechende Betrag durch Zerlegung "3" mit $\varepsilon_{eff} = -1$ wieder abgezogen werden. Für die effektive Gesamtpermittivität ergibt sich schließlich:

$$\varepsilon_{eff} = \varepsilon_{eff} \left(h_A + h_B \,, \, \varepsilon_r^A \right) + \varepsilon_{eff} \left(h_B \,, \, \varepsilon_r^B - \varepsilon_r^A + 1 \right) - 1 \tag{2.78}$$

Nach der Berechnung mit den im Anhang angegebenen Formeln (A.4) bzw. (A.21) kann durch Koeffizientenverglich ε_{eff} in der Form

$$\varepsilon_{eff} = q_{Luft} + q_A \varepsilon_r^A + q_B \varepsilon_r^B \tag{2.79}$$

angegeben werden. Die q-Werte sind hierbei die geometrischen Füllfaktoren der Dielektrika mit $q_{Luft} + q_A + q_B = 1$ [55].

Eine Voraussetzung für die Anwendbarkeit dieses Verfahrens ist die Bedingung, dass die obere Schicht die höchste Permittivität besitzt. Dies ist bei den hier verwendeten Materialien der Fall. In [52] wurde obige Näherung mit Maxwell-



Abbildung 2.9: Aufteilung der Mehrlagenanordnung in Unterstrukturen, für die die effektive Permittivität mit gängigen Modellen berechnet werden kann.

Rechnungen verglichen. Die Abweichungen waren < 0,1%. Die beschriebene Methode ist prinzipiell für alle Arten von Koplanarleitungen und interdigitalen Kondensatoren anwendbar und kann auf zusätzliche dielektrische Schichten erweitert werden.

Um die Gültigkeit der vorgestellten Methode zu verifizieren, ist in Tabelle 2.2 ein Vergleich zwischen den Ergebnissen des Mehrschichtmodells und Simulationsrechnungen mit Sonnet¹ aufgeführt. Sonnet ist ein handelsübliches Programmpaket zur Simulation planarer Hochfrequenzschaltungen mittels numerischer Rechenmethoden. Berechnet wurden für eine symmetrische und eine asymmetrische koplanare Wellenleitung mit den angegebenen Parametern jeweils die effektiven Permittivitätszahlen für verschiedene ε_r^B des Zwischendielektrikums. Die Ergebnisse der analytischen und der numerischen Lösung stimmen innerhalb einer Fehlertoleranz von 5% überein.

Die dielektrischen Verluste der Wellenleitungen können ebenfalls mit obigem Verfahren bestimmt werden, indem für jedes verlustbehaftete Dielektrikum die entsprechende komplexe Permittivität $\varepsilon_r = \varepsilon'_r - i\varepsilon''_r$ angesetzt wird. Der Verlusttangens der Schichtstruktur setzt sich demnach wie folgt aus den einzelnen tan δ -

¹Sonnet ist ein Programmpaket der Firma Sonnet Software, Inc., 1020 Seventh North Street, Suite 210, Liverpool, NY 13088.

Symmetrische Koplanarleitung (Anhang A.1) $S = 12 \ \mu m, \ G = 16 \ \mu m, \ t = 0 \ \mu m, \ h_B = 0.4 \ \mu m, \ f = 10 \ \text{GHz}$ $q_{Luft} = 0.5, \ q_A = 0.4792, \ q_B = 0.0208$

ε_r^B	ε_{eff} (Modell)	ε_{eff} (Sonnet)	Abweichung
500	22,29	22,41	0,1%
1000	32,67	$31,\!79$	2,7%
1500	43,05	41,09	$4,\!6\%$

Asymmetrische Koplanarleitung (Anhang A.2) $S = 50 \ \mu\text{m}, \ G = 10 \ \mu\text{m}, \ t = 0 \ \mu\text{m}, \ h_B = 0.3 \ \mu\text{m}, \ f = 6 \ \text{GHz}$ $q_{Luft} = 0.50949, \ q_A = 0.48025, \ q_B = 0.01026$

ε_r^B	ε_{eff} (Modell)	ε_{eff} (Sonnet)	Abweichung
500	17,07	$17,\!67$	3,5%
1000	22,20	$22,\!60$	1,8%
1500	27,33	$27,\!47$	0,5%

Tabelle 2.2: Vergleich zwischen den Ergebnissen des vorgestellten Mehrschichtmodells und Simulationsrechnungen mit Sonnet für eine symmetrische und eine asymmetrische koplanare Wellenleitung mit den angegebenen Parametern. Für das untere Substratmaterial wurde $\varepsilon_r^A = 23,8$ und $h_A = 1000 \ \mu m$ angenommen.

Werten der Dielektrika zusammen:

$$\tan \delta = \frac{\varepsilon_{eff}''}{\varepsilon_{eff}'} = \frac{q_A \,\varepsilon_r^{A'}}{\underbrace{\varepsilon_{eff}'}} \tan \delta_A + \underbrace{\frac{q_B \,\varepsilon_r^{B'}}{\varepsilon_{eff}'}}_{Q_B} \tan \delta_B \tag{2.80}$$

Die Größen Q_A und Q_B werden als energetische Füllfaktoren bezeichnet, da sie den Anteil der elektrischen Feldenergie im jeweiligen Dielektrikum angeben.

2.4 Eigenschaften der verwendeten Oxide

2.4.1 Geeignete Substratmaterialien



Abbildung 2.10: Temperaturabhängigkeit des Verlustfaktors tan δ verschiedener Substratmaterialien [56].

Qualitativ hochwertige YBCO-Filme mit einer kritischen Temperatur T_C von etwa 90 K, einer kritischen Stromdichte $j_C > 10^6$ A cm⁻² bei 77 K und einem Oberflächenwiderstand von $R_S < 0.5 \text{ m}\Omega$ bei 10 GHz und 77 K, wie sie für Mikrowellenbauelemente benötigt werden, können nur erreicht werden, wenn es gelingt, die Filme epitaktisch auf einem möglichst einkristallinen Substratmaterial aufwachsen zu lassen [6,57–59]. Hierzu muss das Substrat ähnliche Gitterparameter und Ausdehnungskoeffizienten wie YBCO aufweisen, um eine Rissbildung zu vermeiden. Ebenso wie YBCO selbst fallen alle hierzu geeigneten Materialien in die Klasse der oxidischen Keramiken.

Abbildung 2.10 zeigt die dielektrischen Verluste einer Auswahl geeigneter Substratmaterialien, die den Anforderungen bezüglich Gitterkonstante, Permittivitätszahl und Ausdehnungskoeffizient genügen und auf denen von verschiedenen Gruppen erfolgreich YBCO-Filme mit den geforderten Eigenschaften aufgebracht werden konnten [56,60].

Lanthanaluminat $LaAlO_3$ (LAO) hat im Vergleich zu anderen Substratmaterialien die niedrigsten Hochfrequenzverluste. Obwohl die LAO-Einkristallsubstrate



Abbildung 2.11: Temperaturabhängige Permittivitätszahl von LaAlO₃-Einkristallen im Vergleich. Die durchgezogene Linie stellt Messungen nach [3], die gestrichelte nach [56] und die gepunktete nach [61] dar. Die Fehlerbalken der eigenen Messung mit einem Interdigitalkondensator zeigen die Standardabweichung von 1024 Einzelmessungen.

verzwillingen, hat die Gruppe um Moeckly [10] durch einen Vergleich verschiedener Substratmaterialien (LaAlO₃, NdGaO₃, MgO und Al₂O₃) mit und ohne Pufferschichten aus LaAlO₃, NdGaO₃, SrRuO₃ und SrAlNbO₃ gezeigt, dass die verlustärmsten STO-Schichten auf ungepufferten LAO- und NdGaO₃-Substraten wachsen. Da für Hochfrequenzanwendungen das Material NdGaO₃ wegen der relativ großen Verluste weniger geeignet ist (siehe Abbildung 2.10), wurde als Substratmaterial LAO gewählt.

2.4.2 Lanthanaluminat

Bei einer Temperatur von $T_C \approx 850$ K findet in LAO ein struktureller Phasenübergang von einer kubischen Perowskitstruktur in eine rhomboedrische Phase statt. Der Phasenübergang resultiert aus einer alternierenden Rotation der AlO₆-Oktaeder um eine der drei Hauptachsen um den Winkel α . Da die Abweichungen von der kubischen Symmetrie nur sehr gering sind, wird die rhomboedrische Phase auch als pseudokubisch und näherungsweise als isotrop angesehen. Die durch die rhomboedrische Verzerrung auftretenden internen Spannungen werden durch eine spontane Verzwillingung des Kristalls abgebaut. Die Zwillingsebenen bilden



Abbildung 2.12: Dielektrische Verluste von LaAlO₃-Einkristallen verschiedener Hersteller. Alle Einkristalle wurden nach dem Czochralski-Verfahren gezüchtet. Der Verlusttangens sollte proportional der Messfrequenz ansteigen [34].

sich entlang der $\{100\}$ und $\{110\}$ Ebenen der pseudokubischen Perowskitzelle aus [62]. Der Verzwillingungswinkel Ψ nimmt mit fallender Temperatur linear zu [63]:

$$\Psi = 3.45^{\circ} \cdot 10^{-4} \left(T_C - T \right) \quad \text{mit} \quad 300 \,\text{K} \le T \le 850 \,\text{K} \tag{2.81}$$

Bei Raumtemperatur beträgt der Verzwillingungswinkel $\Psi = 0.19^{\circ}$ und die pseudokubischen Gitterparameter liegen bei a = 0.379 nm und $\alpha = 90.08^{\circ}$ [6].

Die Temperaturabhängigkeit der Permittivitätszahl und der dielektrischen Verluste wurde von verschiedenen Gruppen [3,56,61] an zylinderförmigen LAO-Einkristallen in Hohlraumresonatoren bei unterschiedlichen Frequenzen analysiert. Wie den Abbildungen 2.11 und 2.12 zu entnehmen ist, zeigen sich je nach Hersteller und Messverfahren vor allem in den Verlusten erhebliche Unterschiede, obwohl alle aufgeführten Kristalle nach dem Czochralski-Verfahren gezüchtet wurden. Die obere Grenze für den Verlust im Temperaturbereich unterhalb 100 K beträgt $\tan \delta = 10^{-5}$. Dieser Wert liegt etwa zwei Größenordnungen unterhalb dem Wert, der in STO-Schichten zu erwarten ist.

Die in dieser Arbeit verwendeten $\langle 100 \rangle$ orientierten LAO-Substrate der Firma CrysTec wurden ebenfalls nach dem Czochralski-Verfahren (siehe z. B. [64]) in einem Ir-Schmelztiegel gezogen. Nach dem Zerschneiden werden sie einseitig poliert und zeigen anschließend eine typische mittlere Oberflächenrauigkeit von $R_a \leq 0.35$ nm. In Abbildung 2.13 ist eine lichtmikroskopische Aufnahme der Sub-



Abbildung 2.13: Facettenmuster auf der LAO-Substratoberfläche aufgrund von Zwillingsdomänen, aufgenommen mit einem Lichtmikroskop.

stratoberfläche gezeigt, auf der deutlich das von verzwillingten Kristalldomänen stammende Facettenmuster zu erkennen ist.

Zur verlässlichen Charakterisierung von STO-Schichten auf LAO ist die genaue Kenntnis des Temperaturverhaltens der Permittivität des Substrats unabdinglich. Zu diesem Zweck wurde ε_r der verwendeten Substrate durch das Aufbringen eines Interdigitalkondensators aus Gold, wie er im Anhang A.3 beschrieben ist, mit einem Impedanzanalysator (Agilent 4294A) bei 100 kHz gemessen. Da der thermische Ausdehnungskoeffizient von LAO bei Raumtemperatur mit 9,2 · 10⁻⁶ 1/K [65] relativ klein ist und zu tieferen Temperaturen weiter abnimmt, wurde bei der Bestimmung der Permittivitätszahl der Einfluss der Längenänderung auf die Kondensatorgeometrie vernachlässigt. Das Ergebnis reiht sich in die Kurvenschar anderer Gruppen (siehe Abbildung 2.11) ein.

2.4.3 Strontiumtitanat

In STO finden zwei strukturelle Phasenübergänge statt [66]. Der erste ist ein struktureller Phasenübergang bei ≈ 105 K zwischen einer kubischen Phase oberhalb 105 K und einer tetragonalen Phase unterhalb. Die kubische Perowskitstruktur (Abbildung 2.14a) wird beim Unterschreiten der Übergangstemperatur antiferroelektrisch verzerrt, wodurch die TiO₆-Oktaeder wie in Abbildung 2.14b skizziert leicht gegeneinander verdrehen und die Kristallstruktur eine tetragonale Symmetrie erhält. Für die Gitterparameter resultiert hieraus die in Abbildung 2.15 dargestellte Temperaturabhängigkeit. Bei Raumtemperatur gilt für alle



Abbildung 2.14: (a) Kubische Elementarzelle der Perowskitstruktur von STO. (b) Unterhalb 105 K verdrehen sich die TiO_6 -Oktaeder, wodurch STO in eine tetragonale Phase übergeht. (c) Darstellung des ferroelektrischen Phasenübergangs, der bei 35 K stattfinden sollte.

Achsen 0,3905 nm. Da die tetragonale Phase weiterhin punktsymmetrisch zum Zentrum der Einheitszelle ist, führt der Phasenübergang nicht zur Ferroelektrizität.

Ein zweiter, ferroelektrischer Phasenübergang sollte bei $T\approx 35~{\rm K}$ stattfinden, da hier die Frequenz der transversal optischen Phononen im Zentrum der Brillouin-Zone gegen Null geht. Nach der Lyddane-Sachs-Teller Relation

$$\frac{\varepsilon}{\varepsilon_{\infty}} = \frac{\omega_{LO}^2}{\omega_{TO}^2} \tag{2.82}$$

sind die Kreisfrequenzen ω_{LO} der longitudinalen und ω_{TO} der transversalen optischen Phononenzweige mit den Permittivitäten ε_{∞} und ε für Frequenzbereiche weit oberhalb bzw. unterhalb des optischen Bereichs verknüpft. Verschwindet ω_{TO} , müsste ε gegen unendlich streben. Dies wird jedoch experimentell nicht beobachtet, wie die Messungen in Abbildung 2.16 zeigen [68]. Durch den ferroelektrischen Phasenübergang sollte sich das Ti-Ion um 4,5 pm verschieben (Abbildung 2.14c). Da diese Distanz jedoch geringer als die Nullpunktsbewegung (Quantenoszillation) des Ti-Ions von 7,7 pm bei T = 0 ist, wird der ferroelektrische Phasenübergang unterdrückt [69]. Dieses Verhalten wird oftmals "quanten-paraelektrisch" [69] oder "incipient ferroelectric" [16] genannt. Für Hochfrequenzanwendungen ist entscheident, dass keine ferroelektrische Hysterese im Polarisationsverhalten auftritt, da die Fläche unter der Hysteresekurve proportional den Wechselstromverlusten ist.



Abbildung 2.15: Gitterparameter in Abhängigkeit von der Temperatur [67]. Bei 105 K findet ein Phasenübergang zwischen tetragonaler und kubischer Perowskitstruktur statt.



Abbildung 2.16: Kreisfrequenz ω_{TO} der TO-Phononenmode im Zentrum der Brillouin-Zone als Funktion der Temperatur. Obwohl ω_{TO} bei $T \approx 35$ K verschwindet, findet kein Phasenübergang statt.



Abbildung 2.17: Temperatur- und Feldabhängigkeit der Permittivitätszahl eines STO-Einkristalls [4]. Die nach den Messungen nochmals bei E = 0 bestimmte Permittivität erreicht bei tiefen Temperaturen nicht mehr ganz die Werte des frisch gewachsenen Kristalls.

Die Temperaturabhängigkeit der Permittivitätszahl eines STO-Einkristalls ist in Abbildung 2.17 gezeigt. Ohne ein elektrisches Feld steigt die Permittivitätszahl von $\varepsilon_r \approx 310$ bei T = 300 K [70] mit abnehmender Temperatur kontinuierlich an und erreicht schließlich bei 4 K einen Wert von etwa 24000. Mit dem Anlegen eines elektrischen Feldes fällt ε_r rapide ab. Bei Feldstärken < 1 kV/cm tritt in den $\varepsilon_r(T)|_{E=konst}$ -Kurven ein Maximum auf, welches mit steigender Feldstärke zu höheren Temperaturen wandert. Die dielektrischen Nichtlinearitäten stehen in Verbindung mit dem härter Werden weicher Phononenmoden mit zunehmender elektrischer Feldstärke. Dies wurde durch Ramanstreuung sowohl an Einkristallen [71] als auch an dünnen Schichten [72] beobachtet. In beiden Fällen führte ein elektrisches Feld zu einer Erhöhung der Phononenfrequenz weicher Moden im Zentrum der Brillouin-Zone. In Übereinstimmung mit der Lyddane-Sachs-Teller Relation (Gleichung (2.82)) wurde eine eindeutige Korrelation zwischen der Erhöhung der TO-Phononenfrequenz und der Absenkung der Permittivität ε gefunden.

Für die Mikrowellenabsorption eines STO-Einkristalls (Abbildung 2.18) sind nach [37] im wesentlichen Multiphononenstreuung und Polarisationsfluktuationen (vgl. Kapitel 2.1.2.1 und 2.1.2.2) verantwortlich. Für den anwendungsbezogenen Temperaturbereich um 77 K liegt tan δ zwischen 10^{-4} und 10^{-3} .



Abbildung 2.18: Temperaturabhängigkeit der Mikrowellenabsorption eines STO-Einkristalls nach [3, 39].

2.4.4 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

Die Einheitszelle des Supraleiters YBa₂Cu₃O₇ besteht aus drei perowskitischen Teilzellen, an deren Ecken jeweils ein Cu-Atom sitzt. Der mittlere Perowskitwürfel trägt das im Vergleich zu den zwei Barium-Atomen der anderen Zellen etwas kleinere Yttrium-Atom als Zentralatom. Entlang der c-Achse folgt auf zwei CuO₂-Ebenen eine CuO-Kette. Die für einen Supraleiter charakteristischen Größen wie Londonsche Eindringtiefe und Kohärenzlänge ($\xi_{ab} \approx 1, 2 - 1, 5$ nm, $\xi_c \approx 0, 1 - 0, 3$ nm [73]) sind aufgrund der schichtartigen Struktur stark anisotrop.

Die exakte kristallographische Struktur hängt empfindlich vom Sauerstoffdefizit δ ab. Zwischen $0 \leq \delta \leq 0.5$ ist die Perowskitstruktur orthorhombisch verzerrt und besitzt bei $\delta = 0$ die Gitterparameter a = 0.382 nm, b = 0.389 nm und c = 1.168 nm. Im anderen Extremfall $\delta = 1$ sind alle Sauerstoffplätze der Ketten unbesetzt, und die Einheitszelle zeigt eine tetragonale Symmetrie mit a = b = 0.386 nm und c = 1.182 nm [74]. Das Sauerstoffdefizit δ ist wiederum abhängig vom Sauerstoffpartialdruck der Umgebung und der Beladungstemperatur [75] und kann mit diesen Parametern genau eingestellt werden. Die maximale Übergangstemperatur zur Supraleitung von $T_C = 92$ K wird bei $\delta = 0.07$ erreicht [76].

Um Hochfrequenzverluste in Mikrowellenbauelementen durch Flusskriechen klein zu halten, sollte sich der Supraleiter in der Meissner-Phase befinden. Bei YBCO



Abbildung 2.19: Kristallographische Einheitszelle von $YBa_2Cu_3O_7$. Die Gitterkonstanten betragen a = 0.382 nm, b = 0.389 nm und c = 1.168 nm.

darf demnach das Magnetfeld von $H^{ab}_{C_1}\approx 20~{\rm mT}~[77]$ nicht überschritten werden.

Kapitel 3

Messmethode und Versuchsaufbau

Die Messung der Hochfrequenzeigenschaften von STO-Schichten erfolgt an Phasenschiebern, realisiert mit einer koplanaren Verzögerungsleitung, und an Ringresonatoren. Im Folgenden wird auf die Herstellung, den Aufbau und die Funktionsweise der passiven Mikrowellen-Bauelemente eingegangen. Anschließend werden die Verfahren vorgestellt, mit deren Hilfe aus den Messdaten auf die dielektrischen Eigenschaften der Schichten geschlossen werden kann.

3.1 Herstellung von Schichtsystemen

3.1.1 Deposition

Die Schichtfolgen aus STO, YBCO und Gold wurden durch Kathodenzerstäuben stöchiometrischer Targets auf (100) orientierte, verzwillingte LaAlO₃-Einkristallsubstrate mit einer Größe von $10 \times 5 \times 1$ mm³ und $5 \times 5 \times 1$ mm³ aufgebracht. Hierzu wurde für jedes Material ein invertiertes Zylindermagnetron mit rotationssymmetrischer "off-axis"-Anordnung verwendet. In Abbildung 3.1 ist die Depositionsanordnung schematisch für ein Magnetron dargestellt: Die oxidischen Targets sind in Hohlzylindergeometrie ausgeführt und bestehen aus hochverdichteten, gesinterten Ausgangsmaterialien mit stöchiometrischer Zusammensetzung. Das torusförmige Target ist zur Einschnürung des Plasmarings mit einem ringförmigen Magneten umgeben. Durch die "off-axis"-Anordnung des Targets wird vermieden, dass negativ geladene Sauerstoffionen in Richtung Substrat beschleunigt werden und dort das Schichtwachstum negativ beeinflussen.



Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des invertierten Zylindermagnetrons nach Geerk et al. [78].

Die gesamte Anlage enthält drei T-förmig angeordnete Magnetrons, wobei der drehbar gelagerte Substrathalter die Auswahl der Depositionsmaterialien ermöglicht. Als Sputtergas wurden je nach Material verschiedene Argon/Sauerstoff Gemische verwendet. Die Partialdrücke bei der Deposition der unterschiedlichen Materialien sind in Tabelle 3.1 aufgeführt.

Die Substrattemperatur wurde mit einem in den Heiztisch eingelassenen Thermoelement bestimmt. Pyrometrische Messungen ergaben eine gegenüber dem Thermoelement etwa 10°C niedrigere Temperatur an der Substratoberfläche. Der Abstand zwischen Substratheizer und Magnetron betrug etwa 1 cm. Vor jeder De-

Material	$SrTiO_3$	$YBa_2Cu_3O_7$	Au
O_2 Partialdruck (Pa)	3-30	30	
Ar Partialdruck (Pa)	0-30	30	30
Leistung (W)	rf 100	dc 50	dc 25
Rate (nm /min)	1,6	2,3	43
Temperatur °C	710-810	810	130

Tabelle 3.1: Materialabhängige Parameter bei der Schichtdeposition.

position eines neuen Materials wurde das entsprechende Target etwa 15 Minuten vorgesputtert, um die Targetoberfläche zu reinigen und das Plasma zu stabilisieren.

Die STO-Schichten wurden hinsichtlich eines hohen spezifischen Widerstandes, niedriger Hochfrequenzverluste und hohen Permittivitäten optimiert, indem der Einfluss von Gasdruck und Substrattemperatur auf die dielektrischen Eigenschaften untersucht wurde. Hierbei wurden Drücke zwischen 5 und 34 Pa mit einem Partialdruckverhältnis von $Ar/O_2 = 1:1$ sowie 3 Pa reiner Sauerstoff verwendet. Die Substrattemperatur wurde zwischen 710 und 810°C variiert.

Der Einfluss höherer Temperaturen wurde mit einem nachträglichen Temperschritt untersucht. Zu diesem Zweck wurden bei 810°C gesputterte Proben in einem Hochtemperaturofen bei 1200°C zwei Stunden in reiner Sauerstoffatmosphäre bei 1 bar Druck getempert. Das Aufheizen und Abkühlen erfolgte mit einer Rate von 300°C/h. Anschließend wurde das Substrat wieder in die Sputteranlage eingebaut und die YBCO-Deckschicht deponiert. Diese Art der Hochtemperaturbeladung wurde durch Berichte motiviert, nach denen sich die Mikrowellenverluste mit einem solchen Schritt deutlich reduzieren lassen [79].

Nach dem Aufbringen der YBCO-Schicht bei 810°C wurden die Substrate mit einer Rate von 10°C pro Minute auf 450°C abgekühlt und bei dieser Temperatur in reiner Sauerstoffatmosphäre von 0,5 bar 6 Stunden getempert, um eine optimale Sauerstoffbeladung des Hochtemperatursupraleiters zu gewährleisten und damit die Isolation der STO-Schicht zu erhöhen [80,81]. Eine Sauerstoffbeladung nur während der Abkühlphase der Probe ist bei Multilagenstrukturen aufgrund der behinderten Sauerstoffdiffusion durch die YBCO-Deckschicht im allgemeinen nicht ausreichend, um eine vollständige Oxidation der Schichten zu gewährleisten. Als letzte Schicht wurde zur besseren Kontaktierung des YBCO-Films eine polykristalline Goldschicht bei 150°C aufgesputtert. Bis auf die Proben, die mit der zusätzlichen Temperung behandelt wurden, wurden alle Multilagen in-situ hergestellt, um möglichst gute Grenzflächen zwischen den Materialien zu erhalten.

3.1.2 Strukturierung

Die Strukturierung der Wellenleitungen erfolgte mit Photoresist, UV-Photolithographie und nasschemischem Ätzen. Positiv Photoresist AZ8112 der Firma Hoechst wurde mit einer Lackschleuder $1,2\,\mu$ m dick aufgebracht. Die Leiterstrukturen wurden von einer Chrommaske durch Kontaktbelichtung mit UV-Licht auf den Photoresist übertragen. Anschließend wurde der belichtete Photolack mit Natronlauge entfernt. Das nun freiliegende Schichtmaterial konnte mit den in Tabelle 3.2 angegebenen Ätzlösungen selektiv entfernt werden.

Material	Ätzlösung	Ätzrate
Au	$H_2O/KI/I_2$	$2 \ \mu m/min$
$\mathrm{YBa_2Cu_3O_7}$	$H_2PO_4, 2\%$ ig	134 nm/min
$ m SrTiO_3$	$\mathrm{HF},2~\%\mathrm{ig}$	200 nm/min

Tabelle 3.2: Lösungen zum selektiven, nasschemischen Ätzen verschiedener oxidischer Materialien mit den zugehörigen Ätzraten.

3.2 Kalibrierung

Der Netzwerkanalysator (NWA) vergleicht ein ausgesendetes Hochfrequenzsignal mit dem zurückkommenden bezüglich Amplitude und Phase. Bei hohen Frequenzen im GHz-Bereich kann ein Teil der Mikrowellenleistung durch Reflexion wieder am selben Ausgang ankommen, von dem die Mikrowelle loslief. Im Unterschied zu einem "Lock-In"-Verstärker vermag deshalb ein NWA das transmittierte und refelktierte Mikrowellensignal zu messen.

Formal wird ein beliebiges lineares Schaltungsnetzwerk mit zwei Hochfrequenzanschlüssen als 2-Tor-Bauelement beschrieben, wie es im umrahmten Bereich in Abbildung 3.2 dargestellt ist. Eine von links oder rechts einlaufende Welle wird zu gewissen Anteilen durchgelassen oder reflektiert. Die Laufrichtungen der Signale sind mit Pfeilen markiert. Die Streuparameter S_{XY} geben die jeweiligen komplexen Amplitudenverhältnisse $S_{XY} = b_X/a_Y$ der Welle an, die von Y nach X gelangt.

Auf dem Weg zu dem zu charakterisierenden Bauelement muss das Messsignal zunächst die Zuleitungen mit mehreren Steckern und Übergangselementen durchlaufen. Sowohl die Zuleitung als auch die Rückleitung können wiederum als Zwei-Tor-Bauelement aufgefasst werden; die zugehörigen Streuparameter sind in Abbildung 3.2 mit "e" bezeichnet. Um die eigentlichen S-Parameter der Probe vermessen zu können, muss die Apparatur zuvor in geeigneter Weise kalibriert werden. Hierzu existieren eine Vielzahl von Methoden [82,83], mit denen die jeweiligen e-Parameter bestimmt werden können, indem an Stelle der Probe vor der eigentlichen Messung verschiedene Kalibrierstandards eingesetzt werden. Hierbei ist zu beachten, dass alle Streuparameter der etwa 2 m langen Zuleitungen sowohl temperatur- als auch frequenzabhängig sind. Da die hergestellten Bauelemente über den gesamten Temperaturbereich vermessen werden, und ein fest eingestellter Frequenzbereich während der Datenaufnahme unpraktikabel ist, können die automatischen Kalibrieralgorithmen des Netzwerkanalysators nicht verwendet werden; die Messwerte müssen im nachhinein manuell berichtigt werden.

In dieser Arbeit werden die Proben ausschließlich anhand der vom Netzwerkanalysator gemessenen Transmission S_{21}^M charakterisiert, welche sich wie folgt aus



Abbildung 3.2: Ersatzschaltbild der Messanordnung, bestehend aus drei hintereinandergeschalteten linearen Zwei-Tor-Bauelementen. Neben den S-Parametern der eigentlichen Probe ("Device Under Test"), gehen in die vom Netzwerkanalysator gemessenen Streuparameter $S_{XY}^M = b_X/a_Y$ auch die Zuleitungen mit ein.

den einzelnen Streuparametern zusammensetzt:

$$S_{21}^{M} = \frac{b_2}{a_1} = \frac{e_{32}S_{21}e_{10}}{(1 - e_{11}S_{11})(1 - e_{22}S_{22}) - e_{11}e_{22}S_{12}S_{21}}$$
(3.1)

Im Fall des Phasenschiebers, der im Abschnitt 3.3 näher beschrieben wird, zählen alle Übergänge, die außerhalb des in Abbildung 3.2 umrandeten Bezirks liegen, zu den Zuleitungen. Der relevante Bereich des Bauelements (DUT) besteht aus einer reinen Verzögerungsleitung mit homogenen Übergängen zu den Zuleitungen, womit im DUT keine Reflexion auftritt und $S_{11} = S_{22} = 0$ gesetzt werden kann. Da beim Entwurf der Übergangsstrukturen ("taper") im Rahmen des Möglichen auf die Einhaltung eines konstanten Wellenwiderstandes Z geachtet wurde, sollten auch die Reflexionen der Zuleitungen gering und somit die Parameter e_{11} und e_{22} zu vernachlässigen sein.

Beim schwach gekoppelten Ringresonator sind zwar $|S_{11}| \approx |S_{22}| \approx 1$, doch beträgt der Wellenwiderstand durchgehend 50 Ω , da die Zuleitungen ausschließlich aus handelsüblichen koaxialen Leitungen und Steckern aufgebaut sind, wodurch die Parameter $|e_{11}|$ und $|e_{22}|$ Werte $< 10^{-3}$ annehmen. Für beide Bauelemente kann also in guter Näherung

$$S_{21}^M = \frac{b_2}{a_1} = e_{32} S_{21} e_{10} \tag{3.2}$$

verwendet werden.



Abbildung 3.3: Versuchsaufbau des Phasenschiebers. Zur Abstimmung der STO-Schicht wird dem Hochfrequenzsignal eine Gleichspannung von bis zu ± 40 V überlagert.

3.3 Phasenschieber

Die dielektrischen Eigenschaften dünner STO-Schichten auf LAO-Substraten werden zunächst mit einer möglichst einfachen Methode charakterisiert: Auf die STO-Schicht wird eine 300 nm dicke Goldschicht als Elektrodenmaterial aufgebracht, die dann zu einer koplanaren Wellenleitung strukturiert wird. Aus der Phasenverschiebung des Mikrowellensignals beim Durchlaufen der Wellenleitung kann auf die effektive Permittivität der Leitung und daraus auf die Permittivität ε_r^{STO} der STO-Schicht geschlossen werden. Dies ist eine etablierte Methode, die auch von anderen Gruppen [15, 20, 84] zur Untersuchung von dünnen Schichten der Materialklasse $Ba_{1-x}Sr_xTiO_3$ mit $0 \le x \le 1$ verwendet wird.

Zur Beeinflussung der Schichteigenschaften wird ein elektrisches Feld zwischen Mittelleiter und Masse angelegt, indem dem Hochfrequenzsignal eine Gleichspannung U überlagert wird. Um die Spannungsquelle von der Hochfrequenz und den

NWA von der überlagerten Gleichspannung zu entkoppeln, wird die Gleichspannung über eine Drossel auf den Mittelleiter geführt und durch Kondensatoren vom NWA abgeblockt. Aufgrund der Spannungsfestigkeit der Kondensatoren ist U auf ± 40 V begrenzt. Wie in Abbildung 3.3 gezeigt, besteht die koplanare Wellenleitung aus einem $S = 12 \ \mu$ m breiten Innenleiter, der zusammen mit den beidseitig angeordneten Masseplatten in einer Ebene liegt. Die Masseplatten sind hierbei durch einen Spalt der Breite $G = 16 \ \mu$ m vom Innenleiter getrennt und werden als unendlich ausgedehnt angenommen. An den Substraträndern wird die Koplanarleitung zur Kontaktierung mit SMA-Steckern unter Beibehaltung des Wellenwiderstandes verbreitert. Diese schmalen Abmessungen der Koplanarleitung in S und G sind zum einen erforderlich, um mit der zur Verfügung stehenden Spannung ein ausreichend großes elektrisches Feld erzeugen zu können (E = U/G). Zum anderen muss die STO-Schicht einen messbaren Einfluss auf die Phasengeschwindigkeit der Mikrowelle haben; dies wird mit einem genügend großen Füllfaktor q_{STO} erreicht.

Die beim Durchlaufen des Phasenschiebers auftretende Phasendifferenz des Mikrowellensignals ist gleich dem Phasenwinkel des Streuparameters $\varphi := \measuredangle(S_{21})$, der sich aus dem Produkt von Ausbreitungskonstante γ und Phasenschieberlänge l ergibt:

$$\varphi = \measuredangle(S_{21}) = \measuredangle(e^{\gamma l}) = \gamma l \approx \beta l \tag{3.3}$$

Neben der eigentlichen Verzögerungsleitung wird die Phase des Signals gemäß Gleichung (3.2) auch noch von den Zuleitungen und Übergangsstrukturen auf dem Substrat beeinflusst. Um den Anteil der Phasenverschiebung zu bestimmen, der nur durch die zu charakterisierende Koplanarleitung verursacht wird, wurden zwei Phasenschieber, wie sie in Abbildung 3.4 dargestellt sind, aus einer geraden (Länge 1) und einer mäanderförmigen Verzögerungsleitung (Länge $l + \Delta l$) hergestellt. Auf Massebrücken konnte verzichtet werden, da der maximale Wegunterschied entlang der in den Kurven abwechselnd innen- und außen verlaufenden Masseplatten nur 69 μ m ausmacht [85]. Zum Vergleich beträgt die kleinste gemessene Wellenlänge etwa 3 mm bei 18 GHz.

Durch Bildung der Differenz der Phasenwinkel der komplexen Transmissionen $S_{21}^{M,l}$ und $S_{21}^{M,l+\Delta l}$ lassen sich die Einflüsse der Zuleitungen eliminieren:

$$\Delta \varphi = \measuredangle \left(\frac{S_{21}^{M,l}}{S_{21}^{M,l+\Delta l}} \right) = \measuredangle \left(\frac{e_{32} S_{21}^{l} e_{10}}{e_{32} S_{21}^{l+\Delta l} e_{10}} \right) = \beta l - \beta (l + \Delta l) = \beta \Delta l \qquad (3.4)$$

Die so erhaltene Phasenverschiebung $\Delta \varphi$ resultiert aus dem Längenunterschied $\Delta l = 4,712$ mm beider Verzögerungsleitungen, womit sich die effektive Permittivität unter Vernachlässigung der Verluste nach Gleichung (2.76) aus der Phasen-



Abbildung 3.4: Layout der koplanaren Phasenschieber $(S = 12 \ \mu m, G = 16 \ \mu m)$ in gestreckter und mäanderförmiger Ausführung. Die Koplanarleitung ist zur besseren Anschauung verbreitert dargestellt.

differenz $\Delta \varphi$ ergibt:

$$\Delta \varphi = \beta \,\Delta l = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_{eff} \mu_{eff}} \Delta l \qquad \Rightarrow \qquad \varepsilon_{eff} = \frac{1}{\mu_{eff}} \left(\frac{\Delta \varphi}{\omega} \frac{c}{\Delta l}\right)^2 \tag{3.5}$$

Mit Gold als Leitermaterial gilt $\mu_{eff} = 1$. Die Permittivität der STO-Schicht ε_r^{STO} kann somit nach Gleichung (2.79)

$$\varepsilon_{eff} = q_{Luft} + q_{Sub}\varepsilon_r^{Sub} + q_{STO}\varepsilon_r^{STO} \tag{3.6}$$

aus der effektiven Permittivität berechnet werden. Die dielektrischen Füllfaktoren der Luft $q_{Luft} = 0,5115$, des Substrats $q_{Sub} = 0,4678$ und der STO-Schicht $q_{STO} = 0,0207$ können mittels des in Kapitel 2.3.2 beschriebenen Mehrschichtmodells für die gegebene Geometrie und die verwendeten Schichtdicken analytisch berechnet werden. Die Permittivitätszahl des LAO-Substrats ε_r^{Sub} wurde mit einem Interdigitalkondensator aus Gold bestimmt, der direkt auf das Substrat strukturiert wurde. Der temperaturabhängige Verlauf von ε_r^{Sub} ist in Abbildung 2.11 auf Seite 32 dargestellt.

3.4 Asymmetrischer Ringresonator

3.4.1 Aufbau

Die oben beschriebene Methode ist zur Bestimmung des Realteils der Permittivität über einen weiten Temperaturbereich gut geeignet. Es können jedoch keine Aussagen über die dielektrischen Verluste gemacht werden, da diese durch die relativ kurze Phasenschieberlänge um Größenordnungen geringer als die Verluste der Zuleitungen sind, die zudem noch stark von Temperatur und Frequenz abhängen.

Zur genaueren Charakterisierung der Mikrowellenverluste von STO-Schichten wurden verschiedene Resonatorstrukturen in Vorversuchen getestet. Als wenig geeignet haben sich gestreckte Resonatoren mit einer geraden symmetrischen koplanaren Wellenleitung erwiesen. Hier muss der Mittelleiter mit einer Drahtbrücke kontaktiert werden, um eine Gleichspannung zur Abstimmung anlegen zu können. Abgesehen von den Abstrahlungsverlusten einer solche Drahtbrücke, erfordert diese zur sicheren Haftung eine Goldfläche von mindestens $100\mu m \times 100\mu m$ Grundfläche auf dem YBCO-Mittelleiter, wodurch die Resonatorgüte stark reduziert wird. Desweiteren ist die Kapazität und Induktivität einer solchen Brücke nur unzureichend definiert. Auch ist der Versuch fehlgeschlagen, einen Ringresonator mit einer symmetrischen Wellenleitung zu verwenden, bei dem die gegenüberliegenden Masseplatten zur Felderzeugung auf unterschiedliches Gleichspannungspotenzial gelegt werden sollten. In dieser Anordnung traten eine Vielzahl von Nebenresonanzen auf, da keine Massebrücken verwendet werden konnten. Als ideale Lösung hat sich die etwas unkonventionelle Ausführung des Ringresonators mit einer asymmetrischen Koplanarleitung erwiesen, da diese Struktur analytisch berechenbar ist, ohne Drahtbrücken im felderfüllten Bereich der Wellenleitung auskommt und keine störenden Nebenresonanzmoden in der Nähe der Hauptresonanz aufweist.

Um die dielektrischen Verluste der STO-Schicht präzise bestimmen zu können, sollte der dielektrische Füllfaktor der Schicht > 1% sein, was bei 300 nm dünnen STO-Schichten mit schmalen, koplanaren Strukturen im Mikrometerbereich erreicht werden kann. Hierdurch wird jedoch die Oberfläche der Strukturen so gering, dass die aus dem Oberflächenwiderstand und der Geometrie resultierende Leitergüte trotz der Verwendung eines guten, normalleitenden Metalls wie z. B. Gold zu gering für eine aussagekräftige Bestimmung der komplexen Permittivität dünner STO-Schichten ist. Deshalb ist die Verwendung eines Supraleiters als Leitermaterial notwenig. Wegen der strukturellen Kompatibilität zu STO, einer hohen Übergangstemperatur von $T_C \approx 90 \ K$ und wegen seiner geringen Verluste $R_S \leq 0.5 \ m\Omega$ bei 10 GHz und 77 K wird der Hochtemperatursupraleiter YBCO verwendet.



Abbildung 3.5: Schematischer Messaufbau. Der Ringresonator besteht aus der im Querschnitt dargestellten asymmetrischen Wellenleitung, die als geschlossenes Viereck ausgeführt ist. Zur Vermeidung von Reflexionen an den Ecken sind diese entsprechend der Abbildung "abgerundet".

Wie in Abbildung 3.5 schematisch dargestellt ist, besteht der Ringresonator aus einem geschlossenen Ring einer asymmetrischen koplanaren Wellenleitung mit einer 50 μ m breiten Signalleitung neben einer "unendlich" ausgedehnten Masseplatte. Die Spaltbreite zwischen den Leiterbahnen beträgt 10 μ m. Zur Unterdrückung von Nebenresonanzen ist die Masseplatte am Rand über Goldkontakte und Leitsilber mit dem Gehäuse großflächig kontaktiert. Bei der gegebenen Geometrie kann die Stromdichte in einem Abstand von 0,5 mm zum Spalt vernachlässigt werden, wodurch die zusätzliche Goldschicht einen vernachlässigbaren Einfluss auf die Resonatorgüte hat.

Das zur Beeinflussung der STO-Schicht notwendige elektrische Feld wird durch Anlegen einer Spannung zwischen dem inneren Ring und der äußeren Masseplatte erzeugt. Da der Spalt zwischen den Ringen nur wenige Mikrometer beträgt, können mit moderaten Spannungen hohe Feldstärken erreicht werden. Zum An-

3.4. ASYMMETRISCHER RINGRESONATOR



Abbildung 3.6: Photo des in Abbildung 3.5 schematisch dargestellten Probenhalters mit eingebautem Ringresonator.

legen der Spannung an den inneren Ring ist dieser über eine mäanderförmige Haarlinie, welche als Tiefpass fungiert, mit der Kontaktfläche in der Mitte der Struktur verbunden. Um den Stromfluss im Falle eines Spannungsüberschlages abreißen zu lassen und die Mikrowellenleistung von der Spannungsquelle fern zu halten, wurden in die Spannungszuführung ein hochohmiger Widerstand und eine Drossel eingesetzt.

Die Mikrowellenleistung wird über zwei gegenüberliegende Schleifenantennen induktiv ein- und ausgekoppelt. Die Antennen bestehen aus Semi-Rigid Koaxialkabeln, bei denen der Innenleiter mit der Abschirmung kurzgeschlossen ist. Diese Konfiguration wird gewählt, um die Zuleitungen von der Abstimmspannung zu entkoppeln und den Netzwerkanalysator vor eventuellen Spannungsüberschlägen zu schützen. In Abbildung 3.6 ist ein Photo des offenen Probenhalters mit eingebautem Resonator abgebildet. Während der Messung wird das vergoldete Kupfergehäuse geschlossen, um eine Abstrahlung der Leistung in den umgebenden Raum zu vermeiden. Hierbei ist die Gehäusegeometrie so ausgelegt, dass keine Gehäuseresonanzen in der Nähe der Messfrequenz auftreten.

3.4.2 Stromdichteverteilung im Leiterquerschnitt

Da ein Supraleiter in der Meissner-Phase jedes innere Magnetfeld mit der Londonschen Eindringtiefe abschirmt, ist auch die Stromdichte über dem Leiterquerschnitt nicht konstant. Die größte Stromdichte tritt in Bereichen nahe der Oberfläche auf und nimmt zum Inneren hin exponentiell ab. Um den Induktivitätsund Widerstandsbelag der Leitung in Abhängigkeit von der intrinsischen Londonschen Eindringtiefe λ_L zu berechnen, wird in diesem Abschnitt die Stromdichteverteilung über den Querschnitt der asymmetrischen Koplanarleitung aus der komplexen spezifischen Leitfähigkeit $\tilde{\sigma} = \sigma' - i/\omega\mu_0\lambda_L^2$ des Leitermaterials bestimmt. Die Eruierung der Stromdichteverteilung erfolgt nach einer Methode zur Berechnung gekoppelter Leitungen [86]. Da dieses Verfahren nur die Simulation von geraden Leiterstücken zulässt, werden Abweichungen in der Stromverteilung an den Resonatorecken vernachlässigt.

Im ersten Schritt wird der Leiterquerschnitt in rechteckige Sektoren unterteilt. In jedem Sektor n sei die Stromdichte j_n über die Sektorfläche A_n konstant. Das Schema der Zergliederung, die in Anlehnung an Simulationsrechnungen zu symmetrischen Koplanarleitungen so gewählt wurde [87], ist aus Abbildung 3.7 ersichtlich. Der Leiterquerschnitt der Signalleitung wird zunächst der Breite nach unterteilt. Da die größte Änderung der Stromdichte am Rand auftritt, wird dort der Leiterquerschnitt mit einer Sektorenbreite von $\lambda_L/10$ am feinsten gewählt. Mit zunehmenden Abstand vom Rand wird jeder weitere Sektor um den Faktor β_S , ähnlich einer geometrischen Reihe, verbreitert. Zur Bestimmung von β_S ist demnach die Gleichung

$$\frac{\lambda_L}{10} \left(2 + 2\beta_S + 2\beta_S^2 + \ldots + 2\beta_S^{(N-3)/2} + \beta_S^{(N-1)/2} \right) = W_S \tag{3.7}$$

zu lösen. Nach demselben Muster wird auch die Höhe der Sektoren definiert, wobei sich für Signalleitung und Masseplatte dieselben Maße ergeben. Obwohl die Masseplatte nach dem Berechnungsmodell im Anhang als unendlich ausgedehnt angenommen wird, muss hier die Breite auf einen endlichen Wert von 500 μ m, was auch den realen Abmessungen entspricht, beschränkt werden. Da in dieser Entfernung keine nennenswerten Stromdichten mehr zu erwarten sind, liegen hier die Sektoren mit den größten Breiten. Der Breitenmultiplikator β_G der Masseplatte wurde anhand der Gleichung

$$\frac{\lambda_L}{10} \left(1 + \beta_G + \beta_G^2 + \ldots + \beta_G^{N_G - 1} \right) = W_G \tag{3.8}$$

festgelegt. Als Kompromiss zwischen Genauigkeit und Rechenzeit wurde die Signalleitung in $N_S = 25$ Abschnitte, die Masseplatte in $N_G = 30$ und die Schichthöhe t in 11 Abschnitte unterteilt. Hieraus resultiert eine Gesamtzahl von N = 605 Sektoren.



Abbildung 3.7: Aufteilung des Leiterquerschnitts (xy-Ebene) in Sektoren mit den zugehörigen Flächen A_n . Der Strom fließt parallel zur z-Richtung entlang der Streifen.

Der Stromfluss durch jeden Sektor wird nun nach einer in der Elektrotechnik üblichen Methode zur Berechnung gekoppelter Leitungen bestimmt [86], welche von Sheen *et al.* [88] für komplexe Leitfähigkeiten erweitert wurde.

Zunächst wird ein beliebiger Sektor als Referenzsektor herausgegriffen, der als Spannungsbezug für alle anderen Sektoren benötigt wird. Dieser sei der Sektor mit der Nummer 0. Der Wert 0 ist deshalb im folgenden für die Indizes n und m ausgeschlossen.

Die Spannungsänderung ΔU_n des *n*-ten Sektors entlang der z-Richtung ergibt sich mit obigen Modellbedingungen zu:

$$-\frac{\partial}{\partial z}\Delta U_n = \sum_{m>0} \underbrace{\left(R_{mn} + i\omega L_{mn}\right)}_{Z_{mn}} I_m \tag{3.9}$$

Hierbei ist I_m der Stromfluß durch den *m*-ten Sektor und R_{mn} die Widerstandsmatrix, gegeben durch:

$$R_{mn} = \Re e \left(\frac{1}{\tilde{\sigma}A_0} + \frac{1}{\tilde{\sigma}A_n} \delta_{mn} \right) \quad \text{mit} \quad \delta_{mn} = \begin{cases} 1 & m = n \\ & \text{für} & \\ 0 & m \neq n \end{cases}$$
(3.10)

Die komplexe Leitfähigkeit $\tilde{\sigma}$ setzt sich aus der Leitfähigkeit σ' , der Londonschen Eindringtiefe λ_L und der Kreisfrequenz ω zusammen $\tilde{\sigma} = \sigma' - i/\omega\mu_0\lambda_L^2$.

Die Bestimmung der gegenseitigen ("externen") Induktion zweier Sektoren m und n mit den rechteckigen Querschnitten A_m und A_n basiert auf Betrachtungen der Feldenergie des die Leiterstreifen umgebenden Magnetfeldes [86]:

$$L_{mn}^{ext} = -\frac{\mu_0}{4\pi A_m A_n} \iint_{A_m} \iint_{A_n} \ln\left[(x - x')^2 + (y - y')^2 \right] dx \, dy \, dx' \, dy' \tag{3.11}$$



Abbildung 3.8: Stromdichteverteilung über den Leiterquerschnitt für $\lambda_L = 200 \text{ nm}$ und $\lambda_L = 1000 \text{ nm}$ mit f = 6 GHz und $\sigma' = 10^6 \text{ Sm}^{-1}$. Der Übersichtlichkeit halber wurden für die Darstellung weniger Sektoren verwendet und die Masseplatte verschmälert. Es ist deutlich erkennbar, dass die Stromdichte mit zunehmendem λ_L homogener und die Stromüberhöhung an den Rändern flacher wird.

3.4. ASYMMETRISCHER RINGRESONATOR

Obige Formel liefert auch das richtige Ergebnis für die Selbstinduktion bei m = n. Zusätzlich zur externen Induktion bedingt die komplexe Leitfähigkeit des Supraleiters eine "interne" Induktion:

$$L_{mn}^{int} = \frac{1}{\omega} \Im \left(\frac{1}{\tilde{\sigma}A_0} + \frac{1}{\tilde{\sigma}A_n} \delta_{mn} \right)$$
(3.12)

Die Elemente der Induktionsmatrix bestimmen sich aus der Summe von externer und interner Induktion zu [86,88]:

$$L_{mn} = L_{mn}^{int} + L_{mn}^{ext} - L_{m0}^{ext} - L_{0n}^{ext} + L_{00}^{ext}$$
(3.13)

Mit diesen Angaben kann die komplexe Impedanzmatrix Z_{mn} mit $(N-1) \times (N-1)$ Matrixelementen gefüllt werden.

Um nun die Stromverteilung in den Sektoren zu berechnen, wird Gleichung (3.9) nach dem Stomvektor I_m aufgelöst

$$I_m = \sum_{n>0} - \left(Z^{-1}\right)_{nm} \frac{\partial}{\partial z} \Delta U_n = i\gamma \sum_{n>0} \left(R + i\omega L\right)_{nm}^{-1} \Delta U_n \quad , \tag{3.14}$$

was eine Invertierung der komplexen Impedanzmatrix Z erfordert. γ ist die Ausbreitungskonstante der Wellenleitung.

Wie schon erwähnt gibt ΔU_n die Spannungsänderung entlang der z-Achse in Bezug zum Referenzsektor an. Nach der Quasi-TEM Näherung ist das Potenzial über den Leiterquerschnitt konstant. Liegt der Referenzsektor auf der Masseplatte, gilt dort für alle Sektoren $\Delta U_n = 0$. Für die Bereiche des Signalleiters wird willkürlich $\Delta U_n = 1$ gewählt. Hiermit sind alle Größen bekannt, um den Stromvektor I_m mit Gleichung (3.14) auszurechnen. Der Strom durch den Referenzsektor fügt sich der Bedingung, dass der Gesamtstrom beider Leiterbahnen verschwinden muss:

$$I_0 = -\sum_{m=1}^{N} I_m$$
(3.15)

Die berechnete Stromdichtverteilung $j_m = I_m/A_m$ über den Querschnitt der asymmetrischen Koplanarleitung ist in Abbildung 3.8 für verschiedene Eindringtiefen dargestellt. Wie erwartet steigt die Stromdichte zu den Rändern stark an und wird um so homogener je größer λ_L gewählt wird.

Aus dem Stromvektor und der komplexen Leitfähigkeit gehen schließlich die charakteristischen Größen einer Wellenleitung, der Widerstandsbelag R' und der Kapazitätsbelag L' hervor:

$$I_{tot}^2 R' = \sum_{n=0}^{N} I_n^2 \Re e\left(\frac{1}{\tilde{\sigma}A_n}\right)$$
(3.16)

$$I_{tot}^{2}L' = \sum_{m,n=0}^{N} I_{m} \left(L_{mn}^{ext} + L_{mn}^{int} \right) I_{n}$$
(3.17)



Abbildung 3.9: Für verschiedene Schichtdicken berechnete Werte des Induktivitäts- $L'(\lambda_L)$ und Widerstandsbelages $R'(\lambda_L)$ mit $\sigma'_{sim} = 10^6 \text{ Sm}^{-1}$ und $f_{sim} = 6 \text{ GHz}$ in Abhängigkeit von der Londonschen Eindringtiefe.

 I_{tot} ist der Gesamtstrom durch den Signalleiter, der mit umgekehrtem Vorzeichen auch in der Masseplatte fließt.

Die Simulationsrechnungen zur Bestimmung von $L'(\lambda_L)$ und $R'(\lambda_L)$ wurden mit der festen Frequenz $f_{sim} = 6$ GHz und der konstanten Leitfähigkeit $\sigma'_{sim} = 10^6$ Sm⁻¹ der normalleitenden Ladungsträger durchgeführt. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.9 dargestellt, wobei obige Prozedur für jeden Wert von λ_L separat ausgeführt wurde.

Der Widerstandsbelag $R'(\sigma', f, \lambda_L)$ für beliebige Leitfähigkeiten σ' und Frequenzen f kann aus den mit $f_{sim} = 6$ GHz und $\sigma'_{sim} = 10^6$ Sm⁻¹ berechneten Widerstandsbelägen $R'(\sigma'_{sim}, f_{sim}, \lambda_L)$ ermittelt werden, da R' nach den Gleichungen (3.16) und (2.58) proportional zu $\Re e(1/\tilde{\sigma}) \sim \sigma' f^2$ ist:

$$R'(\sigma', f, \lambda_L) = \frac{\sigma' f^2}{\sigma'_{sim} f^2_{sim}} R'(\sigma'_{sim}, f_{sim}, \lambda_L)$$
(3.18)

Um verlässliche Resultate für $R'(\sigma')$ zu erhalten, sollte der für die Rechnungen verwendete Wert von σ'_{sim} in der Größenordnung der tatsächlichen σ' -Werte liegen. In obigen Rechnungen wurde $\sigma'_{sim} = 10^6 \text{ Sm}^{-1}$ nach [87] verwendet. Von Wünsch *et al.* [89] wird für YBCO der Wert $\sigma'_{sim} = 2,14 \cdot 10^6 \text{ Sm}^{-1}$ bei 77 K und 18 GHz angegeben. Der Induktivitätsbelag L' ist für $\sigma' \ll \sigma''$ unabhängig von der Leitfähigkeit und der Kreisfrequenz. Mit Hilfe dieser Resultate wird in Abschnitt 4.1 aus den Eigenschaften der Koplanarleitung, die sich aus Messungen der Resonanzfrequenz und der Güte des Ringresonators ergeben, auf die Londonsche Eindringtiefe und den Oberflächenwiderstand der YBCO-Schicht geschlossen.

3.4.3 Messgrößen

Ein Ringresonator besteht aus einer TEM-Leitung, welche zu einem Ring zusammengeschlossen wird. Die Frequenz der Grundresonanz f_R ist durch die Wellenlänge gegeben, die mit dem Umfang des Resonantorringes l übereinstimmt. Der Phasenbelag β aus Gleichung (2.76) muß also die Bedingung $\beta = 2\pi/l$ erfüllen, was für die Resonanzfrequenz bedeutet:

$$f_R = \frac{1}{l} \frac{c}{\sqrt{\mu_{eff} \varepsilon_{eff}}} \tag{3.19}$$

Sämtliche Verluste manifestieren sich in der Güte Q, die mit dem Quotienten aus der im Resonatorvolumen gespeichertern Energie und der pro Schwingung dem Volumen entzogenen Energie definiert wird:

$$Q = \omega \frac{\text{Im Volumen gespeicherte Energie}}{\text{Verlustleistung}}$$
(3.20)

Jeder Verlustursache kann eine Güte zugeordnet werden. Die wichtigsten Verlustmechanismen einer TEM-Leitung sind dielektrische Verluste $1/Q_{Diel}$, Leiterverluste $1/Q_{Leit}$ und Abstrahlungsverluste $1/Q_{Strahl}$. Alle Güten addieren sich invers zur reziproken Gesamtgüte:

$$\frac{1}{Q_0} = \frac{1}{Q_{Diel}} + \frac{1}{Q_{Leit}} + \frac{1}{Q_{Strahl}}$$
(3.21)

Die Güte Q_0 beschreibt die Verluste des frei schwingenden Resonators und wird deshalb auch als unbelastete Güte bezeichnet. Zusätzlich wird Energie an die Koppelantennen abgegeben, womit eine weitere Verlustkomponente $1/Q_{Kopp}$ zu berücksichtigen ist, was zur belasteten Güte führt:

$$\frac{1}{Q} = \frac{1}{Q_{Kopp}} + \frac{1}{Q_0}$$
(3.22)

Im Idealfall wird die typische Resonanzkurve eines verlustbehafteten Schwingkreises, womit die Frequenzabhängigkeit der Transmission S_{21} in der Nähe der Resonanzfrequenz gemeint ist, von einer Lorentzfunktion beschrieben, die bei Erreichen der Resonanzfrequenz f_R maximal wird. Das mechanische Pendant ist



Abbildung 3.10: Lorentzkurve zur Darstellung des frequenzabhängigen Verhaltens der Transmission eines Resonators. Die Güte wird experimentell aus der Resonanzfrequenz und der -3 dB-Bandbreite bestimmt.

die Amplitude einer erzwungenen, gedämpften Schwingung. Die Gesamtgüte des Resonators bestimmt sich aus der Mittenfrequenz der Resonanz geteilt durch die -3 dB-Bandbreite der in Abbildung 3.10 beispielhaft dargestellten Resonanzkurve:

$$Q = \frac{f_R}{\Delta f} \tag{3.23}$$

Alle nachfolgenden Auswertungen basieren auf der Messung der drei für einen Resonator charakteristischen Größen: Resonanzfrequenz f_R , Güte Q und Transmission $|S_{21}(f_R)|$ im Resonanzfall.

Die interessierende Güte ist die unbelastete Güte Q_0 . Diese kann mit dem Transmissionskoeffizienten $|S_{21}(f_R)|$ aus der belasteten Güte Q berechnet werden [46, 50]:

$$Q_0 = \frac{Q}{1 - |S_{21}(f_R)|} \tag{3.24}$$

Für obige Gleichung wird vorausgesetzt, dass beide Antennen mit gleicher Stärke an den Resonator ankoppeln. Der Transmissionskoeffizienten S_{21} ist bezogen auf die SMA-Anschlüsse der Antennen im Resonatorgehäuse. Um den Einfluss der Zuleitungen zu eliminieren, muss der "gemessene Transmissionskoeffizient" S_{21}^M , bevor er in Gleichung (3.24) Verwendung findet, korrigiert werden:

$$|S_{21}(f_R)| = \frac{|S_{21}^M(f_R)|}{|e_{32}e_{10}|}$$
(3.25)

Für das Produkt der Streuparameter $|e_{32}e_{10}|$ wurde experimentell für Temperaturen zwischen 4 und 150 K und den Frequenzbereich von 4 bis 6 GHz folgender Näherungsausdruck gefunden, indem an Stelle des Messobjekts ein Adapterstück eingebaut wurde, mit dem die SMA-Stecker der Messleitungen direkt miteinander verbunden wurden:

$$|e_{32}e_{10}|(f,T) = -12,823 - 4,500 \cdot 10^{-3} T + 9,56 \cdot 10^{-6} T^{2} + f \cdot (-0,263 - 6,064 \cdot 10^{-4} T + 1,15 \cdot 10^{-7} T^{2})$$
(3.26)

Hierbei ist f in GHz und T in Kelvin anzugeben; die Gleichung liefert den Streuparameter $|e_{32}e_{10}|$ in der Einheit dB.

3.4.4 Bestimmung der komplexen Permittivität

Bei den bisherigen Betrachtungen des Ringresonators wurde stets von einer geraden Koplanarleitung ausgegangen. Die vier Ecken des quadratischen Resonatorumfangs verursachen jedoch Feldverzerrungen und damit Abweichungen von der idealen transversalen Symmetrie einer TEM-Leitung, wodurch diese Bereiche Einfluss auf die Phase nehmen. Die Ecken bewirken somit einen vom realen Resonatorumfang abweichenden effektiven Umfang l_{eff} . Um diesen Effekt zu minimieren, wurden die 90°-Ecken, wie in Abbildung 3.5 dargestellt, mit zwei 45°-Winkeln ausgeführt. Der verbleibende systematische Fehler kann weiter reduziert werden, indem zur Ermittlung der interessierenden Messgrößen ausschließlich Resonanzfrequenzverhältnisse verwendet werden, womit sich l_{eff} aus den Bestimmungsgleichungen herauskürzt.

Die temperaturabhängige Untersuchung der Permittivität dünner STO-Schichten aus dem Resonanzverhalten der koplanaren Wellenleitung birgt gewisse Schwierigkeiten, da sowohl das Substrat als auch die Metallisierung temperaturabhängige Parameter besitzen, die in die Messung mit einfließen. Die größte Unsicherheit in den Materialparametern besitzt der als Leitermaterial verwendete YB-CO-Film. Die Permeabilität eines massiven, idealen Supraleiters in der Meissner-Phase beträgt $\mu_r = 0$, die von Luft und dem Substrat $\mu_r = 1$. Die effektive Permeabilität μ_{eff} der asymmetrischen koplanaren Leiterbahn wird also je nach Temperatur und Leitergeometrie zwischen 0 und 1 liegen. Zusätzlich kann der Oberflächenwiderstand von Probe zu Probe stark variieren, da lokale Störstellen wie Korngrenzen und Ausscheidungen oder bei der Strukturierung stehengebliebene Goldreste, die Mikrowellenverluste drastisch erhöhen können. Zur Messung



Abbildung 3.11: Leiterquerschnitt der asymmetrischen Koplanarleitung vor und nach dem Ätzprozess mit 2% iger HF-Lösung.

der komplexen Permittivität der dünnen STO-Schichten wird deshalb ein Verfahren angewandt, mit dem der Einfluss des Leitermaterials aus den Messergebnissen eliminiert werden kann.

Zunächst werden die Resonatoren hinsichtlich Resonanzfrequenz und Güte temperaturabhängig charakterisiert. Anschließend wird ein Teil der STO-Schicht durch einen Ätzprozess entfernt. Hierzu wird der Resonator aus dem Gehäuse ausgebaut, die YBCO-Leiterbahnen mit einer Lackschicht bedeckt und die STO-Schicht, über der sich kein YBCO befindet, in einer 2% igen HF-Lösung abgetragen. Da die HF-Lösung auch das LAO-Substrat angreift, wird die Ätzzeit so gewählt, dass die STO-Schicht wie in Abbildung 3.11 dargestellt, nicht ganz durchgeätzt wird. Nach dem Reinigen der Struktur in einem Azeton-Ultraschallbad wird der Resonator wieder in das Gehäuse eingebaut und die Probe nochmals vermessen. Die durch den Ätzprozess resultierenden Änderungen werden weitestgehend durch das entfernte STO verursacht, wo hingegen die Materialeigenschaften der YBCO-Schicht und des Substrats als unverändert angenommen werden können. Verschiebungen der Resonanzfrequenz aufgrund von geänderten Rahmenbedingungen durch den Aus- und Einbau der Struktur betragen erfahrungsgemäß nur einige kHz und können im Vergleich zu der durch den Atzprozess hervorgerufenen Frequenzänderung im GHz-Bereich vernachlässigt werden.

Wie schon in Kapitel 2.3.2 beschrieben, setzt sich die effektive Permittivität aus der Summe der Einzelpermittivitäten gewichtet mit den zugehörigen Füllfaktoren zusammen:

$$\varepsilon_{eff} = q_{Luft} + q_{Sub}\varepsilon_r^{Sub} + q_{STO}\varepsilon_r^{STO} \tag{3.27}$$

Wird ein Teil der STO-Schicht entfernt, bedeutet dies für die Permittivität, dass sich der Füllfaktor der Schicht um denselben Betrag Υ verringert, wie der der Luft sich erhöht:

$$\varepsilon_{eff}^{\ddot{A}tz} = (q_{Luft} + \Upsilon) + q_{Sub}\varepsilon_r^{Sub} + (q_{STO} - \Upsilon)\varepsilon_r^{STO}$$
(3.28)

Der obere Index "Ätz" bezeichnet Größen nach dem Ätzvorgang.
3.4. ASYMMETRISCHER RINGRESONATOR

Da sich die Leitereigenschaften durch den Ätzprozess nicht ändern, bleibt insbesondere die durch den Supraleiter hervorgerufene Permeabilität konstant ($\mu_{eff} = \mu_{eff}^{Atz}$). Hiermit ergibt sich das Verhältnis der effektiven Permittivitäten vor und nach dem Ätzen aus den jeweiligen Resonanzfrequenzen zu:

$$\zeta(T) := \left(\frac{f_R}{f_R^{\ddot{A}tz}}\right)^2 = \frac{\mu_{eff}^{\ddot{A}tz} \varepsilon_{eff}^{\ddot{A}tz}}{\mu_{eff} \varepsilon_{eff}} = \frac{\varepsilon_{eff}^{\ddot{A}tz}}{\varepsilon_{eff}}$$
(3.29)

Zusammen mit der temperaturabhängigen Permittivität des Substrats kann nun mit den Gleichungen (3.27) und (3.28) auf ε_r^{STO} der Schicht geschlossen werden, ohne den Einfluss des Leitermaterials μ_{eff} berücksichtigen zu müssen:

$$\varepsilon_r^{STO}(T) = \frac{[1 - \zeta(T)] \left(\varepsilon_r^{Sub}(T)q_{Sub} + q_{Luft} + \Upsilon\right)}{[\zeta(T) - 1] q_{STO} + \Upsilon}$$
(3.30)

Was noch aussteht, ist die Bestimmung des Ätzparameters Υ . Wäre ε_r^{STO} für eine beliebige Temperatur bekannt, könnte Υ sofort zusammen mit den zugehörigen Messfrequenzen aus Gleichung (3.30) ermittelt werden. Da die Londonsche Eindringtiefe und damit μ_{eff} für Temperaturen weit unterhalb T_C bei allen YBCO Schichten ungefähr gleich sein sollte, gelingt die Bestimmung von ε_r^{STO} , indem die Resonanzfrequenz eines Resonators f_R^{ohne} ohne STO-Abstimmschicht, aber identischer YBCO-Metallisierung direkt auf LAO mit der Resonanzfrequenz f_R des Resonators mit STO-Schicht bei 4,2 K in Beziehung gesetzt wird:

$$\left(\frac{f_R^{ohne}}{f_R}\right)^2 = \frac{\varepsilon_{eff}}{\varepsilon_{eff}^{ohne}} = \frac{q_{Luft} + q_{Sub}\varepsilon_r^{Sub} + q_{STO}\varepsilon_r^{STO}}{q_{Luft} + (q_{Sub} + q_{STO})\varepsilon_r^{Sub}}\Big|_{T = 4,2 \text{ K}}$$
(3.31)

Da sich beim Resonator ohne STO an Stelle der STO Schicht LAO befindet, tritt der Füllfaktor q_{STO} im Nenner in Verbindung mit der Permittivität ε_r^{Sub} des Substrats auf. Durch das Auflösen obiger Gleichung nach ε_r^{STO} und das Einsetzen in Gleichung (3.30) ist schließlich ein für alle Temperaturen gültiger Wert von Υ gefunden.

Um die Gültigkeit des obigen Modells zu demonstrieren, wurden mit Sonnet die effektiven Permittivitäten von geätzten und ungeätzten asymmetrischen Wellenleitungen für gegebene Schichtpermittivitäten berechnet. Zur Simulation der geätzten Schichtstruktur wird angenommen, dass die 300 nm dicke STO-Schicht durch den Ätzprozess zwischen den Leiterbahnen bis auf das LAO-Substrat abgetragen wird. Alle übrigen Parameter der Simulation entsprechen den in Tabelle 2.2 angegebenen Werten. Die für verschiedene ε_r^{STO} -Werte berechneten Ergebnisse der effektiven Permittivitätszahlen ε_{eff} und ε_{eff}^{Atz} sind in Tabelle 3.3 aufgeführt. Jede Zeile der Tabelle entspricht in dieser Simulation einer konstanten Temperatur.

Ausgangswert	Simulation mit Sonnet			Modellergebnis
ε_r^{STO}	$\varepsilon_{e\!f\!f}$	$\varepsilon_{eff}^{\ddot{A}tz}$	ζ	$arepsilon_r^{STO}$
1500	27,472	14,132	0,5144	1483
1000	$22,\!602$	13,501	0,5973	1009
500	17,674	$12,\!691$	0,7181	561
200	$14,\!632$	$12,\!453$	0,8511	241

Tabelle 3.3: Die effektiven Permittivitätszahlen ε_{eff} und $\varepsilon_{eff}^{\dot{A}tz}$ von ungeätzten und geätzten asymmetrischen Wellenleiterstrukturen wurden zur Demonstration der Anwendbarkeit der Füllfaktormethode mit Sonnet theoretisch simuliert. Die Tabelle zeigt zum Vergleich die zur Simulation verwendeten ε_r^{STO} -Werte der STO-Schicht auf der linken Seite und die aus den simulierten ε_{eff} und $\varepsilon_{eff}^{\dot{A}tz}$ -Werten nach der Füllfaktormethode bestimmten Permittivitäten der STO-Schicht auf der rechten Seite.

Mit der zuvor vorgestellten Ätz- oder besser Füllfaktormethode sollte es nun möglich sein, mit den simulierten "Messwerten" ε_{eff} und $\varepsilon_{eff}^{\tilde{A}tz}$ wiederum auf die Permittivitätszahlen der STO-Schicht zu schließen, die ursprünglich in die Berechnungen mit Sonnet eingesetzt wurden.

Hierzu muss zunächst der Ätzparameter Υ durch Umformung von Gleichung (3.30) aus dem Verhältnis $\zeta = \varepsilon_{eff}^{Atz} / \varepsilon_{eff}$ einer beliebigen Zeile aus Tabelle 3.3 bestimmt werden:

$$\Upsilon = \frac{(1-\zeta)\left(q_{Luft} + q_{Sub}\varepsilon_r^{Sub} + q_{STO}\varepsilon_r^{STO}\right)}{\varepsilon_r^{STO} - 1}$$
(3.32)

mit $q_{Luft} = 0.50949, q_{Sub} = 0.48025, q_{STO} = 0.01026$ und $\varepsilon_r^{Sub} = 23.8$.

In diesem Beispiel wird Υ anhand der Werte in der ersten Zeile von Tabelle 3.3 bestimmt. Es könnte auch jede andere Zeile verwendet werden, allerdings sind bei der realen Auswertung die Messwerte mit der niedrigsten Temperatur zu verwenden, da als Voraussetzung zur Bestimmung des noch fehlenden Wertes ε_r^{STO} die YBCO-Schichten mit und ohne STO-Schicht gleiches μ_{eff} haben müssen. Die Permittivitätszahl der STO-Schicht ergibt sich aus dem Verhältnis $\varepsilon_{eff}/\varepsilon_{eff}^{ohne}$ mittels Gleichung (3.31) zu $\varepsilon_r^{STO} = 483$. Für eine Wellenleiterstruktur ohne STO-Zwischenschicht direkt auf dem LAO-Substrat liefert Sonnet den Wert $\varepsilon_{eff}^{ohne} =$ 12,326. Demnach resultiert für den Ätzparameter $\Upsilon = 0,00890$.

Da Υ jetzt bekannt ist, kann die Permittivitätszahl der STO-Schicht aller anderen Zeilen mit Gleichung (3.30) ausgerechnet werden. Das Ergebnis zeigt die rechte Spalte von Tabelle 3.3. Der Vergleich zwischen den Permittivitätszahlen der Füllfaktormethode und den ursprünglich in die Sonnet-Simulation eingesetzten Werten ergibt eine annehmbare Übereinstimmung, wobei die auftretenden Abweichungen sowohl von den numerischen Simulationsrechnungen als auch von den analytischen Näherungen der Füllfaktormethode stammen können.

Die Verluste werden hauptsächlich von dielektrischen Verlusten der STO-Schicht und dem Oberflächenwiderstand R_S des Supraleiters verursacht:

$$\frac{1}{Q_0} = \frac{1}{Q_{Leit}} + \underbrace{\frac{q_{STO}\varepsilon_r^{STO}}{\varepsilon_{eff}}}_{1/Q_{Diel}} \tan \delta_{STO} + \underbrace{\frac{1}{Q_{Sub}} + \frac{1}{Q_{Strahl}}}_{\approx 0}$$
(3.33)

Die Substratverluste können wegen $\tan \delta < 7, 6 \cdot 10^{-6}$ vernachlässigt werden. Abstrahlungsverluste spielen ebenfalls keine Rolle, da das Fernfeld der verwendeten Koplanarleitung gering ist und der Resonator in einem geschlossenen Gehäuse betrieben wird.

Die Leitergüten Q_{Leit} liegen bei den verwendeten Materialien etwa in derselben Größenordnung wie die dielektrische Güte Q_{Diel} der Schicht. Typische Werte, die bei Messungen auftreten, sind $Q_{Leit} = 4000 \dots 6000$ und $Q_{Diel} \approx 1000$ bei 4,2 K. Eine Voraussetzung zur Bestimmung von $\tan \delta$ ist deshalb die Kenntnis von $Q_{Leit}(T)$. Der entscheidende Vorteil der zuvor beschriebenen Ätzmethode liegt darin, dass sie einen Zugang zu beiden Größen liefert. Die Beeinflussung der Füllfaktoren durch den Ätzprozess in Verbindung mit einem $Q_{Leit} \sim 1/f$ Verhalten der Leitergüte verändert die Gesamtgüte wie folgt:

$$\frac{1}{Q_0^{\ddot{A}tz}} = \frac{1}{Q_{Leit}} \frac{f_R^{\ddot{A}tz}}{f_R} + \frac{(q_{STO} - \Upsilon)\varepsilon_r^{STO}}{\varepsilon_{eff}^{\ddot{A}tz}} \tan \delta_{STO}$$
(3.34)

Das Gleichungssystem bestehend aus den Gleichungen (3.33) und (3.34) kann nun nach Q_{Leit} und tan δ_{STO} aufgelöst werden:

$$Q_{Leit}(T) = \frac{\sqrt{\zeta(T)} - \left(1 - \frac{\Upsilon}{q_{STO}}\right)}{\frac{1}{Q_0^{\ddot{A}tz}(T)}\zeta(T) - \frac{1}{Q_0(T)}\left(1 - \frac{\Upsilon}{q_{STO}}\right)}$$
(3.35)

$$\tan \delta_{STO}(T) = \left(\frac{1}{Q_0(T)} - \frac{1}{Q_{Leit}(T)}\right) \left(\frac{q_{Luft} + q_{Sub}\varepsilon_r^{Sub}(T)}{q_{STO}\varepsilon_r^{STO}(T)} + 1\right)$$
(3.36)

Die Bestimmung der STO-Verluste wird unabhängig von der Mikrowellenabsorption des Leitermaterials, wenn die Leitergüte $Q_{Leit}(T)$ aus Gleichung (3.35) in Gleichung (3.36) eingesetzt wird. Die Notwendigkeit der Kenntnis von $Q_{Leit}(T)$ hat noch einen weiteren Grund. Der Ätzprozesses ändert die Verteilung des elektrischen Feldes in der Mehrlagenstruktur, wodurch sich eine abweichende Abhängigkeit der Permittivität von der angelegten Spannung ergibt. Der Einfluss eines elektrischen Feldes auf tan δ_{STO} wurde deshalb am ungeätzten Resonator untersucht und nachträglich mit den gefundenen Q_{Leit} -Werten analysiert.

Zur konservativen Abschätzung der Messgenauigkeit dieses Verfahrens bei der Bestimmung von tan δ sei pauschal angenommen, dass die Auswirkungen des Ätzprozess auf die beiteiligten Materialien und eine ungenaue Bestimmung des Parameters Υ einen Fehler von 10% ausmacht. Zu diesem Fehler addiert sich der Fehler aus der Bestimmung der Güten Q_0 und $Q_0^{\tilde{A}tz}$, aus denen nach den Gleichungen (3.35) und (3.36) der Verlustfaktor berechnet wird. Der Fehler durch die Frequenzauflösung des NWA von 10 Hz bei einer Messfrequenz um 5 GHz kann bei den hier gemessenen Güten mit Werten < 2000 vernachlässigt werden. Die Hauptfehlerquelle bei kleinen Güten und schwacher Kopplung ist ein ungünstiges Signal-zu-Rausch-Verhältnis, das den Fehler mit sinkender Güte ansteigen lässt. Nach Erfahrungswerten liegt der auftretende Fehler bei dieser Messanordnung bei etwa 1000%/Q. Insgesamt resultiert aus Gleichung (3.36) nach dem Gesetz der Größtfehleraddition ein Messfehler von:

$$\frac{\Delta \tan \delta}{\tan \delta} = 0.1 + \frac{10}{Q_0} + \frac{10}{Q_0^{\ddot{A}tz}}$$
(3.37)

Als Beispiel einer typischen Messung liegt Q_0 bei 4,2 K um 700 und $Q_0^{\tilde{A}tz}$ bei ca. 4500, während bei 77 K die Güten auf $Q_0 \approx 200$ bzw. $Q_0^{\tilde{A}tz} \approx 600$ abfallen. Hieraus ergeben sich Fehler von 12 und 17%.

Der Fehler der Permittivität ist etwa um eine Größenordnung geringer als der von $\tan \delta$, da sich die Resonanzfrequenz aus dem Maximum der Resonanzkurve exakter als die Halbwertbreite bestimmen lässt. Bei niedrigen Güten, also sehr breiten Resonanzkurven, nimmt aber auch hier der Fehler zu. Insgesamt wird der Fehler auf etwa

$$\frac{\Delta\varepsilon_r}{\varepsilon_r} = 10\% \tag{3.38}$$

geschätzt.

Weitere systematische Messfehler bei der Bestimmung des Realteils der Permittivität können entstehen durch:

- Abweichungen in den Abmessungen der Koplanarleitung
- Einflüsse der Resonatorecken
- inhomogene oder abweichende Schichtdicke
- Näherungsfehler in den Modellrechnungen
- Einfluss der DC-Einspeisung am inneren Ring

3.5. HOCHFREQUENZMESSSTAND

- wahre DC-Spannung am Ring nicht kontrollierbar
- Einfluss von Belackung und Ätzvorgang auf die Mehrlagenstruktur
- Messfehler der Probentemperatur
- thermische Ausdehnung
- Schwankungen in der Permittivitätszahl des Substrats

Zusätzliche Messfehler im dielektrischen Verlustfaktor sind:

- ungenaue Bestimmung der Resonanzhöhe $|S_{21}(f_R)|$
- unzureichende Kalibrierung (belastete \rightarrow unbelastete Güte)
- Einfluss von Gehäuse und Goldmetallisierung
- Abstrahlungsverluste
- Mikrowellenabsorption des LAO-Substrats

3.5 Hochfrequenzmessstand

Die Mikrowellenbauelemente werden in einem Badkryostat aus Glas gekühlt, der zur Befüllung mit flüssigem Helium geeignet ist. Hierbei sorgt ein mit flüssigem Stickstoff versehener Zylinder und zwei Isolationsvakua für eine ausreichende Wärmeisolation der innersten Kryostatkammer.

Die Probe befindet sich während der Messung in einem geschlossenem Gehäuse aus vergoldetem Kupfer, welches in eine Messinghalterung geklemmt und durch Schrauben befestigt wird, um eine gute thermische Ankopplung zu gewährleisten. Die Halterung wird im Zentrum des Kryostaten plaziert und kann im oberen Teil von flüssigen Helium umspült werden. Einer Vereisung der Probe beim Ein- oder Ausbauen wird vorgebeugt, indem der Aufbau in einem evakuierten Probenhalter betrieben wird. Durch die Evakuierung werden zusätzlich Spannungsüberschläge zwischen den nur Mikrometer weit auseinanderliegenden Strukturen wirksam unterdrückt und der direkte Kontakt der Proben mit flüssigen Gasen vermieden, die in der Regel, aufgrund einer von 0 verschiedenen Suszeptibilität, merklichen Einfluss auf die Bauelementeigenschaften nehmen.

Die Temperatur des Probenhalters wird über den Spannungsabfall an einer Siliziumdiode bestimmt, die von einer Konstantstromquelle mit 10 μ A gespeist wird. Nach Herstellerangaben [90] hat die Diode im Bereich zwischen 2 und 100 K eine Toleranz von ±0,5 K, darüber ±1 K.

Die Spannung zur Abstimmung der Bauelemente wird von einer regelbaren Spannungsquelle entweder, im Fall des Resonators, über eine HF-Drossel und einen



Abbildung 3.12: Gesamtaufbau des Hochfrequenzmessstandes.

Widerstand direkt auf die Probe, oder beim Phasenschieber über eine im Netzwerkanalysator integrierte Einspeisung, dem Hochfrequenzsignal des Mittelleiters überlagert.

Die temperaturabhängigen Messungen werden durchgeführt, indem der Kryostat so lange mit flüssigem Helium befüllt wird, bis die Temperatur auf 4,2 K abgesunken ist. Während der eigenständigen Erwärmung auf 100 K innerhalb von etwa 6 h überwacht ein Messrechner die Temperatur, liest die Messwerte des Netzwerkanalysators aus, regelt den Frequenzbereich nach und stellt die Spannung zur Abstimmung der Bauelemente ein.

Nach Herstellerangaben ist der verwendete vektorielle Netzwerkanalysator in der Lage, den Transmissionskoeffizienten S_{21} bis zu einer Abschwächung von 50 dB mit einer Ungenauigkeit von $\Delta |S_{21}| < 0.1$ dB und einer Phasenungenauigkeit besser als 0.7° zu messen [91].

Kapitel 4

Ergebnisse und Diskussion

4.1 Supraleitende Eigenschaften von YBCO

Wie in Kapitel 3.4 beschrieben, wird die Permittivität dünner STO-Schichten bestimmt, indem auf die STO-Schicht ein leitfähiges Material aufgebracht wird, das anschließend zu einem koplanaren Ringresonator strukturiert wird. Obwohl eine Methode vorgestellt wurde, mit der die Eigenschaften der Metallisierung aus der Bestimmung der Schichtpermittivitäten eliminiert werden kann, ist die leitende Deckschicht doch entscheidend für die Funktion des Mikrowellenbauelements und bestimmt dessen elektrische Eigenschaften. So ist z. B. die Resonanzfrequenz von der Londonschen Eindringtiefe λ_L abhängig, da diese wie in Kapitel 3.4.2 gezeigt, über den Imaginärteil der spezifischen Leitfähigkeit in den Induktivitätsbelag L' mit eingeht. Die Londonsche Eindringtiefe λ_L und der Oberflächenwiderstand R_S sind wiederum mit der Übergangstemperatur T_C verbunden [48]. Daher muss überprüft werden, inwieweit die STO-Abstimmschicht die Eigenschaften der YBCO-Schichten im Vergleich zu direkt auf LAO aufgewachsenen Schichten ändert. Um die elektrischen Eigenschaften der YBCO-Schicht in beiden Fällen miteinander vergleichen zu können, wurden YBCO-Schichten mit und ohne STO-Zwischenschicht auf LAO-Substraten untersucht, wobei für die Dicke der STO-Schicht 300 nm gewählt wurde.

4.1.1 Kritische Temperatur

Ein Hinweis für die Sauerstoffbeladung des YBa₂Cu₃O_{7- δ}-Films ist die Ubergangstemperatur zur Supraleitung T_C , die induktiv bestimmt wurde. Der Wert von T_C ist bei dünnen Filmen meist geringer als der Volumenwert von 92 K und hängt im Wesentlichen von der Schichtqualität ab, die unter anderem durch die Schichtdicke, das Substratmaterial und die Depositionstemperatur beeinflusst wird. Die



Abbildung 4.1: Induktive T_C -Messung der YBCO-Schicht mit und ohne STO-Zwischenschicht.

erzielten Werte für T_C mit STO-Zwischenschicht und ohne Zwischenschicht liegen mit ≈ 90 K dicht beieinander und sind typisch für epitaktische YBCO-Filme mit optimaler Sauerstoffbeladung.

Die Ubergangsbreite zwischen Normal- und Supraleitung ist in Abbildung 4.1 durch den Temperaturbereich definiert, in dem das Messsignal beim Abkühlen von 90% auf 10% der Stufenhöhe abfällt. Ein breiter Übergang deutet meist auf eine inhomogene Sauerstoffbeladung hin oder wird durch Korngrenzen mit reduzierter kritischer Stromdichte verursacht. Die ΔT_C -Werte mit und ohne STO-Zwischenschicht zeigen keine signifikante Veränderung, die auf einen Einfluss der STO-Schicht hindeutet.

4.1.2 Londonsche Eindringtiefe

Die Londonsche Eindringtiefe λ_L der YBCO-Schicht kann bestimmt werden, indem aus der Resonanzfrequenz $f_R = l/\sqrt{L'_t(\lambda_L)C'_t}$ und der Kenntnis des Kapazitätsbelags C'_t der Induktivitätsbelag $L'_t(\lambda_L)$ ermittelt wird. Durch Umkehrung des in Abbildung 3.9 dargestellten $L'_t(\lambda_L)$ -Verlaufs kann nun vom Induktivitätsbelag auf die schichtdickenunabhängige, intrinsische Londonsche Eindringtiefe λ_L geschlossen werden. Diese Umkehrung ist erlaubt, da L' nur unwesentlich von der Frequenz und der spezifischen Leitfähigkeit σ' abhängt. Der Index t des Induktivitäts- und Kapazitätsbelags kennzeichnet die Schichtdicke t der Wellenleitung,



Abbildung 4.2: Resonanzfrequenzen und die daraus bestimmten Londonschen Eindringtiefen von Ringresonatoren mit verschiedenen YBCO-Schichtdicken auf LAO.

für die $L'_t(\lambda_L)$ und C'_t berechnet werden.

Wird der Induktivitätsbelag $L'_t(T)$ aus der Verschiebung der Resonanzfrequenz bezüglich f_R bei 4,2 K bestimmt, kann auf die Kenntnis des effektiven Resonatorumfangs l verzichtet werden:

$$\left(\frac{f_R(4,2 \text{ K})}{f_R(T)}\right)^2 = \frac{L'_t(T) C'_t(T)}{L'_t(4,2 \text{ K}) C'_t(4,2 \text{ K})} = \frac{L'_t(\lambda_L(T)) \varepsilon_{eff}(T)}{L'_t(\lambda_L(4,2 \text{ K})) \varepsilon_{eff}(4,2 \text{ K})}$$
(4.1)

Als Bezugswerte dienen die Resonanzfrequenz und der Induktivitätsbelag bei 4,2 K. Die effektiven Permittivitäten ε_{eff} wurden nach Gleichung (A.21) im Anhang A.2 bzw. mit dem Mehrschichtmodell aus Kapitel 2.3.2 aus gemessenen $\varepsilon_r^{STO}(T)$ und $\varepsilon_r^{LAO}(T)$ Werten berechnet.

Zur Bestimmung des Absolutwertes der noch fehlenden Größe $\lambda_L(4,2 \text{ K})$ wird ausgenutzt, dass die 100 nm und 210 nm dicken YBCO-Schichten bei tiefen Temperaturen ($T \ll T_C$) in etwa die selbe Eindringtiefe haben sollten:

$$\frac{L'_{100nm}(\lambda_L) C'_{100nm}}{L'_{210nm}(\lambda_L) C'_{210nm}} = \left(\frac{f_{R,210nm}}{f_{R,100nm}}\right)^2 \bigg|_{T = 4,2 \text{ K}}$$
(4.2)

Die schichtdickenabhängige Kapazität C'_t wurde nach Gleichung (A.20) bestimmt. In Kapitel 3.4.2 wurde der Induktivitätsbelag der asymmetrischen koplanaren Wellenleitung in Abhängigkeit von der Londonschen Eindringtiefe λ_L für verschiedene Schichtdicken t numerisch berechnet. Hiermit sind alle Größen zur Bestimmung von λ_L gegeben.

Die Auswertung der Resonanzfrequenzen nach obigem Verfahren liefert für λ_L bei 4,2 K einen Wert von 190 nm. Zum Vergleich sind in der Literatur für dünne Schichten Werte zwischen 170 nm [87] und 220 nm [92] zu finden; der Einkristallwert beträgt $\lambda_L(0 \ K) \approx 150$ nm [49]. Der in Abbildung 4.2 dargestellte Verlauf von $\lambda_L(T)$ der 100 und 210 nm dicken Schichten ist innerhalb einer 8% igen Toleranz identisch. Die 350 nm dicke Schicht zeigt bei höheren Temperaturen einen deutlichen Anstieg von $\lambda_L(T)$. Als mögliche Erklärung für dieses Verhalten kommen Mikrorisse in Frage, deren Entstehung mit zunehmender Dicke immer wahrscheinlicher wird. Da der Stromtransport in diesen Bereichen vermindert ist, kann magnetisches Feld tiefer in das Material eindringen, was zu einer erhöhten Eindringtiefe führt.

4.1.3 Oberflächenwiderstand

Der Oberflächenwiderstand R_S ist nach dem Zweiflüssigkeitsmodell wie folgt definiert [46]:

$$R_S := \frac{1}{2} \omega^2 \mu_0^2 \sigma' \lambda_L^3 \tag{4.3}$$

Da die Größe λ_L zuvor bestimmt wurde, bleibt als einzige Unbekannte lediglich der Realteil der Leitfähigkeit σ' übrig, der aus der Leitergüte ermittelt werden kann. Die Leitergüte Q_{Leit} hängt nach Gleichung (2.70) vom Induktivitäts- L'und Widerstandsbelag R' sowie der Resonanzfrequenz f_R ab:

$$Q_{Leit} = \frac{2\pi f_R L'(\lambda_L)}{R'(\sigma', \omega, \lambda_L)}$$
(4.4)

Zusammen mit Gleichung (3.18)

$$R'(\sigma', f, \lambda_L) = \frac{\sigma' f_R^2}{\sigma'_{sim} f_{sim}^2} R'(\sigma'_{sim}, f_{sim}, \lambda_L)$$
(4.5)

kann aus der unbelasteten Güte Q_0 , die hier unter Vernachlässigung der Abstrahlungs- und Substratverluste gleich der Leitergüte Q_{Leit} ist, und der Resonanzfrequenz f_R auf die Leitfähigkeit σ' geschlossen werden, wobei die Abhängigkeit der Größen L' und R' von der zuvor bestimmten Londonschen Eindringtiefe $\lambda_L(T)$ zu berücksichtigen ist:

$$\sigma' = \frac{f_{sim}^2 \sigma'_{sim}}{f_R Q_0} \cdot \frac{2\pi L'(\lambda_L)}{R'(\sigma'_{sim}, f_{sim}, \lambda_L)}$$
(4.6)



Abbildung 4.3: Temperaturabhängige Güten mit den daraus berechneten R_S -Werten der unterschiedlich dicken YBCO-Schichten auf LAO.

Die resultierenden Oberflächenwiderstände der drei YBCO-Schichten sind in Abbildung 4.3 dargestellt. Der niedrigste Wert von $R_S = 19 \ \mu\Omega$ bei 6 GHz und 4,2 K wurde bei der 100 nm dicken YBCO-Schicht gemessen. Zwischen 40 und 70 K zeigt der Kurvenverlauf ein Plateau, das oft bei YBCO-Schichten mit niedrigen R_S -Werten auf LAO-Substraten beobachtet wurde [93–96]. Bei der für Anwendungen relevanten Temperatur von 77 K beträgt $R_S = 64,5 \ \mu\Omega$. Mit zunehmender Schichtdicke wird der Oberflächenwiderstand insgesamt größer und die Ausprägung des Plateaus nimmt ab. Dieses Verhalten kann damit erklärt werden, dass R_S empfindlich von der Londonsche Eindringtiefe abhängt ($\sim \lambda_L^3$), die ebenfalls mit der Schichtdicke zunimmt. Zusätzlich wird der Stromfluss in der Nähe der Oberfläche vermutlich durch vermehrte Mikrorisse reduziert.

Abbildung 4.4 zeigt den direkten Vergleich des Oberflächenwiderstandes typischer YBCO-Schichten mit und ohne STO-Zwischenschicht, wobei für beide YBCO-Schichten eine Dicke von 210 nm gewählt wurde und die STO-Schicht 300 nm stark war. Die zusätzliche STO-Schicht bewirkt eher eine Erniedrigung als eine Erhöhung der R_S -Werte, was wiederum mit der Wahrscheinlichkeit von Rissbildung an der Oberfläche aufgrund einer besseren Übereinstimmung der Gitterparameter zwischen YBCO und STO als zwischen YBCO und dem LAO-Substrat zusammenhängen könnte. Die erzielten R_S -Werte sind vergleichbar mit den Ergebnissen anderer Gruppen [34,96], die an unstrukturierten, gesputterten YBCO-Schichten auf LAO gemessen werden. Für die hohe Qualität der hergestellten Schichten spricht zusätzlich, dass die in Kapitel 2.4.1 erwähnten Anforderungen



Abbildung 4.4: Gegenüberstellung der $R_S(T)$ -Werte mit und ohne STO-Zwischenschicht, normiert auf 10 GHz ($R_S \sim f^2$). Die durchgezogene Linie zeigt Vergleichsmessungen an YBCO-Schichten auf LAO nach Avenhaus [96], die gestrichelte nach Zuccaro [34].

an YBCO-Schichten für Mikrowellenbauelemente von $R_S < 500 \ \mu\Omega$ bei 10 GHz und 77 K übertroffen werden. Des Weiteren geben die Messkurven keinen Hinweis auf eine Erhöhung von R_S aufgrund degradierter Schichtbereiche nahe den Ätzkanten des YBCO-Films, wie es von S. Gevorgian *et al.* [97] beobachtet wurde.

Die am Anfang des Kapitels gestellt Frage, ob sich die Hochfrequenzeigenschaften von direkt auf LAO aufgebrachten YBCO-Schichten merklich von YBCO-Schichten auf einer 300 nm dicken STO-Zwischenschicht unterscheiden, kann mit "nein" beantwortet werden.

4.2 Strukturelle und Gleichstromeigenschaften von STO-Schichten

Zur Charakterisierung der Oberflächenmorphologie wurden epitaktische STO-Filme auf LaAlO₃-Substraten hergestellt und mit einem Rasterkraftmikroskop (AFM) untersucht. Der sägezahnförmige Höhenverlauf in Abbildung 4.5 stammt von verzwillingten LaAlO₃-Körnern des Substrats. Aus dem Höhenverlauf senkrecht zu den Verzwillingungen entlang der weißen Linie ergibt sich ein Verkippungswinkel der 00*l*-Richtung von etwa 0,18° bei Raumtemperatur, der mit dem Literaturwert von 0,16° aus Kapitel 2.4.2 gut übereinstimmt. Die mittlere Oberflächenrauigkeit der STO-Schicht liegt bei $R_a = 1,7$ nm. Zum Vergleich hierzu beträgt die Rauigkeit des polierten LAO-Substrats nach Herstellerangaben $R_a = 0,35$ nm, jedoch scheint nach den Resultaten des vorherigen Kapitels der etwas höhere R_a -Wert der STO-Schicht kaum Einfluss auf die Transporteigenschaften des darüber liegenden YBCO-Films zu haben.

Die Wachstumsorientierung der Filme senkrecht zur Substratoberfläche sowie Gitterparameter wurden mittels Röntgendiffraktion (XRD) untersucht, wozu ein 2-Kreis-Diffraktometer mit $Cu_{K\alpha 1}$ -Strahlung benutzt wurde. Als Beispiel einer typischen $\theta/2\theta$ -Messung ist in Abbildung 4.6 die Intensität des detektierten Röntgenstrahles über dem Winkel 2θ aufgetragen. Die Messdaten stammen von einer bei 750°C deponierten STO-Abstimmschicht mit YBCO-Deckschicht auf einem LAO-Substrat. Da nur Reflexe mit den Indizes 00*l* zu erkennen sind, kann auf eine reine [001] Orientierung beider Filme geschlossen werden. Die Reflexe der STO-Schicht treten jedoch bei etwas kleineren 2θ -Winkeln auf als man es von stöchiometrischen Einkristallen her erwartet.

Neben den STO-Reflexen und den Reflexen einer reinen c-achsenorientierten YB-CO-Phase ist bei einem Winkel von $2\theta = 34,24^{\circ}$ ein zusätzlicher Reflex zu beobachten, welcher dem 400 Reflex einer kohärent gewachsenen Y₂O₃ Fremdphase zugeordnet werden kann. Dieses Ergebnis ist konform mit der durch RBS Messungen gefundenen Zusammensetzung der YBCO-Filme von Y_{1,27}Ba₂Cu₃O_{7- δ} mit einem leichten Yttrium-Überschuss. Für den c-Achsenparameter der YBCO-Schicht ergab sich aus der Lage der 00*l*-Reflexe ein Wert von 1,168 nm. Ein solcher Gitterparameter deutet auf ein Sauerstoffdefizit von $\delta = 0,07$ hin [74]. Die Analyse der STO-Gitterparameter aus den Röntgenreflexen werden im Abschnitt 4.2.3 näher behandelt, da diese eine starke Abhängigkeit von der Depositionstemperatur aufwiesen.

4.2.1 Einfluss des Prozessgasdruckes

Als kritischer Parameter während der Schichtdeposition stellte sich der Gesamtgasdruck p_{tot} heraus [98], der einen wesentlichen Einfluss auf die Zusammenset-



Abbildung 4.5: Oberflächenmorphologie einer gesputterten 400 nm dicken STO-Schicht. Die untere Abbildung zeigt den Höhenverlauf entlang der weißen Linie. Die Oberflächen der Zwillingskörner des LAO-Substrats verkippen bei Raumtemperatur um etwa 0,18° gegeneinander.



Abbildung 4.6: $\theta/2\theta$ -Diffraktogramm der Schichtstruktur aus STO (S) und YBCO (Y) auf einem LaAlO₃ (L) Substrat. Die Substratreflexe wurden in der Höhe reduziert. Bei $2\theta = 34,24^{\circ}$ ist der 400-Reflex einer Y₂O₃ Fremdphase zu erkennen.

zung der STO-Schicht hat. Um den Einfluss von p_{tot} auf strukturelle Eigenschaften wie Gitter-Parameter und Defekte zu untersuchen, wurden homoepitaktische STO-Filme auf STO-Substrate aufgebracht. Hierdurch wurden mögliche Einflüsse der Heteroepitaxie, wie beispielsweise Gitterfehlanpassung, ausgeschlossen.

Zur Analyse der Druckabhängigkeit der Schichtzusammensetzung wurde zur genaueren Bestimmung der Element-Konzentrationen neben Rutherford-Rückstreu-Messungen (RBS) zusätzlich energiedispersive Röntgenanalysen (EDX) durchgeführt. In Abbildung 4.7 ist die Abhängigkeit der Titan-Konzentration x von SrTi_xO₃ als Funktion des Gesamtgasdrucks dargestellt. Die Fehlerbalken beschreiben den jeweiligen Messfehler bei der EDX-Analyse und der Druckmessung. Mit zunehmendem Gesamtdruck p_{tot} konnte eine immer stärker von der Stöchiometrie abweichende Zusammensetzung der STO-Schicht beobachtet werden, wobei die Ti-Konzentration x mit zunehmendem Druck linear abnahm. Aufgrund der starken Abnahme der Sputter-Rate für $p_{tot} > 30$ Pa wurde der Gesamtdruck nicht über 34 Pa erhöht, wobei eine minimale Ti-Konzentration von x = 0,89 erzielt wurde.

Um zu untersuchen, welchen Einfluss ein hoher Titan-Unterschuss auf die Mikrostruktur der STO-Schichten hat, wurde ein Probenquerschnitt mit der größten stöchiometrischen Abweichung (x = 0.89) präpariert und mit einem hochauflösenden Transmissionselektronenmikroskop (TEM) mit einer Beschleunigungsspan-



Abbildung 4.7: Abhängigkeit der Ti-Konzentration x vom Gesamtdruck $p_{tot} = p(Ar) + p(O_2)$. Experimentelle Fehler bei der EDX-Analyse und der Druckmessung sind durch Fehlerbalken gekennzeichnet.

nung von 300 kV charakterisiert.

Abbildung 4.8(a) zeigt eine TEM Aufnahme, in der ein kolumnares Wachstum der STO-Schicht erkennbar ist. Ein solches Wachstum wird oftmals auch bei heteroepitaktischen STO und (Ba, Sr)TiO₃ Filmen beobachtet [99,100]. Die mittlere Korngröße, die sich aus der TEM-Aufnahme bestimmen lässt, beträgt ca. 50 nm. Abbildung 4.8(b) zeigt eine hochauflösende Aufnahme der Grenzfläche zwischen Substrat und Schicht. Der Film ist aufgrund seiner geringeren Qualität bezüglich Epitaxie und Homogenität vom Substrat gut zu unterscheiden. Die Bildung einer Grenzschicht wird, entsprechend den Erwartungen für homoepitaktisches Wachstum, nicht beobachtet. Beide Kationengitter, Sr und Ti, sind gut erkennbar und scheinen keine größere Anzahl an Leerstellen aufzuweisen. Obwohl TEM eine sehr lokale Analysemethode hinsichtlich der Mikrostruktur ist, sollte die Kompensation eines Ti-Defizits von 11% über die Bildung von Ti-Leerstellen durchaus erkennbar sein. Anstelle der Bildung von Ti-Leerstellen beobachtet man jedoch helle Streifen im Film parallel zum Substrat, die durch Pfeile in Abbildung 4.8(b) angedeutet sind. Die Streifen resultieren aus einem abrupten Wechsel der Helligkeit, die der Streuintensität der Kationen proportional ist. Da die Streuintensität quadratisch mit der Ordnungszahl des Elementes zunimmt, kann ein abrupter Intensitätswechsel als eine Änderung der Platzbesetzung interpretiert werden, bei der Sr-Atome auf Ti-Gitterplätzen sitzen. Flächendefekte dieser Art werden als kristallographische Scherebenen (CS) bezeichnet, die einen Translationsvek-



Abbildung 4.8: TEM Aufnahmen einer homoepitaktischen STO-Schicht mit x = 0,89. Die dunklen Streifen in (a) deuten auf ein kolumnares Schichtwachstum hin.

tor $t = (\frac{1}{2}; \frac{1}{2}; \frac{1}{2})$ besitzen. Die Bildung einer CS innerhalb der STO-Struktur entspricht dem Einbau einer zusätzlichen SrO-Ebene. Obwohl diese Ebenen alle parallel zur Substratoberfläche verlaufen, ist eine Ordnung entlang der [001] Richtung aufgrund der unterschiedlichen Abstände nicht erkennbar. Meist werden Abstände zwischen n = 3 bis 8 beobachtet, wobei n die Anzahl der Perowskit-Lagen zwischen den CS ist.

Abbildung 4.9 zeigt ein Elektronen-Diffraktogramm des STO-Substrates (linkes Bild) und des STO-Filmes (rechtes Bild). Hierbei fallen folgende signifikante Unterschiede auf. Erstens, die Intensität der 00l Film-Reflexe ist für l = 2n + 1 wesentlich geringer als die der Substrat-Reflexe. Diese relativ starke Unterdrückung der Intensität lässt sich durch destruktive Interferenz erklären. Bei einer innenzentriert kubischen Struktur verschwinden die 00l Reflexe für l = 2n + 1 aufgrund der Extinktion. Bei einer primitiv kubischen Struktur wie STO ist diese Auslöschung unvollständig, da die Atome auf den Positionen 0;0;0 und $\frac{1}{2}$; $\frac{1}{2}$; $\frac{1}{2}$ (Sr und Ti) nicht identisch sind. Eine Besetzung von Ti-Gitterplätzen mit Sr führt jedoch zu einer stärkeren Innenzentrierung und somit zu einer Verminderung der Intensität von 00l Reflexen mit l = 2n + 1, wobei die 0kl Reflexe für k = l weitestgehend unbeeinflusst bleiben. Zweitens, im Unterschied zum Substrat sind beim Film diffuse Streifen entlang der [001] Richtung zu beobachten. Diese Intensität ist relativ homogen und deutet auf Unregelmäßigkeiten in den interplanaren Abständen entlang der c-Achse hin. Höchstwahrscheinlich werden die Streifen durch das ungeordnete Auftreten von CS, wie es in Abbildung 4.8(b) beobachtet wurde, verursacht, da der Einbau von SrO-Ebenen in der c-Richtung zu einem unregelmäßigen Netzebenenabstand führt.



Abbildung 4.9: Elektronen-Beugungsaufnahme eines STO-Einkristall-Substrates, linkes Bild, und eines STO-Filmes mit x = 0.89, rechtes Bild.

4.2.2 Gleichstromtransporteigenschaften

Die Gleichstromtransporteigenschaften der STO-Schichten wurden an zylinderförmigen Mehrlagen-Dünnschichtkondensatoren mit einer kreisförmigen Fläche von $A = 0.25 \text{ mm}^2$ (Ø 560 µm) bestimmt. Den schematischen Aufbau mit der unstrukturierten Grundelektrode, einem 500 nm dicken STO-Zylinder und der Deckelektrode zeigt Abbildung 4.10. Für beide Elektroden wurde YBCO als Material verwendet, da STO epitaktisch auf YBCO aufwächst und zudem auch im normalleitenden Zustand eine ausreichend hohe Leitfähigkeit besitzt. Durch die Verwendung desselben Elektrodenmaterials sollen Asymmetrien in den Strom-Spannungs-Kennlinien vermieden werden. Zur Kontaktierung der YBCO-Elektroden mit Leitsilber wurde Gold als Zwischenschicht verwendet. Die Messungen der Schichteigenschaften erfolgten in einem Helium-Verdampferkryostat, in dem die Temperatur mit einem Heizregelkreis auf 0,1 K genau eingestellt werden konnte.

Indem gezielt der Einfluss des Gesamtdruckes auf das Kationenverhältnis ausgenutzt wurde (siehe Abbildung 4.7), wurden STO-Schichten mit den Kationenverhältnissen x = 0,988, 0,980 und 0,890 hergestellt. Zur Charakterisierung der elektrischen Transporteigenschaften der $SrTi_xO_{3-\delta}$ Filme wurden Strom-Spannungskennlinien bei T = 77 K aufgenommen. Im Gegensatz zu Messungen bei Raumtemperatur oder relativ hohen Feldstärken, wo oftmals thermische Emission (Schottky-Verhalten), beziehungsweise Feld-Emission (Fowler-Nordheim-Verhalten) beobachtet wird [101], zeigen die Transportmessungen bei tiefen Temperaturen ein Verhalten, das sich im wesentlichen durch Hüpfprozesse über lokalisierte Zustände beschreiben lässt [102]. In Abbildung 4.11 ist die Stromdichte logarithmisch als Funktion der elektrischen Feldstärke, log j über $E^{-1/4}$, für die drei Schichten aufgetragen. Bei konstanter Feldstärke zeigt sich ein sehr starker Anstieg der Stromdichte mit abnehmendem x. Für E = 100 kV/cm nimmt die Stromdichte von x = 0,988 bis x = 0,89 um fast 6 Größenordnungen zu. Der elek-



Abbildung 4.10: Kondensatorstruktur auf LaAlO₃-Substrat mit YBCO-Elektroden und Gold-Kontakten.

trische Transport wird bei allen Ti-defizitären STO-Schichten durch "Variable-Range-Hopping" (VRH) über lokalisierte Zustände dominiert.

Entsprechend dem Mottschen $T^{-1/4}$ Gesetz [103] gilt im Grenzfall hoher Feldstärken nach Shklovskii [104]

$$j(E) \sim \exp[-(E^*/E)^{1/4}]$$
 , (4.7)

wobei die charakteristische elektrische Feldstärke E^* proportional zum Kehrwert der Dichte g der lokalisierten Zustände und der vierten Potenz der Lokalisierungslänge α^{-1} ist:

$$E^* \sim \frac{1}{g\alpha^{-4}} \tag{4.8}$$

Numerische Rechnungen innerhalb der Perkolationstheorie [104] liefern:

$$E^* = \frac{23}{e} \cdot \frac{1}{g\alpha^{-4}}$$
(4.9)

Hierbei ist e die Elementarladung. Daher ist es möglich, mit einer plausiblen Schätzung von α^{-1} anhand der I - U Kennlinien die Dichte der lokalisierten Zustände in den STO-Schichten zu bestimmen.

Für eine quantitative Auswertung werden die I - U Kennlinien im Bereich hoher Feldstärken mit dem VRH-Modell gefittet und aus der Steigung der Kurven $\log j$ über $E^{-1/4}$ die charakteristische elektrische Feldstärke E^* bestimmt. Unter der Annahme einer Lokalisierungslänge von $\alpha^{-1} = 0,4$ nm, was ungefähr dem Gitterparameter von STO entspricht, ergeben sich für x = 0,89, 0,98 und 0,988 die Werte g = 7,5, 1,9 und $0,03 \cdot 10^{21}$ (eV)⁻¹cm⁻³. Die Zunahme der Dichte lokalisierter Zustände g mit abnehmendem x ist konsistent mit dem beobachtetem



Abbildung 4.11: Stromdichte als Funktion der elektrischen Feldstärke $E^{-1/4}$ für STO-Schichten mit den angegebenen Ti-Konzentrationen x bei T = 77 K. Gezeigt sind die Ergebnisse mit positivem Deckelektrodenpotenzial und negativer Grundelektrode. Die durchgezogenen Linien zeigen die Regressionsgeraden nach Gleichung (4.7).

Anstieg der Stromdichte und resultiert sehr wahrscheinlich aus Defekten in den Ti-defizitären STO-Schichten. Die strukturellen Untersuchungen an Ti-defizitären Filmen deuten darauf hin, dass für x > 0,89 eine Kompensation des Ti-Defizits über die Fehlbesetzung eines Ti-Platzes mit einem Sr-Atom und der Bildung einer Sauerstoffleerstelle stattfindet [98]. Unter der Annahme, dass die Perowskit-Struktur von SrTi_xO_{3- δ} nur durch den Sr-Einbau stabilisiert wird, ergibt sich für die Dichte der Fehlstellen: $n_{Sr_{Ti}} = (1 - x)/2 \cdot 1/V_{uc}$, wobei $V_{uc} \approx 0,06$ nm³ das Volumen der Elementarzelle ist.

Die Werte für $n_{Sr_{Ti}}$ und g sind nochmals in Tabelle 4.1 zusammengefasst. Von O. Morán [105] wurde eine Defektzustandsdichte von $g = 7 \cdot 10^{19} \text{ (eV)}^{-1} \text{ cm}^{-3}$ an 30 nm dicken STO-Tunnelbarrieren bestimmt. Dieser Wert liegt in derselben Größenordnung wie die hier gefundenen Ergebnisse.

Die vorgestellten Gleichstrommessungen sind "Wechselstrommessungen" mit der Frequenz f = 0 Hz und wurden als Vorversuche zur Schichtoptimierung durchgeführt. Da die spezifische Leitfähigkeit σ direkt proportional zu den Wechselstromverlusten tan $\delta = \sigma/\varepsilon_0\varepsilon_r\omega$ (Gleichung (2.12)) ist, sollten die Schichten, um im Mikrowellenbereich niedrige Verluste zu erreichen, schon im Gleichstromfall eine möglichst geringe Leitfähigkeit aufweisen. Das angedeutete VRH-Modell ist

x	$n_{Sr_{Ti}} (10^{20} \mathrm{cm}^{-3})$	$g \ (10^{21} (eV)^{-1} cm^{-3})$
0,890	9,2	$7,\!5$
0,980	1,7	1,9
0,988	$1,\!0$	$0,\!03$

Tabelle 4.1: Überblick über die elektrischen Parameter der Ti defizitären $SrTi_xO_{3-\delta}$ -Schichten. n ist die Dichte der Sr_{Ti} -Fehlstellen und g die Defektzustandsdichte für verschiedene Ti-Konzentrationen x.

jedoch nur zur Beschreibung der DC-Leitfähigkeit gültig. Hüpfprozesse von Ladungsträgern zwischen lokalisierten Zuständen werden im Hochfrequenzfall durch das Debye-Modell beschrieben [43].

In Abbildung 4.11 ist der Trend erkennbar, dass, je näher die Ti-Konzentration x an 1 liegt, desto niedriger die Leitfähigkeit ist und desto besser die Isolationseigenschaften sind. Dies wird nach Abbildung 4.7 mit einem möglichst niedrigen Gesamtdruck erreicht. Da der minimale Gasdruck für die Gewährleistung eines stabilen Sputterplasmas in der verwendeten Apparatur etwa 3 Pa betrug und eine möglichst hohe Beladung der Schicht mit Sauerstoff erreicht werden sollte, wurde als Prozessgas zur Hestellung aller nachfolgend untersuchten Schichten reiner Sauerstoff mit einem Druck von $p_{O_2} = 3$ Pa beibehalten.

4.2.3 Variation der Depositionstemperatur

Neben dem Gesamtgasdruck p_{tot} hat auch die Substrattemperatur während der Deposition großen Einfluss auf die Schichteigenschaften. Um diese Abhängigkeit genauer zu prüfen, wurden STO-Schichten mit Depositionstemperaturen zwischen 710 und 810°C auf LAO-Substrate aufgebracht und zunächst röntgenographisch untersucht. Hierbei zeigte sich der in Abbildung 4.12 dargestellte Verlauf des Gitterparameters senkrecht zur Substratoberfläche. Um den Einfluss noch höherer Temperaturen zu untersuchen, wurde eine bei 810°C deponierte STO-Schicht zusätzlich in einem Ofen in reiner Sauerstoffatmosphäre bei einem Druck von 1 bar 2 h lang bei 1200°C nachgetempert, wodurch sich der Gitterparameter von 0,3918 nm auf 0,3916 nm weiter reduzierte. Der Einkristallwert des STO-Gitterparameters liegt zum Vergleich bei 0,3910 nm.

Die Mosaikbreite der STO-Filme wurde mit einem ω -Scan am 002 Reflex charakterisiert. Wegen der Verkippung der Zwillingskörner des LaAlO₃-Substrats konnte nur die Summe der Intensitäten aus zwei durch den Verzwillingungswinkel versetzten Reflexen gemessen werden. Zur genauen Bestimmung der Mosaikbreite der Körner wurden deshalb numerisch zwei Reflexe mit quadratischer Lorentz-



Abbildung 4.12: Gitterparameter senkrecht zur Substratoberfläche in Abhängigkeit von der Depositionstemperatur.



Abbildung 4.13: Bestimmung der Mosaikbreite am 002 Reflex der bei 760°C hergestellten STO-Schicht. Aufgrund der Verzwillingung des Substrats kommt es zu einem Doppelreflex.



Abbildung 4.14: Mosaikbreiten der STO-Schichten in logarithmischer Darstellung. Mit zunehmender Depositionstemperatur nimmt die Schärfe der 200 Reflexe zu. Die Linien geben die numerisch bestimmten Einzelintensitäten der Doppelreflexe an.

form

$$y = \frac{y_0}{\left[1 + b(\omega - \omega_0)^2\right]^2}$$
(4.10)

mit der Halbwertsbreite $2((\sqrt{2}-1)/b)^{\frac{1}{2}}$, dem Winkel des Intensitätsmaximums ω_0 und der Normierungskonstanten y_0 an die Messkurve (Abbildung 4.13) angepasst. Je nach dem, zu welchen Anteilen die beiden Zwillingsebenen vom Röntgenstrahl beleuchtet werden, ist die Doppelreflexstruktur mehr oder weniger stark ausgeprägt. In Abbildung 4.13 ist die Intensität des Röntgensignals der 750°C Schicht über dem Winkel ω aufgetragen. Aus der Winkeldifferenz der Intensitätsmaxima lässt sich ein Verzwillingungswinkel des LAO-Substrats von $\delta \omega = 0,168^{\circ}$ ablesen, der gut mit den Ergebnissen des Rasterkraftmikroskops übereinstimmt. Aus den Halbwertsbreiten der Kurven ergab sich eine gemittelte Mosaikbreite der STO-Körner von $\Delta \omega = 0,22^{\circ}$.

Die Auswirkung der Depositionstemperatur auf die Mosaikbreite illustriert Abbildung 4.14, in der die Intensitäten der bei 710, 810 und 1200°C hergestellten Proben zum direkten Vergleich aufgeführt sind. Es ist deutlich zu erkennen, dass mit zunehmender Temperatur zum einen die Halbwertsbreite der 200 Reflexe von 0,44° auf 0,12° abnimmt. Zum anderen kommt es zu einer Verschiebung der Winkelpositionen der Maxima hin zu höheren Winkeln, was aus der Abnahme des



Abbildung 4.15: Auftragung nach Halder und Wagner zur Trennung der Linienverbreiterung durch Korngröße und Gitterverzerrungen. Eingezeichnet sind die Messpunkte der bei 710, 750 und 810°C deponierten sowie der getemperten Probe mit den zugehörigen Regressionsgeraden.

c-Achsen Gitterparameters resultiert. Ein ähnliches Verhalten wurde auch von Bouzehouane *et al.* [79] an laserablatierten STO-Schichten auf LAO gefunden.

Interne Filmverspannungen, verursacht durch inhomogene Gitterverzerrungen, können aus den Halbwertsbreiten der 00l Reflexe der 2θ -Messung abgeschätzt werden. Durch die Auftragung von $\Delta^2/\tan^2(\theta)$ über $\Delta/(\tan(\theta)\sin(\theta))$ nach Halder and Wagner [106], wobei Δ die volle Halbwertsbreite der 00l Reflexe in den Einheiten von 2θ bezeichnet, kann zwischen der Linienverbreiterung aufgrund einer endlichen Korngröße und aufgrund von Verspannungen unterschieden werden. In Abbildung 4.15 sind die Messpunkte der untersuchten Proben eingezeichnet. Aus der Steigung m der Regressionsgeraden kann die Körngröße l abgelesen werden:

$$l = \frac{k\lambda}{m} \tag{4.11}$$

Hierbei ist $\lambda = 0,154$ nm die Wellenlänge des Röntgenlichts und k = 0,9 eine Geometriekonstante. Der Achsenabschnitt *b* ist ein Maß für die Verspannung, oder genauer die inhomogene Streuung des Netzebenenabstands *d* in 00*l* Richtung:

$$\frac{\Delta d}{d} = \frac{1}{4}\sqrt{b} \tag{4.12}$$

Depositionstemperatur	Verspannung	Korngröße
$T_D (^{\circ}\mathrm{C})$	$\Delta d/d$	l (nm)
710	$1,23 \cdot 10^{-3}$	70,1
750	$1,16 \cdot 10^{-3}$	66,4
810	$0,73 \cdot 10^{-3}$	52,8
1200	$0,44 \cdot 10^{-3}$	70,2

Tabelle 4.2: Verspannung $\Delta d/d$ und Korngröße l der bei T_D deponierten STO-Schichten.

Die resultierenden Verspannungen und Korngrößen sind in Tabelle 4.2 zusammengetragen.

Die durch XRD-Analysen gefundenen Ergebnisse deuten auf eine Abnahme der Gitterverspannungen mit steigender Depositionstemperatur hin. Gleichzeitig verringert sich der Gitterparameter senkrecht zur Substratoberfläche in Richtung des Einkristallwerts, und die Kristalldomänen richten sich exakter entlang einer gemeinsamen Richtung aus. Insgesamt hat es aus kristallographischer Sicht den Anschein, als ob mit steigender Depositionstemperatur die Kristallite der Schicht immer mehr den Charakter eines Einkristalls annehmen. Hierbei muss die Tatsache berücksichtigt werden, dass das Aufwachsen von Schichten bei verschiedenen Substrattemperaturen in reduzierter Sauerstoffatmosphäre und das Tempern bei $p_{O_2} = 1$ bar zwei völlig verschiedene Vorgänge sind. Durch die höhere Substrattemperatur während des Aufwachsens der Schicht erhalten die sich anlagernden Atome eine höhere Beweglichkeit, wodurch die Kristallordnung steigt und die Wahrscheinlichkeit von Defektbildung verringert wird. Die nachträgliche Temperung könnte das Ausheilen von Korngrenzen durch Umverteilungs- oder Diffusionsprozesse bewirken, wodurch die inhomogenen Verspannungen weiter abgebaut werden und die Korngröße zunimmt. Es kann ebenfalls nicht ausgeschlossen werden, dass der STO-Film während der Herstellung bei einem Druck von $p(O_2) = 3$ Pa nicht vollständig mit Sauerstoff beladen wurde und aufgrund der Temperung die Sauerstoffleerstellen nachträglich aufgefüllt werden [107].

4.3 Dielektrische Eigenschaften im HF-Bereich

Der Schwerpunkt dieses Kapitels liegt in der Hochfrequenzcharakterisierung der dielektrischen Eigenschaften dünner STO-Schichten im Gigahertzbereich. Zu diesem Zweck wurden Phasenschieber und Ringresonatoren in STO/Au bzw. STO/-YBCO-Mehrlagenanordnungen hergestellt und untersucht. Anhand der gefundenen Ergebnisse werden verschiedene Mechanismen diskutiert, die eine Erklärung des beobachteten Verhaltens ermöglichen.

Im Kapitel 4.2.2 stellte sich durch Messungen der Gleichstromtransporteigenschaften an Schichtkondensatoren heraus, dass STO-Schichten ohne Ti-Defizit die geringste Gleichstromleitfähigkeit σ besaßen. Da angenommen wurde, dass sich ein hohes σ negativ auf die Hochfrequenzeigenschaften im Sinne von hohen Verlusten auswirkt, wurden nur Schichten mit nahezu stöchiometrischer Zusammensetzung von SrTi_{0,99}O₃ im Hochfrequenzbereich untersucht, die bei einem Sauerstoffpartialdruck von 3 Pa hergestellt wurden. Das vorherige Kapitel hat eine deutliche Abhängigkeit der kristallographischen Eigenschaften von der Substrattemperatur T_D während des Depositionsprozesses gezeigt. Vor diesem Hintergrund wird der Einfluss von T_D auf die dielektrischen Eigenschaften genauer charakterisiert, und mögliche Zusammenhänge werden erörtert.

4.3.1 Messungen an Phasenschiebern

Die Bestimmung der Permittivität dünner STO-Filme im HF-Bereich erfolgte, wie in Kapitel 3.3 beschrieben, durch Messungen an einem geraden und einem mäanderförmigen Phasenschieber (siehe Abbildung 3.4) mit 400 nm dicken STO-Schichten, die bei einer Temperatur von 810°C auf LAO-Substrate deponiert wurden. Um die Permittivität über einen möglichst großen Temperaturbereich messen zu können, wurde eine 300 nm dicke Goldschicht als Leitermaterial verwendet. Abbildung 4.16 zeigt die Phasenverschiebung im Frequenzbereich zwischen 50 MHz und 18 GHz bei T = 4.2 K. Die Abweichungen der Messwerte von der in den Graph gelegten Ursprungsgeraden im oberen Frequenzbereich werden hauptsächlich durch Gehäuseresonanzen hervorgerufen, womit keine signifikante Dispersion erkennbar ist. Ein entsprechendes frequenzunabhängiges Verhalten wird auch von P. Petrov et al. [20] für Frequenzen bis 40 GHz gefunden. Aus der Steigung $k = \Delta \varphi / f$ ergibt sich wie in Abbildung 4.16 angegeben die Phasengeschwindigkeit des Mikrowellensignals und hieraus die effektive Permittivität ε_{eff} der Wellenleitung. Die Permittivitätszahl der STO-Schicht wurde nach Gleichung (3.6) unter Berücksichtigung der temperaturabhängigen Permittivität des LAO-Substrats (Abbildung 2.11) ermittelt und ergab einen Wert von $\varepsilon_r = 752$.

Nach derselben Methode wurde die Permittivität in dem Temperaturbereich von 4,2 bis 300 K in Abhängigkeit von der elektrischen Feldstärke untersucht. Zur



Abbildung 4.16: Frequenzabhängige Phasendifferenz bei 4,2 K.



Abbildung 4.17: Effektive Permittivität ε_{eff} der Wellenleitung und die berechnete Permittivitätszahl der STO-Schicht als Funktion von Temperatur und elektrischer Feldstärke.

Erzeugung des elektrischen Feldes wurde zwischen Mittelleiter und Masseplatten eine Steuergleichspannung von bis zu 40 Volt angelegt. Das Ergebnis der Messungen ist in Abbildung 4.17 dargestellt. Bei der für Anwendungen relevanten Temperatur von 77 K ergibt sich für die STO-Schicht bei E = 0 kV/cm eine Permittivitätszahl von $\varepsilon_r = 739$. Durch Anlegen der maximalen Spannung von 40 V, welche einer elektrischen Feldstärke von E = 25 kV/cm entspricht, lässt sich dieser Wert auf $\varepsilon_r = 672$ reduzieren. Umgerechnet in Phasenverschiebung pro Leitungslänge und Frequenz bedeutet dies $17,3 \cdot 10^{-9}$ sm⁻¹ bzw. $16,8 \cdot 10^{-9}$ sm⁻¹. Die für eine Verzögerungsleitung charakteristische Größe "Phasenverschiebung pro Leitungslänge und Frequenz" berechnet sich aus der effektiven Permittivität nach Gleichung (2.76) mit $Q \to \infty$ zu:

$$\frac{\Delta\varphi}{\omega\Delta l} = \frac{1}{c}\sqrt{\varepsilon_{eff}} \tag{4.13}$$

Die Permittivität der STO-Schicht wird bei der Temperatur von $T_{max} = 39$ K mit $\varepsilon_r = 813$ maximal. In diesem Bereich zeigt sich auch die größte Abstimmbarkeit durch Anlegen eines elektrischen Feldes von

$$n = \frac{\varepsilon_r(0)}{\varepsilon_r(E_{max})} = 1.14 \quad \text{oder} \quad \frac{\varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(E_{max})}{\varepsilon_r(0)} = 12\% \qquad . \tag{4.14}$$

Mit weiter zunehmender Temperatur fällt die Permittivität kontinuierlich ab und mündete oberhalb von 200 K in einem breiten Plateau. Bei 300 K beträgt ε_r nur noch 381, und die Abstimmbarkeit liegt bei n = 1,004 oder 0.4%.

Das bei 39 K beobachtete Maximum liegt nur zufällig in der Nähe des in Kapitel 2.4.3 angedeuteten, nicht stattfindenden Phasenübergangs zur Ferroelektrizität. Wie ein Vergleich mit Abbildung 2.17 nahe legt, können auch innere elektrische Felder die Ursache für das Auftreten eines Maximums sein. Auf die Natur dieses Feldes wird in den nächsten Kapiteln noch genauer eingegangen.

Die Funktion von abstimmbaren Phasenschiebern konnte hiermit demonstriert und die Temperaturabhängigkeit von ε_r bis 300 K und die Feldabhängigkeit bis 25 kV/cm gemessen werden. Der Nachteil dieser Methode ist jedoch, dass keine Aussagen über dielektrische Verluste möglich sind und auch die Bestimmung der Permittivität mit einem großen Fehler behaftet ist, da die Differenzmessung exakt gleiches Aufwärmverhalten der über zwei Meter langen Zuleitungen erfordert, und zusätzlich das Verhältnis zwischen Bauteillänge und Zuleitungslänge ungünstig ist. Aus diesem Grund wird an dieser Stelle von einer weiteren Interpretation der Messresultate abgesehen.

4.3.2 Messungen an koplanaren Ringresonatoren

Zur genauen Charakterisierung der Permittivitätszahl ε_r und der Wechselstromverluste tan δ von STO-Schichten wurde der in Kapitel 3.4 beschriebene koplanare



Abbildung 4.18: Transmission $|S_{21}|$ in Abhängigkeit von Frequenz und elektrischer Feldstärke bei 4,2 K und 77,4 K. Die angegebene elektrische Feldstärke E = U/Gbezieht sich auf die maximale Feldstärke, die sich aus der angelegten Gleichspannung U und dem Elektrodenabstand $G = 10 \ \mu m$ ergibt. Die aufgeführten Q-Werte sind die belasteten Güten, die aus den -3 dB-Bandbreiten der Resonanzkurven bestimmt wurden. In dem unteren Graph ist bei E = 0 eine Lorentzkurve als dicke Linie eingezeichnet, die den Verlauf einer idealen Resonanzkurven wiedergibt.

Ringresonator verwendet. Um das typische Verhalten der Transmission $|S_{21}|$ eines solchen Resonators zu demonstrieren, sind in Abbildung 4.18 die Resonanzkurven der Probe gezeigt, deren STO-Schicht bei $T_D = 810^{\circ}$ C deponiert wurde. Selbst bei geringen Güten weichen die Kurven nur wenig von der idealen Lorentzform ab, wie eine bei 77 K und E = 0 in die Messdaten gelegte Lorentzkurve zeigt. Durch das Anlegen einer elektrischen Feldstärke von 100 kV/cm lässt sich die Resonanzfrequenz bei 4,2 K von 5,18 auf 5,53 GHz um 7% und bei 77,4 K von 5,14 auf 5,38 GHz um 5% nach oben verschieben, wobei mit ansteigender Frequenz zunächst eine Verringerung der Halbwertsbreiten zu beobachten ist. Dies steht nach Gleichung (3.23) mit einer Reduzierung der Verluste mit zunehmender Feldstärke in Verbindung. So beträgt z. B. die Güte bei 77 K ohne angelegtes Feld Q = 168, erreicht bei E = 80 kV/cm ein Maximum von Q = 331 und fällt mit weiter steigender Feldstärke auf 257 bei E = 100 kV/cm ab. Ähnlich verhält sich die Güte bei 4,2 K mit einem Maximum von Q = 855 bei 80 kV/cm, jedoch sind hier die Verluste generell geringer, wodurch die Resonanzkurven schmäler und die Güten höher sind.

Normalerweise werden für YBCO-Resonatoren wegen des niedrigen Oberflächenwiderstands des Supraleiters Güten von bis zu 10⁶ bei 2 GHz und 4,2 K erwartet [92, 108]. Die relativ geringen Güten dieses Resonators resultieren aus der speziellen Resonatorgeometrie. Werden die dielektrischen Verluste vernachlässigt, ist der Oberflächenwiderstand R_S mit der Resonatorgüte Q_0 über die Beziehung

$$G = Q_0 R_S = \omega \mu_0 \frac{\iiint_{Resonator}}{\iint_{Leiter}} |\vec{B}|^2 dV \sim \frac{\text{Volumen der Dielektrika}}{\text{Leiteroberfläche}}$$
(4.15)

verknüpft, wobei der geometrieabhängige Faktor G in etwa proportional dem Quotienten aus felderfüllten Resonatorvolumen und der Leiteroberfläche ist. Bei der Dimensionierung des hier verwendeten Resonators wurde ein kleines Resonatorvolumen gewählt, damit die STO-Schicht einen genügend großen Volumenanteil ausfüllt, um die Resonatoreigenschaften merklich zu beeinflussen und aussagekräftige Rückschlüsse auf die Eigenschaften der STO-Schicht zu erlauben. Zwar ist in dieser Geometrie das Verhältnis zwischen Volumen zu Oberfläche ungünstig, wodurch trotz des niedrigen Oberflächenwiderstands der YBCO-Schicht nur kleine Güten auftreten, jedoch kann die STO-Schicht genau charakterisiert werden.

Neben dem elektrischen Feld zur Beeinflussung der STO-Schicht, das mit einer Gleichspannung erzeugt wird, verursachen auch die im Resonator fließenden Wechselströme Spannungen, deren elektrisches Feld sich dem statischen Hintergrundfeld überlagert. Diese AC-Spannungen sollten gegenüber der Gleichspannung so gering sein, dass sie die dielektrischen Eigenschaften der STO-Schicht nur unwesentlich beeinflussen. Die im Oszillator auftretende Scheitelspannung U_0 kann aus der oszillierende Leistung P_{osz} und dem Wellenwiderstand der Koplanarleitung Z über die Beziehung

$$U_0 = \sqrt{2Z P_{osz}} \tag{4.16}$$

abgeschätzt werden [50]. Für Z ergibt sich gemäß Gleichung (A.22) ein Wert von $\approx 24 \ \Omega$. Stimmt die Frequenz der eingestrahlten Mikrowelle mit der Resonanzfrequenz der erzwungenen Schwingung überein, absorbiert der Resonator die zugeführte Leistung und erhöht die Amplitude so lange, bis sich ein Gleichgewicht zwischen dissipierter $P_{diss} = P_{osz}/Q_0$ und zugeführter Leistung P_{zu} einstellt:

$$P_{osz} = Q_0 \cdot P_{zu} \tag{4.17}$$

Hierbei ist Q_0 die unbelastete Güte. Die dem Resonator zugeführte Leistung P_{zu} ist gleich der angebotenen, vorwärts laufenden Leistung P_V abzüglich der reflektierten $P_V |S_{11}|^2$ und transmittierten $P_V |S_{21}|^2$ Mikrowellenleistung:

$$P_{zu} = P_V \left(1 - |S_{11}|^2 - |S_{21}|^2 \right) \tag{4.18}$$

Die bei der Resonanzfrequenz f_R oszillierende Leistung in symmetrisch gekoppelten Resonatoren kann unter Verwendung der Beziehung $|S_{11}(f_R)| = 1 - |S_{21}(f_R)|$ und von Gleichung (3.24) durch die Messgrößen belastete Güte Q und Transmissionskoeffizient $|S_{21}(f_R)|$ ausgedrückt werden [46]:

$$P_{osz} = 2 Q_0 P_V (1 - |S_{21}(f_R)|) |S_{21}(f_R)| = 2 Q P_V |S_{21}(f_R)|$$
(4.19)

Die angebotene Leistung $P_V = |e_{10}|^2 P_{NWA} = 0.5 \ \mu$ W resultiert aus der Ausgangsleistung des Netzwerkanalysators von $P_{NWA} = -30$ dBm $= 1 \ \mu$ W und der anhand Gleichung (3.26) abgeschätzten Abschwächung durch die Zuleitung zwischen NWA und Resonator von $|e_{10}| \approx \sqrt{|e_{32}e_{10}|} \approx -3$ dB. Da die belastete Güte bei keiner Probe den Wert von 1300 überschritt und $|S_{21}(f_R)|$ stets kleiner als 0,5 war, kann die maximale Spannung auf $U_0 < 0.2$ V abgeschätzt werden, womit die auftretenden Wechselspannungen viel kleiner als die angelegte Gleichspannung zur Abstimmung der STO-Schicht waren.

Im folgenden soll das Augenmerk auf die zu charakterisierenden STO-Schichten gelenkt werden. Hierzu wurde aus den Resonanzkurven die belastete Güte Q, die Resonanzfrequenz f_R und die Durchlassdämpfung $|S_{21}(f_R)|$ bestimmt und aus diesen Größen gemäß Kapitel 3.4.3 die unbelastete Güte Q_0 berechnet, woraus sich schließlich nach dem in Kapitel 3.4.4 vorgestellten Ätzverfahren die Permittivitätszahl ε_r und der Verlustfaktor tan δ der STO-Schicht ergab.

Hergestellt wurden 300 nm dicke STO-Schichten mit $T_D = 710^{\circ}$ C, 750°C und 810°C auf LAO, die anschließend mit einem 250 nm dicken YBCO-Film in-situ

Probe	STO-Dicke	q_{Luft}	q_{Sub}	q_{STO}	Υ
710	300 nm	0,50949	$0,\!48025$	0,01026	$8,209 \cdot 10^{-3}$
750	340 nm	0,50948	0,47893	$0,\!01159$	$9,001 \cdot 10^{-3}$
810	300 nm	0,50949	$0,\!48025$	$0,\!01026$	$8,743 \cdot 10^{-3}$
1200	330 nm	0,50948	0,47926	$0,\!01126$	$1,\!051\cdot 10^{-2}$

Tabelle 4.3: Theoretische Füllfaktoren für verschiedene STO-Schichtdicken und experimentell ermittelte Υ -Werte.

bedeckt wurden. Bei einer vierten Probe wurde die STO-Schicht bei 810°C deponiert, die Probe bei 1200°C in reiner Sauerstoffatmosphäre unter 1 bar Druck zwei Stunden getempert und erst danach die YBCO-Schicht aufgesputtert. Zur Vereinfachung der Probenkennzeichnung wird diese Probe im weiteren bezeichnet, als wäre sie bei $T_D = 1200$ °C deponiert worden.

Aufgrund von Toleranzen in der Sputterleistung kam es zu einer geringen Streuung in der Depositionsrate von etwa 10%. Da die STO-Schichten hierdurch zum einen unterschiedlich dick waren und zum anderen der Ätzprozess manuell durchgeführt wurde, müssen zur Auswertung für jede Probe eigene Füllfaktoren und unterschiedliche Ätzfaktoren Υ verwendet werden. Die Berechnung der Füllfaktoren und des Ätzfaktors wurde in den Kapiteln 2.3.2 und 3.4.4 erläutert, die resultierenden Werte sind in Tabelle 4.3 aufgeführt.

4.3.2.1 Permittivität und Verluste

Die Temperaturverläufe der Permittivitäten und der Verlustfaktoren der vier Proben sind in Abbildung 4.19 dargestellt. Mit zunehmender Depositionstemperatur der STO-Schicht steigen sowohl ε_r als auch die dielektrischen Verluste an. Besonders auffällig ist die Zunahme von ε_r zwischen den bei 810°C und 1200°C deponierten Schichten um etwa das Dreifache auf einen Wert von $\varepsilon_r = 1585$ bei 4,2 K. Auch die Temperaturabhängigkeit wächst mit zunehmender Depositionstemperatur an. Im Unterschied zu den bis 810°C deponierten Schichten, bei denen sich die Permittivität mit der Temperatur nur wenig ändert, reduziert sich ε_r bei der 1200°C Probe zwischen 4,2 K und 77 K um 62%.

Im Vergleich zu den im vorherigen Kapitel ermittelten Werten von ε_r^{STO} der STO-Schicht (siehe Abbildung 4.17) liegen die des Resonators bei gleicher Depositionstemperatur von 810°C etwas niedriger als beim Phasenschieber. Dies liegt wahrscheinlich daran, dass beim Phasenschieber eine etwas dickere STO-Schicht verwendet wurde. Untersuchungen der Schichtdickenabhängigkeit von ε_r zeigen oft eine Zunahme der Permittivität mit steigender Schichtdicke [109].

Bei allen Proben liegt das Permittivitätsmaximum innerhalb des gemessenen Temperaturbereichs. Die genaue Lage der in Abbildung 4.19 schwer zu erken-



Abbildung 4.19: Temperaturabhängigkeit der Permittivität und tan δ der STO-Schichten. Die Pfeile zeigen auf die Permittivitätsmaxima, die nur in vergrößerter Darstellung erkennbar sind.



Abbildung 4.20: Permittivität über elektrischer Feldstärke der bei verschiedenen Depositionstemperaturen hergestellten STO-Schichten, gemessen bei 4,2 und 77 K.

nenden Maxima sind durch Pfeile markiert. Im Vergleich hierzu steigt ε_r eines STO-Einkristalls ohne angelegtes elektrisches Feld monoton mit fallender Temperatur an und sättigt unterhalb 3 K bei einem Wert von etwa $\varepsilon_r = 23500$ aufgrund von Quantenoszillationen [69]. Die Temperaturen T_{max} mit maximaler Permittivität sind in Tabelle 4.4 aufgeführt. Einen Erklärungsansatz für das Auftreten eines Permittivitätsmaximums liefert der Vergleich mit dem in Abbildung 2.17 dargestellten Verhalten eines STO-Einkristalls beim Anlegen eines elektrischen Feldes, wonach die Existenz eines Maximums das Vorhandensein eines inneren Feldes vermuten lässt.

Bei drei von den vier Proben steigen die dielektrischen Verluste mit zunehmender Messtemperatur an, wobei die Kurven in etwa parallel verlaufen. Eine Ausnahme bildet die bei 750°C deponierte Schicht mit einem schwach ausgeprägten lokalen Maximum um 40 K. Nahe der Übergangstemperatur von YBCO ist die Gesamtgüte Q der Resonatoren relativ gering, so dass die Messgenauigkeit von tan δ_{STO} abnimmt und die Werte anfangen zu streuen. Der niedrigste Verlustfaktor von tan $\delta = 1,23 \cdot 10^{-3}$ wird an der bei 710°C deponierten Probe bei 4,2 K gemessen.

Ähnlich wie bei der Permittivitätszahl wirkt die Änderung der Depositionstemperatur von 810 auf 1200°C erhöhend auf die Verluste. Hiermit zeigen die gesputterten Schichten ein gegensätzliches Verhalten zu der von Bouzehouane gefundenen Reduzierung der Verluste in laserablatierten Filmen durch den Temperprozess [79].

Das Verhalten von ε_r beim Anlegen eines elektrischen Feldes ist in Abbildung 4.20 für 4,2 und 77 K dargestellt. Mit steigender elektrischer Feldstärke sinkt bei allen Schichten die Permittivitätszahl ε_r und zwar um so stärker, je höher die Substrattemperatur T_D während der Schichtherstellung war. Insgesamt steigt die Abstimmbarkeit $n = \varepsilon_r(0)/\varepsilon_r(E_{max})$ mit zunehmendem T_D an.

Die Feldstärkeabhängigkeit der dielektrischen Verluste sind in Abbildung 4.21 gezeigt. Bei 4,2 K sind die Verluste am geringsten. Mit steigender Feldstärke fällt tan δ zunächst schnell ab und steigt in hohen elektrischen Feldern wieder leicht an. Die Ausprägung des Abfalls von tan δ im niedrigen Feldstärkebereich ist um so schwächer, je niedriger die Depositionstemperatur der STO-Schicht ist und verschwindet bei der bei 710°C deponierten Probe völlig.

Ein ähnliches Verhalten der Verluste kann bei 77 K beobachtet werden, jedoch mit dem Unterschied, dass die Verluste allgemein höher liegen und die Feldstärkeabhängigkeit deutlich geringer ausfällt, so dass der Verlustanstieg in hohen Feldstärken kaum zu beobachten ist.

Die temperaturabhängige Abstimmbarkeit $n = \varepsilon_r(0)/\varepsilon_r(120 \text{ kV/cm})$ ist in Abbildung 4.22 dargestellt. Die niedrigste Abstimmbarkeit von 1,11 zeigt die bei



Abbildung 4.21: Feldabhängigkeiten des Verlusttangens der STO-Schichten bei 4,2 und 77 K.


Abbildung 4.22: Temperaturabhängigkeit der Abstimmbarkeit bei einer Feldstärke von $E = 120 \ kV/cm$.

der geringsten Substrattemperatur hergestellte STO-Schicht. Mit steigender Depositionstemperatur nimmt die Abstimmbarkeit auf maximal 4,83 bei der 1200°C Probe zu. Über den gesamten Temperaturbereich von 4,2 bis 80 K ändert sich die Abstimmbarkeit bei allen Proben nur wenig.

4.3.3 Modellierung der Permittivität

Zum Entwurf von Mikrowellenbauelementen mit abstimmbaren STO-Schichten ist es wichtig, die dielektrischen Eigenschaften aller beteiligten Materialien mit geeigneten Modellen beschreiben zu können. Als besonders geeignet für STO-Schichten hat sich das in Kapitel 2.1.1 vorgestellte Vendik-Modell erwiesen.

Um die Anzahl der freien Fitparameter zu reduzieren, kann die phänomenologische Konstante ξ_S des Vendik-Modells durch die Temperatur T_{max} mit maximalem ε_r bei E = 0 und den Parametern T_C und θ_D ausgedrückt werden:

$$\xi_S = 2 \left(\frac{\theta_D}{T_C} \sqrt{\frac{1}{16} + \left(\frac{T_{max}}{\theta_D}\right)^2} - 1 \right)^{\frac{3}{2}}$$
(4.20)

 T_{max} wurde direkt den Messkurven entnommen (siehe Tabelle 4.4), womit die Anzahl der freien Parameter auf 4 sinkt. Trotzdem konnte der verwendete Rechenalgorithmus aus den Messergebnissen keinen eindeutigen Wertesatz für die



Abbildung 4.23: Die durchgezogenen Linien zeigen den Fit des Modells an die temperaturabhängig gemessenen Permittivitätszahlen (Punkte) der STO-Schichten und des STO-Einkristallsubstrats.

restlichen Parameter ermitteln. Erst mit dem Festsetzen eines weiteren Parameters konvergierten die Fitparameter. Als fester Parameter wurde die Größe ε_{00} ausgewählt, da sich die im Kristallgitter vorhandenen Atomsorten mit den zugehörigen Oxidationszahlen nicht ändern und deshalb die Art der sich ausbildenden Dipole gleich bleiben sollte. Auch die Abstände der Ionen ändern sich maximal in der Größenordnung, wie die Einheitszelle der Schicht gegenüber dem Einkristall verzerrt wird. Nach den Ergebnissen der Röntgenanalyse aus Kapitel 4.2.3 beträgt die größte Dehnung in c-Richtung etwa 1%. Der Wert von ε_{00} wurde über folgenden Umweg bestimmt: Die obere Abschneidefrequenz des Phononenspektrums, die Debye-Frequenz ω_D , kann mittels der Beziehung

$$\hbar\omega_D = k_B \theta_D \tag{4.21}$$

mit der Debye-Temperatur θ_D verknüpft werden. Hierbei ist k_B die Boltzmannund \hbar die Planck-Konstante. Aus $\omega_D = 2,60 \cdot 10^{13}$ 1/s [37] eines STO-Einkristalls resultiert $\theta_D = 198,6$ K. Wird diese Temperatur als fester Parameter in die Fitprozedur eingesetzt, liefert sie aus der Anpassung der Permittivität an STO-Einkristallmessungen einen Wert für ε_{00} von etwa 2000. Für die Curie-Temperatur T_C ergibt sich ein Wert von 47 K. Hiermit liegt T_C zwar höher als der Wert von 35 K, der sich nach Abbildung 2.16 aus dem Curie-Weiss-Gesetz ableiten lässt, stimmt aber in etwa mit dem von Vendik *et al.* [37] gefundenen Wert von 42 K überein.



Abbildung 4.24: Modell (Linie) und Messung (Punkte) der Feldstärkeabhängigkeit von ε_r bei 4,2 und 77 K.

Unter der Annahme, dass ε_{00} unabhängig von der Depositionstemperatur und eventuellen Gitterverspannungen ist, wurden die übrigen Modellparameter der Schichten unter Verwendung aller feld- und temperaturabhängig gemessenen Permittivitäten numerisch berechnet. Das Resultat ist für die STO-Schichten sowie für das STO-Einkristallsubstrat in Tabelle 4.5 aufgeführt. Obwohl die Temperatur des Permittivitätsmaximums nicht monoton verläuft, zeigen alle übrigen Fitparameter einen kontinuierlichen Trend mit steigender Depositionstemperatur. Die Debye-Temperatur des gemessenen STO-Einkristallsubstrats stimmt gut mit dem zuvor angegebenen theoretischen Wert von 198,6 K überein. Da die Voraussetzung, dass sich ε_{00} mit T_D nur wenig ändert, zwar wahrscheinlich, aber nicht mit absoluter Sicherheit gegeben ist, wird die Aussagekraft der Absolutwerte etwas gemindert, jedoch sollte die Tendenz, wie sich die Werte mit der Depositionstemperatur ändern, der Wirklichkeit entsprechen.

Abbildung 4.23 zeigt das Modellergebnis der Permittivität im Vergleich zu den Messungen in Abhängigkeit von der Temperatur ohne angelegte DC-Spannung. Bis auf die bei 1200°C nachgetemperte Probe, bei der die Messwerte oberhalb von 60 K schneller als das Modellergebnis mit zunehmender Temperatur abfallen,

T_D (°C)	ε_{00}	T_{max} (K)	ξ_S	$E_S (kV/cm)$
710	2000	21,70	15,290	190
750	2000	$15,\!55$	7,775	72
810	2000	$26,\!68$	5,496	48
1200	2000	9,10	$0,\!950$	6
Einkristall	2000	—	0,019	—

Tabelle 4.4: Der Parameter $\varepsilon_{00} = 2000$ geht als konstante Größen in das Vendik-Modell ein. Die Temperaturen der Permittivitätsmaxima T_{max} wurden aus den Messungen bestimmt, die Defektkonstante ξ_S ergibt sich aus Gleichung (4.20), die innere Feldstärke mit $E_S = \xi_S E_N$.

T_D (°C)	θ_D (K)	T_C (K)	$E_N \; (kV/cm)$
710	$231,9 \pm 0,3$	$12{,}64\pm0{,}02$	$12,\!4\pm0,\!03$
750	$191,7 \pm 0,8$	$14{,}50\pm0{,}05$	$9,\!32\pm0,\!05$
810	$179,7 \pm 1,3$	$17{,}64\pm0{,}09$	$8{,}66\pm0{,}05$
1200	$148,8 \pm 1,0$	$23,\!82\pm0,\!14$	$6{,}51\pm0{,}12$
Einkristall	$200,1 \pm 0,3$	$47,\!02\pm0,\!05$	—

Tabelle 4.5: Berechnete Fitparameter des Modells. Die angegebenen Standardabweichungen zeigen die Qualität der Anpassung.

stimmt das Modellergebnis gut mit der Messung überein. Dies gilt sowohl für die STO-Schichten als auch für das STO-Einkristallsubstrat.

Bei der in Abbildung 4.24 dargestellten Feldabhängigkeit sind deutliche Abweichungen zwischen Modellvorhersage und Messung zu beobachten. Hier ist wiederum die 1200°C Schicht bei 77 K zu erwähnen, bei der die Messwerte durch die zuvor erwähnten Differenz bei T > 60 K deutlich unterhalb der Modellkurve liegen. Die Abweichungen der anderen Kurven ist vermutlich damit zu erklären, dass das Modell eine homogene elektrische Feldstärke in der gesamten STO-Schicht voraussetzt. Wie jedoch aus Abbildung A.2 (Anhang A.2, S. 119) ersichtlich wird, ist die Verteilung des elektrisches Feldes stark inhomogen.

Wie in Abbildung 4.23 zu erkennen ist, steigen mit zunehmender Depositionstemperatur die Permittivitäten der STO-Schichten kontinuierlich an und nähern sich den Werten des Einkristalls. Gleichzeitig nimmt die Abstimmbarkeit n, d. h. die Änderung der Permittivität durch ein elektrisches Feld, zu. Als Grund für dieses Verhalten wird die Dehnung des c-Achsen Gitterparameters senkrecht zur Substratoberfläche vermutet, die mit steigender Depositionstemperatur abnimmt.

Ein effektiver Parameter zur Abschätzung der Eigenschaften eines Perowskits ist

nach Itoh et al. [110] der Toleranzfaktor

$$t = \frac{r_{Sr} + r_O}{\sqrt{2} \left(r_{Ti} + r_O \right)} \qquad , \tag{4.22}$$

der die strukturelle Stabilität einer Perowskitstruktur angibt. Werden die Ionenradien nach Shannon [111] verwendet ($r_{Sr} = 0,132$ nm, $r_{Ti} = 0,056$ nm und $r_O = 0,126$ nm), ergibt sich für t = 1,00, was bedeutet, dass die Ionenpackung in STO bei Raumtemperatur ideal für eine perowskitartige Struktur ist. Abweichungen von diesem Wert führen entweder zur Ferroelektrizität, wie z. B. im Fall von BaTiO₃, oder zu einem quanten-paraelektrischen Verhalten wie in CaTiO₃ [112]. Dieser kritische Zustand von STO lässt erahnen, dass schon geringe Verzerrungen der Einheitszelle großen Einfluss auf die dielektrischen Eigenschaften haben können. Druckexperimente haben gezeigt, dass das Phononenspektrum durch die Stauchung der Gitterparameter zu höheren Frequenzen verschiebt [113]. Eine Dehnung müsste demnach nach Gleichung (4.21) ein Absinken der Debye-Temperatur bewirken, jedoch zeigen die aus der Fitprozedur gewonnenen Debye-Temperaturen (siehe Tabelle 4.5) einen genau gegenläufigen Trend.

Die Vermutung liegt nahe, dass ein zusätzlicher Effekt für die Zunahme der Debye-Temperatur mit steigender Gitterverzerrung und die drastische Abnahme der Permittivität verantwortlich ist: Die Existenz eines internen elektrischen Feldes im Kristallgitter. Ein solches Feld würde ebenfalls die reduzierte Abstimmbarkeit erklären.

Eine homogene Dehnung der Einheitszelle, also eine einheitliche Anderung der Gitterparameter, sollte kein intrinsisches Feld hervorrufen. Anders sieht dies bei inhomogenen Verspannungen aus, woraus die Kristall-Ionen unregelmäßig gegeneinander verschoben werden und ein statistisch verteiltes elektrisches Feld entsteht. Ein solcher Fall wird durch die phänomenologische Konstante ξ_S des Vendik-Modells beschrieben. Da ξ_S die auf E_N normierte innere Feldstärke E_S wiedergibt, kann der Wert von E_S durch das Produkt $\xi_S E_N$ angegeben werden. Die Tabellen 4.2 und 4.4 zeigen eine eindeutige Korrelation zwischen ξ_S , der inneren Feldstärke E_S und den Verspannungen $\Delta d/d$, womit diese Theorie bekräftigt wird. Als weiteres Argument zeigen Phononenspektren eine Verschiebung der optischen Phononenfrequenzen mit steigender elektrischer Feldstärke zu höheren Frequenzen [71, 72]. Dies ist im Einklang mit dem Ansteigen der Debye-Temperatur mit zunehmender Verspannung.

4.3.4 Modellierung der Verluste

Da die Bestimmung der Prozesse, durch welche sich die dielektrischen Eigenschaften mit steigender Depositionstemperatur ändern, relativ unsicher ist, wird



Abbildung 4.25: Dielektrische Verluste aufgetragen über der Permittivitätszahl in doppelt logarithmischer Darstellung. Die verbundenen Punkte sollen die Auswirkungen steigender Depositionstemperatur bei konstanter Messtemperatur und E = 0 veranschaulichen. Die Steigungen der dicken Linien symbolisieren verschiedene ε_r^x -Abhängigkeiten.

zunächst untersucht, ob eine direkte Beziehung zwischen den auftretenden Verlusten und der Permittivitätszahl beobachtet werden kann. Hierzu sind in Abbildung 4.25 die dielektrischen Verluste über der Permittivitätszahl ohne angelegtes elektrisches Feld aufgetragen. Entlang der verbundenen Punkte, die jeweils bei der angegebenen Temperatur gemessen wurden, steigt die Depositionstemperatur von links nach rechts bis auf 1200°C an. In dieser Auftragung zeigt sich bei der Messtemperatur von 77 K eine eindeutige Korrelation zwischen der Permittivität und dem Verlustfaktor mit einem Potenzverhalten von tan $\delta \sim \varepsilon_r^{3/2}$. Dies deutet nach Gleichung (2.33) mit $\mathcal{G} \sim \varepsilon_r$ darauf hin, dass bei hohen Temperaturen und E = 0 der Hauptanteil der Verluste durch Multiphononenstreuung verursacht wird. Des Weiteren kann abgeschätzt werden, dass die Änderung von tan δ mit steigender Depositionstemperatur allein auf der Erhöhung der Permittivität ε_r beruht. Ein Einfluss von T_D auf den Defektmechanismus ist nicht festzustellen.

Die Ergebnisse bei Temperaturen < 77 K deuten zwar aufgrund des sich ändern-



Abbildung 4.26: Modellierung der Temperaturabhängigkeit der Verlustmechanismen bei E = 0. Die durchgezogene Linie zeigt die Summe aller Verlustmechanismen; die unterbrochenen Linien die Verluste durch Multiphononenstreuung V_{MP} , den Anteil der ferroelektrischen Domänen V_{FD} , Verluste durch Ladungsdefekte V_Q und die Debye-Verluste V_D .

den Potenzverhaltens auf die Anwesenheit weiterer Mechanismen und auf kleinere Verschiebungen in den Anteilen am Gesamtverlust hin, jedoch ist eine konkretere Aussage nicht möglich. Welcher Verlustmechanismus für die auftretenden dielektrischen Verluste verantwortlich ist, lässt sich genauer durch eine Anpassung der Modellparameter der verschiedenen Verlusttheorien an die Messdaten ermitteln. Um die einzelnen Mechanismen voneinander separieren zu können, muss der Fitalgorithmus sowohl die Temperatur- als auch die Feldabhängigkeit der Messdaten gleichzeitig berücksichtigen.

Abweichend von der in Kapitel 2.1.2.4 angegebenen Gleichung (2.38) zur Beschreibung der Debye-Verluste wurde diese zur besseren Konvergenz des numerischen Rechenalgorithmus unter Annahme von $\omega \tau_{\infty} \gg 1$ zu

$$\tan \delta_D \approx \frac{A_D}{\tau_{\infty}} \cdot \frac{1}{T \mathcal{G} \omega \exp(W/k_B T)}$$
(4.23)

mit dem kombinierten Fitparameter A_D/τ_{∞} vereinfacht.

Da alle vier Verlustmechanismen unterschiedliche Abhängigkeiten von der Temperatur und der elektrischen Feldstärke aufweisen, ändern sich auch die Anteile der Mechanismen am Gesamtverlust mit T und E, wodurch zur übersichtlichen Darstellung der Ergebnisse mehrere Diagramme notwendig werden.

Zunächst soll anhand von Abbildung 4.26 die Temperaturabhängigkeit der Verlustmechanismen ohne anliegendes elektrisches Feld diskutiert werden. Wie sich zeigt, können die auftretenden Verluste gut mit dem vorgestellten Modell beschrieben werden. Kleinere Abweichungen, die jedoch im Rahmen der Messungenauigkeit liegen, treten nur bei der 750°C-Schicht auf.

Der Gesamtverlust steigt in allen Proben bis etwa 50 K mit zunehmender Temperatur kontinuierlich an. Oberhalb von 50 K wird das Temperaturverhalten der Gesamtverluste hauptsächlich durch den Verlauf der Multiphononenverlusten bestimmt. Bei den verschiedenen Proben fallen folgende Besonderheiten auf:

- Die 1200°C-Schicht zeigt als einzige Verluste durch Ladungsdefekte. Diese sind im Temperaturbereich unterhalb 40 K für den Hauptanteil der auftretenden Verluste verantwortlich und machen bei 4,2 K ohne elektrisches Feld etwa 96% des Gesamtverlustes von tan $\delta = 15, 1 \cdot 10^{-3}$ aus. Im Gegensatz zu den anderen drei Proben kann kein durch ferroelektrische Domänen hervorgerufener Verlustanteil gefunden werden. Die Multiphononenverluste zeigen ein Potenzverhalten von P = 1,87 (siehe Gl. 2.33), das dem P = 2Verlauf, wie er in Einkristallen beobachtet wird [37], nahe kommt.
- Die 810°C und 750°C-Proben zeigen ein flach verlaufendes Temperaturverhalten der Multiphononenstreuung mit einem stark von P = 2 abweichenden Potenzverhalten von etwa P = 0,6. Nach G. Link et al. [38] können Defekte den Temperaturverlauf bis auf P = 0 herabsetzen; dies lässt eine hohe Defektkonzentration in den Schichten vermuten.
- In der 710°C-Schicht werden bei 4,2 K die Verluste fast ausschließlich durch ferroelektrische Polarisation verursacht. Mit steigender Temperatur nehmen die Multiphononen-Verluste mit P = 1,55 zu. Als weitere Besonderheit werden an dieser Probe die niedrigsten tan δ Werte erzielt.

Wie sich bei der Modellierung der Feldabhängigkeit der Verluste ergab, konnten unter Verwendung der Normierungsfeldstärken E_N der Permittivitätszahlen, die Messwerte nicht oder nur sehr unbefriedigend wiedergegeben werden. Dies hängt wahrscheinlich mit der schon beschriebenen inhomogenen Feldverteilung in der STO-Schicht zusammen, da sich die über das STO-Volumen gemittelte Permittivitätszahl ε_r aus den ortsabhängigen Permittivitäten unter Berücksichtigung der dortigen geometrischen Füllfaktoren ergibt, während zur Bestimmung der Verluste die Energiefüllfaktoren entscheidend sind. Offensichtlich wird somit



Abbildung 4.27: Feldabhängige Modellbeschreibung der Verluste bei 4,2 und 77 K. Dargestellt sind die Verluste der bei 1200°C und 810°C deponierten STO-Schichten. Die Bedeutung der Linien entspricht Abbildung 4.26.



Abbildung 4.28: Anteile der Verlustmechanismen am Gesamtverlust der bei 750°C und 710°C hergestellten STO-Schichten, aufgetragen über die elektrische Feldstärke.

T_D (°C)	710	750	810	1200
$E_N \; (kV/cm)$	$12,4 \pm 0,03$	$9{,}32\pm0{,}05$	$8,\!66\pm0,\!05$	$6{,}51\pm0{,}12$
$E_V (\rm kV/cm)$	$3,1\pm0,2$	$2,\!84\pm0,\!10$	$2{,}38\pm0{,}04$	$3,\!16\pm0,\!05$
A_{MP} (ps)	$0,16\pm0,01$	$1,\!46\!\pm0.07$	$1{,}697\pm0{,}008$	$0,272 \pm 0,006$
P	$1,\!55\pm0,\!03$	$0,\!66\pm0,\!02$	$0{,}618\pm0{,}004$	$1,\!87\pm0,\!02$
$A_{MP} \left(\frac{77 \text{ K}}{T_C}\right)^P$	2,63	$4,\!39$	4,22	$2,\!44$
A_{FD} (ps)	$0,057 \pm 0,002$	$0,\!059\pm 0,\!005$	$0,\!060\pm0,003$	$0\pm0,001$
$A_Q N_d$ (ps)	$0 \pm 0,\!01$	$0\pm0,03$	$0\pm0,\!01$	$0,700 \pm 0,003$
A_D/τ_{∞} (K/ns)	$0,\!86\pm0,02$	$0,\!83\pm0,\!03$	$0,\!70\pm0,\!02$	$1,\!93\pm0,\!03$
$W \;({\rm meV})$	$2{,}48 \pm 0{,}04$	$1,\!72\pm0,\!07$	$1{,}92\pm0{,}08$	$1,\!43\pm0,\!01$

Tabelle 4.6: Fitparameter aus der Anpassung des Modells an die Messdaten.

zur Beschreibung der Verluste eine eigene Normierungsfeldstärke E_V benötigt. Wie Tabelle 4.6 zu entnehmen ist, liegt E_V um den Faktor 2-4 niedriger als die Normierungsfeldstärke der Permittivitätszahl E_N .

Das Ergebnis der numerischen Anpassung der Verlustmodelle ist in den Abbildungen 4.27 und 4.28 dargestellt. Das Modell zeigt sowohl bei 4,2 als auch bei 77 K eine gute Übereinstimmung mit den Messdaten. Allen Proben ist bei 77 K gemeinsam, dass ohne angelegtes elektrisches Feld die Multiphononenstreuung den Hauptanteil der auftretenden Wechselstromverluste ausmacht. Mit steigendem elektrischen Feld gewinnen die Debye-Verluste an Bedeutung und übernehmen bei genügend hoher Feldstärke die Dominanz. Verluste aufgrund von Ladungsdefekten und ferroelektrischen Domänen spielen bei 77 K nur eine geringe Rolle.

Ein ähnlicher tan $\delta(E)$ -Verlauf der Gesamtverluste wie bei 77 K kann auch bei 4,2 K beobachtet werden, jedoch sind die Anteile der Mechanismen anders verteilt. In hohen Feldern verursachen bei fast allen Proben ferroelektrische Domänen den Hauptanteil der Verluste. Abweichend hiervon verhält sich die 1200°C-Probe, deren Verluste in hohen Feldern von Debye-Prozessen dominiert werden.

Allein aufgrund der Beobachtung, dass sich $\tan \delta$ mit steigender Depositionstemperatur erhöht, kann noch nicht auf eine Änderung der Verlustursachen, wie z. B. die Störstellendichte, geschlossen werden. Dies liegt daran, dass der Realteil der Permittivität ε_r mit verschiedenen Exponenten zusammen mit der Kreisfrequenz ω in die einzelnen Verlustmechanismen eingeht (siehe Gleichungen (2.33) bis (2.38)). Die Diskussion der Abhängigkeit der Verlustmechanismen von der Depositionstemperatur erfolgt deshalb anhand der in Tabelle 4.6 zusammengestellten Modellparameter.

Bei Verlusten durch Multiphononenstreuung fällt eine starke Änderung des Potenzexponenten P mit der Depositionstemperatur auf $(\tan \delta \sim A_{MP}(T/T_c)^P \omega \varepsilon_r^{3/2})$

mit $\varepsilon_r \sim \mathcal{G}$). Da dieser Verlustmechanismus über den gesamten Temperaturbereich der Messungen einen markanten Verlauf besitzt, können die Parameter A_{MP} und P relativ verlässlich bestimmt werden. Auf der Grundlage theoretischer Betrachtungen sollte ein defektfreier Einkristall den Wert P = 2 besitzen [36, 37]. Mit steigender Defektdichte kann P bis auf 0 abnehmen [38]. Hierbei geben die Theorien weder Auskunft über die Art der Defekte noch über die Beziehung zwischen Defektdichte und P. An dieser Stelle ist deshalb lediglich die Aussage möglich, dass Defekte eine Reduzierung von P bewirken. Obwohl sich für unterschiedliche Depositionstemperaturen jeweils andere Werte für P ergeben, scheint dies bei 77 K keinen Einfluss auf das in Abbildung 4.25 gefundene $\tilde{\varepsilon}_r^{3/2}$ -Verhalten zu haben. Um zu untersuchen, ob die Erhöhung dieser Verlustart ausschließlich auf die Änderung der Permittivität mit steigender Depositionstemperatur zurückzuführen ist, wird die in Tabelle 4.6 aufgeführte Größe $A_{MP}(77 \ K/T_C)^P$ bei 77 K betrachtet. Da die Werte alle etwa in derselben Größenordnungen liegen und keinen Trend mit steigender Depositionstemperatur erkennen lassen, kann in Ubereinstimmung mit Abbildung (4.25) kein Einfluss der Depositionstemperatur auf den Mechanismus der Multiphononenstreuung gefunden werden.

Anders sieht es bei den durch ferroelektrische Domänen und Ladungsdefekten bedingten Verlusten V_{FD} und V_Q aus. Wie die Werte A_{FD} und $A_Q N_d$ zeigen, ändert sich das Verhalten von V_{FD} bei Depositionstemperaturen zwischen 710 und 810°C nur wenig und Verluste verursacht durch Ladungsdefekte können vernachlässigt werden. Jedoch bewirkt der Temperprozess bei 1200°C eine grundlegende Änderung im Verlustverhalten: Die Verluste durch ferroelektrische Domänen verschwinden und Ladungsdefekte treten auf. Beide Phänomene könnten mit folgender Erklärung einen gemeinsamen Ursprung haben: Durch Röntgenanalysen wurden in den STO-Filmen inhomogene Verspannungen $\Delta d/d$ in c-Richtung nachgewiesen. Die Verspannungen verursachen ferroelektrische Domänen. Wird der Schicht durch die Temperung genügend Energie zugeführt, werden die Verspannungen $\Delta d/d$ abgebaut, jedoch entstehen bei diesem Vorgang Ladungsdefekte.

Der Vorfaktor A_D/τ_{∞} in den Debye-Verlusten ändert sich ebenfalls nur wenig mit der Erhöhung der Depositionstemperatur auf 810°C; dagegen bewirkt die Temperung eine Verdopplung auf 1,93 K/ns. Ein solches Verhalten könnte aufgrund einer Zunahme lokalisierter Zustände verursacht werden. Hierbei könnten neben Hüpfprozessen über lokalisierte Zustände auch Grenzflächeneffekte zwischen YB-CO und STO eine Rolle spielen, die durch die ex-situ Herstellung des getemperten Resonators beeinflusst werden.

Im Vergleich zu den STO-Schichten treten in einem reinen STO-Einkristall nur Verluste durch Multiphononenstreuung und ferroelektrischen Domänen auf. Die anderen Defektmechanismen sind in einem perfekten Einkristall ohne Fehlstellen und Ladungsdefekten nicht zu beobachten [37]. Wie Abbildung 4.29 zeigt, kann dies durch die Anpassung der Verlustmodelle an Messwerte nach Bethe *et*



Abbildung 4.29: Verluste eines STO-Einkristalls bei 10 GHz. Die Symbole sind Messungen nach Bethe [39], die Linien geben die Anteile der Verlustmechanismen nach O. G. Vendik [37] wieder.



Abbildung 4.30: Gemessene Verluste und berechnete Verlustanteile in Abhängigkeit von der Temperatur eines STO-Substrats der Firma CrysTec. Die Verluste des Substratmaterials sind deutlich höher als die in Abbildung 4.29 dargestellten Verluste eines hochreinen STO-Einkristalls. Die untere Kurve zeigt die zugehörige Resonanzfrequenz des Oszillators.

al. [39] bestätigt werden, wobei die aufgeführten Verlustanteile von O. G. Vendik et al. [37] berechnet wurden.

Um dieses Ergebnis nachzuvollziehen, wurde eine YBCO-Resonatorstruktur direkt auf einem STO-Substrat der Firma CrysTec strukturiert. Die Verlustmessung des STO-Substrats ist im oberen Teil von Abbildung 4.30 dargestellt. Aufgrund des nun viel höheren dielektrischen Füllfaktors von STO liegen die im unteren Graph von Abbildung 4.30 dargestellten Resonanzfrequenzen mit Werten zwischen 0,21 GHz und 0,69 GHz um eine Größenordnung unter den Frequenzen der zuvor untersuchten Resonatoren mit dünnen STO-Schichten. Die Verluste des Substratmaterials zeigen deutlich höhere tan δ -Werte als die des reinen STO-Einkristalls nach Bethe [39], wie sie in Abbildung 4.29 aufgeführt sind. Der wesentlichste Unterschied im Verlustverhalten des Substratmaterials und des STO-Kristalls liegt in dem Auftreten von Verlusten durch Ladungsdefekte. Die Verluste durch Multiphononenstreuung V_{MP} mit P = 2 und ferroelektrische Domänen V_{FD} zeigen in beiden Fällen einen ähnlichen Verlauf. Die Ursache für diese Abweichung ist vermutlich eine leichte Verunreinigung des STO-Substrats, das nicht als hochreiner STO-Einkristall spezifiziert wurde.

Die geringen Verluste eines STO-Einkristalls gegenüber einer STO-Schicht sind nach obigen Ergebnissen auf das Nichtvorhandensein von Fehlstellen, welche Ladungs- oder Debye-Verluste verursachen, sowie auf sehr niedrige Multiphononenverluste in einem reinen STO-Einkristall, der keine Streuzentren für Phononen enthält, zurückzuführen.

4.3.5 Diskussion der Ergebnisse

Für den Einsatz abstimmbarer Schichten in Mikrowellenbauelementen wird eine hohe Abstimmbarkeit bei niedrigen Verlusten gefordert. Zur Beurteilung des Anwendungspotenzials wird deshalb ein Faktor verwendet, der aus dem Verhältnis von relativer Permittivitätsänderung zu dielektrischen Verlusten gebildet wird. Um auch die Veränderung der Verluste ohne und bei maximaler Feldstärke E_{max} mit den zugehörigen Permittivitäten zu berücksichtigen, ist der Qualitätsfaktor Kwie folgt definiert [7]:

$$K(E_{max}) := \sqrt{\frac{(\varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(E_{max}))^2}{\varepsilon_r(0) \cdot \varepsilon_r(E_{max})}} \cdot \frac{1}{\tan \delta(0) \cdot \tan \delta(E_{max})}$$
(4.24)

Je höher der K-Faktor ist, desto größer wird das Anwendungspotenzial. Für die meisten HF-Anwendungen ist nach [7] ein K-Wert > 45 ausreichend.

In Tabelle 4.7 sind die aus den Messdaten berechneten K-Faktoren für 4,2 und 77 K mit $E_{max} = 120 \text{ kV/cm}$ aller Schichten aufgeführt. Aufgrund der niedrigen



Abbildung 4.31: K-Faktor als Funktion der Feldstärke. Die durchgezogenen Linien sind eigene Messungen; die offenen Symbole wurden von P. Woodall [114], R. Ott [115, 116] und M. J. Dalberth [17] ermittelt. Zum Vergleich sind die Werte eines STO-Einkristalls nach Vendik [37] als geschlossene Symbole aufgeführt.

Verluste und der hohen Abstimmbarkeit bei tiefen Temperaturen sind dort die K-Werte am höchsten. Bei der für Anwendungen interessanten Temperatur von 77 K steigt der K-Faktor mit zunehmender Depositionstemperatur T_D bis auf einen Wert von 74 kontinuierlich an. Die Zunahme der Abstimmbarkeit mit T_D überwiegt demnach die steigenden Verluste. Der geforderte Wert von 45 wurde bei 77 K nur von den 810°C und 1200°C Proben erreicht.

In Abbildung 4.31 sind die feldstärkeabhängigen K-Faktoren der 710, 810 und 1200°C Proben als durchgezogene Linien für T = 77 K dargestellt. Die Betrachtung des K-Faktors für verschiedene E_{max} ist erforderlich, da in der Praxis oft die Maximalfeldstärke aufgrund der verwendeten Geometrie und der zur Verfügung stehenden Spannung beschränkt ist. Auch in Abbildung 4.31 zeigt sich eine starke Abhängigkeit des K-Faktors von der Depositionstemperatur, die sich hauptsächlich in der Steigung der Kurven bemerkbar macht. Als Resultat wird zum einen mit höherem T_D ein größerer K-Wert bei 120 kV/cm erzielt, zum anderen kann der geforderte Wert von 45 schon bei niedrigeren Feldstärken erreicht werden. Neben den eigenen K-Faktoren sind in Abbildung 4.31 zusätzlich die Ergebnisse anderer Gruppen eingetragen, wobei zu beachten ist, dass jeweils unterschiedliche Geometrien verwendet werden und dadurch abweichende Feldverteilungen vorliegen. Wie die Abbildung zeigt, ist die Qualität und das Anwendungspotenzial der gesputterten Schichten vergleichbar mit den Filmen ande-

T_D	710°C	$750^{\circ}\mathrm{C}$	810°C	1200°C
K-Faktor bei 4,2 K	68	80	159	204
K-Faktor bei 77 K	14	32	45	74

Tabelle 4.7: $K(E_{max} = 120 \text{ kV/cm})$ -Faktoren der hergestellten Schichten bei 4,2 und 77 K.

rer Gruppen, wobei die Mehrzahl der Schichten mittels Laserablation hergestellt wurden. Die höchsten Qualitätsfaktoren, die zugleich mit den niedrigsten elektrischen Feldstärken erreicht werden, zeigt der Einkristall, von dem die Schichten weit entfernt sind.

Wie aus den Untersuchungen dieser Arbeit resultiert, sollte bei der Herstellung dünner STO-Filme darauf geachtet werden, die Filme möglichst defektfrei und ohne inhomogene Verspannungen herzustellen. Versuche, die Verluste in STO durch eine Dotierung zu verringern, schlugen in den meisten Fällen fehl [10]: Für die Schichten, bei denen sich tan δ verringerte, sank auch die Abstimmbarkeit, so dass sich effektiv kein Vorteil ergab. Eine Möglichkeit zur Gewährleistung einer optimalen Sauerstoffbeladung der STO-Schichten ist, die Deposition mehrmals zu unterbrechen und einen Beladungsschritt in reiner O₂-Atmosphäre einzufügen. Mit dieser Methode wurden von Petrov et al. [20] mittels Laserablation hergestellte STO-Schichten mit $\varepsilon_r = 1800$ und tan $\delta = 0,005$ bei 20 K erreicht. Ein anderer erfolgversprechender Ansatz, die Abstimmeigenschaften von dünnen Schichten zu verbessern, ist die kohärente Verspannung von STO. Hierbei werden abwechselnd wenige Nanometer dicke LAO und STO-Schichten übereinander aufgebracht, wodurch sich die Schichten gegeneinander homogen verspannen. Die Schichtdicken werden so gewählt, dass sie noch unter den kritischen Relaxationsdicken liegen. Messungen an $[STO(3 \text{ nm})/LAO(6 \text{ nm})]^{20}$ -Mehrlagensystemen haben gezeigt, dass zwar die Permittivität der so hergestellten STO-Schichten in der Größenordnung von "herkömmlichen" Schichten lag, aber eine höhere Abstimmbarkeit erreicht wurde [117]. Die Bestimmung der dielektrischen Verluste derartiger Systeme im GHz-Bereich steht noch aus.

Kapitel 5

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden die strukturellen und dielektrischen Eigenschaften von SrTiO₃-Schichten untersucht. Im Hinblick auf die Hochfrequenztauglichkeit und Abstimmbarkeit der Schichten wurde als Schwerpunkt die Temperatur- und Feldabhängigkeit der Permittivität und der Wechselstromverluste charakterisiert.

STO-Schichten wurden mittels Hochfrequenz-Sputtern auf LAO-Substrate aufgebracht. Hierbei wurde eine deutliche Abhängigkeit der chemischen Zusammensetzung vom Prozessgasdruck gefunden. Dies ermöglichte die gezielte Präparation von defektbehafteten STO-Schichten, an denen die dielektrischen Eigenschaften untersucht werden konnten. Strukturelle Analysen an SrTi_xO₃-Schichten mit einem Ti-Gehalt von x = 0.89 ergaben ein kolumnares Schichtwachstum sowie die Bildung von Flächendefekten, die einem strukturellen Einbau zusätzlicher SrO-Ebenen entsprachen. Bei Schichten mit x > 0.89 wurde vermutet, dass das Ti-Defizit durch die Bildung von Sr_{Ti} und V_O Defektkomplexen kompensiert wird. Zur Charakterisierung der Isolationseigenschaften wurden Strom-Spannungs-Kennlinien aufgenommen. Diese wiesen darauf hin, dass der Ladungstransport bei tiefen Temperaturen in den defektbehafteten Filmen von Hüpfprozessen über lokalisierte Zustände dominiert wurde. Die niedrigste Gleichstromleitfähigkeit von $\sigma_{dc} = 1.6 \cdot 10^{-10} \text{ Sm}^{-1}$ bei einer Feldstärke von 133 kV/cm wurde in der Schicht mit dem geringsten Ti-Defizit gefunden. Da zur Vermeidung von Hochfrequenzverlusten eine geringe Gleichstromleitfähigkeit erforderlich ist, sollten die STO-Schichten eine möglichst stöchiometrische Zusammensetzung besitzen und vollständig mit Sauerstoff beladen sein.

Röntgenuntersuchungen an STO-Schichten mit nahezu stöchiometrischer Zusammensetzung ergaben, dass sich der Gitterparameter senkrecht zur Substratoberfläche mit steigender Depositionstemperatur von 0,3946 nm bei 710°C auf einen Wert von 0,3916 nm nahe dem Einkristallwert (0,3910 nm) durch eine nachträgliche Temperung bei 1200°C in 1 bar Sauerstoffatmosphäre reduzierte. Gleichzeitig wurden die Mosaikbreite schmäler und die inhomogenen Verspannungen geringer. Mit koplanaren Phasenschiebern wurde die Permittivität zwischen 4,2 und 300 K einer bei 810°C hergestellten, 400 nm dicken STO-Schicht untersucht. Hierbei wurde eine Deckschicht aus normalleitendem Gold verwendet. Die dielektrischen Eigenschaften im Frequenzbereich zwischen 50 MHz und 18 GHz waren nahezu dispersionsfrei. Bei 39 K wurde die maximale Permittivität von $\varepsilon_r = 813$ beobachtet. Diese konnte mit einer elektrischen Feldstärke von 25 kV/cm um 12% reduziert werden. Bei der für Anwendungen relevanten Temperatur von 77 K ergab sich für die STO-Schicht ohne angelegtes elektrisches Feld eine Permittivitätszahl von $\varepsilon_r = 739$. Mit einer Feldstärke von 25 kV/cm ließ sich dieser Wert auf $\varepsilon_r = 668$ reduzieren. Umgerechnet in Phasenverschiebung pro Leitungslänge und Frequenz bedeutet dies $17,3 \cdot 10^{-9}$ sm⁻¹ bzw. $16,8 \cdot 10^{-9}$ sm⁻¹. Mit zunehmender Temperatur fiel die Permittivität bis auf $\varepsilon_r = 381$ bei 300 K ab. Die Abnahme der Permittivität bei maximaler Feldstärke betrug hier nur noch 0,4%.

Aus STO/YBCO-Mehrlagenstrukturen wurden koplanare Ringresonatoren auf LAO-Substraten hergestellt, deren Ringe aus einer asymmetrischen TEM-Wellenleitung bestanden. Diese Geometrie wurde verwendet, da sie analytisch berechenbar ist und das Anlegen einer Gleichspannung zur Abstimmung der STO-Schicht über definierte Zuführungen erlaubt. Bei einem bei 810°C deponierten Resonator wurde durch Erhöhung der elektrischen Feldstärke von 0 auf 100 kV/cm die Resonanzfrequenz bei 4,2 K von 5,18 auf 5,53 GHz um 7% und bei 77,4 K von 5,14 auf 5,38 GHz um 5% nach oben verschoben. Aus der Messung von Resonanzfrequenz und Güte wurde auf die dielektrischen Eigenschaften der 300 nm dicken STO-Schichten geschlossen. Hierbei wurde ein Verfahren verwendet, mit dem die Leitereigenschaften des YBCO aus den Messergebnissen eliminiert werden konnten.

Mit zunehmender Depositionstemperatur von 710 auf 810°C stieg die Permittivitätszahl ε_r ohne angelegtes elektrisches Feld von 234 auf 424 und die relative Permittivitätsänderung $[\varepsilon_r(0) - \varepsilon_r(E_{max})]/\varepsilon_r(E_{max})$ von 9% auf 27% bei 77 K. Durch eine nachträgliche Temperung bei 1200°C konnte ein maximaler Wert von $\varepsilon_r = 613$ mit einer Abstimmbarkeit von 71% erreicht werden. Im Vergleich dazu liegt der Einkristallwert bei $\varepsilon_r = 1933$. Der Verlusttangens tan $\delta_{STO}(E = 0)$ stieg ebenfalls mit zunehmender Herstellungstemperatur (710 – 1200°C) von 6,3 · 10⁻³ auf 28·10⁻³ bei 77 K an. Der geringste Verlustfaktor von tan $\delta_{STO} = 1,2 \cdot 10^{-3}$ wurden bei 4,2 K von der 710°C-Probe erreicht. Die unbelastete Güte des Resonators betrug hierbei $Q_0 = 4000$. Bei der Temperatur von 77 K nahm der Qualitätsfaktor K (Definitionsgleichung (4.24)), der die relative Permittivitätsänderung pro auftretende Verluste angibt, mit zunehmender Depositionstemperatur kontinuierlich zu. Die bei 1200°C getemperte STO-Schicht erreichte den maximalen Wert von K = 74 bei 77 K. Für die meisten HF-Anwendungen ist $K(E_{max}) > 45$ ausreichend.

Die Permittivität und die auftretenden Verluste konnten mit einem phänome-

nologischen Modell nach Vendik *et al.* [37] modelliert werden. Die Analyse der Messergebnisse ergab, dass in niedrigen elektrischen Feldern die auftretenden Verluste bei 77 K hauptsächlich durch Multiphononenstreuung verursacht wurden, während in hohen elektrischen Feldern Debye-Verluste dominierten. Da die Verluste mit steigender Depositionstemperatur T_D der Relation $\tan \delta \sim \varepsilon_r^{3/2}$ folgten, die von der Theorie der Multiphononenstreuung vorhergesagt wird, kann geschlossen werden, dass die Erhöhung der Verluste bei 77 K ausschließlich aus der Änderung von ε_r resultierte. Ein eindeutiger Einfluss von T_D auf den Mechanismus der Multiphononenstreuung konnte nicht gefunden werden.

Verantwortlich für das vom Einkristall abweichende dielektrische Verhalten der untersuchten STO-Schichten waren vermutlich inhomogene Verspannungen sowie ein leichter Titan-Unterschuss in der Zusammensetzung der gesputterten STO-Schichten, die durch eine Verzerrung der Ionenabstände innere elektrische Felder von bis zu 190 kV/cm bewirkten. Da hohe Feldstärken die Polarisation sättigen, nimmt sowohl die Permittivität als auch die Abstimmbarkeit durch ein äußeres elektrisches Feld ab. Mit steigender Depositionstemperatur konnten die Verspannungen in der Schicht abgebaut werden, wodurch die Permittivität anstieg.

Neben den dielektrischen STO-Schichten wurde auch die supraleitende YBCO-Schicht ausführlich charakterisiert. Die bei 4,2 K bestimmte Londonsche Eindringtiefe von $\lambda_L = 190$ nm und ein Oberflächenwiderstand von 90 $\mu\Omega$ bei 10 GHz sprechen für gute Schichtqualität [6,34]. Bezüglich der Hochfrequenzeigenschaften von YBCO bewirkte die zwischen Substrat und Supraleiter aufgebrachte STO-Schicht keine signifikante Veränderung.

KAPITEL 5. ZUSAMMENFASSUNG

Anhang A

Koplanare Leiterstrukturen

In diesem Kapitel wird der Aufbau der verwendeten Koplanarleitungen beschrieben und Formeln zur Bestimmung der effektiven Permittivität angegeben. Die Modelle zur Berechnung des Kapazitätsbelages der angegebenen Geometrien beruhen auf konformen Abbildungen, mittels derer die koplanare Leiterstruktur auf einen einfachen Plattenkondensator transformiert wird. Vereinfachend wird von verlustfreiem Leitermaterial mit unendlicher Leitfähigkeit ausgegangen und ein isotropes und homogenes Dielektrikum vorausgesetzt [50].

A.1 Symmetrische Koplanarleitung

Eine symmetrische koplanare Dreibandleitung mit unendlich breiten Massestreifen, wie sie in Abbildung A.1 dargestellt ist, besteht aus einem Innerleiter der Breite S, der zusammen mit den beidseitig angeordneten Masseplatten in einer Ebene liegt. Die Masseplatten sind hierbei durch einen Spalt der Breite G vom Innenleiter getrennt und werden als unendlich ausgedehnt angenommen.

Um den Einfluß der Dicke t der Metallisierung auf die Permittivität richtig zu berücksichtigen, müssen die Mittelleiter- und Spaltbreiten geeignet korrigiert werden:

$$\Delta = \frac{1,25\,t}{\pi} \left[1 + \ln\left(\frac{4\pi S}{t}\right) \right] \tag{A.1}$$

$$S_t = S + \Delta \tag{A.2}$$

$$G_t = G - \Delta \tag{A.3}$$

Die effektive Permittivität ε_{eff}^t unter Berücksichtigung der Metallisierungsdicke t



Abbildung A.1: Symmetrische Koplanarleitung.

bestimmt sich aus den folgenden Gleichungen [53, 55]:

$$\varepsilon_{eff}^{t} = \varepsilon_{eff} - \frac{\varepsilon_{eff} - 1}{\frac{G}{0,7 t} \frac{\mathbf{K}(k_0)}{\mathbf{K}'(k_0)} + 1}$$
(A.4)

 mit

$$\varepsilon_{eff} = 1 + \frac{\varepsilon_r - 1}{2} \frac{K(k_1)}{K'(k_1)} \frac{K'(k_0)}{K(k_0)}$$
(A.5)

$$k_0 = \frac{S}{S + 2G} \tag{A.6}$$

$$k_{1} = \frac{\sinh\left(\frac{\pi S_{t}}{4h}\right)}{\sinh\left(\frac{\pi \left(S_{t} + 2G_{t}\right)}{4h}\right)} \quad \text{und} \quad (A.7)$$

$$k_t = \frac{S_t}{S_t + 2G_t} \tag{A.8}$$

K und K' = $K(\sqrt{1-k^2})$ sind vollständige elliptische Integrale erster Gattung. Für den Kapazizätsbelag C' und den Wellenwiderstand Z der Koplanarleitung ergibt die Rechnung:

$$C' = 4\varepsilon_0 \varepsilon_{eff}^t \frac{\mathbf{K}(k_t)}{\mathbf{K}'(k_t)} \tag{A.9}$$

und

$$Z = \frac{30 \ \pi\Omega}{\sqrt{\varepsilon_{eff}^t}} \cdot \frac{\mathbf{K}'(k_t)}{\mathbf{K}(k_t)} \tag{A.10}$$

Einfache und genaue (besser 3 ppm) Ausdrücke für das Verhältnis K/K' sind in der Literatur zu finden [118]:

$$\frac{\mathbf{K}(k)}{\mathbf{K}'(k)} \cong \begin{cases} \frac{1}{\pi} \ln\left(2\frac{1+\sqrt{k}}{1-\sqrt{k}}\right) & \frac{1}{\sqrt{2}} \le k \le 1 \\ & \text{für} \\ \frac{\pi}{\ln\left(2\frac{1+\sqrt[4]{4}1-k^2}{1-\sqrt[4]{1-k^2}}\right)} & 0 \le k \le \frac{1}{\sqrt{2}} \end{cases}$$
(A.11)

Für sehr kleine Werte von k ist die angegebene Näherung des Quotienten sinnvoll.

A.2 Asymmetrische Koplanarleitung



Abbildung A.2: Asymmetrische Koplanarleitung.

Die in Abbildung A.2 gezeigte koplanare Zweibandleitung mit unendlich breitem Massestreifen besteht aus einer auf Massepotenzial liegenden Metallisierungshalbebene und einem im Abstand G parallel dazu verlaufenden Streifenleiter

119

der Breite S. Beide liegen auf der selben Oberfläche eines Substrats der Permittivitätszahl ε_r und der Dicke h.

Für den Kapazitätsbelag der Wellenleitung ergibt sich unter Vernachlässigung der Schichtdicke [50]:

$$C' = C'_0 + C'_{\varepsilon} \tag{A.12}$$

 mit

$$C'_{\varepsilon} = \varepsilon_0(\varepsilon_r - 1) \frac{\mathbf{K}(k_1)}{\mathbf{K}'(k_1)}$$
(A.13)

$$C_0' = 2\varepsilon_0 \frac{\mathbf{K}'(k)}{\mathbf{K}(k)} \tag{A.14}$$

und

$$k = \sqrt{\frac{G}{S+G}} \tag{A.15}$$

$$k_1 = \sqrt{\frac{(a_2 - a_1)a_2}{(1 - a_2 - a_1)(1 - a_2)}}$$
(A.16)

$$a_i = \frac{1}{\exp(\lambda_i) + 1}$$
 mit $i = 1, 2$ (A.17)

$$\lambda_1 = \frac{\pi}{2} \cdot \frac{2S + G}{h} \tag{A.18}$$

$$\lambda_2 = \frac{\pi}{2} \cdot \frac{G}{h} \tag{A.19}$$

Hat die Schicht jedoch die endliche Dicke t, so addiert sich der Kapazitätsbelag $C'_D = \varepsilon_0 t/G$, der sich aus der Schichtdicke t und dem Abstand G zwischen Masseplatte und Streifenleiter ergibt, zum Gesamtkapazitätsbelag C'_t :

$$C'_t = C'_0 + C'_\varepsilon + C'_D \tag{A.20}$$

Hiermit resultiert für die effektive Permittivität ε_{eff} der asymmetrischen Koplanarleitung:

$$\varepsilon_{eff} = \frac{C'_0 + C'_D + C'_{\varepsilon}}{C'_0 + C'_D} = 1 + \frac{\varepsilon_r - 1}{2} \cdot \frac{\frac{\mathbf{K}(k_1)}{\mathbf{K}'(k_1)}}{\frac{\mathbf{K}'(k)}{\mathbf{K}(k)} + \frac{t}{2G}}$$
(A.21)

Der Wellenwiderstand Z der Leitung bestimmt sich zu:

$$Z = \frac{60 \ \pi\Omega}{\sqrt{\varepsilon_{eff}}} \cdot \frac{\mathbf{K}(k)}{\mathbf{K}'(k)} \tag{A.22}$$



Abbildung A.3: Schematische Darstellung eines Interdigitalkondensators mit den zur Berechnung notwendigen geometrischen Maßen.

A.3 Interdigitalkondensator

Ein Interdigitalkondensator ist eine koplanare Kondensatorstruktur von ineinandergreifenden Fingern, wie sie in Abbildung A.3 dargestellt ist, wobei jeder Finger abwechselnd mit einem der zwei Pole verbunden ist. In die Berechnung der Kapazität gehen die Anzahl der Finger N, die Fingerbreite S, die Fingerlänge l und der Abstand zwischen den Fingern G ein. Weiter müssen die Höhe des Substrats h, dessen Permittivitätszahl ε_r und die Schichtdicke der Finger t berücksichtigt werden.

Um den Einfluss der Schichtdicke t auf die Kapazität zu berücksichtigen, wird die Fingerbreite zu der Breite S_t modifiziert:

$$S_t = S + \frac{t}{\pi} \left[1 + \ln\left(\frac{4\pi S}{t}\right) \right] \tag{A.23}$$

Die Gesamtkapazität setzt sich aus drei Teilkapazitäten zusammen:

$$C = C_n + C_3 + C_{end} \tag{A.24}$$

Dies ist zum einen die Kapazität C_n , die sich aus der perodischen Anordnung der Finger ohne Berücksichtigung der Randbereiche ergibt. Diese berechnet sich nach [119] wie folgt:

$$C_n = (N-3)\varepsilon_0\varepsilon_{en}\frac{\mathbf{K}(k_{0n})}{\mathbf{K}'(k_{0n})}l$$
(A.25)

 mit

$$\varepsilon_{en} = 1 + \frac{\varepsilon_r - 1}{2} \frac{\mathbf{K}(k_{1n})}{\mathbf{K}'(k_{1n})} \frac{\mathbf{K}'(k_{0n})}{\mathbf{K}(k_{0n})}$$
(A.26)

$$k_{0n} = \frac{S_t}{S_t + G} \qquad \text{und} \tag{A.27}$$

$$k_{1n} = \frac{\sinh\left(\frac{\pi S_t}{4h}\right)}{\sinh\left(\frac{\pi (S_t + G)}{4h}\right)} \sqrt{\frac{\cosh^2\left(\frac{\pi (S_t + G)}{4h}\right) + \sinh^2\left(\frac{\pi (S_t + G)}{4h}\right)}{\cosh^2\left(\frac{\pi S_t}{4h}\right) + \sinh^2\left(\frac{\pi (S_t + G)}{4h}\right)}} \quad (A.28)$$

Des Weiteren liefern die Bereiche links und rechts der Struktur, wo die perodische Abfolge der Finger endet, den Beitrag C_3 zur Gesamtkapazität:

$$C_3 = 4\varepsilon_0\varepsilon_{e3} \frac{\mathcal{K}(k_{03})}{\mathcal{K}'(k_{03})} l \tag{A.29}$$

 mit

$$\varepsilon_{e3} = 1 + \frac{\varepsilon_r - 1}{2} \frac{\mathbf{K}(k_{13})}{\mathbf{K}'(k_{13})} \frac{\mathbf{K}'(k_{10})}{\mathbf{K}(k_{10})}$$
(A.30)

$$k_{03} = \frac{S_t}{S_t + 2G} \sqrt{\frac{1 - \left(\frac{S_t + 2G}{3S_t + 2G}\right)^2}{1 - \left(\frac{S_t}{3S_t + 2G}\right)^2}} \quad \text{und} \quad (A.31)$$

$$k_{13} = \frac{\sinh\left(\frac{\pi S_t}{4h}\right)}{\sinh\left(\frac{\pi (S_t + 2G)}{4h}\right)} \sqrt{\frac{\sinh^2\left(\frac{\pi (3S_t + 2G)}{4h}\right) - \sinh^2\left(\frac{\pi (S_t + 2G)}{4h}\right)}{\sinh^2\left(\frac{\pi (3S_t + 2G)}{4h}\right) - \sinh^2\left(\frac{\pi S_t}{4h}\right)}}$$
(A.32)

Der letzte Anteil der Gesamtkapazität ist die Kapazität C_{end} zwischen den oberen und unteren Fingerenden und den gegenüberliegenden Polen, wobei die Pole jeweils W breit sind und den Abstand G zu den Fingern haben:

$$C_{end} = 4NS_t(2+\pi)\varepsilon_0\varepsilon_{eend}\frac{\mathbf{K}(k_{0end})}{\mathbf{K}'(k_{0end})}$$
(A.33)

 mit

$$\varepsilon_{eend} = 1 + \frac{\varepsilon_r - 1}{2} \frac{\mathrm{K}(k_{1end})}{\mathrm{K}'(k_{1end})} \frac{\mathrm{K}'(k_{0end})}{\mathrm{K}(k_{0end})}$$
(A.34)

122

г

$$k_{0end} = \frac{S_t}{S_t + 4G} \sqrt{\frac{1 - \left(\frac{S_t + 4G}{S_t + 4W + 4G}\right)^2}{1 - \left(\frac{S_t}{S_t + 4W + 4G}\right)^2}} \quad \text{und} \quad (A.35)$$
$$k_{1end} = \frac{\sinh\left(\frac{\pi S_t}{8h}\right)}{\sinh\left(\frac{\pi (S_t + 2G)}{8h}\right)} \quad (A.36)$$

Als Rechenbeispiel erhält man für einen Interdigitalkondensator mit der Fingeranzahl N = 150 und den Abmessungen l = 3 mm, $S = 16 \mu$ m, $G = 4 \mu$ m, $t = 0.4 \mu$ m, h = 1 mm und W = 0.75 mm das Ergebnis:

$$C_n = 4,5124 \text{ pF} + (\varepsilon_r - 1) \cdot 2,25629 \text{ pF}$$

$$C_3 = 0,0980 \text{ pF} + (\varepsilon_r - 1) \cdot 0,04899 \text{ pF}$$

$$C_{end} = 0,3671 \text{ pF} + (\varepsilon_r - 1) \cdot 0,22297 \text{ pF}$$
(A.37)

$$C = 4,9775 \text{ pF} + (\varepsilon_r - 1) \cdot 2,52825 \text{ pF}$$

Literaturverzeichnis

- [1] M. DIDOMENICO, D. A. JOHNSON und R. H. PANTELL: Ferroelectric harmonic generator and the large-signal microwave characteristics of ferroelectric ceramic. *Journal of Applied Physics* 33 (1962), Nr. 5, S. 1697–1706
- [2] K. M. JOHNSON: Variation of dielectric constant with voltage in ferroelectric ceramics. *Journal of Applied Physics* 33 (1962), Nr. 9, S. 2826–2831
- [3] J. KRUPKA, R. G. GEYER, M. KUHN und J. H. HINKEN: Dielectric properties of single crystals of Al₂O₃, LaAlO₃, NdGaO₃, SrTiO₃ and MgO at cryogenic temperatures. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques* 42 (1994), Nr. 10, S. 1886–1889
- [4] M. A. SAIFI und L. E. CROSS: Dielectric properties of strontium titanate at low temperature. *Physical Review B* 2 (1970), Nr. 3, S. 677–684
- [5] M. K. WU, J. R. ASHBURN, C. J. TORNG, P. H. HOR, R. L. MENG, L. GAO, Z. L. HUANG, Y. Q. WANG und C. W. CHU: Superconductivity at 93 K in a new mixed-phase Y-Ba-Cu-O compound system at ambient pressure. *Physical Review Letters* 58 (1987), Nr. 9, S. 908–910
- [6] E. K. HOLLMANN, O. G. VENDIK, A. G. ZAITSEV und B. T. MELEKH: Substrates for high- T_C superconductor microwave integrated circuits. Superconductor Science and Technology 7 (1994), S. 609–622
- [7] O. G. VENDIK, E. K. HOLLMANN, A. B. KOZYREV und A. M. PRU-DAN: Ferroelectric tuning of planar and bulk microwave devices. *Journal* of Superconductivity 12 (1999), Nr. 2, S. 325–338
- [8] G. SUBRAMANYAM, F. W. VAN KEULS und F. A. MIRANDA: A K-band-frequency agile microstrip bandpass filter using a thin-film HTS/ferroelectric/dielectric multilayer configuration. *IEEE Transactions* on Microwave Theory and Techniques 48 (2000), Nr. 4, S. 525–530
- [9] H. FUKE, Y. TERASHIMA, H. KAYANO, M. YAMAZAKI, F. AIGA und R. KATOH: Tuning properties of 2 GHz superconducting microstrip-line

filters. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 11 (2001), Nr. 1, S. 434–437

- [10] B. H. MOECKLY und Y. ZHANG: Strontium titanate thin films for tunable YBa₂Cu₃O₇ microwave filters. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 11 (2001), Nr. 1, S. 450–453
- [11] B. MARCILHAC, D. G. CRÉTÉ UND Y. LEMAÎTRE, D. MANSART, J. C. MAGE, K. BOUZEHOUANE, C. DOLIN, E. JACQUET, P. WOODALL und J. P. CONTOUR: Frequency agile microwave devices based on Y-Ba-Cu-O/Sr-Ti-O//La-Al-O structure. *Presented on EUCAS 2001, Copenhagen* (2001)
- [12] A. B. KOZYREV, T. B. SAMOILOVA, A. A. GOLOVKOV, E. K. HOLL-MANN, D. A. KALINIKOS, V. E. LOGINOV, A. M. PRUDAN, O. I. SOL-DATENKOV, D. GALT, C. H. MUELLER, T. V. RIVKIN und G. A. KOEPF: Nonlinear behavior of thin film SrTiO₃ capacitors at microwave frequencies. Journal of Applied Physics 84 (1998), Nr. 6, S. 3326–3332
- [13] A. KOZYREV, A. IVANOV, O. SOLDATENKOV, E. GOL'MAN, A. PRUDAN und V. LOGINOV: Microwave phase shifter with planar capacitors using strontium titanate films. *Technical Physics Letters* 25 (1999), Nr. 10, S. 836-837
- [14] F. W. VAN KEULS, R. R. ROMANOFSKY, D. Y. BOHMAN, M. D. WIN-TERS, F. A. MIRANDA, C. H. MUELLER, R. E. TREECE, T. V. RIV-KIN und D. GALT: (YBa₂Cu₃O_{7- δ}, Au)/SrTiO₃/LaAlO₃ thin film conductor/ferroelectric coupled microstripline phase shifters for phased array applications. *Applied Physics Letters* 71 (1997), Nr. 21, S. 3075–3077
- [15] A. T. FINDIKOGLU, D. W. REAGOR, K. Ø. RASMUSSEN, A. R. BISHOP, N. GRØNBECH-JENSEN, Q. X. JIA, Y. FAN und C. KWON: Pulse shaping using nonlinear dielectric SrTiO₃. Applied Physics Letters 74 (1999), Nr. 12, S. 1770–1772
- [16] O. G. VENDIK und S. P. ZUBKO: Modeling the dielectric response of incipient ferroelectrics. Journal of Applied Physics 82 (1997), Nr. 9, S. 4475–4483
- [17] M. J. DALBERTH, R. E. STAUBER, J. C. PRICE, C. T. ROGERS und D. GALT: Improved low frequency and microwave dielectric response in strontium titanate thin films grown by pulsed laser ablation. *Applied Phy*sics Letters 72 (1998), Nr. 4, S. 507–509
- [18] E.-H. LEE, J. SOK, S.-J. PARK, J.-S. LEE, I.-H. SONG, J. KWAK, K.-R. JUNG, J.-Y. KIM, S.-Y. YOON und D. Y. JEON: Fabrication and

characterization of electrically tunable high- T_C superconducting resonators incorporating barium strontium titanate as a tuning material. Superconductor Science and Technology 12 (1999), S. 981–984

- [19] A. T. FINDIKOGLU, Q. X. JIA, I. H. CAMPBELL und X. D. WU: Electrically tunable coplanar transmission line resonators using YBa₂Cu₃O_{7-x}/SrTiO₃ bilayers. *Applied Physics Letters* 66 (1995), Nr. 26, S. 3674–3676
- [20] P. KR. PETROV, E. F. CARLSSON, P. LARSSON, M. FRIESEL und Z. G. IVANOV: Improved SrTiO₃ multilayers for microwave application: Growth and properties. *Journal of Applied Physics* 84 (1998), Nr. 6, S. 3134–3140
- [21] S. S. GEVORGIAN, E. F. CARLSSON, S. RUDNER, U. HELMERSSON, E. L. KOLLBERG, E. WIKBORG und O. G. VENDIK: HTS/Ferroelectric devices for microwave applications. *IEEE Transactions on Applied Superconducti*vity 7 (1997), Nr. 2, S. 2458–2461
- [22] J. SOK, J. S. LEE und E. H. LEE: Tunability and loss tangent of ferroelectric SrTiO₃ films in YBa₂Cu₃O_y superconducting resonator. Superconductor Science and Technology 11 (1998), S. 875–879
- [23] T. FLIESSBACH: *Elektrodynamik*. BI-Wissenschaftsverlag: Mannheim, Leipzig, Wien, Zürich, 1994
- [24] H. VOGEL: Gerthsen Physik. 20. Auflage. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, 1999
- [25] R. LENK: *Physik.* 2. Auflage. Brockhaus Verlag, Leipzig, DDR, 1989
- [26] V. L. GINZBURG: Some remarks on phase transitions of the second kind and the microscopic theory of ferroelectric materials. Soviet Physics – Solid State 2 (1960), Nr. 9, S. 1824–1834
- [27] A. F. DEVONSHIRE: Theory of barium titanate Part I. Philosophical Magazine 40 (1949), S. 1040-1063
- [28] L. D. LANDAU und E. M. LIFSCHITZ: Lehrbuch der theoretischen Physik.
 Bd. V : Statistische Physik. Akademie Verlag, Berlin, 1966
- [29] O. G. VENDIK und S. P. ZUBKO: Phenomenological description of the permittivity of strontium titanate as a function of applied electric field and temperature. *Tech. Phys.* 42 (1997), Nr. 3, S. 278–281
- [30] M. J. LANCASTER, J. POWELL und A. PORCH: Thin-film ferroelectric microwave devices. *Superconductor Science and Technology* 11 (1998), S. 1323–1334

- [31] O. G. VENDIK und S. P. ZUBKO: Ferroelectric phase transition and maximum dielectric permittivity of displacement type ferroelectrics (Ba_xSr_{1-x}TiO₃). Journal of Applied Physics 88 (2000), Nr. 9, S. 5343–5350
- [32] O. G. VENDIK und L. T. TER-MARTIROSYAN: Size effect in layered structures: ferroelectric/normal metal and ferroelectric/high- T_C superconductor. *Physics of the Solid State* 36 (1994), Nr. 11, S. 1778–1781
- [33] O. G. VENDIK: Model of the ferroelectric mode. Soviet Physics Solid State 14 (1972), Nr. 4, S. 849–856
- [34] C. ZUCCARO: Mikrowellenabsorption in Dielektrika und Hochtemperatursupraleitern für Resonatoren hoher Güte. Bd. 3631. Berichte des Forschungszentrums Jülich, 1999
- [35] R. W. H. STEVENSON: Phonons in perfect lattices and in lattices with point imperfections. Oliver und Boyd, Edinburgh, 1966
- [36] B. Y. BALAGUROV, V. G. VAKS und B. I. SHKLOVSKII: Attenuation of critical vibrations and dielectric losses in displacive-type ferroelectrics. *Soviet Physics – Solid State* 12 (1970), Nr. 4, S. 70–78
- [37] O. G. VENDIK, L. T. TER-MARTIROSYAN und S. P. ZUBKO: Microwave losses in incipient ferroelectrics as functions of the temperature and the biasing field. *Journal of Applied Physics* 84 (1998), Nr. 2, S. 993–998
- [38] G. LINK und R. HEIDINGER: Modelling of intrinsic mm-wave absorption in low loss dielectrics with complex crystal structure. 18th International Conference on Infrared and Millimeter Waves, Essex, SPIE-Proceedings 2104 (1993), S. 150–151
- [39] K. BETHE: Über das Mikrowellenverhalten nichtlinearer Dielektrika. Philips Research Reports Supplements 2 (1970), S. 1–145
- [40] W. KÄNZIG: Röntgenuntersuchungen über die Seignetteelektrizität von Bariumtitanat. *Helvetica Physica Acta* 24 (1951), S. 175–216
- [41] O. G. VENDIK und L. M. PLATONOVA: Influence of domains in a paraelectric on dielectric losses in the microwave range. Soviet Physics – Solid State 11 (1969), Nr. 4, S. 873–874
- [42] O. G. VENDIK und L. M. PLATONOVA: Effect of charged lattice imperfections on the dielectric properties of materials. Soviet Physics – Solid State 13 (1971), Nr. 6, S. 1353–1359

- [43] A. K. JONSCHER: The universal dielectric response: A review of data and their new interpretation. G. HASS (Hrsg.) und M. H. FRANCOMBE (Hrsg.): *Physics of Thin Films* Bd. 11. Academic Press, New York, London, 1980
- [44] I. BUNGET und M. POPESCU: Physics of solid dielectrics. Elsevier, Amsterdam, 1984 (Material Science Monograph, 19)
- [45] C. J. GORTER und H. CASIMIR: Zur Thermodynamik des supraleitenden Zustandes. *Physikalische Zeitschrift* 35 (1934), S. 963–966
- [46] M. J. LANCASTER: Passive microwave device applications of hightemperature superconductors. Cambridge University Press, Cambridge, 1997
- [47] R. SCHWAB: Ortsaufgelöste Untersuchung des Oberflächenwiderstandes von epitaktischen YBa₂Cu₃O_{7-δ}-Dünnschichten mit Millimeterwellen. Wissenschaftliche Berichte FZKA 6331, Forschungszentrum Karlsruhe, Dissertation, 1999
- [48] W. BUCKEL: Supraleitung: Grundlagen und Anwendungen. 5. Auflage. VCH, Weinheim, 1995
- [49] J. E. SONIER, R. F. KIEFL, J. H. BREWER, D. A. BONN, J. F. CA-ROLAN, K. H. CHOW, P. DOSANJH, W. N. HARDY, R. LIANG, W. A. MACFARLANE, P. MENDELS, G. D. MORRIS, T. M. RISEMAN und J. W. SCHNEIDER: New muon-spin-rotation measurement of the temperature dependence of the magnetic penetration depth in YBa₂Cu₃O_{6.95}. *Physical Review Letters* 72 (1994), Nr. 5, S. 744–747
- [50] R. K. HOFFMANN: Integrierte Mikrowellenschaltungen. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, Tokyo, 1983
- [51] O. ZINKE und H. BRUNSWIG; A. VLCEK (Hrsg.): Hochfrequenztechnik. Bd. 1. 5. Auflage. Springer-Verlag (Springer-Lehrbuch), Berlin, Heidelberg, 1995
- [52] S. S. GEVORGIAN: Basic characteristics of two layered substrate coplanar waveguides. *Electronics Letters* 30 (1994), Nr. 15, S. 1236–1237
- [53] B. C. WADELL: *Transmission line design handbook*. Artech House, Boston, Massachusetts, London, 1991
- [54] I. BAHL und P. BHARTIA: Microwave solid state circuit design. Wiley, New York, 1988

- [55] K. C. GUPTA, R. GARG und I. J. BAHL: *Microstrip lines and slotlines*. Artech House, Boston, Massachusetts, 1979
- [56] T. KONAKA, M. SATO, H. ASANO und S. KUBO: Relative permittivity and dielectric loss tangents of substrate materials for high- T_C superconducting film. Journal of Superconductivity 4 (1991), Nr. 4, S. 283–288
- [57] W. RAUCH, E. GORNIK, A. A. VALENZUELA, G. SÖLKNER, F. FOX, H. BEHNER, G. GIERES und P. RUSSER: Planar transmission line resonators from YBa₂Cu₃O_{7-x} thin films and epitaxial SIS multilayers. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 3 (1993), Nr. 1, S. 1110–1113
- [58] A. A. VALENZUELA: Hochfrequenzeigenschaften supraleitender YBa₂Cu₃O_{7-δ}-Dünnschichten, Technische Universität München, Dissertation, 1992
- [59] D. E. OATES, A. C. ANDERSON, D. M. SHEEN und S. M. ALI: Stripline resonator measurements of Z_S versus H_{rf} in YBa₂Cu₃O_{7-x} thin films. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques* 39 (1991), Nr. 9, S. 1522–1529
- [60] L. (RAO) MADHAVRAO, E. K. TRACK, R. E. DRAKE, R. PATT, G. K. G. HOHENWARTER und M. RADPARVAR: Microstructural, transport, and rf properties of multilayer-deposited YBCO films. *IEEE Transactions on Magnetics* 27 (1991), Nr. 2, S. 1402–1405
- [61] C. ZUCCARO, M. WINTER, N. KLEIN und K. URBAN: Microwave absorption in single crystals of lanthanum aluminate. *Journal of Applied Physics* 82 (1997), Nr. 11, S. 5695–5704
- [62] E. B. MCDANIEL und J. W. P. HSU: Nanometer scale optical studies of twin domains and defects in lanthanum aluminate crystals. *Journal of Applied Physics* 80 (1996), Nr. 2, S. 1085–1093
- [63] J. CHROSCH und E. K. H. SALJE: Temperature dependence of the domain wall width in LaAlO₃. Journal of Applied Physics 85 (1999), Nr. 2, S. 722– 727
- [64] D. T. J. HURLE, EDITOR: Handbook of crystal growth. North-Holland, Amsterdam, 1993-1995
- [65] H. M. O'BRYAN, P. K. GALLAGHER, G. W. BERKSTRESSER und C. D. BRANDLE: Thermal analysis of rare earth gallates and aluminates. *Journal of Materials Research* 5 (1990), Nr. 1, S. 183–189

- [66] X. X. XI, W. SI, A. A. SIRENKO, I. A. AKIMOV, J. R. FOX, A. M. CLARK und J. HAO: Oxide thin films for tunable microwave devices. *Journal of Electroceramics* 4 (2000), Nr. 2/3, S. 393–405
- [67] A. OKAZAKI und M. KAWAMINAMI: Lattice constant of strontium titanate at low temperatures. *Materials Research Bulletin* 8 (1973), S. 545–550
- [68] R. A. COWLEY: Temperature dependence of a transverse optic mode in strontium titanate. *Physical Review Letters* 9 (1962), Nr. 4, S. 159–161
- [69] K. A. MÜLLER und H. BURKARD: SrTiO₃: An intrinsic quantum paraelectric below 4 K. *Physical Review B* 19 (1979), Nr. 7, S. 3593–3602
- [70] B. P. GORSHUNOV, G. V. KOZLOV, S. I. KRASNOSVOBODTSEV, E. V. PECHEN, A. M. PROKHOROV, A. S. PROKHOROV, O. I. SYROTYNSKY und A. A. VOLKOV: Submillimetre properties of high- T_C superconductors. *Physica C* 153-155 (1988), S. 667–668
- [71] J. M. WORLOCK und P. A. FLEURY: Electric field dependence of opticalphonon frequencies. *Physical Review Letters* 19 (1967), Nr. 20, S. 1176–1179
- [72] I. A. AKIMOV, A. A. SIRENKO, A. M. CLARK, J.-H. HAO und X. X.
 XI: Electric-field-induced soft-mode hardening in SrTiO₃ films. *Physical Review Letters* 84 (2000), Nr. 20, S. 4625–4628
- [73] S. POELDERS, R. AUER, G. LINKER, R. SMITHEY und R. SCHNEIDER: Transition from (110) to (103)/(013) growth in $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-x}$ thin films on (110) SrTiO₃ substrates. *Physica C* 247 (1995), S. 309–318
- [74] J. D. JORGENSEN, B. W. VEAL, A. P. PAULIKAS, L. J. NOWICKI, G. W. CRABTREE, H. CLAUS und W. K. KWOK: Structural properties of oxygendeficient YBa₂Cu₃O_{7-δ}. *Physical Review B* 41 (1990), Nr. 4, S. 1863–1877
- [75] D. J. L. HONG und D. M. SMYTH: Comment on "Defect equilibria and transport in YBa₂Cu₃O_{7-x} at elevated temperatures: I, II, and III". Journal of the American Ceramic Society 74 (1991), Nr. 7, S. 1751–1752
- [76] V. BREIT, P. SCHWEISS, R. HAUFF, H. WÜHL, H. CLAUS, H. RIET-SCHEL, A. ERB und G. MÜLLER-VOGT: Evidence for chain superconductivity in near-stoichiometric YBa₂Cu₃O_x single crystals. *Physical Review B Rapid Communications* 52 (1995), Nr. 22, S. R15 727 R15 730
- [77] CH. KITTEL: *Einführung in die Festkörperphysik*. 7. Auflage. Oldenbourg Verlag, München, Wien, 1988
- [78] J. GEERK, G. LINKER und O. MEYER: Epitaxial growth and properties of YBaCuO thin films. *Materials Science Reports* 4 (1989), S. 193–260

- [79] K. BOUZEHOUANE, P. WOODALL, B. MARCILHAC, A. N. KHODAN, D. CRÉTÉ, E. JACQUET, J. C. MAGE und J. P. CONTOUR: Enhanced dielectric properties of SrTiO₃ epitaxial thin film for tunable microwave devices. *Applied Physics Letters* 80 (2002), Nr. 1, S. 109–111
- [80] O. N. TUFTE und P. W. CHAPMAN: Electron mobility in semiconducting strontium titanate. *Physical Review* 155 (1967), Nr. 3, S. 796–802
- [81] H. P. R. FREDERIKSE, W. R. THURBER und W. R. HOSLER: Electronic transport in strontium titanate. *Physical Review* 134 (1964), Nr. 2A, S. A442–A445
- [82] M. THUMM, W. WIESBECK und S. KERN: Hochfrequenzmeßtechnik. 2. Auflage. Teubner, Stuttgart, 1998
- [83] G. F. ENGEN und C. A. HOER: "Thru-Reflect-Line": An improved technique for calibrating the dual six-port automatic network analyzer. *IEEE Transactions Microwave Theory and Techniques* MTT-27 (1979), Nr. 12, S. 987–993
- [84] F. ZIMMERMANN, M. VOIGTS, C. WEIL, R. JAKOBY, P. WANG, W. ME-NESKLOU und E. IVERS-TIFFÉE: Investigation of barium strontium titanate thick films for tunable phase shifters. *Journal of the European Ceramic Society* 21 (2001), S. 2019–2023
- [85] G. BENZ: Supraleitende Bausteine mit Flußgräben. Dissertation Universität Karlsruhe (TH). Fortschritt-Berichte VDI Reihe 9 Nr. 321. VDI Verlag, Düsseldorf, 2000
- [86] W. T. WEEKS, L. L. WU, M. F. MCALLISTER und A. SINGH: Resistive and inductive skin effect in rectangular conductors. *IBM Journal of Research and Development* 23 (1979), Nr. 6, S. 652–660
- [87] A. PORCH, M. J. LANCASTER und R. G. HUMPHREYS: The coplanar resonator technique for determining the surface impedance of YBa₂Cu₃O_{7-δ} thin films. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Technique* 43 (1995), Nr. 2, S. 306-314
- [88] D. M. SHEEN, S. M. ALI, D. E. OATES, R. S. WITHERS und J. A. KONG: Current distribution, resistance, and inductance for superconducting strip transmission lines. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 1 (1991), Nr. 2, S. 108–115
- [89] S. WUENSCH, G. BENZ, E. CROCOLL, M. FITSILIS, M. NEUHAUS, T. A. SCHERER und W. JUTZI: Normal and superconductor coplanar waveguides with 100 nm line width. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 11 (2001), Nr. 1, S. 115–118
- [90] LakeShore Cryotronics, Inc. Westerville, USA: Temperature Measurement and Control
- [91] Hewlett-Packard Company. Santa Rosa, USA: HP8720C Network Analyzer Operating Manual. 1991
- [92] A. G. ZAITSEV, R. SCHNEIDER, R. AIDAM, G. LINKER, F. RATZEL, J. REINER, R. SMITHEY und J. GEERK: Effect of a Au contact layer on the microwave performance of YBa₂Cu₃O_{7-x} thin films. *IEEE Transactions on* Applied Superconductivity 11 (2001), Nr. 1, S. 3423–3426
- [93] W. SCHMITT: Transport- und Hochfrequenz-Verhalten von supraleitenden c-Achsen orientierten (SE)Ba₂Cu₃O_{7-δ}-Filmen. Wissenschaftliche Berichte FZKA 6496, Forschungszentrum Karlsruhe, Dissertation, 2000
- [94] N. KLEIN, N. TELLMANN, H. SCHULZ und K. URBAN: Evidence of twogap s-wave superconductivity in YBa₂Cu₃O_{7-x} from microwave surface impedance measurements. *Physical Review Letters* 71 (1993), Nr. 20, S. 3355–3358
- [95] S. HENSEN, G. MÜLLER, C. T. RIECK und K. SCHARNBERG: In-plane surface impedance of epitaxial YBa₂Cu₃O_{7- δ} films: Comparison of experimental data taken at 87 GHz with d- and s-wave models of superconductivity. *Physical Review B* 56 (1997), Nr. 10, S. 6237–6264
- [96] B. AVENHAUS, A. PORCH, M. J. LANCASTER, S. HENSEN, M. LEN-KENS, S. ORBACH-WERBIG, G. MÜLLER, U. DÄHNE, N. TELLMANN, N. KLEIN, C. DUBOURDIEU, J. P. SENATEUR, O. THOMAS, H. KARL, B. STRITZKER, J. A. EDWARDS und R. HUMPHREYS: Microwave properties of YBCO thin films. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 5 (1995), Nr. 2, S. 1737–1740
- [97] S. GEVORGIAN, E. CARLSSON und E. OLSSON: Effects of degraded edges in strips of high-temperature superconducting films at microwave frequencies. Applied Physics Letters 67 (1995), Nr. 11, S. 1615–1617
- [98] D. FUCHS, M. ADAM, P. SCHWEISS, S. GERHOLD, S. SCHUPPLER, R. SCHNEIDER und B. OBST: Structural properties of slightly offstoichiometric homoepitaxial $SrTiO_{3-\delta}$ thin films. Journal of Applied Physics 88 (2000), Nr. 4, S. 1844–1850
- [99] L. RYEN, E. OLLSON, L. D. MADSEN, X. WANG, C. N. L. EDVARDSSON, S. N. JACOBSEN, U. HELMERSSON, S. RUDNER und L.-D. WERNLUND: Microstructure and microwave dielectric properties of epitaxial SrTiO₃ films on LaAlO₃ substrates. *Journal of Applied Physics* 83 (1998), Nr. 9, S. 4884– 4890

- [100] Y. A. BOIKOV, Z. G. IVANOV, A. N. KISELEV, E. OLSSON und T. CLAE-SON: Epitaxial YBa₂Cu₃O_{7-δ}/Ba_xSr_{1-x}TiO₃ heterostructures on silicon-onsapphire for tunable microwave components. *Journal of Applied Physics* 78 (1995), Nr. 7, S. 4591–4595
- [101] J. F. SCOTT: Ferroelectric memories. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 2000 (Springer series in advanced microelectronics, Bd. 3)
- [102] D. FUCHS, M. ADAM und R. SCHNEIDER: Dielectric properties of Tideficient $SrTi_xO_{3-\delta}$ thin films. Journal de Physique IV - Colloques 11 (2001), S. Pr11-71 - Pr11-76
- [103] N. F. MOTT und E. A. DAVIS: Electronic process in non-crystalline materials. 2nd ed. Clarendon Press, Oxford, New York, 1979 (International series of monographs on physics)
- [104] B. I. SHKLOVSKII und A. L. EFROS: Electronic properties of doped semiconductors. Springer, Berlin, 1984 (Springer series in solid-state sciences, Bd. 45)
- [105] O. MORÁN CAMPAÑA: Leitfähigkeitsmechanismen in dünnen SrTiO₃-Barrieren und ihr Einfluß auf die Funktion supraleitender Quasiteilchen-Injektionsbauelemente. Physikalisches Institut, Universität Karlsruhe (TH), Dissertation, 2002
- [106] N. C. HALDER und C. N. J. WAGNER: Separation of particle size and lattice strain in integral breadth measurements. Acta Crystallogr. 20 (1966), S. 312–313
- [107] X. D. ZHU, W. SI und X. X. XI: Oxidation kinetics in SrTiO₃ homoepitaxy on SrTiO₃(001). Applied Physics Letters 78 (2001), Nr. 4, S. 460–462
- [108] A. G. ZAITSEV, R. SCHNEIDER, J. GEERK, G. LINKER, F. RATZEL und R. SMITHEY: Effective microwave surface resistance of gold-contacted YBa₂Cu₃O_{7-x} thin films. Applied Physics Letters 75 (1999), Nr. 26, S. 4165-4167
- [109] H.-CH. LI, W. SI, A. D. WEST und X. X. XI: Thickness dependence of dielectric loss in SrTiO₃ thin films. *Applied Physics Letters* 73 (1998), Nr. 4, S. 464–466
- [110] M. ITOH, R. WANG, Y. INAGUMA, T. YAMAGUCHI, Y.-J. SHAN und T. NAKAMURA: Ferroelectricity induced by oxygen isotope exchange in strontium titanate perovskite. *Physical Review Letters* 82 (1999), Nr. 17, S. 3540-3543

- [111] R. D. SHANNON: Revised effective ionic radii and systematic studies of interatomic distances in halides and chalcogenides. Acta Crystallogr. Sect. A 32 (1976), S. 751–767
- [112] I.-S. KIM, M. ITHO und T. NAKAMURA: Electrical conductivity and metal-nonmetal transition in the perovskite-related layered system $Ca_{n+1}Ti_nO_{3n+1-\delta}$ (n=2, 3, and ∞). Journal of Solid State Chemistry 101 (1992), S. 77–86
- [113] A. GRZECHNIK, G. H. WOLF und P. F. MCMILLAN: Raman scattering study of SrTiO₃ at high pressure. *Journal of Raman Spectroscopy* 28 (1997), Nr. 11, S. 885–889
- [114] P. WOODALL, K. BOUZEHOUANE, B. MARCILHAC, D. G. CRÉTÉ, E. JACQUET, J. C. MAGE und J. P. CONTOUR: Epitaxial YBa₂Cu₃O_{7-δ}/SrTiO₃ heterostructures grown on LaAlO₃ substrate by pulsed laser deposition for voltage tunable microwave filter applications. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity* 11 (2001), Nr. 1, S. 1150–1153
- [115] R. OTT und R. WÖRDENWEBER: Alternative designs of tunable ferroelectric capacities of microwave applications. *Presented on EUCAS 2001*, *Copenhagen* (2001)
- [116] R. OTT und R. WÖRDENWEBER: Improved designs of tunable ferroelectric capacities for microwave applications. *Applied Physics Letters* 80 (2002), Nr. 12, S. 2150–2152
- [117] D. FUCHS, M. ADAM, P. SCHWEISS und R. SCHNEIDER: Dielectric tunablility of coherently strained LaAlO₃/SrTiO₃ superlattices. *Journal of Applied Physics* 91 (2002), Nr. 8, S. 5288–5295
- [118] W. HILBERG: From approximations to exact relations for characteristic impedances. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques* MTT-17 (1969), Nr. 5, S. 259–265
- [119] S. S. GEVORGIAN, T. M. MARTINSSON, P. L. J. LINNÉR und E. L. KOLLBERG: CAD models for multilayered substrate interdigital capacitors. *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques* 44 (1996), Nr. 6, S. 896–904