



TECHNISCHE  
UNIVERSITÄT  
WIEN  
Vienna University of Technology

---

Unterschrift des Betreuers

# Diplomarbeit

## Einfluss der Korngröße auf die kritischen Stromdichten in $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ Polykristallen

Ausgeführt am Atominstitut  
der Technischen Universität Wien

unter der Anleitung von  
**Priv.Doz. Dipl.Ing. Dr. Michael Eisterer**  
und **Johannes Hecher MSc**

durch

**Thomas Cervinka**

Argentinierstraße 20/2/2  
1040 Wien

---

Datum

---

Unterschrift des Studenten



# Danksagung

Ich möchte mich zuerst bei meinem Betreuer Dr. Michael Eisterer dafür bedanken, mir die Möglichkeit der Durchführung dieser Arbeit gegeben zu haben sowie für seine Hingabe und Aufopferung im Laufe der Korrekturen der schriftlichen Arbeit.

Darüber hinaus war die Unterstützung durch Johannes Hecher MSc bei physikalischen Problemstellungen, als auch bei den ersten schriftlichen Korrekturen der Arbeit von großem Wert. Bei der Lösung von Problemen mit dem Messequipment konnte ich mich stets auf Hilfestellungen aller Mitglieder der Tieftemperaturgruppe verlassen. Auch die fruchtbaren Gespräche mit Teilnehmern von Kaffeepausen gaben mir immer wieder neue Gedankenanstöße.

Meiner Freundin Bella gebührt besonderer Dank, da sie mich immer wieder aufs Neue aufgebaut und motiviert hat. Auch meinen Eltern will ich für ihre soziale und finanzielle Unterstützung danken.



# Einleitung und Motivation

Mit der erstmaligen Entdeckung supraleitender Eigenschaften von eisenbasierten Materialien im Jahr 2006, gelang der Forschungsgruppe um Yoichi Kamihara ein Durchbruch in der Festkörperphysik. Als 2008 erneut Materialien entdeckt wurden, die trotz der stark magnetischen Eigenschaften von elementarem Eisen eine deutlich höhere kritische Temperatur aufwiesen als konventionelle Supraleiter, kam es zu einer ähnlichen Euphorie wie es 1987 bei der Entdeckung der Kuprate der Fall war. Im Laufe der folgenden Monate und Jahre wurde eine Vielzahl an eisenhaltigen Verbindungen nachgewiesen, die supraleitende Eigenschaften zeigen.

Diese Vielzahl an verschiedenen Materialien lässt sich einigen wenigen Familien von Kristallstrukturen unterordnen. Jene Vertreter der Eisensupraleiter, die in dieser Arbeit untersucht werden, gehören zur sogenannten  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  oder kurz Ba122 Familie. Im Detail handelt es sich bei den vorliegenden Proben um polykristalline Verbindungen, die unter den Aspekten Dotierung und Korngröße analysiert werden.

Ziel dieser Arbeit ist es, unter dem speziellen Augenmerk von kritischen Stromdichten einen Überblick der magnetischen Eigenschaften dieser Materialien aufzustellen. Die Messdaten wurden mit magnetometrischen Messmethoden mithilfe eines VSMs und eines SQUID Magnetometers gesammelt. Aufgrund der polykristallinen Struktur treten Ströme in zwei unterschiedlichen Bereichen auf. Dieses Phänomen von über die ganze Probe fließenden Strömen und davon separat auftretenden Strömen innerhalb der einzelnen Körner stellt das Zentrum der Untersuchung dar. Als theoretische Basis dieser Arbeit dient das sogenannte *bean's critical state model* oder Beans Modell des kritischen Zustandes.

Im Zentrum stehen verschiedene Methoden und Ansätze um diese kritischen Ströme abzuschätzen. Dabei wird besonderes Augenmerk auf die Untersuchung des remanenten magnetischen Moments gelegt, da diese Messmethode es erlaubt, die jeweiligen Beiträge zum remanenten magnetischen Moment von Korn- und Probenstrom separat voneinander zu beobachten. Zusätzlich wird die Glaubwürdigkeit dieser Abschätzungen mit separat durchgeführten Hall-Messungen der entsprechend magnetisierten Proben überprüft.



# Abstract

With the first discovery of iron-based superconductors in 2006, the team around Yoichi Kamihara had a breakthrough in solid state physics. In 2008, when the iron-based materials have been produced with a significantly higher critical temperature than conventional superconductors despite the strong magnetic properties of elemental iron, there was a similar euphoria as for the discovery of the cuprates in 1987. Over the months and years following 2008, a variety of iron containing compounds have been found which exhibit superconducting properties.

This variety of different materials can be subordinated to a few families of crystal structures. Those representatives of the iron superconductors which are investigated in this thesis belong to the so-called  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  or more commonly known as Ba122 family. In detail, the present samples are polycrystalline compounds, which are analyzed from the viewpoint of doping and grain size.

The aim of this work is to establish an overview of the behaviour of critical current densities, derived from the magnetic properties of these materials. The magnetization data was collected using a VSM and a SQUID magnetometer. Due to the polycrystalline nature of the samples, two different critical currents have to be considered. One is flowing inside each grain and the other is the global critical current flowing over the whole sample. Determining the properties of these two currents is the center of the investigation. The theoretical basis is the well-known Beans critical state model.

Furthermore, an analysis of the magnetic behavior of the samples in an applied magnetic field using different methods for estimating critical current densities and grain sizes was done. Particular attention has been paid to the study of the remanent magnetic moment, since this measurement method makes it possible to observe the respective contributions of grain and sample current to the remanent magnetic moment separately. In addition, the reliability of the assessments was checked by scanning Hall probe measurements.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Theoretische Grundlagen</b>	<b>1</b>
1.1	Grundlagen der Supraleitung . . . . .	1
1.2	Beans Modell des kritischen Zustandes . . . . .	11
1.2.1	Eigenschaften von polykristallinen Supraleitern . . . . .	13
1.3	Geometrie und Entmagnetisierungsfaktor . . . . .	15
1.4	Eisensupraleiter . . . . .	16
<b>2</b>	<b>Experimenteller Aufbau und Proben</b>	<b>19</b>
2.1	Vibrating Sample Magnetometer . . . . .	19
2.2	SQUID Magnetometer . . . . .	21
2.3	Experimentelle Details . . . . .	22
2.3.1	Bestimmung der kritischen Temperatur . . . . .	27
2.3.2	Bestimmung kritischer Stromdichten . . . . .	27
2.4	Grundlegende Probeneigenschaften . . . . .	30
2.4.1	Kritische Temperatur . . . . .	30
2.4.2	Bestimmung der Korngrößen . . . . .	31
2.4.3	Vermessung der Korngeometrie per Polarisationsmikroskop . . . . .	32
2.4.4	Korngrößenbestimmung mithilfe von Magnetisierungskurven . . . . .	34
<b>3</b>	<b>Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>37</b>
3.1	Probe K-3 . . . . .	37
3.1.1	Magnetisierungsmessungen im VSM . . . . .	37
3.1.2	Messungen des magnetischen Moments im SQUID . . . . .	39
3.1.3	Einfluss des Selbstfeldes der Körner auf das magnetische Moment . . . . .	45
3.1.4	Untersuchung per Hallscanner . . . . .	47
3.1.5	Remanente Magnetisierung . . . . .	50
3.2	Probe K-15 . . . . .	57
3.2.1	Magnetisierungsmessungen des magnetischen Moments . . . . .	58
3.2.2	Messungen des magnetischen Moments im SQUID . . . . .	58
3.2.3	Remanente Magnetisierung . . . . .	61
3.3	Zusammenfassung der Kalium dotierten Proben . . . . .	66

---

3.4	Probe Co-20 . . . . .	69
3.4.1	Magnetisierungsmessungen im VSM . . . . .	70
3.4.2	Messungen des magnetischen Moments im SQUID . . . . .	71
3.4.3	Remanente Magnetisierung . . . . .	73
3.5	Probe Co-5 . . . . .	75
3.5.1	Magnetisierungsmessungen im VSM . . . . .	75
3.5.2	Messungen des magnetischen Moments im SQUID . . . . .	77
3.5.3	Remanente Magnetisierung . . . . .	78
3.6	Probe Co-1 . . . . .	82
3.6.1	Magnetisierungsmessungen im VSM . . . . .	82
3.6.2	Messungen des magnetischen Moments im SQUID . . . . .	82
3.6.3	Remanente Magnetisierung . . . . .	86
<b>4</b>	<b>Zusammenfassung und Schlussfolgerung</b>	<b>89</b>

# Abbildungsverzeichnis

1.1	Magnetisierungsverlauf eines idealen Typ-I Supraleiters (a). Phasendiagramm der supraleitenden Phase (b). . . . .	2
1.2	Gegenüberstellung der Magnetisierungsverhalten von Typ-I und Typ-II Supraleitern (a). Schematische Darstellung der Lorentzkraft $F_L$ auf die supraleitenden Ladungsträger im idealen Typ-II Supraleiter (b). . . . .	6
1.3	Schematische Darstellung von Flusslinien und Verankerungszentren. . . . .	7
1.4	Schematische Darstellung einer irreversiblen Magnetisierungskurve eines Typ-II Supraleiters. . . . .	9
1.5	Schematische Darstellung von Feldprofilen im Supraleiter nach dem Bean Modells. . . . .	11
1.6	Schematische Darstellung der Längenskalen von $j_c^P$ und $j_c^K$ . . . . .	13
1.7	Schematische Darstellung von Kristallgittern verschiedener Eisensupraleiter. . . . .	17
2.1	Bilder der experimentellen Aufbauten. . . . .	20
2.2	Schematische Darstellung der experimentellen Methoden (a) + (b) und der Feldorientierungen der Flusslinien im Supraleiter (c). . . . .	23
2.3	Darstellung der Auswertung der Messdaten der remanenten magnetischen Momente. . . . .	26
2.4	Schematische Darstellung eines Feldprofils für die Herleitung eines Ausdrucks für $j_c$ . . . . .	29
2.5	$\chi$ -Verlauf aller Proben bei variabler Temperatur. . . . .	31
2.6	Schematische Darstellung von Schnittebenen in einem idealisierten Korn. . . . .	34
2.7	Oberflächenaufnahmen der Kalium dotierten Proben. . . . .	35
3.1	Messung des magnetischen Moments der Probe K-3 mittels VSM. . . . .	38
3.2	Messungen des magnetischen Moments von Probe K-3 im ansteigenden Feld mittels SQUID Magnetometer. . . . .	40
3.3	Messungen des magnetischen Moments von Probe K-3 im abfallenden Feld mittels SQUID Magnetometer. . . . .	44
3.4	Schematische Darstellung des Selbstfeldes der Körner. . . . .	46
3.5	Hallmessungen der Probe K-3 bei $\mu_0 H_{bg} = 0$ T. . . . .	48

3.6	Schematische Darstellung von Kornfeldprofilen im variablen Feld. . . . .	49
3.7	Hallmessungen der Probe K-3 bei $\mu_0 H_{bg} = 0$ T. Das äußere Feld wurde danach so variiert, damit zu Messbeginn bereits ein vollständiges Feldprofil in der Probe besteht. . . . .	50
3.8	Messungen des remanenten magnetischen Moments der Probe K-3 bei $\mu_0 H_{bg} > 0$ sowie schematischen Darstellungen von $j_c^P$ und $j_c^K$ . . . . .	52
3.9	Messungen des remanenten magnetischen Moments der Probe K-3 bei $\mu_0 H_{bg} \leq 0$ sowie schematischen Darstellungen von $j_c^P$ und $j_c^K$ . . . . .	53
3.10	Einfluss der Temperatur auf das remanente magnetische Moment der Probe K-3. . . . .	55
3.11	Messung des magnetischen Moments der Probe K-15 mittels VSM. . . . .	57
3.12	Messungen des magnetischen Moments von Probe K-15 im ansteigenden Feld mittels SQUID Magnetometer. . . . .	59
3.13	Messungen des magnetischen Moments von Probe K-15 im abfallenden Feld mittels SQUID Magnetometer. . . . .	60
3.14	Remanentes magnetisches Moment der Probe K-15 bei 5 K und $\mu_0 H_{bg} \leq 0$ T sowie schematischen Darstellungen von $j_c^P$ und $j_c^K$ . . . . .	63
3.15	Remanentes magnetisches Moment der Probe K-15 bei 5 K und $\mu_0 H_{bg} > 0$ T sowie schematischen Darstellungen von $j_c^P$ und $j_c^K$ . . . . .	64
3.16	Einfluss der Temperatur auf das remanente magnetische Moment der Probe K-15. . . . .	65
3.17	Schematische Darstellung von $j_c^P$ und $j_c^K$ . . . . .	66
3.18	Vergleich der Proben K-3 und K-15 im abfallenden Feld. . . . .	67
3.19	Messung des magnetischen Moments der Probe Co-20 mittels VSM. . . . .	70
3.20	Magnetisierungsmessung der Probe Co-20 im ansteigenden Feld. . . . .	72
3.21	Magnetisierungsmessung der Probe Co-20 im abfallenden Feld. . . . .	72
3.22	Remanentes magnetisches Moment der Probe Co-20 bei 5 K . . . . .	74
3.23	Messung des magnetischen Moments der Probe Co-5 mittels VSM. . . . .	76
3.24	Magnetisierungsmessung der Probe Co-5 im ansteigenden Feld. . . . .	77
3.25	Magnetisierungsmessung der Probe Co-5 im abfallenden Feld. . . . .	78
3.26	Remanentes magnetisches Moment der Probe Co-5 bei 4.5 K . . . . .	79
3.27	Remanentes magnetisches Moment der Probe Co-5 bei 10 K . . . . .	81
3.28	Messung des magnetischen Moments der Probe Co-1 mittels VSM. . . . .	83
3.29	Magnetisierungsmessung der Probe Co-1 im abfallenden Feld. . . . .	84
3.30	Remanentes magnetisches Moment der Probe Co-1 bei 5 K . . . . .	85
3.31	Remanentes magnetisches Moment der Probe Co-1 bei 10 K . . . . .	87

# Tabellenverzeichnis

2.1	Zusammenfassung der kritischen Temperaturen, Abmessungen und Entmagnetisierungsfaktoren aller Proben. . . . .	32
3.1	Verhalten der Maxima des magnetischen Moments der Probe K-3 bei variabler Temperatur. . . . .	38
3.2	Zusammenfassung der $\mu_0 H^*$ und $\mu_0 H^{*,K_{ges}}$ der Probe K-3 bei verschiedenen $\mu_0 H_{bg}$ . . . . .	42
3.3	Messparameter für die Bestimmung des remanenten magnetischen Moments der Probe K-3. . . . .	51
3.4	Zusammenfassung der $\mu_0 H^*$ und $\mu_0 H^{*,K_{ges}}$ der Probe K-15 bei verschiedenen $\mu_0 H_{bg}$ . . . . .	61
3.5	Messparameter für die Bestimmung des remanenten magnetischen Moments der Probe K-15. . . . .	62
3.6	Zusammenfassung der kritischen Ströme der Kalium dotierten Proben. . .	68
3.7	Zusammenfassung der Korngröße der Kobalt dotierten Proben. . . . .	69
3.8	Messparameter für die Bestimmung des remanenten magnetischen Moments der Probe Co-20. . . . .	73
3.9	Messparameter für die Bestimmung des remanenten magnetischen Moments der Probe Co-5. . . . .	79
3.10	Messparameter für die Bestimmung des remanenten magnetischen Moments der Probe Co-1. . . . .	85
3.11	Abschätzungen kritischer Ströme anhand von Magnetisierungsmessungen aller Proben. . . . .	87
3.12	Abschätzungen kritischer Ströme anhand der Messungen der remanenten magnetischen Momente aller Proben. . . . .	88



# Kapitel 1

## Theoretische Grundlagen

Das Phänomen der Supraleitung ist ein äußerst attraktives Forschungsgebiet, da es eine Vielzahl an praktischen Anwendungen verspricht. Sei es in der Medizin, wo supraleitende Materialien für Magnetresonanztomographen verwendet werden oder in der Forschung, wo man beispielsweise an der Realisierung der künstlichen Kernfusion mittels Magneteinschlussverfahren arbeitet. In beiden Fällen werden hohe Magnetfelder mit relativ geringem Aufwand erzeugt. Die Möglichkeit Strom verlustlos zu transportieren, ist jedoch mit einer kostspieligen Kühltechnik verbunden, da die erforderlichen tiefen Temperaturen nur mit kryogenen Flüssigkeiten wie Stickstoff oder Helium erreicht werden können. Umso wichtiger ist die Entwicklung von supraleitenden Materialien, die in der Lage sind bei höheren Temperaturen zu operieren. Das Verständnis von supraleitenden Mechanismen bereits gefundener Materialien stellt einen wichtigen Punkt für die Modellierung neuer Materialien dar. In den folgenden Unterabschnitten wird auf die theoretische Beschreibung der vorliegenden Materialien eingegangen sowie auf die für diese Arbeit relevanten Aspekte.

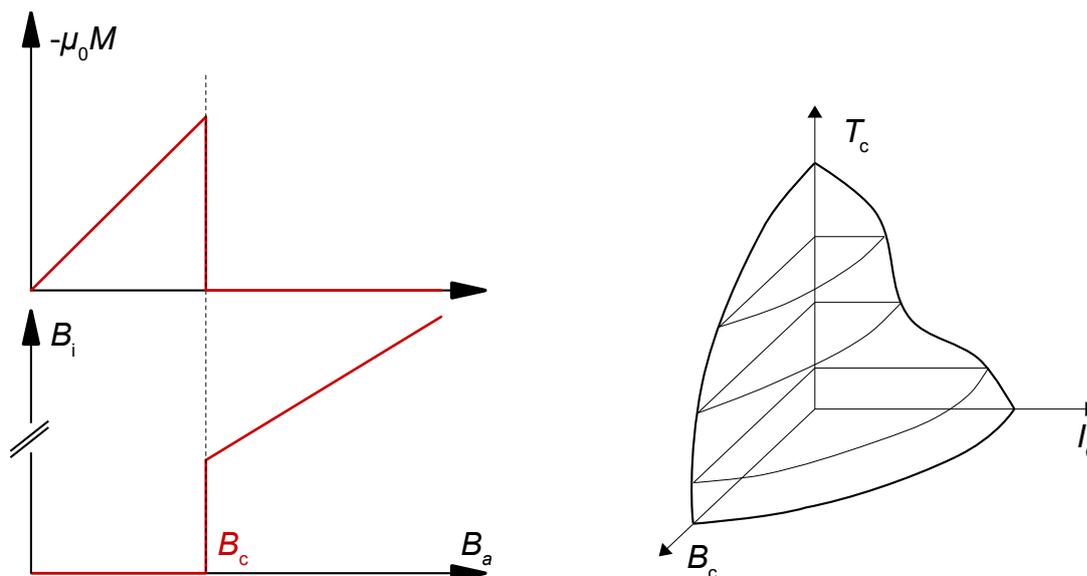
### 1.1 Grundlagen der Supraleitung

Unter Supraleitung versteht man im Allgemeinen den widerstandslosen Stromtransport. Obwohl dieser einen sehr wesentlichen Aspekt des Phänomens Supraleitung darstellt, ist für die thermodynamische Beschreibung der supraleitenden Phase vor allem die vollständige Verdrängung jeglichen Magnetfeldes aus dem Inneren von supraleitenden Materialien relevant. Die erste Beschreibung dieses Effekts geht auf die Wissenschaftler Walther Meißner und Robert Ochsenfeld zurück<sup>1</sup>. Wird ein Supraleiter einem äußeren Magnetfeld  $H_{\text{ap}}$ <sup>2</sup> ausgesetzt, beginnen Abschirmströme in einer oberflächennahen Schicht zu fließen. Diese Kreisströme generieren ihrerseits ein Magnetfeld, welches  $H_{\text{ap}}$  entgegen gerichtet ist,

---

<sup>1</sup>Für nähere Details siehe z.B. [13].

<sup>2</sup>Im Folgenden wird auf den Pfeil über vektoriellen Größen der Übersicht halber verzichtet. Sollte es für das Verständnis notwendig sein, werden diese jedoch vereinzelt verwendet.



(a) Der obere Graph zeigt die linear mit dem äußeren Feld ansteigende Magnetisierung  $M$  des Supraleiters, welche diesem Verlauf bis zu einem kritischen Feld  $B_c$  folgt. Danach ist die Magnetisierung gleich null. Der untere zeigt die Flussdichte innerhalb des Supraleiters. Erst ab  $B_a > B_c$  wird der Supraleiter von Fluss durchdrungen.

(b) Schematische Darstellung der Phasenfläche des supraleitenden Zustandes. Sie ist durch die kritische Temperatur, das kritische Feld sowie durch einen kritischen Strom begrenzt.

Abbildung 1.1

sodass die magnetische Flussdichte  $B$  innerhalb der Probe gleich null ist:

$$B = \mu_0(H_{\text{ap}} + M) = 0 \rightarrow M = -H_{\text{ap}}. \quad (1.1)$$

$M$  steht für die Magnetisierung der Probe und  $\mu_0$  für die magnetische Feldkonstante mit dem Wert

$$\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ NA}^{-2}. \quad (1.2)$$

Nach Formel (1.1) lässt sich in Kombination mit dem Zusammenhang zwischen Magnetfeld und der Magnetisierung

$$M = \chi \cdot H_{\text{ap}}, \quad (1.3)$$

für die magnetische Suszeptibilität  $\chi$  ein Wert von -1 ablesen. Die magnetische Suszeptibilität ist eine Proportionalitätskonstante, welche das Magnetisierungsverhalten eines gegebenen Materials im äußeren Magnetfeld beschreibt. Im vorliegenden Fall von  $\chi = -1$  handelt es sich bei supraleitenden Materialien um ideale Diamagneten. Eine schematische Darstellung dieses Magnetisierungsverhalten ist in Abbildung 1.1(a) zu sehen. Der lineare Zusammenhang zwischen Magnetisierung und äußerem Feld ist nur dann gerechtfertigt, wenn keine Anisotropien auftreten. In diesem Fall müsste die magnetische Suszeptibilität

als Tensor angeschrieben und über die Ableitung  $\frac{\partial M}{\partial H}$  definiert werden.

Die supraleitende Phase ist durch drei Parameter beschränkt. Dazu gehören die kritische Temperatur  $T_c$ , das kritische Feld  $H_c$  und der kritische Strom  $I_c$ . Mithilfe dieser drei Größen lässt sich ein dreidimensionaler Phasenraum aufspannen. Dieses Verhalten ist in Abbildung 1.1(b) dargestellt. Wird beispielsweise die Temperatur erhöht, sinken die Werte von  $H_c$  und  $I_c$ . Wird eine dieser Größen überschritten, bricht die supraleitende Phase zusammen und das Material weist einen endlichen ohmschen Widerstand auf. Da ein fließender Strom ein Magnetfeld erzeugt, sind die beiden Größen  $I_c$  und  $H_c$  über die Silsbee-Regel eng miteinander verknüpft. Für einen zylinderförmigen Supraleiter mit Radius  $R$  im axialen angelegten Magnetfeld lautet sie

$$H_c = \frac{I_c}{2R\pi}. \quad (1.4)$$

Eine der ersten Theorien zur Beschreibung der Supraleitung wurde 1935 von den Brüdern Fritz und Heinz London aufgestellt. Die sogenannte London Theorie ist dazu in der Lage, die Feldverdrängung aus dem Inneren eines Supraleiters zu beschreiben. Im Zuge dieser werden die vier Maxwell Gleichungen für das elektromagnetische Feld um zwei Gleichungen erweitert, die als erste und zweite Londongleichung bezeichnet werden<sup>3</sup>. Diese zwei wesentlichen Gleichungen der Theorie lauten:

$$\frac{\partial \vec{j}_s}{\partial t} = \frac{n_s e^2}{m} \vec{E} = \frac{1}{\lambda_L^2} \vec{E} \quad (1.5)$$

$$\nabla \times \vec{j}_s = -\frac{n_s e^2}{m} \vec{B} = -\frac{1}{\lambda_L^2} \vec{B}, \quad (1.6)$$

wobei

$$\lambda_L = \sqrt{\frac{m}{\mu_0 n_s e^2}} \quad (1.7)$$

gilt. In diesen Gleichungen stehen  $\vec{j}_s$  für die supraleitende Stromdichte,  $n_s$  für die supraleitende Ladungsdichte,  $e$  für die Ladung der Teilchen,  $m$  für deren Masse und  $\vec{E}$  bzw.  $\vec{B}$  für das elektrische bzw. magnetische Feld.  $\lambda_L$  steht für die sogenannte London'sche Eindringtiefe und beschreibt den Abfall eines äußeren magnetischen Feldes in einem Supraleiter. Sie liegt etwa im Bereich von 10 bis 400 nm. In dieser Schicht fließen jene Abschirmströme, die für das Verdrängen eines äußeren Feldes aus dem Supraleiter verantwortlich sind. Für ein homogenes Magnetfeld  $B_0$ , das in  $z$ -Richtung am Supraleiter anliegt wird der Abfall von  $B$  durch

$$B_z(x) = B_0 \cdot e^{-\frac{x}{\lambda_L}} \quad (1.8)$$

beschrieben (supraleitender Bereich für  $x \geq 0$ ). Es ist anzumerken, dass der theoretische Wert  $\lambda_L$  gegenüber experimentellen Ergebnissen zu geringe Werte aufweist. Das liegt

<sup>3</sup>Für nähere Details und explizite Rechnungen siehe z.B. [23]

daran, dass die London Theorie nur eine Näherung zur Beschreibung der Supraleitung darstellt und z.B. die Geometrie eines Supraleiters außer Acht lässt. Eine Verbesserung dieser Theorie wurde durch Pippard<sup>4</sup> durchgeführt, dessen Modifizierung der London Theorie nichtlokale Effekte miteinbezieht. Diese Modifizierung führte zu einer neuen Größe, der Pippard'schen Kohärenzlänge  $\xi_P$ , welche eine Länge angibt, über die die supraleitenden Ladungsträger miteinander wechselwirken können.

Im Laufe der Zeit wurde erkannt, dass gewisse supraleitende Materialien das partielle Eindringen eines Magnetfeldes der vollständigen Verdrängung vorziehen. Dieses Verhalten kann mit der Ginzburg-Landau-Theorie<sup>5</sup> erklärt werden. Sie beschreibt die makroskopischen Eigenschaften von Supraleitern unter der Annahme von allgemein gültigen thermodynamischen Argumenten. Im Zuge dieser theoretischen Behandlung ergeben sich zwei charakteristische Längen, die Eindringtiefe  $\lambda(T)$  und die Ginzburg-Landau Kohärenzlänge  $\xi(T)$ . Die Eindringtiefe  $\lambda(T)$  in der Ginzburg-Landau-Theorie lautet:

$$\lambda(T) = \sqrt{\frac{m_s}{\mu_0 e_s^2 |\Psi_0(T)|^2}}, \quad (1.9)$$

wobei  $m_s$  für die Masse und  $e_s$  für die Ladung des Trägerteilchens der Supraleitung stehen.  $\Psi_0(T)$  stellt eine Wellenfunktion der supraleitenden Ladungsträger dar. Das Betragsquadrat davon beschreibt eine Aufenthaltswahrscheinlichkeit und damit eine Dichte  $n_s$  dieser Objekte. Die Ginzburg-Landau-Kohärenzlänge

$$\xi(T) = \sqrt{\frac{-\hbar^2}{2m_s\alpha(T)}} \quad (1.10)$$

ist eine charakteristische Länge, die die Änderung der Ladungsträgerdichte im Supraleiter angibt. Dabei steht  $\hbar$  für das reduzierte Planck'sche Wirkungsquantum und  $\alpha$  für einen Parameter der Theorie. Das Verhältnis  $\kappa$  dieser beiden charakteristischen Längen wird als Ginzburg-Landau-Parameter bezeichnet:

$$\kappa = \frac{\lambda}{\xi}. \quad (1.11)$$

Er ist entscheidend für die Einteilung in Typ-I oder Typ-II Supraleiter:

$$\kappa < \frac{1}{\sqrt{2}} : \text{Typ-I Supraleiter} \quad (1.12)$$

$$\kappa > \frac{1}{\sqrt{2}} : \text{Typ-II Supraleiter} \quad (1.13)$$

Typ-I Supraleiter weisen eine positive Grenzflächenenergie zwischen supraleitendem

---

<sup>4</sup>Siehe [17].

<sup>5</sup>Für nähere Details siehe z.B. [6].

Material und äußerem Magnetfeld auf, was zur Folge hat, dass das Magnetfeld aus dem Supraleiter verdrängt wird. Dies führt zu einem feldfreien Innenbereich, solange ein äußeres Feld  $B_a$  unter  $B_c$  bleibt, der Supraleiter sich also in der Meißnerphase befindet.

Bei einem Typ-II Supraleiter ist diese Energie jedoch negativ, was dazu führt, dass bei einer Überschreitung einer kritischen Flussdichte  $B_{c1}$ , magnetischer Fluss in Form von quantisierten Flussschläuchen in sein Inneres eindringt. Jeder Flussschlauch trägt dabei ein Flussquant  $\phi_0$  der Größe

$$\phi_0 = \frac{h}{2e} \approx 2 \cdot 10^{-15} \text{ Vs} \quad (1.14)$$

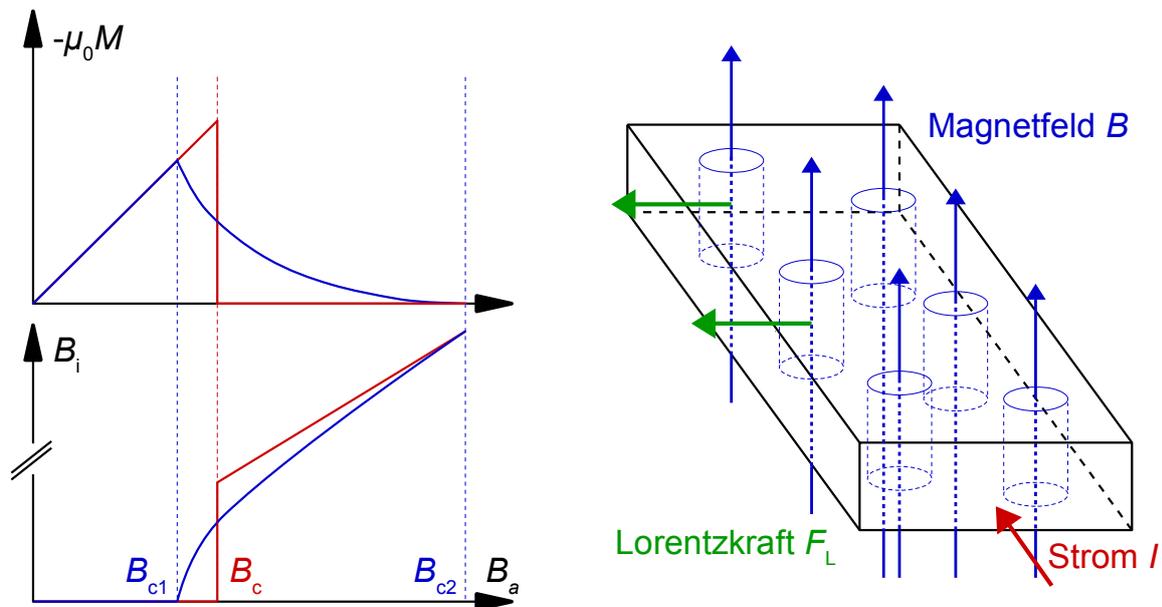
So kommt es zu einer Modifizierung der Magnetisierungskurve von Typ-II Supraleitern. Statt eines einzelnen kritischen Feldes  $B_c$  bildet er ein unteres ( $B_{c1}$ ) und ein oberes kritisches Feld ( $B_{c2}$ ) aus. Für  $B_a < B_{c1}$  befindet sich der Supraleiter in der Meißnerphase. Hier bilden sich in einer dünnen Randschicht mit der Ausdehnung  $\lambda(T)$  Abschirmströme aus, die das Innere des Supraleiters von einem äußeren Feld abschirmen. Erhöht man das Feld auf  $B_{c1} < B_a < B_{c2}$  befindet sich der Supraleiter in der sogenannten Shubnikov- oder Mischphase. In dieser Phase dringt magnetischer Fluss in quantisierter Form ins Material ein. Überschreitet das äußere Feld das obere kritische Feld  $B_{c2}$ , bricht die supraleitende Phase zusammen.

Die Magnetisierungskurve eines idealen Typ-II Supraleiters ist im oberen Graphen von Abbildung 1.2(a) (blaue Kurve) zu sehen. Zum Vergleich wurde eine entsprechende Kurve für Typ-I Supraleiter abgebildet (rote Kurve). Abhängig von einem äußeren Feld, der Probengeometrie etc., verteilen sich die Flussschläuche im Supraleiter bis sie eine Gleichgewichtslage erreicht haben. Wird  $B_a$  wieder auf Null reduziert, folgt der Magnetisierungsverlauf der Kurve in Abbildung 1.2(a) bis zu einer Magnetisierung von Null. Der untere Graph in Abbildung 1.2(a) zeigt die Entwicklung des Verlaufes der magnetischen Flussdichte  $B_i$  im Inneren des Supraleiters mit ansteigendem äußerem Magnetfeld  $B_a$ . Unterhalb von  $B_{c1}$  befindet sich der Supraleiter in der Meißnerphase und sein Inneres ist daher feldfrei. Zwischen Meißnerphase und  $B_{c2}$  existiert die Shubnikov-Phase, in welcher die Magnetisierung der Probe mit dem äußeren Feld ab- und die Anzahl an Flussschläuchen im Inneren zunimmt. Wie im Folgenden erläutert wird, eröffnen sich gravierende Probleme für den technischen Einsatz solcher Materialien.

Wird ein Transportstrom über einen idealen Typ-II Supraleiter im äußeren Magnetfeld geleitet, wirkt nach

$$\vec{F}_L = q \left( \vec{v} \times \vec{B} \right) \quad (1.15)$$

eine Lorentzkraft  $F_L$  auf die supraleitenden Ladungsträger. Die Kraft ist proportional zur Ladung und zur Geschwindigkeit  $\vec{v}$  der Ladungsträger sowie der Stärke des äußeren Magnetfeldes. Die Richtung von  $F_L$  steht orthogonal auf  $\vec{v}$  und  $\vec{B}$ . Eine schematische Darstellung ist in Abbildung 1.2(b) zu sehen. Genau genommen handelt es sich bei  $\vec{v}(\vec{r})$  bzw.  $\vec{B}(\vec{r})$  um ortsabhängige Größen. Ein Flussschlauch besitzt einen Flusslinienkern, an



(a) Schematischer Vergleich des Magnetisierungsverhaltens eines Typ-I und eines idealen Typ-II Supraleiters. Die obere Abbildung zeigt die gegenüber einem äußeren Feld  $B_a$  aufgetragene Magnetisierung und die untere das entsprechende Verhältnis vom inneren Feld  $B_i$  zu  $B_a$ . Auf der  $B_a$ -Achse finden sich die entsprechenden Einträge von  $B_c$ ,  $B_{c1}$  und  $B_{c2}$ .

(b) Schematische Darstellung eines idealen Typ-II Supraleiters und die Einwirkung der Lorentzkraft  $F_L$  auf Flussschläuche aufgrund der Anwesenheit eines Transportstromes  $I$ . Die Richtung der Kraft steht dabei orthogonal auf die Richtung von  $B$  und  $I$ . Um eine bessere Übersicht zu gewährleisten, wurde  $F_L$  nur bei zwei ausgewählten Flussschläuchen eingezeichnet.

Abbildung 1.2

dem die Dichte der supraleitenden Ladungsträger null ist. Je weiter man sich von diesem Kern entfernt, desto mehr steigt diese Dichte an. Im Gegensatz dazu sinkt die Flussdichte von ihrem Maximum im Flusslinienkern mit dem Abstand dazu ab. Der Verlauf beider Größen  $n_s(\vec{r})$  und  $\vec{B}(\vec{r})$  folgt dabei einem ansteigenden bzw. abfallenden Verlauf. Da es für eine phänomenologische Beschreibung des prinzipiellen Verhaltens von Flussschläuchen in idealen Typ-II Supraleitern ausreichend ist auf diese Ortsabhängigkeit zu verzichten, wird diese im Weiteren nicht weiter berücksichtigt.

Werden Flusslinien auf diese Art bewegt, wird elektrische Energie in Wärmeenergie umgewandelt, wodurch ein elektrischer Widerstand entsteht. Da Flussschläuche im idealen Typ-II Supraleiter frei beweglich sind, ist ein beliebig kleiner Strom ausreichend um diese zu bewegen. Diese Materialien sind für den Stromtransport also nicht geeignet. Für nähere Details zu idealen Typ-II Supraleitern siehe z.B. [5, S. 296 ff.]

Anders verhält es sich bei sogenannten harten Typ-II Supraleitern. Eine eingedrungene Flusslinie wird aufgrund von Verankerungskräften  $F_P$  an einer fixen Position gehalten solange  $F_P \geq F_L$  gilt. Damit ist auch der verlustlose Stromtransport möglich. Das Konzept von Verankerungskräften lässt sich anhand der Energie einzelner Flussschläuche leicht verständlich machen. Um einen Fluss Schlauch auszubilden wird eine sogenannte Selbs-

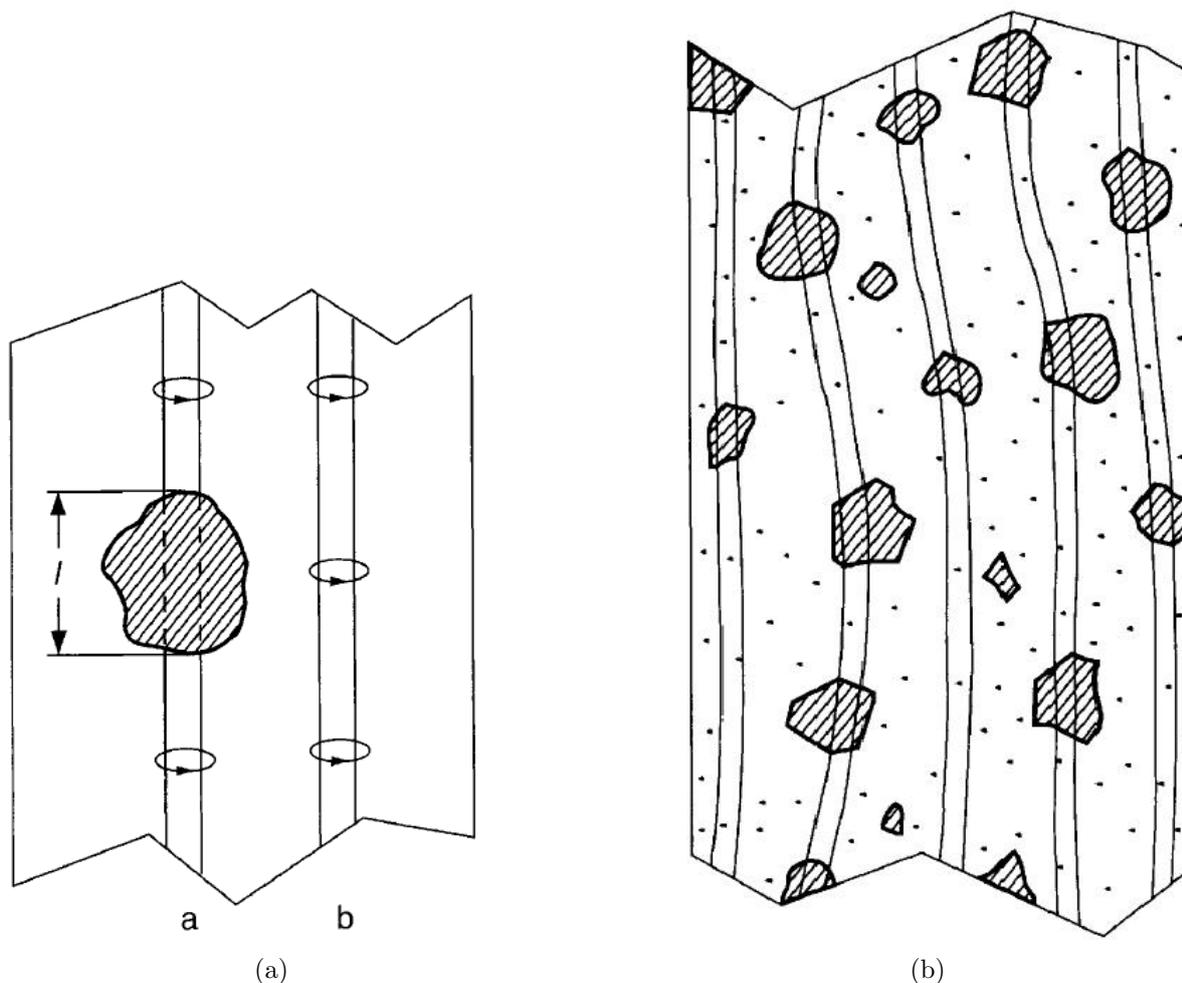


Abbildung 1.3: Abbildung (a) zeigt zwei Flussschläuche a und b. Durch das Haftzentrum ist die effektive Länge von a kürzer als jene von b, wodurch Kondensationsenergie eingespart wird. Abbildung (b) zeigt einen schematischen zweidimensionalen Ausschnitt einer mit magnetischem Fluss durchdrungenen Probe. Die schraffierten Bereiche stellen Haftzentren, die Punkte atomare Störungen dar. Die beiden Abbildungen wurden aus [5, S. 302] entnommen.

tenergie  $E_{FS}$  benötigt. Neben anderen Parametern ist die Länge eines Fluss Schlauches maßgeblich für  $E_{FS}$ . Kreuzt der Fluss Schlauch auf seinem Weg durch den Supraleiter z.B. normalleitende Bereiche in der Größenordnung der Flusslinien, so fließen Abschirmströme um diesen herum, jedoch nicht in seinem Inneren. Betrachtet man die zwei Fluss schläuche mit den Bezeichnungen „a“ und „b“ in Abbildung 1.3(a), so spart die Position von Fluss Schlauch a gegenüber der Position von Fluss Schlauch b einen gewissen Energiebetrag ein. Da der Supraleiter bestrebt ist seine Gesamtenergie zu minimieren, verteilen sich die Fluss schläuche entsprechend im Material. Dabei können sie sich auch verbiegen, also entsprechend verlängern, solange dabei insgesamt Energie gewonnen wird. Abbildung 1.3(b) zeigt mehrere Fluss schläuche sowie ausgedehnte Haftzentren (schraffierte Bereiche) und atomare Störungen (Punkte). Im Allgemeinen lässt sich sagen, dass alle Orte, die ei-

ne Inhomogenität bezüglich der supraleitenden Eigenschaften des Materials aufweisen, als Haftzentren wirken. Normalleitende Bereiche gelten als Extremfall. Zusätzliche Haftzentren können z.B. mittels Neutronenbestrahlung nachträglich ins Material eingebracht werden. Es existiert eine Vielzahl von verschiedenen Haftmechanismen auf welche im Folgenden jedoch nicht weiter eingegangen wird. Für weiterführende Informationen siehe z.B. [23] und [5].

Abbildung 1.4 zeigt den Magnetisierungsverlauf eines realen Typ-II Supraleiters. Wird ein äußeres Feld an solch einen Supraleiter angelegt und anschließend wieder auf null reduziert, bleibt eine gewisse Restmagnetisierung aufgrund der Flusslinienverankerung in der Probe zurück. Es lässt sich erkennen, dass der Kurvenverlauf antisymmetrisch bezüglich des Nullpunktes ist. Spiegelt man die Magnetisierungskurve bei positiven Feldern um beide Achsen, erhält man den Kurvenverlauf auf der negativen Feldachse.

Da die magnetischen Eigenschaften der Proben im späteren Verlauf dieser Arbeit in Einheiten des magnetischen Moments gemessen werden, wird dieser Begriff im Hinblick darauf an dieser Stelle eingeführt. Das magnetische Moment  $\vec{m}(\vec{r})$  ist definiert als

$$\vec{m}(\vec{r}) = \frac{1}{2} \int d^3r \vec{r} \times \vec{j}(\vec{r}), \quad (1.16)$$

wobei  $\vec{r}$  für einen Ort und  $\vec{j}(\vec{r})$  für eine Stromdichte am Ort  $\vec{r}$  steht. Nimmt man an, dass die Stromdichte konstant über die Querschnittsfläche der Leiterschleife ist und  $d\vec{l}$  ein Linienelement der Schleife angibt, lässt sich Formel 1.16 mit

$$\int d^2r dl \vec{j}(\vec{r}) = I \int d\vec{l} \quad (1.17)$$

auf folgende Form umschreiben:

$$\vec{m}(\vec{r}) = \frac{I}{2} \int \vec{r} \times d\vec{l} \quad (1.18)$$

Mithilfe der Relation

$$\frac{1}{2} \vec{r} \times d\vec{l} = d\vec{a} \quad (1.19)$$

lässt sich Formel 1.18 als Integral über alle Flächenelemente  $d\vec{a}$ , welche von der ebenen Stromschleife aufgespannt werden, anschreiben als

$$\vec{m}(\vec{a}) = I \int d\vec{a} \quad (1.20)$$

womit für das magnetische Moment folgt:

$$\vec{m} = I \cdot \vec{A}. \quad (1.21)$$

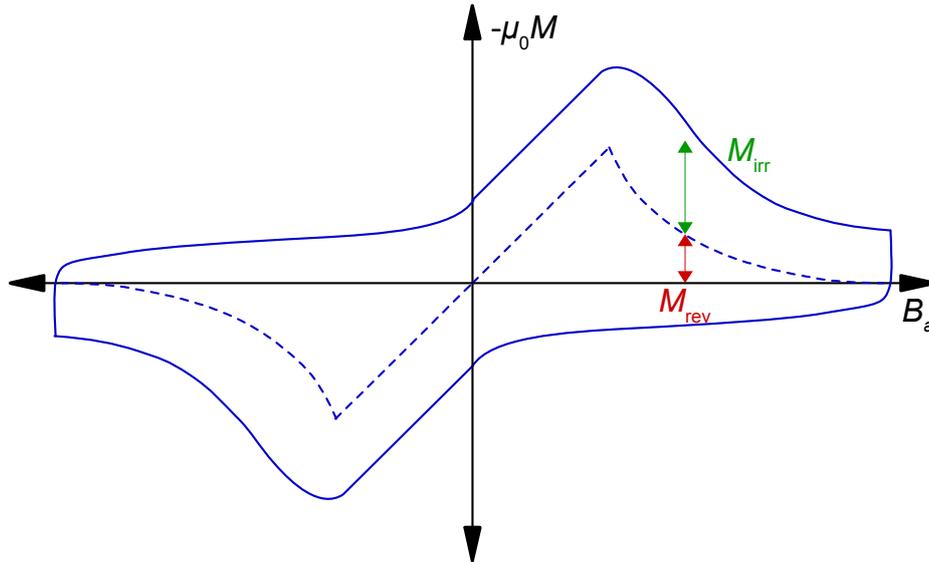


Abbildung 1.4: Die durchgezogene blaue Linie zeigt eine schematische Darstellung der Magnetisierung eines realen Typ-II Supraleiters. Sie setzt sich aus einem reversiblen ( $M_{\text{rev}}$ ) und einem irreversiblen Anteil ( $M_{\text{irr}}$ ) zusammen. Der reversible Anteil ist durch eine gestrichelte Linie angedeutet.

Das magnetische Moment einer ebenen Leiterschleife ist das Produkt aus Stromfluss durch die Schleife mal der eingeschlossenen Fläche<sup>6</sup>. Der Zusammenhang zwischen der Magnetisierung  $\vec{M}$  und magnetischem Moment  $\vec{m}$  lautet:

$$\vec{M} = \frac{\vec{m}}{V}, \quad (1.22)$$

wobei  $V$  das Probenvolumen darstellt. Das gesamte magnetische Moment der Probe setzt sich aus einem reversiblen sowie einem irreversiblen Anteil aufgrund der Verankerungseffekte zusammen:

$$\vec{m}_{\text{ges}} = \vec{m}_{\text{rev}} + \vec{m}_{\text{irr}}. \quad (1.23)$$

Eine mikroskopische Behandlung der konventionellen Supraleitung wird mit der BCS-Theorie<sup>7</sup> ermöglicht. Supraleiter auf Eisenbasis können nicht mithilfe dieser Theorie konventioneller Supraleitung beschrieben werden, da unkonventionelle Mechanismen für das Auftreten der supraleitenden Phase in solchen Materialien verantwortlich sind. Dennoch werden im Folgenden zwei Mechanismen dieser Theorie vorgestellt, da ihre Grundideen für die weitere Beschreibung nützlich sind.

Das Phänomen der Supraleitung wird im Zuge der BCS-Theorie auf eine Wechselwirkung zwischen Elektronen und Phononen (quantisierte Gitterschwingungen) zurückgeführt, wodurch eine endliche anziehende Kraft zwischen negativ geladenen Elektronen im Kris-

<sup>6</sup>Für nähere Details siehe z.B. [11]

<sup>7</sup>BCS steht für Bardeen, Cooper und Schrieffer. Für nähere Details zur Theorie siehe [2] oder [5, S.127 ff.].

tallgitter entsteht. Diese Anziehung lässt sich mithilfe eines einfachen Bildes verständlich machen. Wenn sich ein negativ geladenes Elektron durch das Kristallgitter bewegt, übt es eine anziehende Kraft auf die umliegenden positiv geladenen Kristallgitterionen aus, wodurch es zu einer lokalen Verformung des Gitters kommt. Aufgrund des großen Unterschiedes der Massen zwischen dem Elektron und den Gitterionen bleibt die Gitterverformung - nachdem das Elektron bereits weiter gewandert ist - für längere Zeit vorhanden. Dadurch entsteht im elektrisch neutralen Festkörper ein lokaler Überschuss an positiven Ladungsträgern, wodurch ein zweites Elektron angezogen wird. Diese anziehende Wechselwirkung zwischen zwei Elektronen führt zur Bildung sogenannter Cooperpaare. Sie stellen die supraleitenden Ladungsträger dar. Die Paarung zweier Elektronen mit halbzahligen Spin kann man als Bildung eines Bosons mit ganzzahligen Spin verstehen. Da das Pauliprinzip nur für fermionische Teilchen gilt und nicht für bosonische, ist es möglich, dass alle Elektronenpaare in einen gemeinsamen supraleitenden Grundzustand kondensieren. In dieses Bild lässt sich auch die Kohärenzlänge gut einfügen, da sie die Reichweite der Wechselwirkung zwischen einzelnen Elektronen beschreibt. Für Supraleiter auf Eisenbasis handelt es sich nicht um solche Cooperpaare, sondern um andere bosonische Trägerteilchen.

Die Korngrenzen der gemessenen Proben sind sogenannte weak-links oder Josephson-Kontakte, über die der kritische Strom in Form von Josephson-Strömen auftritt. Deshalb ist das Verständnis des Josephson-Effektes wesentlich für die Beschreibung der gesammelten Messdaten. Bei einem Josephson-Kontakt handelt es sich um zwei Supraleiter, welche durch eine dünne nicht- oder normalleitende Schicht getrennt sind. Cooperpaare sind dank des Tunneleffekts in der Lage diese Unterbrechung zu überwinden, also zu "durchtunneln". Der Tunneleffekt ist quantenmechanischer Natur und wird hier nicht genauer behandelt. Ohne auf Details einzugehen lautet ein analytischer Ausdruck für den kritischen Strom der über so einen Kontakt fließt<sup>8</sup>

$$I_c(\Phi) = I_0 \left| \frac{\sin\left(\frac{\pi\Phi}{\Phi_0}\right)}{\frac{\pi\Phi}{\Phi_0}} \right|, \quad (1.24)$$

wobei  $\Phi = BLd$  und  $d = (2\lambda + t)$ . Dabei stehen  $L$  für die Länge des Tunnelkontaktes und  $t$  für den Abstand zwischen den Körnern, also die Breite des Tunnelkontaktes. Es ist ersichtlich, dass diese Formel aufgrund des Sinusbetrages eine Reihe von Maxima des kritischen Stromes vorhersagt welche durch Nullstellen voneinander getrennt sind. Dieses Verhalten ist bei den vorliegenden Proben allerdings nicht zu beobachten. Es wird angenommen, dass die Vielzahl an Körnern und den entsprechenden Josephson-Kontakten in den Proben dieses Nullstellenverhalten wegmittelt, wodurch sich eine monoton abfallende Kurve für den Probenstrom mit dem Feld ergibt.

---

<sup>8</sup>Für Details und eine ausführliche Rechnung siehe z.B. [7].

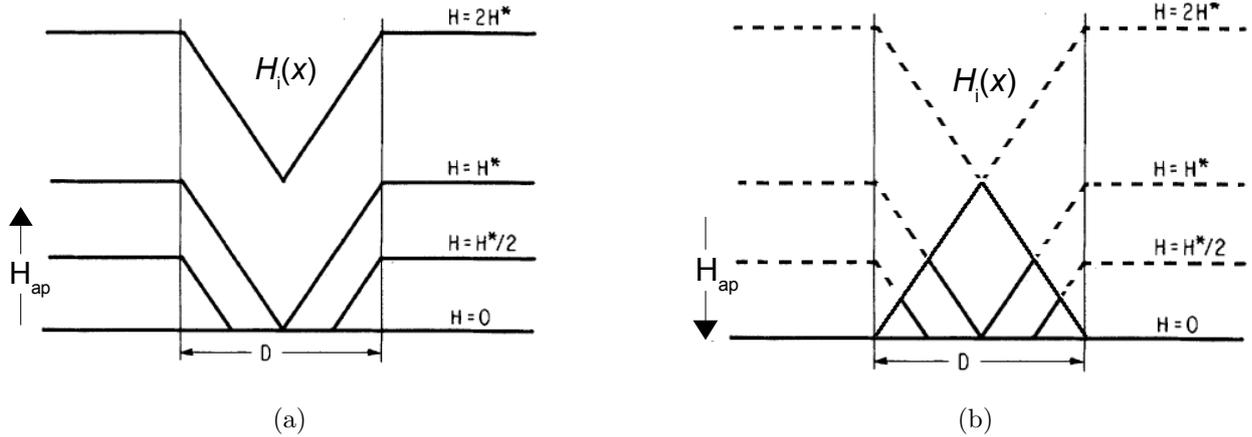


Abbildung 1.5: Schematische Darstellung eines supraleitenden Zylinders mit Durchmesser  $D$  im axialen Magnetfeld. Abbildung (a) zeigt das Verhalten im ansteigenden Feld [3]. Die Flussliniendichte innerhalb des Supraleiters, illustriert durch die durchgezogenen Linien, nimmt linear nach innen ab. Bei  $H^*$  befindet sich erstmals magnetischer Fluss im Zentrum der Probe. In Abbildung (b) werden die äußeren Felder  $H$  wieder auf null reduziert. Die durchgezogenen Linien sollen die remanente Magnetisierung andeuten.

## 1.2 Beans Modell des kritischen Zustandes

Ein zentraler Punkt dieser Arbeit ist die remanente Magnetisierung von Typ-II Supraleitern. Für die Behandlung dieses Phänomens wird auf *Bean's critical state model* oder Beans Modell des kritischen Zustandes zurückgegriffen<sup>9,10</sup>. Diese Theorie dient der Beschreibung irreversibler Eigenschaften realer Typ-II Supraleiter für  $H_{ap} \ll H_{c2}$ . Ausgangspunkt der folgenden Abhandlung ist die differentielle Form des Ampère'schen Gesetzes und lautet

$$\vec{\nabla} \times \vec{H}_i = \vec{j}. \quad (1.25)$$

Es gibt den Zusammenhang zwischen dem Magnetfeld  $\vec{H}_i$  im Inneren der Probe und einer Stromdichte  $\vec{j}$  an. Dabei gilt die Randbedingung  $H_a = H_i$  an der Probenoberfläche. Die Annahme des Bean Modells besteht darin, dass ein Abschirmstrom innerhalb des Supraleiters stets mit dem maximal möglichen Wert von  $j_c$  fließt, unabhängig vom angelegten Magnetfeld  $H_a$ . Es sei hier festgehalten, dass es sich bei diesen Strömen um solche handelt, die dem irreversiblen magnetischen Moment zugrunde liegen. Formel 1.25 lässt sich im Zuge des Bean Modells folgendermaßen anschreiben:

$$\vec{\nabla} \times \vec{H}_i = \vec{j}_c = \text{konstant}. \quad (1.26)$$

Eine zentrale Konsequenz von Formel 1.26 ist die Ausbildung von Feldprofilen in der Probe, worauf in der folgenden Behandlung näher eingegangen wird. In Abbildung 1.5 ist der

<sup>9</sup>Für nähere Details siehe [3] und [23].

<sup>10</sup>Von dieser Stelle an wird dieses theoretische Modell der Einfachheit halber als Bean Modell bezeichnet.

Magnetisierungsprozess eines einkristallinen supraleitenden Zylinders im axialen Magnetfeld schematisch dargestellt. Abbildung 1.5(a) zeigt den Fall eines ansteigenden äußeren magnetischen Feldes. Wird dieses von null aus erhöht, befindet sich der Supraleiter in der Meißnerphase solange  $H_{\text{ap}} < H_{\text{c1}}$  gilt. Das Magnetfeld wird idealerweise<sup>11</sup> vollständig aus seinem Inneren verdrängt.

Erreicht das Feld Werte von  $H_{\text{c1}} < H_{\text{ap}} < H_{\text{c2}}$ , dringen Flussschläuche ins Material ein und es wird eine Stromdichte  $j_c$  in jenen Bereichen ausgebildet, die von magnetischem Fluss erreicht werden. Die restliche Probe befindet sich nach wie vor im Meißnerzustand. Betrachtet man Formel (1.26), erkennt man an der Struktur, dass auf der rechten Seite eine konstante Größe und links eine Ableitung in Form einer Rotationsoperation<sup>12</sup> auf das lokale Feld steht. Obwohl eine Rotation die Komponenten eines Vektors vermischt und tauscht, muss  $H_i$  eine lineare Funktion sein, da nur in diesem Fall  $j_c$  konstant sein kann. Daher fällt das Magnetfeld im Supraleiter von außen nach innen linear ab. Demzufolge stellt sich am Rand der Probe ein Gradient des magnetischen Flusses ein, der der kritischen Stromdichte in diesem örtlichen begrenzten Bereich zwischen Probenwand und  $H = 0$  entspricht (erste Felderhöhung in Abbildung 1.5(a)). Die weitere Erhöhung des äußeren Feldes führt dazu, dass die Feldfront weiter in das Innere des Supraleiters eindringt und den Bereich der Meißnerphase immer weiter verkleinert. Erreicht  $H_{\text{ap}}$  einen Wert von  $H^*$ , ist der Supraleiter bis zu seinem Zentrum vom Magnetfeld durchdrungen.  $H^*$  stellt dabei eine geometrie- und materialabhängige Feldgröße dar.

Reduziert man das Feld nach einer Erhöhung wieder auf null, baut sich ein Flussdichtegradient in umgekehrter Richtung auf, was zu einem Feldprofil führt, wie es in Abbildung 1.5(b) dargestellt ist. Die gestrichelten Linien deuten das zuvor angelegte Feld an. Die überbleibende Magnetisierung des Supraleiters wird als remanente Magnetisierung bezeichnet. Durch die Feldumkehr wird ein Strom mit umgekehrten Vorzeichen generiert und dadurch eine Umkehr des Feldliniengradienten erzeugt.

Die maximale remanente Magnetisierung nach dem Bean Modell ist dann erreicht, wenn ein äußeres Feld auf den doppelten Wert von  $H^*$  oder darüber hinaus erhöht und anschließend wieder auf null reduziert wird. Während der Felderhöhung wird das Feldprofil in Abbildung 1.5(b) nach oben parallelverschoben (strichlierte Linien). Wird das Feld reduziert, bleibt im Falle eines Zylinders im axialen Feld ein rotationssymmetrisches Feldprofil in der Probe zurück (durchgezogene Linien). Im Sättigungsfall entspricht die Form des Feldprofils einem Drehkegel.

Obwohl das Bean Modell eine gute Näherung darstellt, ist eine direkte Umlegung auf die experimentellen Daten nur bedingt möglich. Zum einen nimmt die Magnetisierung von realen Typ-II Supraleitern mit ansteigendem Feld nach Abbildung 1.4 ab, was

<sup>11</sup>Wie im Zuge der London-Theorie erläutert, fließt ein Abschirmstrom in einer Oberflächenschicht in der Größenordnung von  $\lambda$ , sodass das Feld ins Innere exponentiell abfällt. Das Feld dringt also nur in diese dünne Oberflächenschicht ein.

<sup>12</sup>Eine Rotation ist aus mathematischer Sicht das Kreuzprodukt aus einem Gradienten mit einem Vektor.

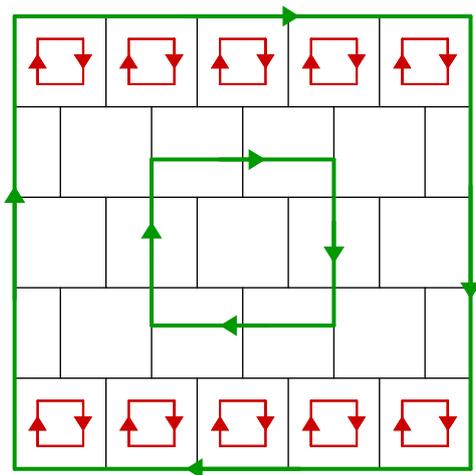


Abbildung 1.6: Schematische Darstellung einer quadratischen Probe mit einer vereinfachten Kornstruktur. Ein angelegtes Magnetfeld soll aus der Bildebene heraus zeigen. Die entsprechenden Abschirmströme bilden sich einerseits nur in den Körnern ( $j_c^K$ , rot) und andererseits über ganze Probenbereiche ( $j_c^P$ , grün) aus. Der Übersicht halber wurden die entsprechenden Ströme nur in ausgewählten Bereichen eingezeichnet.

einer Abnahme des kritischen Stromes und damit einer Abflachung des Feldprofils im Inneren des Supraleiters entspricht. Zum anderen wurde das Bean Modell anhand eines einkristallinen Supraleiters vorgestellt. Bei den vorliegenden Proben handelt es sich allerdings um polykristalline Materialien, sodass das Bean Modell zwar in seiner Essenz, aber nicht vollständig übernommen werden kann. Im folgenden Abschnitt wird näher auf die Anwendbarkeit des Bean Modells eingegangen.

### 1.2.1 Eigenschaften von polykristallinen Supraleitern

Da im Zuge dieser Arbeit polykristalline Proben untersucht werden, ist der einkristalline Zugang durch das Bean Modell nur bedingt gültig. Polykristalle bestehen aus einer Vielzahl mehr oder weniger gut zusammengewachsener Einkristalle welche im Folgenden auch als Körner bezeichnet werden. Dabei ist es wichtig zu beachten, dass die Orientierung der Körner in Sinterkörpern in der Regel zufällig ist, also keinerlei langreichweitige Ordnung der Kristallstruktur vorliegt. Somit bestehen die vorliegenden Proben aus supraleitenden Körnern, die durch Korngrenzen voneinander getrennt sind. In den vorliegenden Proben sind diese Korngrenzen weak-links, d.h. Josephson-Kontakte. Aufgrund der polykristallinen Struktur werden verschiedene Typen von kritischen Stromdichten ausgebildet, die eindeutig zwei verschiedenen Bereichen im Material zugeordnet werden können. Dabei handelt es sich um die bereits behandelten inter- und intragranularen Bereiche.

Eine schematische Darstellung dieser Bereiche inklusive der entsprechenden Abschirmströme ist in Abbildung 1.6 zu sehen. Da es sich nur um eine schematische Darstellung zur

Erläuterung des Phänomens handelt, wurde kein Wert auf eine maßstabsgetreue Darstellung gelegt. Die mit schwarzen Linien begrenzten Bereiche stellen die einzelnen Körner dar. Diese bilden angesichts der Flusslinienverankerung im äußeren Feld eine kritische Stromdichte  $j_c^K$  in ihrem Inneren aus, was zur Entstehung entsprechender Feldprofile führt. Eine schematische Darstellung dieses Vorganges ist mit roten Pfeilen in Abbildung 1.6 dargestellt. Diese Feldprofile beeinflussen das Feld entlang der Korngrenzen und führen zu Effekten, auf welche in den Abschnitten 2.3 und 3.1.2 genauer eingegangen wird.

Da es sich bei den Korngrenzen um nicht supraleitende Bereiche handelt, kommen die hier auftretenden Ströme über SNS-Kontakte zustande. Im Zuge der Vorstellung der BCS-Theorie wurde kurz auf diese Thematik eingegangen. Cooperpaare sind in der Lage durch diese nicht supraleitenden Grenzbereiche hindurch zu tunneln und so eine makroskopische Abschirmstromdichte  $j_c^P$  zu generieren. Die Stromdichte kann also über die ganze Probe fließen. Der Einfachheit halber wird angenommen, dass es sich bei diesen Tunnelkontakten um Josephson-Kontakte (SNS-Kontakte) handelt. Dabei fließt der Strom von einem Korn (S) über die Korngrenzen (N) zu einem anderen Korn (S) (vgl. einhüllende Kurve aus Formel (1.24)).  $j_c^P$  ist dem äußeren Feld invers proportional, es gilt demnach

$$j_c^P \propto \frac{1}{B}. \quad (1.27)$$

Wie im Zuge der Datenauswertung genauer erläutert wird, tritt  $j_c^P$  bereits auf, wenn sich die Körner noch in der Meißnerphase befinden. Wie in Abschnitt 1.1 erklärt, fließen in diesem Zustand eines Supraleiters Oberflächenströme bis zu einer Tiefe der Eindringtiefe  $\lambda$ . Dieser Bereich stellt den supraleitenden Teil (S) des SNS-Kontaktes dar.

Der globale kritische Strom dieser Proben ist durch den intergranularen Strom gegeben. Damit ist jener verlustfreie Strom gemeint, der bei einer geeigneten Kontaktierung über den Supraleiter maximal fließen würde. Nachdem in Abschnitt 1.1 reversible und irreversible Eigenschaften eines realen Typ-II Supraleiters erläutert wurden und im Zuge dieser Arbeit ausschließlich irreversible Eigenschaften untersucht werden, lässt sich das magnetische Moment aus Formel 1.23 in die entsprechenden Anteile aufteilen:

$$m = m_{\text{rev}} + m_{\text{irr}} \approx m_{\text{rev}} + m^P + m^K \quad (1.28)$$

Um eine einheitliche und übersichtliche Beschreibung von inter- und intragranularen Stromdichten zu erreichen, werden sie noch einmal explizit angeschrieben:

$$j_c^{\text{inter}} = j_c^P \quad (1.29)$$

$$j_c^{\text{intra}} = j_c^K. \quad (1.30)$$

Nachdem die kritischen Stromdichten aus magnetischen Momenten berechnet werden

können, lassen sich auch entsprechende Größen definieren:

$$m^{\text{inter}} = m^{\text{P}} = m^{\text{Probe}} \quad (1.31)$$

$$m^{\text{intra}} = m^{\text{K}} = m^{\text{Korn}}. \quad (1.32)$$

### 1.3 Geometrie und Entmagnetisierungsfaktor

Das effektive Feld  $H_{\text{eff}}$  dem eine Probe ausgesetzt ist, ist aufgrund von Geometrieeffekten nicht gleich dem angelegten Feld  $H_{\text{ap}}$ . Aufgrund der Feldverdrängung aus dem Inneren der Probe, verlaufen die magnetischen Flusslinien um die Probe herum. Dies führt zu einer Verdichtung der Flusslinien entlang des Probenrandes und zu einem entsprechenden lokalen Anstieg der Feldstärke.

Zusätzlich zum äußeren Feld  $H_{\text{ap}}$  wird ein durch die Probe selbst verursachtes Feld  $H_{\text{st}}$  addiert, sodass für das effektive Feld  $H_{\text{eff}}$  gilt:

$$H_{\text{eff}} = H_{\text{ap}} + H_{\text{st}}. \quad (1.33)$$

$H_{\text{st}}$  ist der Probenmagnetisierung proportional

$$H_{\text{st}} = -DM, \quad (1.34)$$

wobei der Faktor  $D$  als Entmagnetisierungsfaktor bezeichnet wird. Dabei handelt es sich um eine dimensionslose Größe. Sie weist im einfachsten Fall Zahlenwerte im Bereich  $0 < D < 1$  auf.  $D$  hängt im Allgemeinen von der Geometrie der Probe und ihrer relativen Lage zu  $H_{\text{ap}}$  ab, wobei  $D_x + D_y + D_z = 1$  gilt. Für eine Kugel beispielsweise beträgt er  $\frac{1}{3}$  für jede Achsenrichtung.

Die Magnetisierung  $M$  einer ideal diamagnetischen Probe ist dem effektiven Feld entgegen gerichtet:

$$M = -H_{\text{eff}}. \quad (1.35)$$

Ersetzt man das Streufeld aus Formel 1.33 mit den Ausdrücken 1.34 und 1.35, erhält man folgenden Ausdruck:

$$H_{\text{eff}} = H_{\text{ap}} + DH_{\text{eff}}. \quad (1.36)$$

Elementare Umformungen führen zu:

$$H_{\text{eff}} = \frac{1}{1 - D} \cdot H_{\text{ap}}. \quad (1.37)$$

Abhängig von der Geometrie der Probe und Ausrichtung zum Feld  $H_{\text{ap}}$ , ist das effektive Feld, dem die Probe ausgesetzt ist, größer als das Angelegte.

## 1.4 Eisensupraleiter

Mit der 2008 entdeckten  $\text{LaFeAsO}_{1-x}\text{F}_x$  Verbindung<sup>13</sup> wurde sprichwörtlich das Zeitalter der Eisensupraleiter eingeläutet. In den nachfolgenden Jahren wurden supraleitende Eigenschaften an einer Vielzahl von verschiedenen eisenhaltigen Verbindungen nachgewiesen, welche meistens deutlich höhere Sprungtemperaturen aufweisen als konventionelle Supraleiter. Sie zählen damit zur Gruppe der Hochtemperatursupraleiter.

Ein Merkmal, das allen Supraleitern auf Eisenbasis gemein ist, sind regelmäßig auftretende Kristallebenen im Kristallgitter, welche aus Eisenatomen und Atomen der Pnictogen- oder Chalkogengruppe des Periodensystems aufgebaut werden. Bei den Pnictogenen handelt es sich um Vertreter der Stickstoffgruppe, wobei es sich bei den wichtigsten Vertretern um die Elemente Phosphor und Arsen handelt. Die wichtigsten Elemente der Chalkogene für Supraleiter auf Eisenbasis sind Selen und Tellur. Abbildung 1.7(a) zeigt vier ausgewählte Kristallgittertypen von verschiedenen Eisensupraleitern. Der rot hinterlegte Bereich beinhaltet eine in allen vier Fällen vorkommende Eisen-Arsen- (FeAs-) bzw. Eisen-Selen-Ebene (FeSe-Ebene). Abbildung 1.7(b) zeigt einen Ausschnitt so einer Kristallebene.

Es ist üblich, die in Abbildung 1.7(a) beispielhaften Kristallgitter zur Identifikation mit Zahlenkombinationen zu bezeichnen. Diese Zahlenbezeichnungen stammen aus der Stöchiometrie und beschreiben die Elementzusammensetzung der reinen Materialphase. So trägt eine reine Eisen-Arsen-Verbindung die Bezeichnung 11. Die Eingangs erwähnte  $\text{LaFeAsO}$ -Verbindung gehört daher zur Familie der 1111-Verbindungen. In der folgenden Auflistung sind einige Beispiele angegeben, die jenen in Abbildung 1.7(a) entsprechen:

- 11; z.B. FeSe
- 111; z.B.  $\text{LiFeAs}$
- 122; z.B.  $\text{LiFe}_2\text{As}_2$  oder  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$
- 1111; z.B.  $\text{LaFeAsO}$

Wie bereits in der Einleitung angeführt, handelt es sich bei den vorliegenden Proben um eisenbasierte Supraleiter der Ba122 Familie. Die zugehörige Kristallstruktur ist in Abbildung 1.7(a) als Dritte von links zu sehen.

Im Gegensatz zu Vertretern der Kuprate sind Supraleiter auf Eisenbasis bei Raumtemperatur keine Isolatoren, sondern schlechte elektrische Leiter. Unter Normaldruck und Raumtemperatur nimmt das Kristallgitter eine tetragonale Form ein. Mit fallender Temperatur zeigt  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  bei etwa 140 K eine Spindichtewellen-Anomale (SDW-Anomalie) und es kommt neben Änderungen in der spezifischen Wärme, des elektrischen Widerstands

---

<sup>13</sup>Für Details siehe [12].

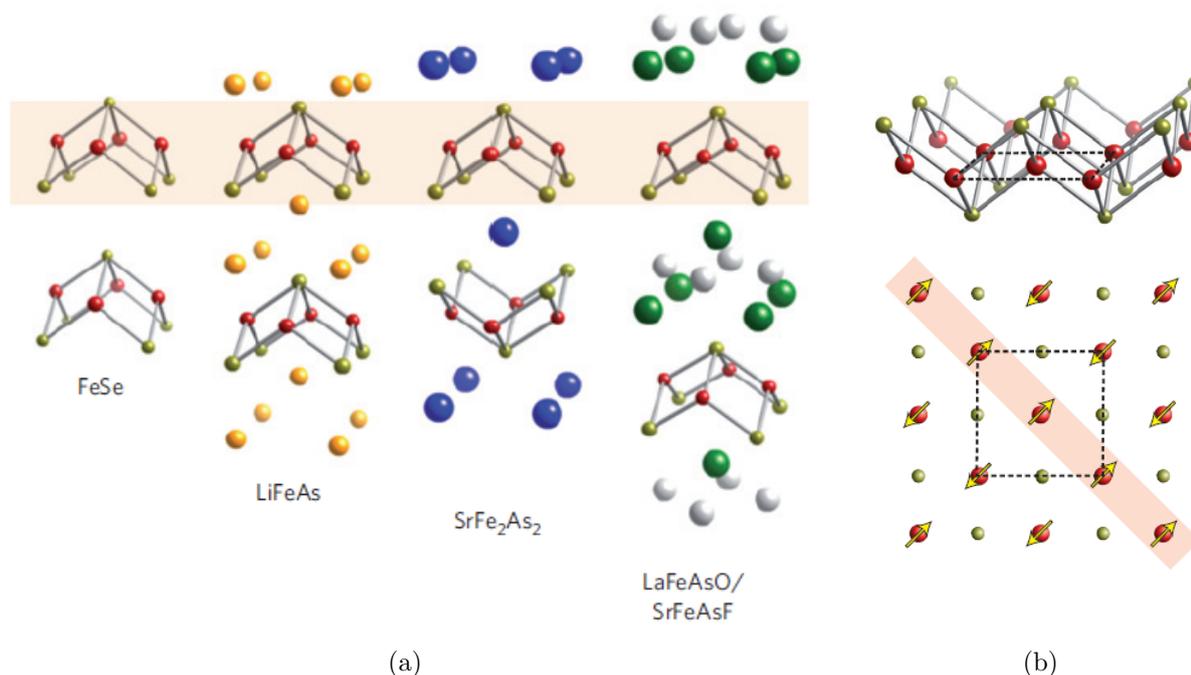


Abbildung 1.7: Abbildung (a) zeigt eine schematische Darstellung von Kristallgittern verschiedener eisenbasierter Supraleiter. Die untersuchten BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> Proben weisen dieselbe Struktur auf wie jene der SrFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> Supraleiter und gehören damit von links gesehen zur dritten Klasse. Abbildung (b) zeigt die Eisen-Arsen-Ebene die den Pnictiden gemein ist. Beide Abbildungen stammen aus [16].

und der magnetischen Suszeptibilität zur Änderung von einer tetragonalen zu einer orthorhombischen Kristallstruktur<sup>14</sup>.

Diese SDW-Anomalie und der damit verbundene Übergang zwischen den zwei Kristallstrukturen kann durch die Einbringung von Kaliumatomen unterbunden und damit die Bildung einer supraleitenden Phase unter 38 K möglich gemacht werden. Bei der Kalium Dotierung werden einzelne Ba<sup>2+</sup>- durch K<sup>+</sup>-Ionen ersetzt. Dadurch werden Elektronenlöcher mit positiver Ladung in das System eingebracht<sup>15</sup>. Ein ähnlicher Effekt kann durch die Dotierung mit Kobaltatomen erreicht werden. Bei der Dotierung mit Kobalt werden die Atome direkt in die FeAs-Schichten eingebracht und erzeugen einen Elektronenüberschuss im Material<sup>16</sup>. Die Strukturformeln der Materialien nach den jeweiligen Dotierungen lauten (Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>)Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> und Ba(Fe<sub>1-x</sub>Co<sub>x</sub>)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>. Für eine optimale Dotierung wurden die Werte  $x = 0.4$  (K) bzw.  $x = 0.06$  (Co) gefunden. Neben der Dotierung von BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> mit den Elementen Kalium und Kobalt bildet sich die supraleitende Phase

<sup>14</sup>Für nähere Details zu dieser SDW-Anomalie sowie den anderen erwähnten Änderungen siehe [19].

<sup>15</sup>Für nähere Details siehe [20].

<sup>16</sup>Für Details siehe [21].

auch unter der Einwirkung von hohen Drücken aus<sup>17</sup>. Auf Details wird hier verzichtet, da die vorliegenden Proben ausschließlich mit Kobalt und Kalium dotiert sind und keine Messungen mit variablem Druck an reinem  $\text{BaFe}_2\text{As}_2$  durchgeführt wurden.

Da die vorliegenden Proben empfindlich auf Sauerstoff reagieren, mussten Vorkehrungen zu ihrem Schutz getroffen werden. Aus diesem Grund wurden die Proben zur Lagerung in einem Exsikkator aufbewahrt. Bei diesem Objekt handelt es sich um einen evakuierbaren Glasbehälter. Da die Vermutung aufkam, dass das Kalium der Kalium dotierten Proben aufgrund des Vakuums per Festkörperdiffusion aus dem Material entweichen und so die Güte der supraleitenden Eigenschaften mindern kann, wurden die Proben nach einigen Wochen in einen anderen verschließbaren Behälter umgelagert, welcher mit Argon als Schutzgas gefüllt wurde. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass sich beim Öffnen des Behälters mit den unter Schutzgas versiegelten Kobalt dotierten Proben die Oberfläche dieser bei Kontakt mit der Atmosphäre praktisch augenblicklich von einer metallisch glänzenden Erscheinung zu einer matt schwarzen verändert hat.

Aufgrund der geschichteten Kristallstruktur von  $\text{Ba122}$  kann man ein stark anisotropes Verhalten für das Auftreten von Abschirmströmen in den verschiedenen Kristallrichtungen erwarten. Es hat sich jedoch herausgestellt, dass diese Kristalle eine geringere Anisotropie als andere Hochtemperatursupraleiter zeigen. Da es sich bei den vorliegenden Proben um Polykristalle handelt, verliert die materialbedingte Anisotropie aufgrund der zufälligen Orientierung der einzelnen Körner an Bedeutung.

---

<sup>17</sup>Für Details siehe [1].

# Kapitel 2

## Experimenteller Aufbau und Proben

Die Untersuchung der magnetischen Eigenschaften der vorliegenden Materialien wurde mit zwei Messgeräten durchgeführt. Bei diesen handelt es sich um ein Vibrationsmagnetometer oder kurz VSM sowie ein SQUID Magnetometer. Mit diesen Geräten lassen sich die magnetischen Eigenschaften supraleitender Proben bei kontaktfreier Untersuchung bestimmen. Die kritischen Ströme werden dabei nicht direkt, wie bei Transportstrommessungen bestimmt sondern mittels Analyse der ermittelten magnetischen Momente berechnet. In den ersten beiden Unterabschnitten dieses Kapitels werden die verwendeten Geräte näher erläutert. Auf die verwendeten Messmethoden wird erst gesammelt im dritten Kapitel eingegangen.

### 2.1 Vibrating Sample Magnetometer

Das *Vibrating Sample Magnetometer* der Firma Oxford Instruments ist ein Präzisionsmessgerät welches dazu verwendet wird, das magnetische Moment von supraleitenden Proben unter Tieftemperaturbedingungen zu bestimmen. Es wurde im Zuge dieser Diplomarbeit ausschließlich für Magnetisierungsmessungen genutzt, da man damit sehr zeit-effizient messen kann. Das VSM ist dazu in der Lage das externe Feld zu ändern und simultan dazu Messungen des magnetischen Moments durchzuführen. Abbildung 2.1 zeigt den experimentellen Aufbau des Gerätes.

Die Temperaturregelung im Probenraum geschieht über einen VTI (*Variable Temperature Insert*). Durch ein Nadelventil wird flüssiges Helium in Richtung Probenraum geleitet. Mittels eines Heizers wird das Helium verdampft und an der Probe vorbei geleitet. Das Heliumgas wird mit Hilfe einer Vakuumpumpe am oberen Ende des Probenraumes abgesaugt. Damit ist mit diesem Gerät eine stabile Temperaturregelung im Bereich von 1.5 bis 300 K möglich.

Das maximal erreichbare Magnetfeld des VSM liegt bei  $\pm 5$  T und wird mittels supraleitenden Magnet erzeugt. Dieser Magnet wird mit flüssigem Helium gekühlt. Um übermäßigen Heliumverlust zu verhindern ist der Heliumtank von einer mit Stickstoff



(a)



(b)

Abbildung 2.1: Experimenteller Aufbau des VSM (Abb. (a)) und des SQUID Magnetometers (Abb. (b)).

gefüllten Isolierung, dem sogenannten Stickstoffmantel umgeben.

Die Signaldetektion basiert auf dem Induktionsgesetz und wird mithilfe von einer oszillierenden Probe und Pickupspulen realisiert. Das Induktionsgesetz lautet

$$U_{\text{ind}} = -\frac{d\Phi}{dt} \quad (2.1)$$

und besagt, dass eine Änderung des magnetischen Flusses  $\frac{d\Phi}{dt}$  innerhalb einer Spule eine Spannung  $U_{\text{ind}}$  induziert. Durch die Bewegung der Probe wird eine Flussänderung hervorgerufen und die entsprechend entstehende Spannung in der Spule ist dem magnetischen Moment, und damit der Magnetisierung der Probe proportional.

Die Probenoszillation wird mit einem an einen Treibermotor gekoppelten Probenstab realisiert, der die Probe mit einer vorgegebenen Frequenz und Amplitude entlang der  $z$ -Achse oszillieren lässt. Eine Besonderheit an diesem Gerät ist, dass nicht wie üblich, ein vertikal ausgerichteter Magnet das externe Feld erzeugt, sondern zwei getrennte, horizontal orientierte. Damit kann man die Orientierung des magnetischen Moments bestimmen. Dies ist durch das Vorhandensein zweier Spulenpaare möglich, welche das Signal einer Probe in jeweils einer Raumrichtung orthogonal zum Probenstab ( $x$ - und  $y$ -Achse) aufnehmen können. Neben der möglichen Bewegung entlang der  $z$ -Achse kann der Probenstab

um diese auch rotiert werden. Dies erlaubt winkelabhängige Messungen des magnetischen Moments. Im Zuge dieser Arbeit wurde das VSM aber nur für Messungen von  $m$  parallel zum angelegten Magnetfeld genutzt. Details zu dieser Messmethode sind in Abschnitt 2.3 zu finden.

## 2.2 SQUID Magnetometer

Der Großteil der experimentellen Arbeit wurde per SQUID Magnetometer<sup>1</sup> durchgeführt. Dabei handelt es sich um ein Gerät, das es erlaubt, magnetische Eigenschaften von Proben mit hoher Präzision zu bestimmen. Der dabei verfügbare Temperaturbereich im Probenraum liegt zwischen 1.9 und 400 K. Der mit flüssigem Helium gekühlte, supraleitende Magnet des gegebenen Modells ist dazu in der Lage, Magnetfelder bis zu  $\pm 7$  T zu erzeugen. Neben diesem Gerät wurde für Messungen der kritischen Temperaturen der Proben ein baugleiches Gerät genutzt, mit dem Unterschied, dass der dort vorhandene Magnet maximal Felder von  $\pm 1$  T erzeugen kann.

Die Temperaturregelung im Probenraum geschieht über das Wechselspiel eines Heizdrahtes mit der Ansaugleistung einer Vakuumpumpe. Die Pumpe erzeugt einen Unterdruck im Probenraum, wodurch flüssiges Helium durch eine Kapillare aus dem umliegenden Heliumreservoir angesaugt wird. Dieses Helium wird verdampft und mit dem entstehenden Gasstrom wird der Probenraum der gewünschten Temperatur ausgesetzt. Durch diese Kombination ist eine stabile Temperaturregelung möglich. Der Probenraum ist daher mit Heliumatmosphäre geflutet. Da Helium unter Normalbedingungen keine feste Phase ausbildet, ist es optimal als Schutzgas geeignet, da andere Gase bei den erreichbaren Temperaturen in eine feste Phase übergehen und Barrieren im Probenraum bilden würden.

Die Signalaufnahme wird über ein an ein SQUID gekoppeltes Gradiometer zweiter Ordnung realisiert. Dabei handelt es sich um eine Anordnung aus gegenläufigen Pickupspulen, welche dazu in der Lage ist, konstante Magnetfelder sowie magnetische Gradientenfelder aus dem Messsignal zu filtern, was zu einer Reduzierung störender Hintergrundsignale führt. Bei einem SQUID handelt es sich um einen supraleitenden Ring, womit Feldänderungen hoch präzise bestimmt werden können. Auf die Funktionsweise eines solchen Gerätes wird hier nicht genauer eingegangen.

Um das SQUID Magnetometer bzw. das VSM zu bedienen, wurden spezielle Messsequenzen mittels vorliegender Software geschrieben. Diese erlauben die Einstellung verschiedener Parameter, unter anderem die Temperatur im Probenraum, das Hintergrundfeld  $H_{bg}$  und angelegte Felder  $H_{ap}$  inklusive deren Schrittweite bei Erhöhung oder Verringerung. Die Möglichkeit verschiedene Messsequenzen aneinander zu reihen, erlaubt durchgehende Messvorgänge über mehrere Tage. Das obere Limit für die Länge durchgehender

---

<sup>1</sup>Bei dem verwendeten Gerät handelt es sich um ein MPMS-XL der Firma Quantum Design.

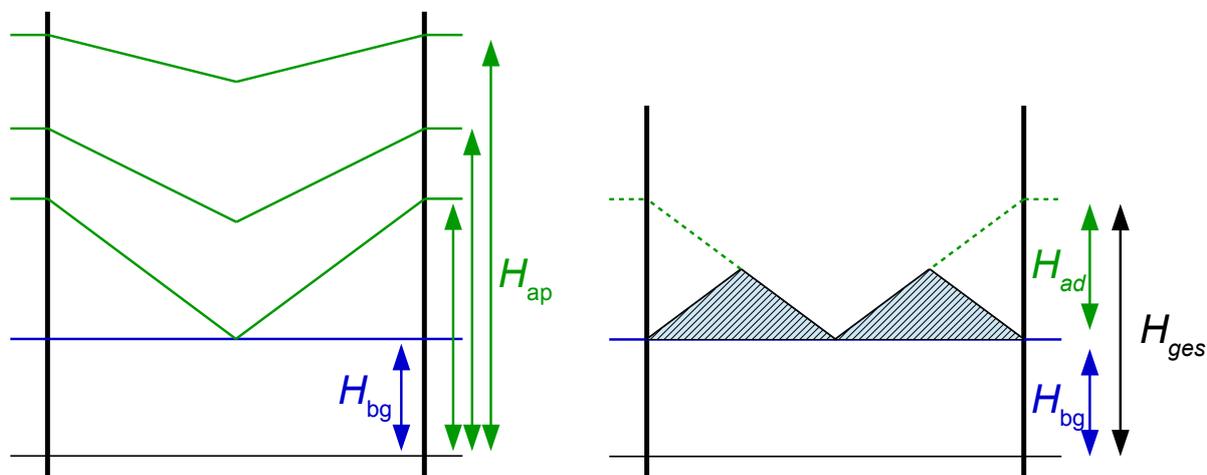
Messesequenzen wird durch das Heliumreservoir bestimmt, welches, je nach angewandter Messmethoden, in etwa alle drei Tage wieder gefüllt werden muss.

## 2.3 Experimentelle Details

Bevor weiter auf die experimentellen Methoden eingegangen wird, werden nun einige Begriffe, die im Verlauf dieser Arbeit oft verwendet werden, erklärt. Es wird oft von den Ausdrücken auf- und absteigende Äste Gebrauch gemacht. Diese beziehen sich auf die Änderung des äußeren Feldes. Ein aufsteigender Ast bezieht sich auf Messbedingungen, während denen das äußere Feld von null aus weggefahren wird. Analog dazu ist der Begriff absteigender Ast definiert, der sich auf das Zurückfahren des äußeren Feldes auf null bezieht. Diese Variation des äußeren Feldes wird mit dem Begriff Feldrampen beschrieben. Positive Feldrampen beschreiben Felderhöhungen, negative Feldverringerungen. Beim nächsten Begriff handelt es sich um das Feld  $H_{\text{bg}}$ , welches jenes Hintergrundfeld darstellt, dem die Probe ausgesetzt wird bevor sie unter ihre Sprungtemperatur gekühlt wird. Dieser Vorgang wird im Englischen als *field cooling* (fc) bezeichnet und wird im Laufe der Untersuchungen der Proben des Öfteren eingesetzt. Im Gegensatz zu fc gibt es auch einen Vorgang namens *zero field cooling* (zfc). Dabei wird die Probe im Nullfeld ( $\mu_0 H_{\text{bg}} = 0$ ) unter ihre kritische Temperatur gekühlt und erst anschließend daran die eigentliche Messesequenz durchgeführt. Um Verwirrungen zu vermeiden wird hier festgehalten, dass es sich bei der Angabe eines  $\mu_0 H_{\text{bg}} \neq 0$  immer um eine fc Messung handelt, sofern nicht ausdrücklich auf etwas anderes hingewiesen wird.

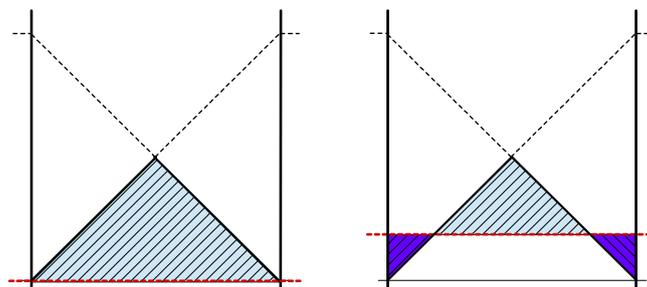
Was an dieser Stelle explizit betont wird, ist, dass die Vektorbezeichnung vieler Größen weggelassen wird, da im Allgemeinen nur eine einzelne Komponente dieser Größen relevant ist. Im Falle von positiven und negativen Feldern, die mit den Magneten der Magnetometer produziert werden, kommt es nur auf die räumliche Lage des Magneten und die Stromrichtung in seinem Inneren an. Diese Wortwahl dient nur der Beschreibung der relativen Feldänderungen. Wären alle Vorzeichen der Messesequenzen verkehrt, käme es zu physikalisch identen Ergebnissen. Der Begriff „Felder“ wird mit der Einheit „Tesla“ angegeben. Der Grund dafür liegt darin, dass versucht wurde nicht zu viele Begriffe in die Arbeit einfließen zu lassen. Obwohl die Geräte Flussdichten in der Einheit Tesla produzieren, wird oft mit dem Begriff Feld darauf referenziert. Die Klarstellung an dieser Stelle soll das spätere Auftreten von Missverständnissen vermeiden. Im Allgemeinen sollen Felder gleichbedeutend mit  $\mu_0 H$  gesehen werden.

Wie oben angeführt, wurde das VSM für Magnetisierungsmessungen und ausschließlich bei  $\mu_0 H_{\text{bg}} = 0$  T genutzt. Bei diesen Messungen wird, beginnend beim Nullfeld, das extern angelegte Feld  $H_{\text{ap}}$  kontinuierlich erhöht. Ist ein bestimmtes Maximalfeld  $H_{\text{max},1}$  erreicht, wird das Feld wieder reduziert und mit wechselnden Vorzeichen zu  $H_{\text{max},2}$  gefahren. Allgemein gilt dabei  $|H_{\text{max},i}| < |H_{\text{max},i+1}|$ . Bei der letzten Messschleife mit  $H_{\text{max},n} = 5$  T wird



(a) Schematische Darstellung von Feldprofilen im ansteigenden Feld  $H_{ap}$  während einer Schleifenmessung. Es sei angemerkt, dass die beteiligten Felder in dieser Abbildung größer als  $H^*$  sein müssen, damit die ganze Probe von magnetischen Fluss durchdrungen ist.

(b) Bei der Messung der remanenten Magnetisierung (schraffierter Bereich) wird ein Feld  $H_{ap}$  angelegt und anschließend wieder auf  $H_{bg}$  reduziert bevor ein Messpunkt aufgenommen wird.



(c) Die rote Linie markiert das Nullfeld. Der schraffierte Bereich oberhalb der Nulllinie stellt Flusslinien dar, deren Feldlinien nach oben orientiert sind. Jene Bereiche unterhalb zeichnen sich durch Flusslinien aus, deren Feldlinien nach unten orientiert sind.

Abbildung 2.2: Schematische Darstellungen der angewandten Messmethoden anhand einer zylindrischen Probe im vertikalen Schnitt. Die Größen  $H_{ap}$  und  $H_{bg}$  stehen für das angelegte Feld sowie jenes Feld, das als Hintergrundfeld definiert wurde. Die Höhe der schraffierten Flächen korrespondiert mit der Flussliniendichte in den entsprechenden Bereichen.

das Feld je nach Bedarf bis 0 T oder weiter reduziert. Der Index  $i$  steht für eine einzelne Messung und der Index  $n$  für die Anzahl aller Messungen einer Messsequenz. Während dieser kontinuierlichen Feldvariation werden in regelmäßigen Abständen Messungen des magnetischen Moments vorgenommen. Eine solche Messung ist z.B. in Abbildung 3.1 in Abschnitt 3.1.1 zu sehen. Die Messergebnisse des VSM wurden genutzt, um das prinzipielle magnetische Verhalten zu bestimmen. Messungen mit höherer Genauigkeit wurden mit dem SQUID Magnetometer durchgeführt.

Im SQUID wurden grundsätzlich zwei verschiedene Messmethoden angewandt um das magnetische Verhalten der Proben zu untersuchen. Um die Übersicht zu bewahren, werden diese nacheinander abgehandelt. Die erste Messmethode ist den Magnetisierungsmessungen, wie sie im VSM durchgeführt werden, sehr ähnlich. Hier werden die magnetischen Eigenschaften im variablen äußeren Feld untersucht. Diese Messungen lassen sich weiter bezüglich zu- und abnehmendem äußeren Feld unterteilen. Im zunehmenden Feld wurden bei diversen  $\mu_0 H_{bg}$  Messungen gestartet und das externe Feld bis auf 7 T erhöht. Bei der Auswertung wurden mithilfe dieser Kurven Abschätzungen von  $\mu_0 H^*$  der jeweiligen Proben durchgeführt. Mithilfe der Referenzkurve bei  $\mu_0 H_{bg} = 0$  wurde bei den übrigen Messkurven überprüft, welche Felderhöhung für eine Überlappung der Kurven notwendig ist. Da die Form der Messkurve vom Feldprofil innerhalb der Proben abhängt, wird angenommen, dass die Feldprofile der jeweiligen Messkurven dann ident zu jenen der Referenzkurve sind. Ist das der Fall, besteht ein vollständiges ausgebildetes Feldprofil innerhalb der Probe und lässt so eine Abschätzung von  $\mu_0 H^*$  zu.

Mehrere dieser  $fc$  Messungen sind z.B. in Abbildung 3.2 in Abschnitt 3.1.2 zu sehen. Wie sich im Zuge der Auswertung zeigen wird, ist die nach dem Bean Modell vorgeschlagene konstante kritische Stromdichte keineswegs feldunabhängig. Trotzdem dient dieses Modell als Grundlage für die Beschreibung der Messdaten und wird an dieser Stelle modifiziert. Anhand eines Einkristalls lässt sich diese Beobachtung leicht erklären. Nach vollständiger Penetration des Materials mit magnetischem Fluss ( $H_{ap} > H^*$ ) zeigt sich bei höher werdenden äußeren Feldern eine Signalreduktion, was der Abflachung des Feldprofils und damit einer Reduktion des kritischen Stromes entspricht. Diese Entwicklung ist in Abbildung 2.2(a) schematisch dargestellt. Außerdem ist auch ein Hintergrundfeld  $H_{bg}$  eingezeichnet, welches weiter oben erläutert wurde. Dieses Verhalten gilt auch in umgekehrter Richtung, also eine Zunahme des Feldgradienten im abnehmenden Feld. Mit den Bezeichnungen an- und absteigende Felder wird in diesem Fall auf den Absolutwert von  $H_{ap}$  Bezug genommen. Abbildung 2.2(c) soll verdeutlichen, dass die unterschiedlich schraffierten Bereiche unterschiedlich ausgeprägte Richtungen der Felder der eingedrungenen Flusslinien aufweisen.

Eine weitere Methode  $H^*$  zu bestimmen, ist, die magnetischen Eigenschaften der Proben im abnehmenden Feld zu messen. Dabei wurden für die verschiedenen Messsequenzen diverse obere Felder  $H_{max}$  gewählt und das externe Feld anschließend reduziert. Hier las-

sen sich wieder zwei Fälle hinsichtlich der Startbedingungen der Messungen unterscheiden, nämlich fc und zfc-Bedingungen. Wird eine Probe unter fc-Bedingungen gemessen, wird erstmalig ein Feldprofil im Laufe der Messung aufgebaut. Es wird also eine Feldabnahme von  $\mu_0 H^*$  benötigt, um nach dem Bean Modell ein vollständiges Feldprofil innerhalb der Probe aufzubauen. Die Messungen unter zfc-Bedingungen lassen sich zum Verständnis als Fortsetzung der Messungen im ansteigenden Feld sehen. Die Proben werden im Nullfeld auf die Messtemperatur gekühlt und dann dem entsprechenden  $H_{\max}$  ausgesetzt. Dabei wird ein vollständiges Feldprofil aufgebaut. Daher muss in diesem Fall das externe Feld um den doppelten Wert von  $\mu_0 H^*$  reduziert werden, um ein vollständiges Feldprofil in umgekehrter Richtung aufzubauen, da das vorhandene erst invertiert werden muss. Um sich eine Vorstellung solcher Messkurven zu machen, ist hier auf Abbildung 3.3(a) in Abschnitt 3.1.2 verwiesen.

Neben den Magnetisierungsmessungen wurden mit dem SQUID Magnetometer sehr zentrale Messungen des remanenten magnetischen Moments  $m_r$  durchgeführt. Diese Messungen stellen einen weiteren Zugang bei der Untersuchung der vorliegenden Probe dar und werden dazu genutzt, um das Auftreten kritischer Ströme in inter- und intragranularen Bereichen separat zu untersuchen. Dazu wird die Probe zusätzlich zu einem vorher gewählten konstanten Hintergrundfeld  $H_{bg}$  einem Feld  $H_{ad}$  ausgesetzt, sodass ein Gesamtfeld  $H_{ges}$  auf die Probe wirkt:

$$H_{ges} = H_{bg} + H_{ad}. \quad (2.2)$$

Danach wird  $H_{ges}$  wieder auf den Wert von  $H_{bg}$  reduziert und das magnetische Moment aufgezeichnet. Im nächsten Schritt wird  $H_{ad}$  nochmals auf einen noch höheren Wert als zuvor erhöht und das Prozedere wird wiederholt. Dabei folgt man folgendem Schema:

$$H_{bg} \rightarrow H_{ges,1} \rightarrow H_{bg} \rightarrow H_{ges,2} \rightarrow \dots \rightarrow H_{ges,n} \rightarrow H_{bg}, \quad (2.3)$$

wobei

$$H_{ges,i} < H_{ges,i+1} \quad (2.4)$$

gültig ist. Abbildung 2.2(b) zeigt eine schematische Darstellung dieser Methode. Um diese gesammelten Informationen dieser Messungen grafisch aufzubereiten, wurden die Messsignale des remanenten magnetischen Moments  $m_r$  gegenüber dem zuvor angelegten Magnetfeld  $\mu_0 H_{ges}$ , und nicht gegenüber  $\mu_0 H_{bg}$ , aufgetragen. Abbildung 2.3 zeigt zwei Beispielmesskurven des remanenten magnetischen Moments. Die Messkurven sind gegenüber  $\mu_0 H_{ad}$  (blau) bzw.  $\mu_0 H_{bg}$  (rot) aufgetragen. Man kann anhand der blauen Messkurve den entsprechenden Verlauf von  $m_r$  visualisieren und physikalische Rückschlüsse ziehen. Die Messdaten der roten Messkurve sind in der Grafik alle übereinander und liefern keinerlei verwertbaren Informationen zu  $m_r$ .

Bei den Messungen des magnetischen Moments (nicht des remanenten magnetischen

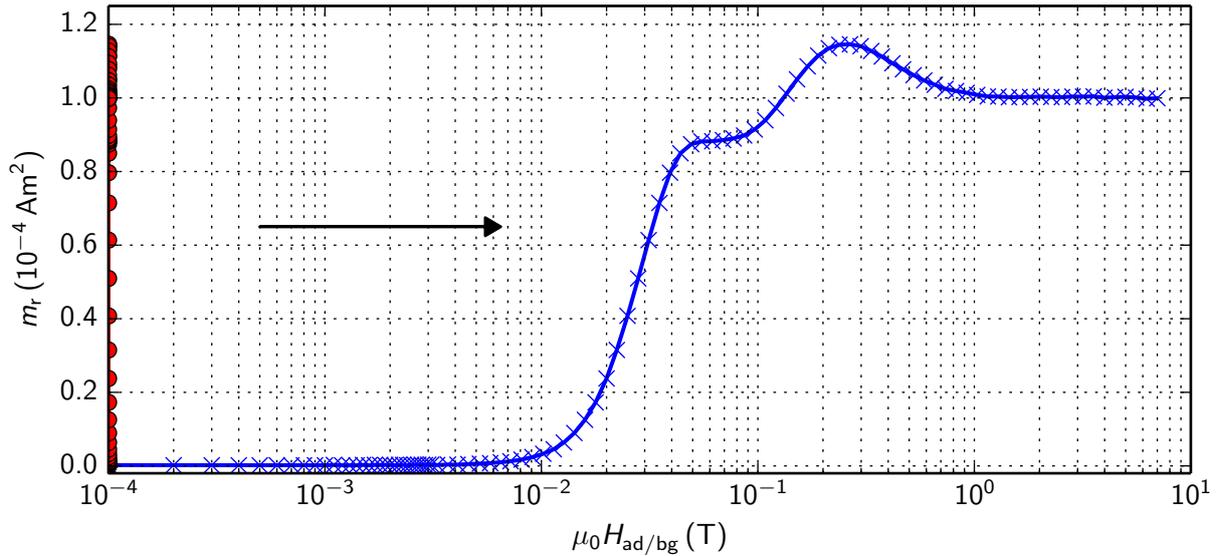


Abbildung 2.3: Beispielhafter Datensatz einer Messung des remanenten magnetischen Moments. Die roten Messpunkte zeigen das remanente magnetische Moment gegenüber dem Kühlfeld  $\mu_0 H_{bg}$ , die blauen gegenüber dem zuvor zusätzlich zu  $\mu_0 H_{bg}$  angelegten Feld  $\mu_0 H_{ad}$ .

Moments!) im VSM und im SQUID Magnetometer wurden für die Proben Korrekturen des Messsignals durchgeführt<sup>2</sup>. Diese Maßnahme dient dazu, eventuelle para- oder ferromagnetische Beiträge zum Signal zu entfernen. Dazu wurde folgendermaßen vorgegangen:

Ferro- oder paramagnetische Hintergrundsignale bei Messungen dieser Art werden üblicherweise mithilfe von an Messdaten angepassten Kurven korrigiert, welche bei einer Temperatur  $T > T_c$  gesammelt wurden. Auf diese Art kann der nicht supraleitende Beitrag zur Magnetisierung einer Probe sowie anderer magnetischer Materialien (z.B. Probenstab oder Verunreinigungen) bestimmt und von den ursprünglichen Messdaten abgezogen werden. Dabei wurde eine Ausgleichskurve  $K(a, b, c, \mu_0 H_{ap})$  der Form

$$K(a, b, c, \mu_0 H_{ad}) = a \cdot \tanh(b \cdot \mu_0 H_{ad}) + c \cdot \mu_0 H_{ad} \quad (2.5)$$

verwendet.  $H_{ad}$  stellt das äußere Feld dar und ist somit der variable Parameter. Die Größen  $a$ ,  $b$  und  $c$  sind Parameter der Kurvenanpassung und werden mithilfe eines Computerprogrammes numerisch bestimmt. Die resultierende Kurve ist eine Superposition der Winkelfunktion  $\tanh(b \cdot \mu_0 H_{ad})$  und eines linearen Anteils. Bei kleinen Feldern bestimmt normalerweise die Winkelfunktion das Verhalten, wohingegen der lineare Anteil erst bei größeren Feldern relevant wird. Für präzisere Anpassungen kann man den Ausdruck (2.5) für  $K(a, b, c, \mu_0 H_{ad})$  mit Termen höherer Ordnung in  $\mu_0 H_{ad}$  modifizieren. Für den vorliegenden Fall ist die Genauigkeit der Anpassung von Formel (2.5) an die gesammelten Daten ausreichend.

<sup>2</sup>Diese Korrekturen wurden mit Ausnahme der Proben Co-20 und Co-1 für alle Materialien durchgeführt.

Abschließend für diesen Abschnitt werden die essentiellen Informationen, die der Leser aus diesem Abschnitt mitnehmen sollte, noch einmal wiederholt. Bei den Messungen mit dem VSM handelt es sich ausschließlich um Magnetisierungsmessungen, welche dazu dienen einen prinzipiellen Überblick des magnetischen Verhaltens der Probe zu erhalten, da dieses Messgerät dazu in der Lage ist, sehr zeiteffizient zu messen. Mit dem SQUID wurden zwei verschiedene Messmethoden angewandt. Mit der ersten Methode wurden magnetische Eigenschaften im variablen Feld gemessen, wobei hier auf die Unterscheidung zwischen fc- und zfc-Messungen zu achten ist. Die zweite Methode lässt die Bestimmung des remanenten magnetischen Moments zu, indem ein Feld auf  $\mu_0 H_{\text{ges}}$  erhöht und anschließend wieder auf das Hintergrundfeld  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  reduziert wird. In Abbildung 2.2 ist das prinzipielle Vorgehen bei Magnetisierungsschleifen und Messungen des remanenten magnetischen Moments schematisch dargestellt.

### 2.3.1 Bestimmung der kritischen Temperatur

Die kritische Temperatur  $T_c$  der Proben wurde mithilfe des 1 T SQUID Magnetometers bestimmt. Dazu wurden Wechselfeld- bzw. AC-Messungen der magnetischen Suszeptibilität bei verschiedenen Temperaturen durchgeführt, bei denen ein konstantes Feld von oszillierenden Wechselfeldern im Bereich einiger Oersted überlagert wird. Für die Berechnung von  $\chi$  nach

$$\chi = \frac{M}{H} = \mu_0 \frac{m}{VB} \quad (2.6)$$

ist neben dem Messparameter der Feldamplitude  $B$  und dem magnetischen Moment eine möglichst exakte Bestimmung der Probengeometrie notwendig.

Für  $T < T_c$  befindet sich die Probe im supraleitenden Zustand. Die von der Probe generierten Abschirmströme erzeugen ein Signal, welches von den Pickup-Spulen des Messsystems aufgenommen wird. Befindet sich die Probe nicht mehr in der supraleitenden Phase ( $T > T_c$ ) bilden sich keine Abschirmströme mehr aus und es wird kein supraleitendes Signal mehr gemessen. Dieser Übergang von supra- in normalleitende Phase ist je nach Probe unterschiedlich scharf ausgeprägt. Entsprechend lassen sich, je nach  $T_c$ -Kriterium, unterschiedliche kritische Temperaturen bestimmen.

### 2.3.2 Bestimmung kritischer Stromdichten

Ein sehr zentraler Punkt bei der Beschreibung von supraleitenden Materialien ist die Abschätzung ihrer kritischen Stromdichte. Dieser Parameter ist sowohl in der Wissenschaft, als auch im technischen Gebrauch unter anderem ausschlaggebend für die Qualität und Leistungsfähigkeit eines Supraleiters. Daher werden an dieser Stelle zwei Möglichkeiten vorgestellt, mit denen eine einfache Abschätzung der kritischen Stromdichte anhand von Magnetometriemessungen durchgeführt werden können.

Ein sehr einfacher Zugang zur Bestimmung des kritischen Stromes eines Supraleiters wird durch das Bean Modell ermöglicht. Anhand eines Einkristalls kann man nach Abbildung 1.5(a) in Abschnitt 1.2 eine Relation zwischen dem kritischen Strom,  $H^*$  bzw.  $B^*$  und dem Radius  $d$  (bzw.  $D$  als Durchmesser (vgl. Abb. 1.5)) des Materials aufstellen:

$$j_c = \frac{H^*}{d} = \frac{\mu_0 H^*}{\mu_0 d} = \frac{B^*}{\mu_0 d}, \quad (2.7)$$

wobei

$$d = \frac{D}{2} \quad (2.8)$$

gilt. Mit der Bestimmung von  $B^{*,P}$  bzw.  $B^{*,K}$  sowie dem entsprechenden Radius für Probe  $d_P$  oder Korn  $d_K$  lassen sich nach diesem Modell sehr einfache Abschätzungen des kritischen Proben- bzw. Kornstromes ( $j_c^P$  bzw.  $j_c^K$ ) durchführen.

Eine weitere und präzisere Methode den kritischen Strom abzuschätzen, wird über die Bestimmung des remanenten Moments  $m_r$  ermöglicht. Um diesen Zusammenhang zu verstehen, ist eine kurze Herleitung notwendig. Für die Berechnung der Magnetisierung  $M$  benötigt man den Mittelwert der Flussdichte  $B$  innerhalb einer Probe. Für die nachfolgende Rechnung wird von einer Probe mit rechteckiger Grundfläche mit den Seitenlängen  $a$  und  $b$  ausgegangen, wobei  $a \geq b$  gilt (vgl. Abbildung 2.4). Das „Volumen“  $V_{\text{Fluss}}$  eines solchen Körpers setzt sich aus einer Pyramide mit quadratischer Grundfläche (erster Term in Formel (2.9)) sowie einer Form die einem Giebeldach ähnelt (zweiter Term in Formel (2.9)), zusammen. Mathematisch ausgedrückt ergibt sich für das  $V_{\text{Fluss}}$ :

$$V_{\text{Fluss}} = \frac{b^2 \cdot H^*}{3} + \frac{(a-b) \cdot b \cdot H^*}{2} = \frac{a \cdot b \cdot H^*}{2} - \frac{b^2 \cdot H^*}{6} = \frac{(3 \cdot a - b) \cdot b \cdot H^*}{6} \quad (2.9)$$

Um auf den Mittelwert der Flussverteilung zu kommen, muss diese Größe durch die Grundfläche  $a \cdot b$  des Körpers dividiert werden. Die Magnetisierung ergibt sich also zu

$$M = \frac{V_{\text{Fluss}}}{a \cdot b} = \frac{(3 \cdot a - b) \cdot b \cdot H^*}{6 \cdot a \cdot b} = \frac{(3 \cdot a - b) \cdot H^*}{6 \cdot a}. \quad (2.10)$$

Ersetzt man  $H^*$  in Formel 2.10 mit folgender Relation:

$$H^* = j_c \cdot \frac{b}{2} \quad (2.11)$$

und formt das Resultat anschließend um, erhält man

$$M = \frac{(3 \cdot a - b) \cdot b \cdot j_c}{12 \cdot a} = \frac{(1 - \frac{b}{3 \cdot a}) \cdot b \cdot j_c}{4}. \quad (2.12)$$

Drückt man aus Formel (2.12)  $j_c$  aus und ersetzt die Magnetisierung durch folgende

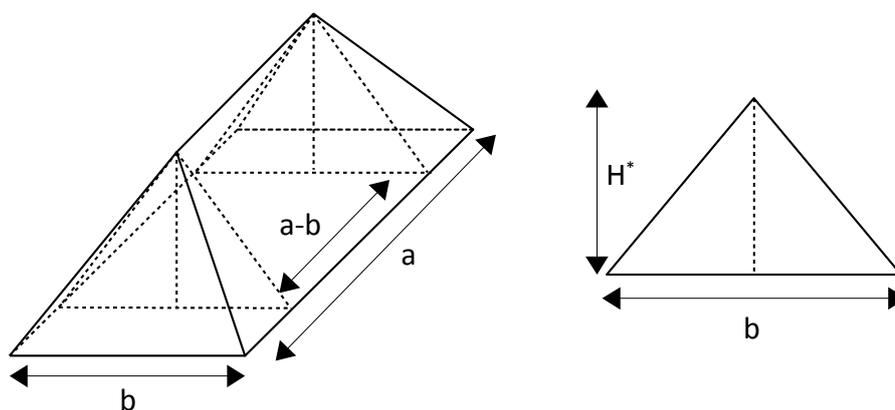


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung eines Feldprofils für die Herleitung eines Ausdrucks für  $j_c$ .

Relation:

$$M_{\text{irr}} = \frac{m_{\text{irr}}}{V_{\text{Probe}}}, \quad (2.13)$$

erhält man einen Ausdruck, mit welchem man mit Kenntnis der Probengeometrie sowie Messungen des irreversiblen magnetischen Moments auf die Stromdichte  $j_c$  schließen kann:

$$j_c = \frac{m_{\text{irr}}}{V_{\text{Probe}}} \cdot \frac{4}{\left(1 - \frac{b}{3a}\right) \cdot b}. \quad (2.14)$$

Im Gegensatz zur einfachen Relation (2.7) geht in Formel (2.14) die gesamte Geometrie der Probe ein.

Die Kalium dotierten Proben wurden vor ihrer Auslieferung quaderförmig zurecht geschnitten. Die Höhe  $c$  ist klein gegen die Seitenlängen. Die Kobalt dotierten Proben wurden in Form zylindrischer Pellets mit einem Durchmesser von etwa einem Zentimeter und einer Höhe von einigen Millimetern ausgeliefert. Da diese Abmessungen deutlich zu groß sind, um sie mit den verwendeten Messgeräten zu untersuchen, mussten zuerst passende Probenstücke zurecht geschnitten werden. Dies wurde mit einer scharfen Klinge durchgeführt, während versucht wurde, eine möglichst rechteckige Grundfläche zu erzeugen. Für die Bestimmung der Kornströme anhand von remanenten magnetischen Momenten sind zusätzliche Überlegungen notwendig, auf die in dieser Arbeit nicht weiter eingegangen wird. In den entsprechenden Abschnitten werden die Werte für die kritischen Kornströme nach dieser Methode der Einfachheit halber nur aufgelistet und entsprechende Schlussfolgerungen gezogen.

An dieser Stelle sei erwähnt, dass die Kobalt dotierten Materialien schon während des Zurechtschneidens von passenden Proben äußerst poröse Eigenschaften aufwiesen. Dies

führte gerade bei den Flächen orthogonal zur c-Achse zu unebenen Verhältnissen. Im Verlauf der Untersuchung der magnetischen Eigenschaften splitterte im Speziellen von Probe Co-5 ein kleines Stück Material ab. Es ist nicht auszuschließen, dass es sowohl vor diesem Vorfall bei dieser Probe als auch bei den anderen beiden Kobalt dotierten Proben zu ähnlichen Vorkommnissen kam. Daher handelt es sich bei den Abmessungen um Abschätzungen, die dem geometrischen Ideal eines Quaders am nächsten kommen sollen.

## 2.4 Grundlegende Probeneigenschaften

Bei den für diese Arbeit untersuchten Proben handelt es sich um polykristalline, auf Eisen basierende Supraleiter der Ba122 Familie mit zwei verschiedenen Dotierungen (Kalium und Kobalt) und unterschiedlichen Korngrößen. Beide Probentypen wurden im Zuge einer Kollaboration der TU Wien, der Florida State University und der University of Tokyo zur Vermessung ihrer magnetischen Eigenschaften zur Verfügung gestellt.

Die Kalium dotierten Proben wurden von J. D. Weiss in der Arbeitsgruppe *Applied Superconductivity Center* an der *Florida State University* in Tallahassee, USA, synthetisiert. Es wurden zwei Proben untersucht, die unterschiedliche Korngrößen aufweisen. Drei mit Kobalt dotierte Proben stammen aus der *University of Tokyo* in Japan und wurden von Y. Hayashi hergestellt. Auch diese besitzen unterschiedliche Korngrößen. In den folgenden Unterabschnitten wird auf verschiedene Charakteristika der gelieferten Materialien eingegangen. In Tabelle 2.1 findet sich neben anderen Informationen, auf die erst in den folgenden Abschnitten eingegangen wird, eine Auflistung der Namen der vorliegenden Proben. Die Namensgebung wurde so gewählt, dass sowohl die Dotierung als auch die jeweiligen Korngrößen in den Probenbezeichnungen enthalten sind. Beispielsweise trägt die Kalium dotierte Probe mit einer durchschnittlichen Korngröße von  $3 \mu\text{m}$  die Bezeichnung K-3.

### 2.4.1 Kritische Temperatur

Abbildung 2.5 zeigt eine Visualisierung aller  $T_c$ -Messungen der behandelten Proben. Dabei ist die Suszeptibilität  $\chi = \frac{dM}{dH}$  gegenüber der Temperatur in Kelvin aufgetragen. Wie erwartet zeigen die Kalium dotierten Vertreter der Ba122 Familie eine deutlich höhere Übergangstemperatur als jene der Kobalt dotierten Proben. Außerdem ist zu sehen, dass die Kobalt dotierte Probe Co-20 den anderen Proben gegenüber ein deutliches feldverstärkendes Signal im normalleitenden Zustand aufweist. Nach [9] könnte der Ursprung dieses Verhaltens in ferromagnetischen FeAs Phasen liegen. In Tabelle 2.1 sind die kritischen Temperaturen der untersuchten Proben aufgelistet, die mit dem sogenannten Onset-Kriterium bestimmt wurden. Dabei wird jene Temperatur als  $T_c$  gewählt, bei der

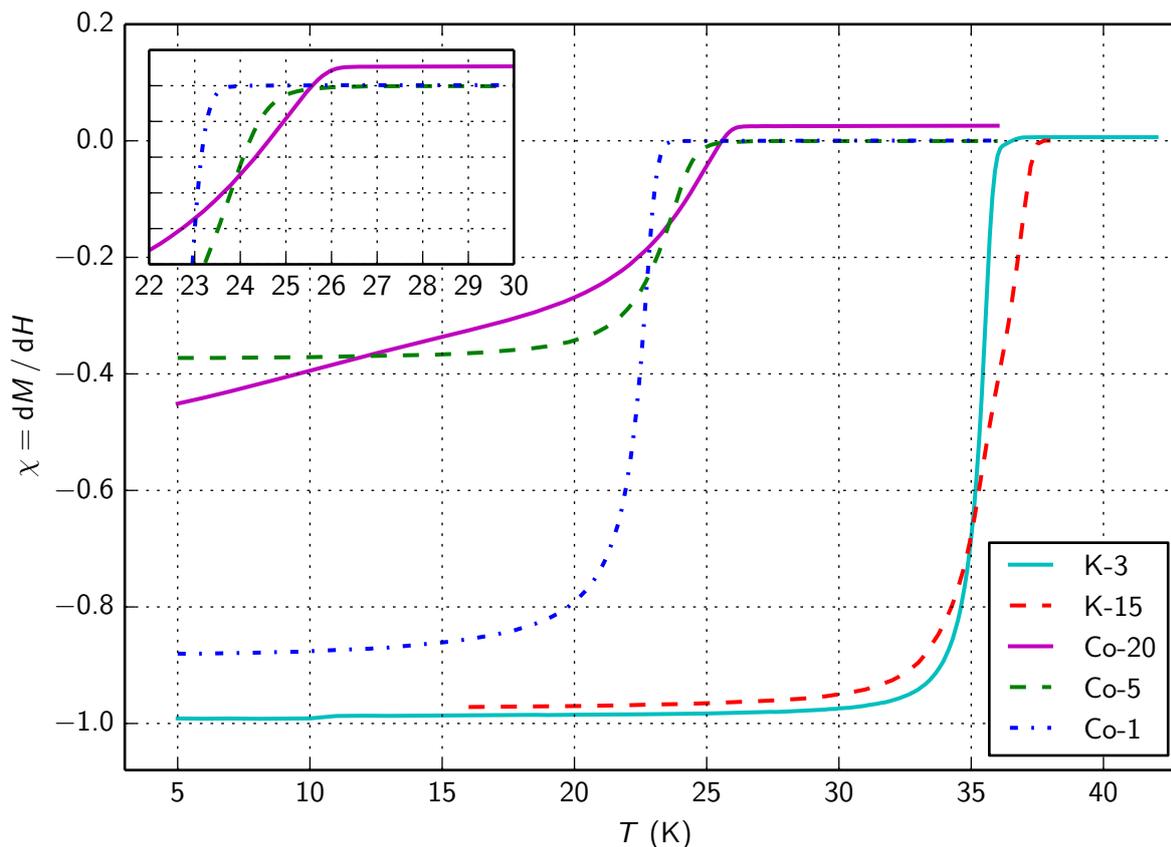


Abbildung 2.5: Verlauf der magnetischen Suszeptibilitäten  $\chi$  aller Proben bei variabler Temperatur. Die entsprechenden Messungen wurden mit einem SQUID Magnetometer durchgeführt.

das Signal der Proben bei kleiner werdenden Temperaturen erstmals Abweichungen vom Ausgangssignal des nicht supraleitenden Zustandes zeigt.

Zusätzlich zu  $T_c$  lässt sich anhand von Abbildung 2.5 auch die Qualität der Proben ablesen. Die Kalium dotierten Proben weisen ein  $\chi$  nahe bei -1 auf, wohingegen die Kobalt dotierten Proben Co-20 und Co-5 deutlich schlechtere Werte ( $\chi_{\text{Co-20}} \approx -0.45$ ,  $\chi_{\text{Co-5}} \approx -0.38$ ) besitzen. Allein Probe Co-1 ist mit  $\chi \approx -0.9$  von diesem Standpunkt aus von annehmbarer Qualität. Für die Auswertung der vorliegenden Messreihen wurde der in Unterabschnitt 1.3 eingeführte Entmagnetisierungsfaktor  $D$  miteinbezogen (siehe Tab. 2.1).

## 2.4.2 Bestimmung der Korngrößen

Für diese Arbeit ist es entscheidend, die Korngrößen der Proben und damit korrelierte magnetische Eigenschaften der Proben zu bestimmen. Wie sich im Laufe der Beschreibung der Proben zeigen wird, hängt deren magnetisches Verhalten stark von deren Korngröße ab. Die Korngrößen der Kobalt dotierten Proben sind nach den Spezifikationen der Tokio Universität in Tabelle 2.1 zu finden. An dieser Stelle sei erwähnt, dass die Korngrößen

Tabelle 2.1: Übersicht über die durchschnittlichen Korngrößen, die kritischen Temperaturen  $T_c$ , die Seitenlängen  $a$  und  $b$  sowie die Höhe  $c$  und den Entmagnetisierungsfaktor  $D$  der untersuchten Proben.

Probe	Dotierung	Korngröße ( $\mu\text{m}$ )	$T_c$ (K)	$a \times b \times c$ ( $\text{mm}^3$ )	$D$
K-3	Kalium	3	36.95	$1.95 \times 1.98 \times 0.53$	0.69
K-15		15	37.73	$1.92 \times 1.95 \times 0.58$	0.68
Co-1	Kobalt	1	23.84	$0.96 \times 1.37 \times 0.35$	0.48
Co-5		5	26.57	$1.21 \times 1.59 \times 0.79$	0.55
Co-20		20	26.33	$1.29 \times 1.69 \times 0.41$	0.67

nicht direkt gemessen, sondern anhand anderer Proben, die demselben Herstellungsprozess unterliegen, bestimmt wurden<sup>3</sup>. Der Grund dafür liegt darin, dass die dortigen Mitarbeiter der Tokio Universität die Oberflächenstruktur der Proben via Elektronenmikroskopie untersuchen. Diese Methode führt zu Strahlungsschäden an den zu analysierenden Proben und kann deren supraleitende Eigenschaften beeinträchtigen.

Um die Korngrößen der Proben vor Ort zu bestimmen, wurden zwei verschiedene Ansätze verfolgt. Eine Methode besteht darin, polierte Oberflächen der verschiedenen Materialien via Polarisationsmikroskopie zu untersuchen. Dazu mussten die Proben allerdings erst präpariert werden. Der zweite Ansatz besteht darin, mithilfe von Magnetisierungsmessungen auf die Korngrößen zu schließen. Details folgen in den nächsten beiden Abschnitten.

### 2.4.3 Vermessung der Korngeometrie per Polarisationsmikroskop

Eine visuelle Methode zur Bestimmung der Korngröße ist die Untersuchung der Probeneroberfläche mit einem Polarisationsmikroskop. Dazu ist eine möglichst glatte Oberfläche der Probe notwendig. Um diese mithilfe einer Poliermaschine zu erzeugen, mussten die Proben vorher entsprechend präpariert werden. Da die zurecht geschnittenen Proben für eine gründliche Oberflächenbehandlung zu klein sind (siehe Abmessungen der Proben in Tab. 2.1), wurden sie in Epoxidharz eingegossen. Dies hat die Vorteile, dass das Eingießen eine Hülle für die Proben sowie eine größere Oberfläche geschaffen hat, was die Handhabung erheblich erleichtert. Eine möglichst quadratische Grundfläche wurde ausgewählt und mithilfe einer Diamantpaste (der Korndurchmesser des Granulats ist mit  $3 \mu\text{m}$  angegeben) glatt poliert. Dabei war darauf zu achten, gleichmäßigen Druck auf die Probe auszuüben, um eine möglichst ebene Fläche zu schaffen. Die polierte Fläche wurde anschließend per Polarisationsmikroskop untersucht und bei geeigneter Vergrößerung fotografiert. Danach wurde bei gleicher Vergrößerung ein Maßstab abgelichtet, um damit

<sup>3</sup>Details zum Herstellungsprozess dieser Materialien finden sich in [9].

die Korngrößen abzuschätzen.

Diese Methode konnte allerdings nur bei den Kalium dotierten Proben erfolgreich durchgeführt werden, da es bei den Kobalt dotierten Proben zu Problemen bei der Präparierung kam. Während des Schleifens der Probenoberflächen lösten sich aufgrund der Porosität des Materials regelmäßig Probenstücke ab, sodass es nicht möglich war, eine glatte Oberfläche zu erzeugen.

Abbildung (2.7) zeigt einige Beispielaufnahmen, die mithilfe einer Spiegelreflexkamera und dem Polarisationsmikroskop aufgenommen wurden. In den Abbildungen (a) und (b) ist der selbe Oberflächenausschnitt der Probe K-3 zu sehen, jedoch mit unterschiedlicher Einstellung des Polarisationsfilters. Auf diese Art können einzelne Körner sehr gut sichtbar gemacht werden. Die Abbildungen (c) und (d) zeigen nach derselben Methode Oberflächenausschnitte der Probe K-15. In allen vier Abbildungen ist ein entsprechender Maßstab zu sehen. Außerdem wurden einige Körner markiert, um ihre Identifikation mit einem Vergleich jeweils beider Aufnahmen zu erleichtern.

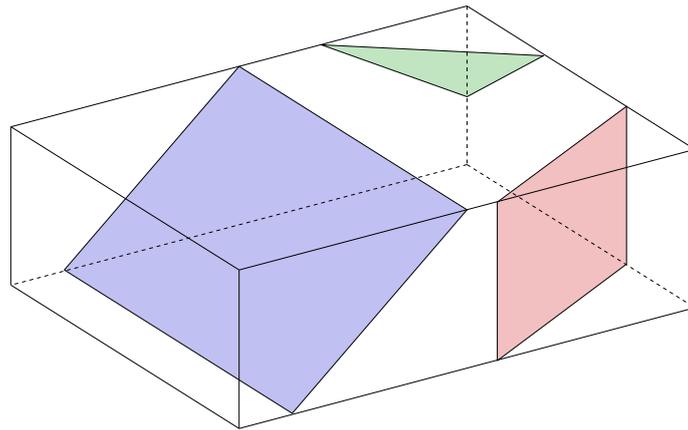
Es ist anzumerken, dass es gerade in den Randbereichen der Aufnahmen zu Verzerrungen und schlechter Ausleuchtung kommt. Dies liegt daran, dass die Beleuchtung des Polarisationsmikroskops nicht optimal ausgerichtet ist. Unter der Annahme einer isotropen Kornverteilung wurde eine Abschätzung des Korndurchmessers bzw. -radius durch Auswertung der getätigten Aufnahmen durchgeführt. Dafür wurden die Fotografien in das Programm GIMP 2<sup>4</sup> geladen und die Probengeometrien sowie die Größe des realen Maßstabes mithilfe eines digitalen Maßstabes vermessen. Dabei wurde mittels einfacher Schlussrechnung von der Anzahl der Pixel (px) der jeweiligen Längen auf die Geometrien der Proben in Millimeter geschlossen:

$$\frac{d_{\text{Korn}}(\text{px})}{d_{\text{Korn}}(\text{mm})} = \frac{d_{\text{Maßstab}}(\text{px})}{d_{\text{Maßstab}}(\text{mm})} \rightarrow d_{\text{Korn}}(\text{mm}) = \frac{d_{\text{Korn}}(\text{px}) \cdot d_{\text{Maßstab}}(\text{mm})}{d_{\text{Maßstab}}(\text{px})}. \quad (2.15)$$

Es sei angemerkt, dass es sich bei der Bestimmung der Korngrößen um eine äußerst grobe Abschätzung handelt, da die Körner in den Proben im Allgemeinen eine statistische Größenverteilung aufweisen. Aufgrund der limitierten Vergrößerung des Mikroskops sind kleinere Körner nicht sichtbar. Weiters stellt die zufällige Orientierung der Körner eine Unsicherheit dar. Ist die Schnittebene nicht parallel zu einer der Kristallachsen  $a$ ,  $b$  oder  $c$  eines Kornes, kommt es zu einer Verzerrung der Korngeometrien (vgl. Abbildung 2.6(a)).

In den Abbildungen 2.7 (a)-(d) ist eine Vielzahl an Körnern zu sehen, die sich in ihrer Größe deutlich unterscheiden. Es wurde daher versucht, mithilfe der größeren Körner eine vernünftige obere Grenze der Korngrößen abzuschätzen. In Tabelle 2.1 sind die ermittelten oberen Grenzen der Durchmesser  $D_K$  aller Proben zusammengefasst. Abschließend sei nochmals festgehalten, dass nur die Kalium dotierten Proben auf diese Art untersucht

<sup>4</sup>Die aufgenommenen Bilder wurden mittels GIMP 2, GNU Image Manipulation Program ausgewertet (<http://www.gimp.org/>).



(a)

Abbildung 2.6: Schematische Darstellung von verschiedenen Schnittebenen durch ein Korn. Das Korn wurde der Einfachheit halber als Quader gewählt. Die Abhängigkeit der Flächeninhalte von den möglichen Schnittebenen ist farblich dargestellt.

werden konnten. Die durchschnittlichen Korngrößen der Kobalt dotierten Proben wurden einem Datenblatt entnommen.

#### 2.4.4 Korngrößenbestimmung mithilfe von Magnetisierungskurven

Wie oben angeführt, kann die Korngröße auch durch Magnetisierungsmessungen bestimmt werden. Diese Abschätzungen werden aber in den Abschnitten der einzelnen Proben durchgeführt, da dort auch die entsprechenden Erklärungen zur Bestimmung der diversen  $H^*$  vorhanden sind. Da nur die Korngrößen der Kalium dotierten Proben visuell bestimmt wurden, wird anhand dieser Materialien versucht, jene Methode zur Bestimmung von  $H^*$  zu finden, die für die Korngrößenbestimmung die beste Übereinstimmung mit der Ermittlung mittels Polarisationsmikroskop zeigt.

Der einfache Zusammenhang von der kritischen Stromdichte mit dem Korndurchmesser und dem Feld  $H^*$  nach Formel (2.7) in Abschnitt 2.3.2 kann nach kurzer Umformung auch dazu genutzt werden, auf die Korngröße der Proben zu schließen:

$$d_K = \frac{H^{*,K}}{j_c^K}. \quad (2.16)$$

Wie in Abschnitt 1.2 erläutert, stellt  $H^*$  jenes Feld dar, bei dem das Feldprofil eines Supraleiters erstmals vollständig ausgeprägt ist. Dies gilt sowohl für die ganze Probe als auch für die einzelnen Körner. Es wird versucht werden diese spezifischen Felder zu ermitteln um die Geometrien der einzelnen Proben sowie der entsprechenden Korngrößen abzuschätzen. Da während des Experiments und der Auswertung ausschließlich Flussdich-

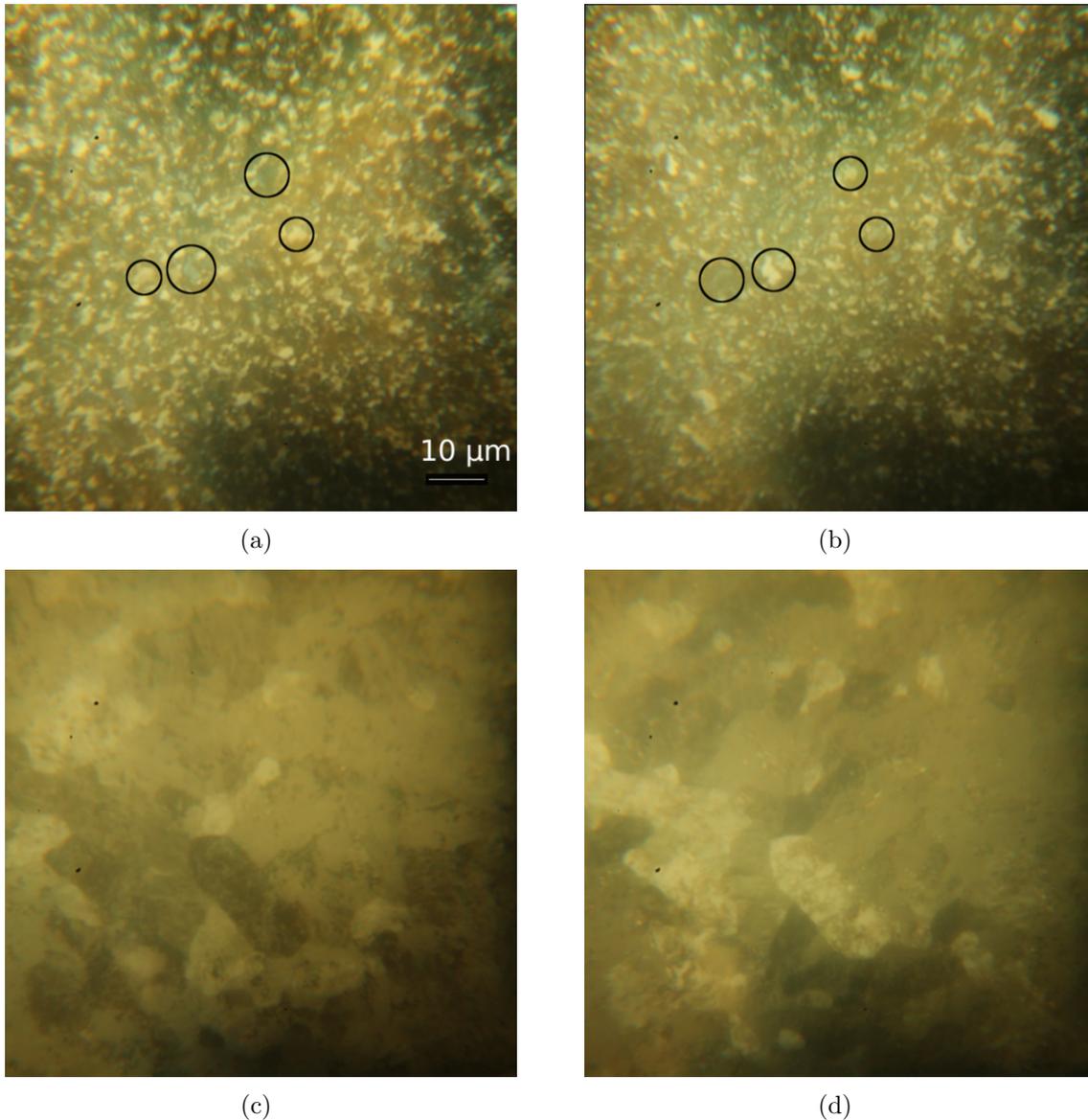


Abbildung 2.7: Aufnahmen der Probenoberflächen der Kalium dotierten Proben K-3 und K-15 per Polarisationsmikroskop. Die Abbildungen (a) und (b) bzw. (c) und (d) zeigen jeweils denselben Ausschnitt der Oberfläche von Probe K-3 bzw. K-15, jedoch mit unterschiedlicher Einstellung des Polarisationsfilters. Durch die Änderung der Polarisationsfiltereinstellung lassen sich einzelne Körner identifizieren. Einige ausgewählte Bereiche wurden zwecks besserer Übersicht mit grauen Kreisen markiert. Die schwarzen Pfeile in den Abbildungen (c) und (d) deuten einen beispielhaften Bereich an, in dem die Orientierung zwischen den Körnern sehr ähnlich ist. Dadurch entsteht der Eindruck einer bedeutend größeren allgemeinen Korngröße. Der Maßstab in Abbildung (a) gilt für alle vier Abbildungen.

ten mit der Einheit Tesla verwendet wurden und an dieser Stelle die Korngröße anhand der gesammelten Daten bestimmt werden sollen wird hier zwecks Konsistenz eine Modifikation an obiger Formel vorgenommen. Erweitert man Formel (2.16) mit  $\mu_0$ , erhält man

$$d_K = \frac{H^*}{j_c^K} = \frac{\mu_0 H^{*,K}}{\mu_0 j_c^K} = \frac{B^{*,K}}{\mu_0 j_c^K}. \quad (2.17)$$

In den Abschnitten 3.1 bis 3.6 wird anhand verschiedener Messungen und Zugänge versucht werden, diese Größen abzuschätzen.

# Kapitel 3

## Ergebnisse und Diskussion

Eine detaillierte Behandlung der magnetischen Eigenschaften der Kalium und Kobalt dotierten Proben werden in den folgenden Unterabschnitten durchgeführt. Die Proben wurden mittels VSM und SQUID Magnetometer untersucht und die gesammelten Daten grafisch aufbereitet. Die Daten der beiden Kalium dotierten Proben werden im Folgenden einzeln vorgestellt und im Anschluss daran miteinander verglichen. Darauf folgt die Behandlung der mit Kobalt dotierten Proben.

### 3.1 Probe K-3

#### 3.1.1 Magnetisierungsmessungen im VSM

Um eine erste Sichtung der magnetischen Eigenschaften dieser Probe durchzuführen, wurden in einem VSM die bereits in Abschnitt 2.3 erläuterten Magnetisierungsmessungen durchgeführt. Abbildung 3.1 zeigt die Ergebnisse dieser Messungen bei 5 K und verschiedenen auf- und absteigenden Feldrampen mit variablen  $H_{\max}$ . Auf der  $x$ -Achse ist das angelegte Feld in Tesla aufgetragen und auf der  $y$ -Achse das entsprechende magnetische Moment in  $10^{-4}$  Am<sup>2</sup>.

Der Verlauf des magnetischen Moments zeigt eine deutliche Asymmetrie bezüglich des Nullfeldes. Diese zeigt sich durch die Ausbildung zweier Maxima im magnetischen Moment, welche sich allerdings sowohl im Betrag als auch in ihrer relativen Position zu Null auf der Feldachse unterscheiden. Lässt man diesen Bereich um das Nullfeld ( $|\mu_0 H_{\text{ap}}| \geq 0.5$  T) außer Acht, gleichen die einzelnen Kurven charakteristischen Magnetisierungsmessungen von Typ-II Supraleitern. D.h. sie können mit dem modifizierten Bean Modell erklärt werden, welches in Abschnitt 1.2.1 erläutert wurde. Dabei sinkt das magnetische Moment aufgrund der Abflachung des Feldprofils in der Probe mit steigenden Feld bzw. steigt an, wenn der Absolutwert des Feldes reduziert wird, was gleichbedeutend mit einer Verringerung bzw. Erhöhung von  $j_c$  ist.

Das Auftreten zweier Maxima ist unerwartet und wird im weiteren Verlauf dieser

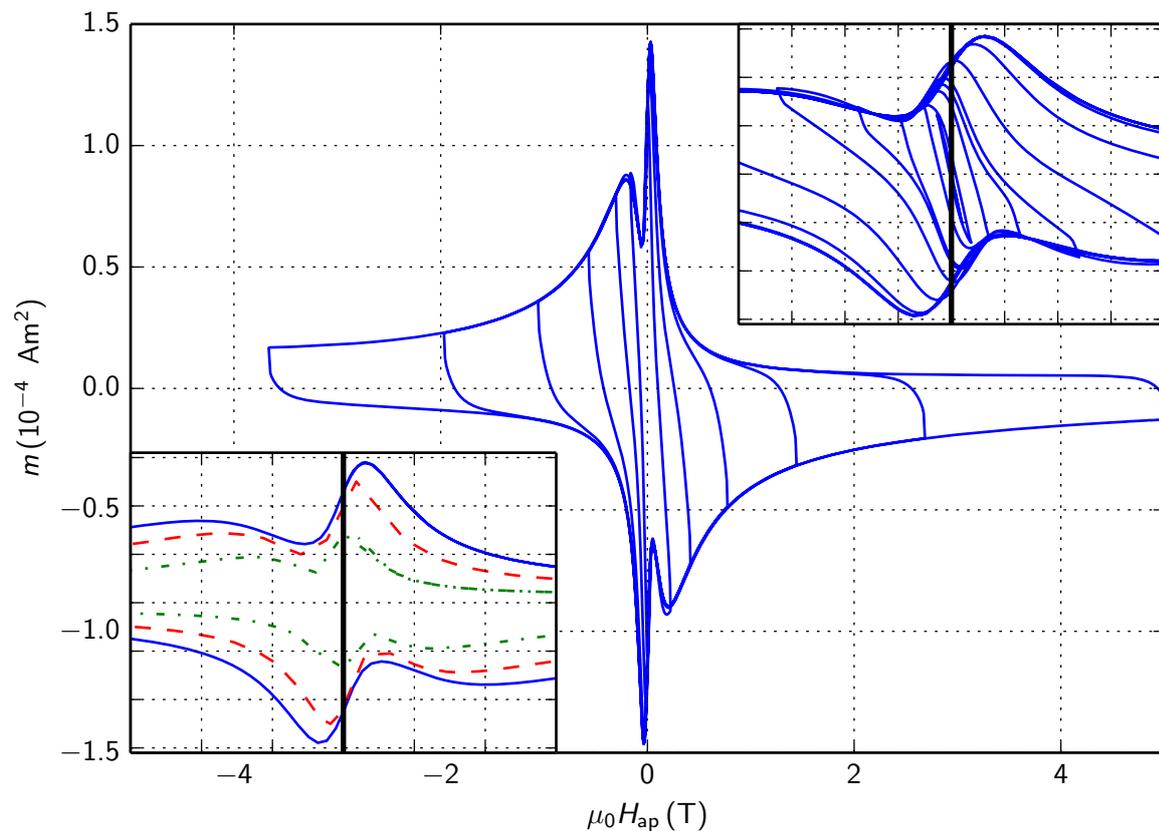


Abbildung 3.1: Messungen des magnetischen Moments der Probe K-3 via VSM. Zu sehen ist das magnetische Moment bei verschiedenen  $H_{\max}$ . Die ersten Messpunkte bei kleinen Feldern wurden der Übersicht halber weggelassen. Der Einschub rechts oben zeigt einen vergrößerten Ausschnitt des vollständigen Datensatzes der 5 K Messung im Bereich  $\mu_0 H_{\text{ap}} = \pm 0.2$  T. Der Einschub links unten zeigt die äußersten Messschleifen bei den Temperaturen 5 (blau, durchgezogen), 10 (rot, strichliert) und 20 K (grün, punkt-strichliert).

Tabelle 3.1: Auflistung des Temperatureinflusses auf die Beträge der magnetischen Momente beider Maxima sowie deren prozentuelle Abnahme mit jeder Erhöhung der Messtemperatur. Die Informationen wurden anhand der Messdaten des VSMs gesammelt.  $m_{1.\text{Max}}$  stellt dabei den Absolutwert des magnetische Moments vor dem Nulldurchgang und  $m_{2.\text{Max}}$  jenen nach dem Nulldurchgang dar.

Temperatur (K)	$m_{1.\text{Max}}$ ( $10^{-4}$ Am <sup>2</sup> )	Abnahme	$m_{2.\text{Max}}$ ( $10^{-4}$ Am <sup>2</sup> )	Abnahme
5	1.45		0.85	
10	1.25	14 %	0.73	15 %
20	0.78	38 %	0.48	35 %

Arbeit im Zentrum der Analyse stehen. Die Identifizierung der zwei Maxima mit dem jeweiligen Auftreten von Proben- und Kornströmen wird im nächsten Abschnitt durchgeführt, da dort präzisere und ausführlichere Messungen präsentiert werden. Wie sich im Einschub rechts oben in Abbildung 3.1 erkennen lässt, hängt die Position des ersten Maximums der Magnetisierung auf der Feldachse vom angelegten Maximalfeld an. Es gibt also einen von der Magnetisierungsgeschichte abhängigen Effekt, auf welchen zusammen mit den gerade erläuterten Beobachtungen in Abschnitt 3.1.2 genauer eingegangen wird. Die vertikale durchgezogene Linie in dieser Grafik deutet das Nullfeld an und dient der besseren Orientierung.

Der linke untere Einschub in Abbildung 3.1 zeigt den Einfluss der Temperatur auf das magnetische Moment der Probe. Auch hier wurde das Nullfeld zugunsten der Übersicht mit einer durchgezogenen Linie markiert. Es lässt sich eine generelle Abnahme des magnetischen Moments beobachten, da der kritische Strom im Allgemeinen temperaturabhängig ist. Es ist bei allen drei Temperaturen die starke Asymmetrie im magnetischen Moment zu sehen. Der Betrag beider Maxima nimmt mit steigender Temperatur ab, wobei sich nach Tabelle 3.1 kein wesentlicher Unterschied in der Temperaturabhängigkeit erkennen lässt.

### 3.1.2 Messungen des magnetischen Moments im SQUID

Nachdem mittels VSM das magnetische Verhalten der Probe im Magnetfeld gesichtet wurde, kam das SQUID Magnetometer zum Einsatz. Mithilfe dieses Hochpräzisionsmagnetometers wurden diverse Messungen im auf- und absteigenden Feld sowohl unter zfc- als auch unter fc-Bedingungen durchgeführt. Da die unterschiedlichen Messtemperaturen beim VSM keine Auffälligkeiten zeigten, wurde bei den Magnetisierungsmessungen mit dem SQUID Magnetometer auf höhere Temperaturen verzichtet und ausschließlich bei 5 K gemessen. Nachdem die Daten des VSM im vorherigen Abschnitt nur präsentiert wurden, werden nun die in Kapitel 1.2.1 erläuterten inter- und intragranularen Ströme zur Interpretation der SQUID Magnetometer Messdaten verwendet.

Um die Daten der SQUID-Messungen dieser Probe systematisch zu untersuchen, liegt der erste Schritt darin, die Daten des aufsteigenden Astes und damit das erste Flusseindringen zu analysieren. Wie in Abschnitt 1 erläutert, entspricht der Aufbau eines magnetischen Moments der Bildung von Abschirmströmen innerhalb der Probe. Abbildung 3.2(a) zeigt Messungen des magnetischen Moments bei verschiedenen  $\mu_0 H_{ap}$ , welche gegenüber dem äußeren Feld aufgetragen sind. In Abbildung 3.2(b) sind dieselben Daten aufgetragen, jedoch mit logarithmischer Darstellung der Feldachse. So lassen sich die Messdaten bei kleinen Feldern übersichtlicher darstellen.

Bei  $\mu_0 H_{ap} = 0$  lässt sich bei Erhöhung des Feldes ein anfänglicher Anstieg des magnetischen Moments erkennen, der den Resultaten der VSM Messungen sehr ähnelt. Dieser

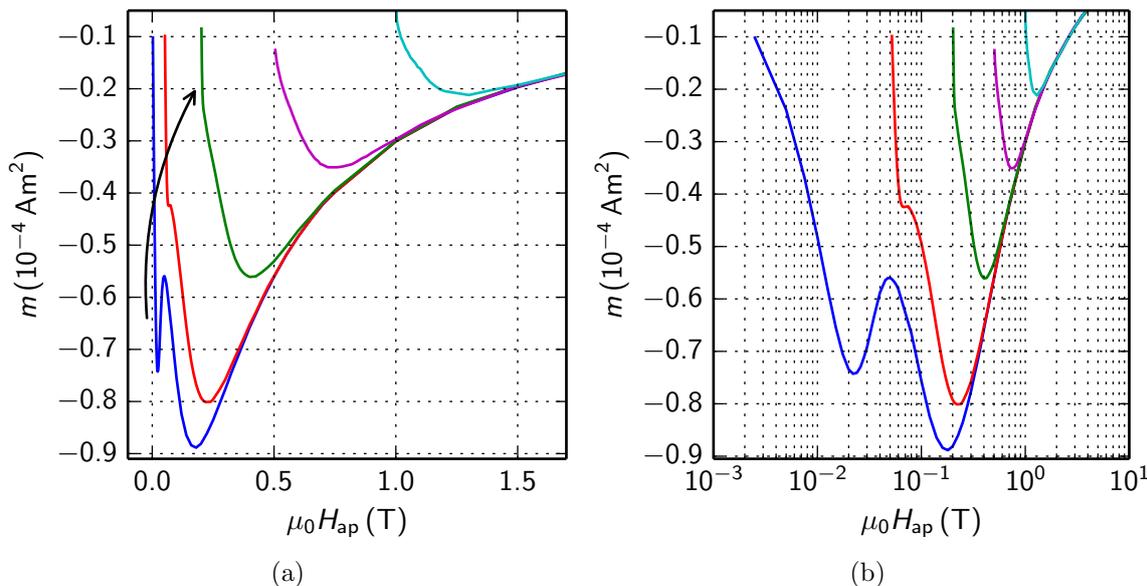


Abbildung 3.2: Abbildung (a) zeigt den Verlauf des magnetischen Moments der Probe K-3 bei den Feldern  $\mu_0 H_{bg} = 0$  (blau), 0,05 (rot), 0,2 (grün), 0,5 (magenta) und 1 T (cyan) im ansteigenden Feld bei 5 K. Der Pfeil soll die Positionstendenz des Zusammenbruchs der kritischen Stromdichte andeuten. Abbildung (b) zeigt dieselben Daten, jedoch mit logarithmischer Darstellung der Feldachse.

erste Anstieg schreitet bis etwa 0,022 T voran, wo es zu einem Einbruch des magnetischen Moments kommt. Dieses Verhalten des ersten Anstiegs von  $m$ , gefolgt von einer darauf folgenden plötzlichen Abnahme, wird dem Aufbau und Zusammenbruch von  $j_c^P$  (Probenstromdichte) zugeschrieben. Dabei dringen Flusslinien nach und nach entlang der Korngrenzen ein und bauen so ein Feldprofil auf, bis ein gewisser Feldwert erreicht ist. Ab diesem Wert bricht  $j_c^P$  mit Erhöhung des äußeren Feldes immer weiter ein und mit ihm das globale Feldprofil.

Wird das Feld weiter erhöht, kommt es nach der Ausbildung eines Minimums von  $m$  zu einem erneuten Anstieg des magnetischen Moments. Dieser zweite Anstieg im ansteigenden Feld kommt durch den Aufbau von kritischen Strömen innerhalb der einzelnen Körner zustande. Diese bilden bei etwa 0,18 T ein Maximum von  $m$ , gefolgt von einer stetigen Abnahme bei weiterer Erhöhung des äußeren Feldes. Diese Abnahme ist, wie bereits im vorigen Abschnitt erläutert, mit dem Verhalten vereinbar, welches das modifizierte Bean Modell mit einer feldabhängigen kritischen Stromdichte voraussagt. Durch die allgemeine Abflachung von Feldprofilen bei höher werdenden Feldern sinkt die Signalstärke ab. Hierbei handelt es sich um eine Superposition jener Feldprofile, die sich in den einzelnen Körnern ausbilden und so ein globales Feldprofil bilden. Mit dem Zusammenspiel von  $j_c^K$  und  $j_c^P$  kann die Ausbildung des lokalen Minimums von  $m$  erklärt werden. Bei der ersten Erhöhung des Feldes dringt das Feld in die Probe ein und es kommt zur Ausbildung von

$j_c^P$ . Das Signal steigt aufgrund des größer werdenden stromdurchflossenen Volumens weiter an und erreicht bei 0.022 T sein Maximum. Danach fällt das Signal wieder ab und der Beitrag von  $j_c^P$  wird von den Kornströmen  $j_c^K$  überschattet.

Das eben beschriebene Verhalten lässt sich auch bei den Messkurven bei  $\mu_0 H_{bg} = 0.05$  und 0.2 T beobachten. Es bildet sich jedoch kein sauber ausgeprägtes Minimum aus, sondern im ersten Fall nur ein Plateau und im zweiten ein Knick in den Messkurven. Dies liegt einerseits daran, dass  $j_c^P$  nach Formel (1.27) mit höheren Feldern durch die inverse Proportionalität zum angelegten Feld an Bedeutung verliert, und andererseits an der Entstehung bzw. dem Vorhandensein von intragranularen Strömen. Bei höheren  $\mu_0 H_{bg}$  lässt sich dieses Verhalten nicht mehr feststellen und das Magnetisierungsverhalten im äußeren Feld ist nur noch durch die auftretenden Kornströme gegeben. Der Verlauf aller Kurven zeigt deutlich, dass sie sich, ausgehend von ihrem jeweiligen  $\mu_0 H_{bg}$ , nach einer gewissen Felderhöhung den anderen Kurven annähern und schließlich überlappen. Anhand dieses Verhaltens der Messkurven lassen sich erste Abschätzungen von  $H^*$  durchführen.

Wie in Abschnitt 2.3 ausgeführt, existiert zu Messbeginn bei zfc im Nullfeld kein Feldprofil innerhalb der Probe. Durch die Felderhöhung wird allmählich ein Probenfeldprofil über die Probe aufgebaut, welches in erster Näherung maximal wird, sobald  $\mu_0 H^*$  erreicht ist. Diese Werte sind in Tabelle 3.2 unter  $\mu_0 H^{*,P}$  zusammengefasst. Um  $\mu_0 H^{*,K}$  abzuschätzen, gibt es zwei Möglichkeiten. Hier ist zu beachten, dass es sich bei der Korngröße von  $3 \mu\text{m}$  um einen Durchschnittswert handelt. In der Probe existieren Körner, die sowohl kleiner als auch größer als dieser Wert sind. Die erste Möglichkeit besteht darin, das zweite Maximum der Magnetisierungsmessung so zu interpretieren, dass bei diesem Feld ein Großteil der Körner erstmals vollständig von magnetischem Fluss durchdrungen sind. Dieser Ansatz setzt voraus, dass die einzelnen Körner ausreichend gleichmäßig von magnetischem Fluss umgeben sind. Dieses Szenario ist nicht unwahrscheinlich, wenn man bedenkt, dass mit dem Zusammenbruch der Probenströme auch das damit verbundene Feldprofil abflacht. Daher nähert sich die Feldlinienverteilung entlang der Korngrenzen einem annähernd homogenen Zustand an.

Eine zweite Möglichkeit einen Kornstrom  $\mu_0 H^{*,K_{ges}}$  abzuschätzen besteht darin, jenes Feld zu suchen, bei dem zwei Messkurven mit verschiedenen  $\mu_0 H_{bg}$  überlappen. Im Gegensatz zu  $\mu_0 H^{*,K}$ , bei dem nur Körner mit Durchmessern bis  $3 \mu\text{m}^1$  vollständig mit Feldlinien durchdrungen sind, sind beim Feld  $\mu_0 H^{*,K_{ges}}$  alle Körner der Probe vollständig mit Flusslinien durchdrungen. Die über die Messkurven bestimmten Werte von  $\mu_0 H^{*,K}$  und  $\mu_0 H^{*,K_{ges}}$  sind in Tabelle 3.2 zu finden. Es lässt sich für beide Domänen (inter- und intragranularer Bereich) eine unterschiedliche Tendenz der jeweiligen  $H^*$ s feststellen.  $H^{*,P}$  sinkt mit höherem  $\mu_0 H_{ap}$ , wohingegen  $H^{*,K}$  mehr oder weniger konstant bleibt. Nach Formel (2.7) gilt dieses Verhalten damit auch für die kritischen Ströme  $j_c^P$  und  $j_c^K$ . Wie in

<sup>1</sup>Da eine durchschnittliche Korngröße von  $3 \mu\text{m}$  abgeschätzt wurde, wird angenommen, dass Körner dieser Größe auch am öftesten in der Probe vorkommen.

Tabelle 3.2: Auflistung verschiedener  $\mu_0 H^{*,P}$  und  $\mu_0 H^{*,K}$  bei diversen  $\mu_0 H_{bg}$  nach den Messungen im ansteigenden Feld. Die letzten zwei Werte für  $\mu_0 H^{*,P}$  konnten nicht ermittelt werden, da dieser Signalanteil in den Messkurven nicht mehr erkennbar ist.

$\mu_0 H_{bg}$	$\mu_0 H^{*,P}$ (T)	$\mu_0 H^{*,K}$ (T)	$\mu_0 H^{*,K_{ges}}$ (T)
0	0.022	0.18	
0.05	0.017	0.18	0.38
0.2	0.009	0.20	0.48
0.5		0.23	0.5
1.0		0.27	0.5

Abschnitt 3.1.4 erläutert wird, hat  $j_c^K$  eine unterdrückende Wirkung auf  $j_c^P$ .

Mithilfe von Magnetisierungsmessungen mit einer Hallsonde<sup>2</sup> konnte eine Abschätzung von  $j_c^P$  für vergleichbare Felder auf einen Wert von etwa  $10^7 \text{ Am}^{-2}$  durchgeführt werden. Nach Formel (2.7) lässt sich damit eine Abschätzung der Probengröße durchführen. Mit dem Wert von 0.022 T für  $\mu_0 H^{*,P}$  lässt sich auf einen Wert von  $1.75 \cdot 10^{-3} \text{ m}$  oder 1.75 mm für den halben Probendurchmesser schließen (3.5 mm für den vollständigen Probendurchmesser). Dieser Wert liegt in der Größenordnung der Abmessungen der Probe von etwa 2 mm Seitenlänge. Für eine Abschätzung der Korngröße dieser Probe wird nach [22] eine kritische Stromdichte von Kalium dotierten Einkristallen von  $10^{10} \text{ Am}^{-2}$  angenommen. Zusammen mit dem abgeschätzten  $\mu_0 H^{*,K}$  für den zfc Fall von 0.18 T erhält man für den Kornradius einen Wert von etwa 14 bzw. 28  $\mu\text{m}$  für den Korndurchmesser. Dieser Wert stimmt nicht mit der visuell per Polarisationsmikroskop bestimmten Korngröße von 3  $\mu\text{m}$  überein. Der Faktor Zwei kann auf den nicht exakt bekannten Wert der kritischen Stromdichten zurückgeführt werden. Diese Methode eignet sich somit sehr gut um prinzipielle Abschätzungen bezüglich der Geometrie durchzuführen. Für den kritischen Kornstrom lässt sich mit  $d_K = 3 \mu\text{m}$  und  $\mu_0 H^{*,K} = 0.18 \text{ T}$  ein Wert von etwa  $9 \cdot 10^{10} \text{ Am}^{-2}$  abschätzen. Dieser Wert ist unrealistisch hoch, da er sehr nahe an der theoretischen paarbrechenden Stromdichte von etwa  $10^{11}$  bis  $10^{12} \text{ Am}^{-2}$  [5, S.287 ff.] liegt. Dieser Ansatz ist bei den vorliegenden Materialien also nicht zielführend.

Im nächsten Schritt werden die Daten des absteigenden Astes untersucht. Für diesen Fall liegen sowohl zfc- als auch fc-Messungen vor, die bei 5 K aufgenommen wurden. Einige ausgewählte Messungen sind in Abbildung 3.3 zu sehen. Messkurven mit gleichem  $\mu_0 H_{max}$  tragen dieselbe Farbe. Die durchgezogenen Linien deuten an, dass die Messung unter fc-Bedingungen durchgeführt wurde; gestrichelte Linien stehen für zfc-Bedingungen. Betrachtet man Messungen mit gleicher Farbe, so erkennt man, dass die gestrichelten zfc-Messreihen bereits zu Messbeginn ein deutlich von Null abweichendes Signal liefern. Das liegt daran, dass die Probe im Nullfeld gekühlt und anschließend das äußere Feld zu

<sup>2</sup>Diese Messungen wurden von J. Hecher durchgeführt. Für nähere Details siehe [10].

$\mu_0 H_{\max}$  erhöht wird. Im Laufe dieses Vorganges baut sich ein Feldprofil in der Probe auf. Somit befindet sich die Probe in einem anderen Anfangszustand als bei einer Messung unter fc-Bedingungen. Bei fc existiert zu Beginn der Messung kein Feldgradient innerhalb der Probe. Wird das Feld anschließend im Laufe der Messung reduziert, baut sich im fc-Fall erstmalig ein Feldgradient auf. Im zfc-Fall wird ein bestehendes Feldprofil invertiert.

Anhand der gesammelten Daten lässt sich eine Reihe von interessanten Beobachtungen machen: Auffällig ist, dass die Position und Höhe des von rechts aus gesehenen ersten Maximums von der Magnetisierungsgeschichte abhängt, d.h. von  $\mu_0 H_{\max}$  sowie den Kühlbedingungen vor Messbeginn (zfc oder fc). Das zweite Maximum zeigt hingegen nur minimale Änderungen von Position und Höhe.

Analog zu den Messungen im ansteigenden Feld wird auch im abfallenden Feld das in Abbildung 3.3(a) von rechts aus gesehen erste Maximum primär den Probenströmen  $j_c^P$  zugeordnet. Der Grund dafür liegt darin, dass dieses Maximum bei weiterer Feldreduktion zusammenbricht, da abhängig von  $\mu_0 H_{\max}$  Kornströme  $j_c^K$  gebildet werden. Diese sind für das zweite Maximum verantwortlich.

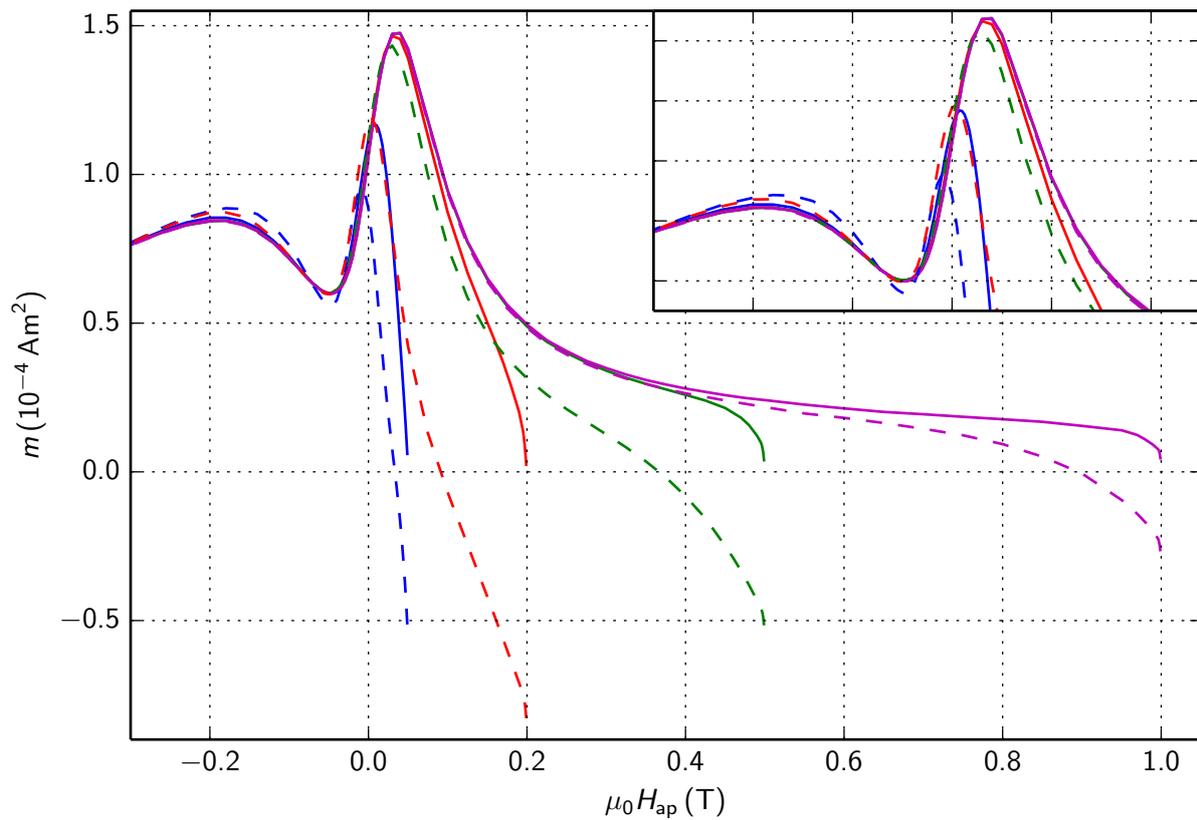
Nach dieser Zuordnung der Maxima zu den zwei verschiedenen kritischen Stromdichten lassen sich die anderen Auffälligkeiten der Messkurven besser verstehen. In Abbildung 3.3(a) lässt sich anhand der blauen, roten und grünen Messkurven ( $\mu_0 H_{\max} \leq 0.5$  T) ein deutlicher Unterschied im Verlauf von  $m$  bezüglich des ersten Maximums erkennen.

Wie weiter oben bereits erläutert, ist bei zfc-Messungen zu Beginn bereits ein Feldprofil in der Probe und den Körnern vorhanden. Um eine Überlappung der beiden Kurven im abfallenden Feld zu erreichen, muss dieses um einen für die Probe spezifischen Wert von  $\mu_0 H^*$  (fc) bzw.  $2\mu_0 H^*$  (zfc) reduziert werden. Da jedoch  $\mu_0 H^*$  für  $\mu_0 H_{\max} < 0.5$  T bei fc und  $2\mu_0 H^*$  für  $\mu_0 H_{\max} \leq 0.5$  T bei zfc nicht erreicht werden, sind auch die Positionen des sogenannten Inter-Maximums<sup>3</sup> versetzt.

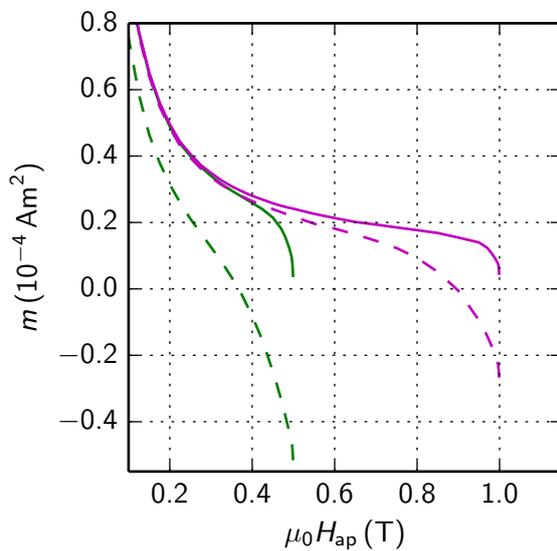
Die Messkurven des magnetischen Moments lassen sich nach dem modifizierten Bean Modell normalerweise so interpretieren, dass eine Überschneidung von fc- bzw. zfc-Messungen bei gleichen  $\mu_0 H_{\max}$  einem identen Feldprofil in der Probe entspricht. Damit lässt sich ein Wert von  $2H^*$  - analog zum ansteigenden Feldast - abschätzen. D.h. sobald die Feldprofile bei fc aufgebaut bzw. bei zfc vollständig invertiert sind, überlagern sich die beiden Fälle. Bei den ersten Feldschritten spielt die Umkehr der Feldprofile in den Körnern eine dominante Rolle. Erst wenn sich diese aufgrund des äußeren Feldes invertiert haben, baut sich bei kleineren Feldern ein intergranularer Strom auf, der im Weiteren für das erste Maximum verantwortlich ist (für nähere Details siehe Abschnitt 3.1.4). Daher wird hier nur eine Abschätzung von  $\mu_0 H^{*,K}$  durchgeführt.

Anhand der beiden magenta farbigen Messkurven (fc und zfc) in Abbildung 3.3(b) lässt sich eine Überschneidung der beiden nach einer Feldreduktion von etwa  $\mu_0 H =$

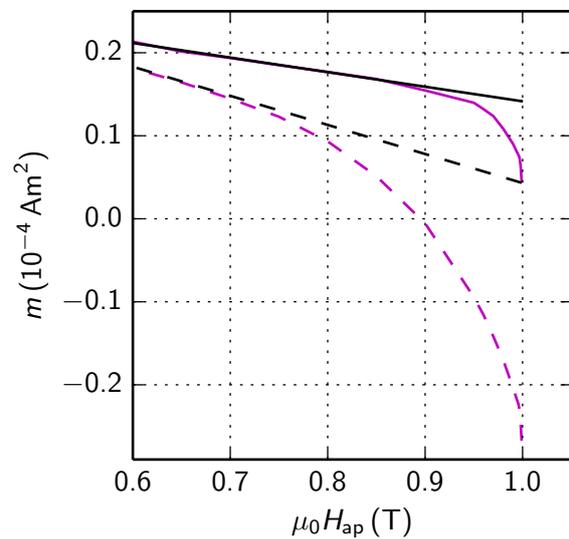
<sup>3</sup>Damit ist das von rechts aus gesehen erste Maximum gemeint, welches den intergranularen Strömen zugeschrieben wird.



(a)



(b)



(c)

Abbildung 3.3: Abbildung (a) zeigt den Verlauf von  $m$  der Probe K-3 bei verschiedenen  $\mu_0 H_{\max}$  bei  $f_c$  (durchgezogen) sowie  $zfc$  (strichliert). Der Einschub rechts oben zeigt einen vergrößerten Bereich dieser Messkurven. In Abbildung (b) sind Ausschnitte der Messkurven bei  $\mu_0 H_{\max} = 0.5$  und  $1$  T bei  $f_c$  und  $zfc$  zu sehen. Abbildung (c) zeigt schwarze Anpassungsgeraden an die unter  $f_c$  und  $zfc$  aufgenommenen Messkurven.

0.7 T erkennen. Damit lässt sich ein Wert von 0.35 T für  $H^{*,K}$  abschätzen. Dieser Wert entspricht nach Formel (2.7) bei einer Korngröße von 3  $\mu\text{m}$  einem kritischen Strom von etwa  $2.8 \cdot 10^{11} \text{ Am}^{-2}$ . Wie schon bei den Magnetisierungsmessungen im ansteigenden Feld, ist die so bestimmte kritische Kornstromdichte zu hoch, um als realistisch angesehen zu werden.

Bedient man sich allerdings der einfachen Überlegung, dass es bei den Messungen eines absteigenden Astes zuerst zu einer Invertierung eines bestehenden bzw. erstmalig zu einer Ausbildung eines Feldprofiles kommt, erwartet man eine rapide Signaländerung. Ist ein Feldprofil vollständig ausgebildet, nimmt die Steigung der Kurve ab, sofern  $\mu_0 H_{\text{max}}$  groß genug gewählt wurde. Dieser Umstand wird nun für eine präzisere Abschätzung von  $H^{*,K}$  genutzt. Aufgrund der Relevanz wird hier noch einmal darauf hingewiesen, dass diese Möglichkeit nur bei ausreichend hohen Feldern besteht, da hier  $j_c^P$  genügend klein ist und nur einen geringen Anteil an  $m_{irr}$  hat, im Fall von Abbildung 3.3 also  $\mu_0 H_{\text{max}} \geq 1 \text{ T}$ . Für die Abschätzung werden an beide Kurven Tangenten in jenem Bereich der oberen Feldgrenze gelegt, der nur noch minimale Änderungen bezüglich  $m$  zeigt (vgl. Abbildungen 3.3(b) und 3.3(c)). Die so bestimmten Werte für  $\mu_0 H^{*,K}$  lauten 0.12 (fc) bzw. 0.15 T (zfc). Nach Formel (2.7) ergeben sich Stromdichten im oberen Bereich von  $10^{10} \text{ Am}^{-2}$ , welche etwas zu hoch sind, um glaubwürdig zu sein, da nach [22] bei einkristallinen Ba122-Kristallen Stromdichten in der Höhe von  $10^{10} \text{ Am}^{-2}$  beobachtet wurden. Wie sich bei der nächsten Probe zeigen wird, eignet sich diese Methode bei den vorliegenden Materialien nur bedingt für die Abschätzung von  $j_c^K$  bei bekannten  $d_K$  bzw. umgekehrt.

Ein Vergleich mit Abbildung 3.3(b) zeigt, dass nach einer Feldreduktion von 0.3 T, also dem doppelten Wert des Höheren der beiden  $\mu_0 H^{*,K}$ , noch keine Überlappung der beiden Messkurven (magenta) auftritt. Da angenommen wird, dass sich die Probe im fc Fall in einem Gleichgewichtszustand ohne vorhandenen Feldprofilen befindet, kann man aus diesem Ergebnis schließen, dass es unter zfc Bedingungen, bei bestehendem Feldprofil zu Messbeginn, zu Effekten kommt, was den Aufbau von  $j_c^P$  unterdrückt bzw. verlangsamt (vgl. Unterabschnitt 3.1.4). Dadurch kommt es erst bei geringeren Feldern zu der erwarteten Überlappung der Messkurven. Bei den Messungen mit  $\mu_0 H_{\text{bg}} \leq 1 \text{ T}$  wurde auf Abschätzungen verzichtet, da bei diesen Messkurven anhand des ersten Maximums ersichtlich ist, dass die Kurven erst im Bereich des Zusammenbruchs von  $j_c^P$  einander überlappen. Daher sind wahrscheinlich noch andere Mechanismen beteiligt, die den Verlauf des magnetischen Moments beeinflussen.

### 3.1.3 Einfluss des Selbstfeldes der Körner auf das magnetische Moment

Nach dieser Abschätzung von  $H^{*,K}$  anhand der Messkurven bei hohen Feldern wird nun versucht die Abhängigkeit der Position des Inter-Maximums von  $m$  aufgrund von Hys-

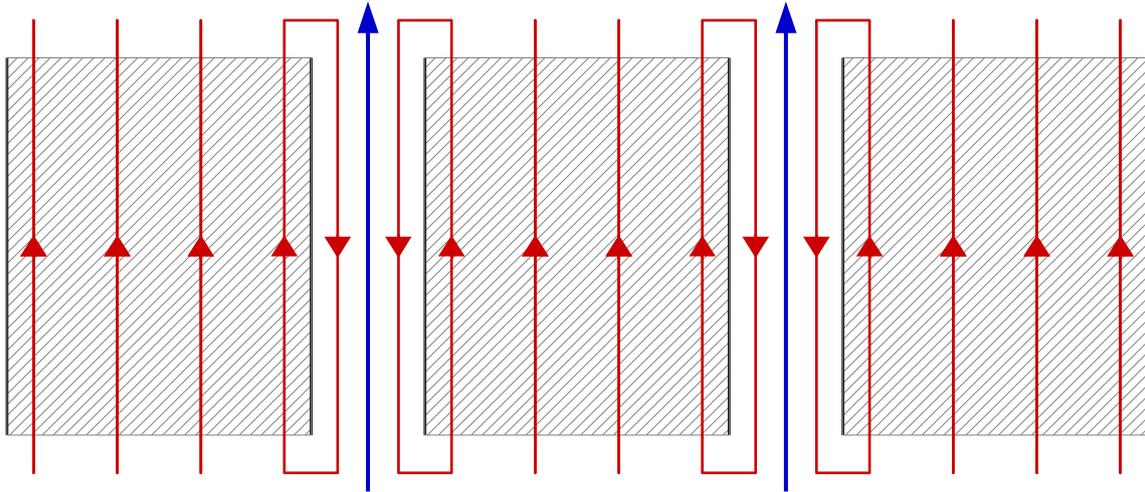


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung des Selbstfeldes in polykristallinen Materialien. Es wird durch jene Flusslinien dargestellt, welche durch die Körner verlaufen und sich entlang der Korngrenzen schließen (rote Pfeile). Die schraffierten Flächen stellen die Körner dar und die Bereiche zwischen den Körnern die Korngrenzen. Das äußere Feld (blau) ist der Übersicht wegen nur zwischen den Körnern zu sehen.

tereseffekten der kritischen Ströme zu verstehen. Die Verschiebung des Inter-Maximums auf der Feldachse in Abhängigkeit von  $\mu_0 H_{\max}$  lässt sich durch das Auftreten von  $j_c^K$  und dem damit verbundenen Magnetfeldfeld (auch Selbstfeld genannt) erklären.

Aufgrund der polykristallinen Struktur des Materials kommt es zu lokalen Effekten auf das von außen wirkende Feld. Da nach dem Maxwell-Gesetz

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B} = 0 \quad (3.1)$$

magnetische Feldlinien immer geschlossen verlaufen, müssen sich die Feldlinien der Fluss-schläuche innerhalb der Körner, außerhalb der Körner wieder schließen. Es wird vermutet, dass sich einige dieser Flusslinien noch innerhalb der Probe schließen, entlang der normalleitenden Korngrenzen. Abbildung 3.4 zeigt eine schematische Darstellung dieses Effektes. Zu sehen sind drei Körner in Form schraffierter Bereiche. Der aufgrund der f-Bedingungen in den Körnern eingeschlossene magnetische Fluss ist mithilfe von nach oben in positive Richtung zeigender, roter Pfeile eingezeichnet. Wird von einem fixen  $\mu_0 H^*$  ausgegangen und das äußere Feld reduziert, so treten nach dem Bean Modell Flusslinien aus den Körnern aus und es bildet sich ein Feldprofil über die Körner. Aufgrund der von den Körnern ausgehenden Feldlinien, welche sich entlang der Korngrenzen schließen, wird das äußere Feld lokal abgeschwächt. Die Pfeilrichtungen in Abbildung 3.4 sollen dieses Phänomen illustrieren. Man sieht, dass die Orientierung der Pfeile gegenläufig ist, also das Umkehrfeld der Körner entgegen der Feldrichtung des angelegten Feldes zeigt. Der Übersicht halber wurde das äußere Feld nur entlang der Korngrenzen eingezeichnet. Es

kommt also zu einer lokalen Abschwächung des äußeren Feldes.

Wie weiter oben anhand der Abschätzungen der Kornströme erläutert, muss bei einer zfc-Messung erst ein bestehendes Feldprofil invertiert werden. Demnach ist gegenüber der entsprechenden fc-Messung eine größere Feldreduktion notwendig, damit beide Kurven überlappen.

### 3.1.4 Untersuchung per Hallscanner

Die Beschreibung des magnetischen Verhaltens dieser Probe anhand  $j_c^P$  bzw.  $j_c^K$  ist nur qualitativer Natur. Eine direkte experimentelle Prüfung ist mit den in dieser Arbeit verwendeten Magnetometern aber nicht möglich. Dazu ist eine Untersuchung mittels SHPM<sup>4</sup> notwendig. Abbildung 3.5 zeigt eine Reihe solcher Hallscans unter zfc-Bedingungen und  $\mu_0 H_{bg} = 0$  T. Der grau hinterlegte Bereich in der linken Grafik sowie in den Einschüben der rechten Grafik, stellt den Probenbereich dar. Ziel dieser Messungen war es, die Entwicklung des Feldprofils entlang einer Linie auf der Probenoberfläche zu untersuchen. Dabei wurde das äußere Feld nach jeder Messung um einen bestimmten Wert reduziert und erneut eine Messung durchgeführt.

Von oben nach unten gesehen bildet sich im linken Graphen von Abbildung 3.5 bei der Erhöhung des Feldbetrages ein intergranulares Feldprofil aus, welches nach dem Bean Modell erwartet wird: nämlich das Eindringen von Fluss in den Supraleiter in Form einer fortschreitenden Feldfront (vgl. Abbildung 1.5(a) in Abschnitt 1.2). Der rechte Graph zeigt in diesem Feldbereich den ersten Anstieg von  $m$  und den damit verbundenen Aufbau von  $j_c^P$ . Die nächste Messung wurde an einem Punkt der Feldachse getätigt, der nach dem ersten Maximum liegt (vgl. Abb. 3.5 rechts). Das entsprechende Feldprofil zeigt drei interessante Bereiche mit unterschiedlichen Steigungen. Betrachtet man das Zentrum der Probe, findet man ein Maximum von  $B$ . Links und rechts davon fällt die Flussdichte mit etwa der selben Steigung ab, wie schon in der vorherigen Messung festgestellt wurde. Auf dieses Verhalten folgt ein flacherer Bereich, was dafür spricht, dass hier das Feldprofil der Probe nach außen hin zusammenbricht. Dies erklärt auch das Absinken von  $m$  nach dem Maximum im rechten Bild von Abbildung 3.5. Der dritte Bereich befindet sich am Rand der Probe, wo das Feldprofil die stärkste Steigung aufweist. Hier werden die ersten Körner von Fluss penetriert und es kommt zur Bildung von  $j_c^K$ . Dieses Verhalten ist in Abbildung 3.6 dargestellt. Auf der linken Seite der Abbildung ist eine Darstellung eines polykristallinen Supraleiters zu sehen. Die vertikalen Linien sollen von links nach rechts den Rand der Probe (schwarz, fett), einzelne Körner (schwarz, dünn) und die Mitte der Probe (grau,

<sup>4</sup>Scanning Hall Probe Microscopy. Im Zuge dieser Messungen wird eine Hallsonde mithilfe von Piezokristallen entlang einer Linie in Schritten im  $\mu\text{m}$ -Bereich über die Probe gerastert und so das lokale Magnetfeld der Probe gemessen. Die Resultate dieser Messungen wurden dankenswerterweise von Johannes Hecher für diese Arbeit zur Verfügung gestellt. Sowohl die Datenerhebung als auch die -auswertung und grafische Aufbereitung wurden von J. Hecher durchgeführt. Es sei angemerkt, dass mit dieser Methode sowohl irreversible als auch reversible Eigenschaften gemessen werden. Für Details siehe [10].

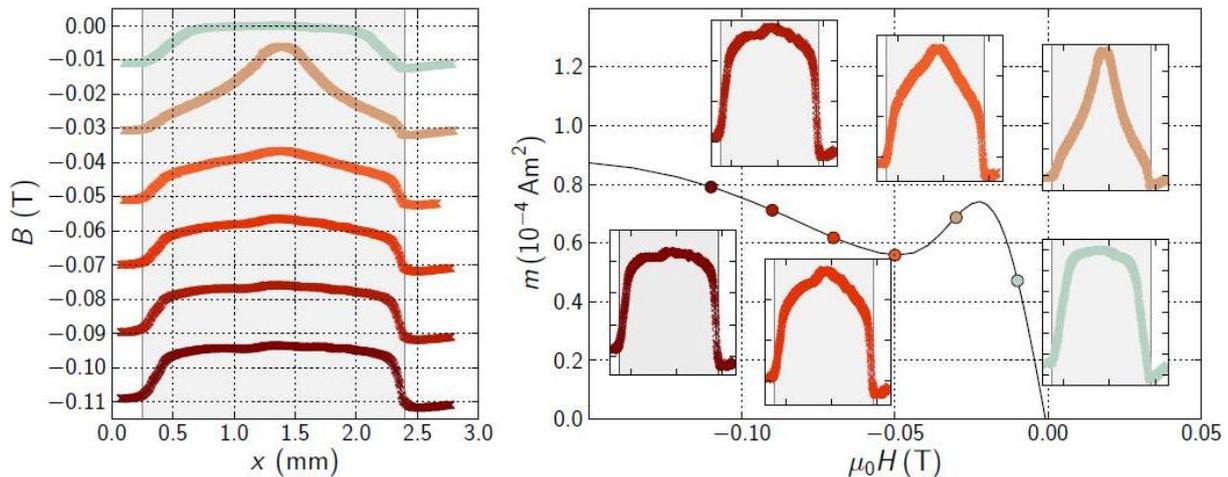


Abbildung 3.5: Hallmessungen der Probe K-3 im abnehmenden Feld. Die Probe wurde bei  $\mu_0 H_{\text{bg}} = 0$  T gekühlt und das äußere Feld anschließend in negativer Richtung erhöht. Die Messungen wurden entlang der Probenoberfläche bei den Feldern  $-0.01$  bis  $-0.11$  T in  $-0.02$  T Schritte durchgeführt und sind in der linken Abbildung dargestellt. In der rechten Abbildung sind diese Schritte in Form farbiger Punkte entlang einer Magnetisierungsschleife eingezeichnet. Die farblich dazu korrespondierenden Kurven der Hallmessungen sind um diese Magnetisierungskurve angeordnet.

dünn) darstellen. Die angelegten Felder sind durch gestrichelte Linien angedeutet und die Feldprofile in den Körnern durch schraffierte Flächen. Die Farbgestaltung korreliert mit dem angelegten äußeren Feld. Die Zeichnung soll andeuten, dass die Körner, abhängig von ihrer Position in der Probe, verschieden schnell Feldprofile ausbilden. Die weiteren vier Darstellungen aus Abbildung 3.6 zeigen verschiedene remanente Magnetisierungszustände der Körner, abhängig vom zuvor angelegten Magnetfeld. Wird das Feld ausgehend vom maximal angelegten Magnetfeld auf Null reduziert, lässt sich eine verzerrte stufenförmige Erscheinung für die Feldprofile der Körner erkennen. Diese stammt von der Abhängigkeit des lokalen Feldes von der Position der Körner. Auf diese Art kann der entsprechende Bereich des steilen Feldprofils der Hallmessungen erklärt werden.

Die weiteren Hallmessungen nähern sich immer weiter dem zweiten Maximum der Magnetisierungskurve an. Sie zeigen den weiter fortschreitenden Zusammenbruch des globalen Probenfeldprofils und den gleichzeitigen Aufbau eines Feldprofils, welches durch eine Superposition von Feldprofilen innerhalb der einzelnen Körnern erklärt werden kann.

Abbildung 3.7 zeigt Hallmessungen der Probe K-3 mit einer vorausgehenden Magnetisierungsgeschichte<sup>5</sup>. Die Probe wurde in einem Zustand vermessen, in dem bereits ein Feldprofil zu Beginn der Messung vorhanden war (siehe Bildunterschrift). Die ersten drei vom Nullfeld rechts aus gesehenen Messpunkte der Hallmessungen zeigen Feldprofile, die jenen des Bean Modells sehr gut entsprechen. Zwischen der ersten und zweiten

<sup>5</sup>Diese Messungen wurden wie jene zuvor von J. Hecher durchgeführt und für diese Arbeit zur Verfügung gestellt.

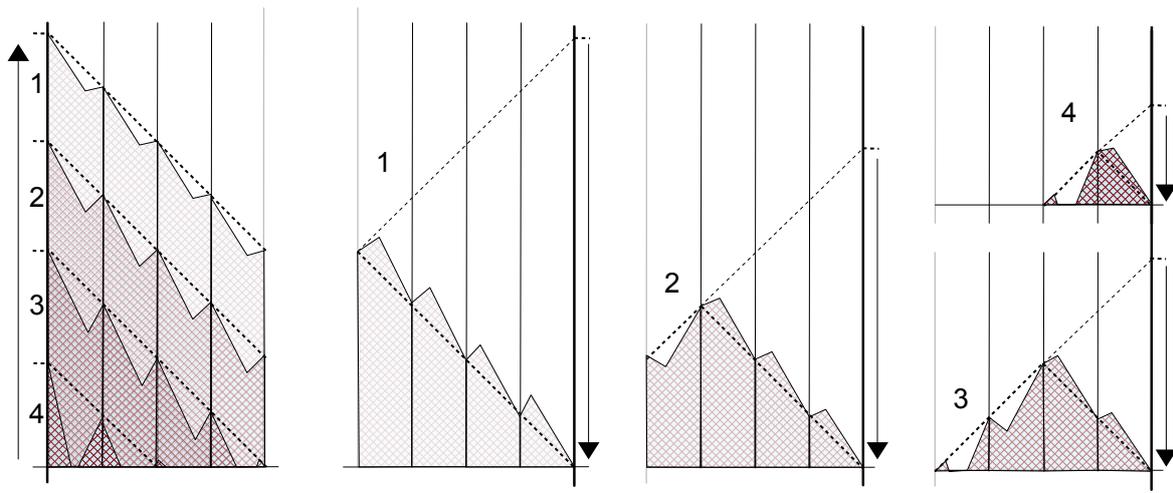


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der Überlagerung von Korn- mit Probenströmen in den Randbereichen einer polykristallinen Probe in Analogie zum Einkristall des Bean Modells. Links ist eine Hälfte einer Probe im vertikalen Schnitt zu sehen. Die vertikalen Linien sollen einzelne Körner darstellen. In der linken Darstellung ist die Probe auf der linken Seite einem äußeren Feld ausgesetzt, welches in vier Schritten erhöht wird. Die entsprechenden Feldprofile sind in den Körnern eingezeichnet. Die anderen Darstellungen auf der rechten Seite der Abbildung zeigen remanente Feldprofile bei einer Feldreduktion der zuvor entsprechend angelegten Feldern auf null. Die einzelnen Zugehörigkeiten sollen sowohl durch die Färbung der Feldprofile als auch durch Andeutung des angelegten Maximalfeldes verdeutlicht werden.

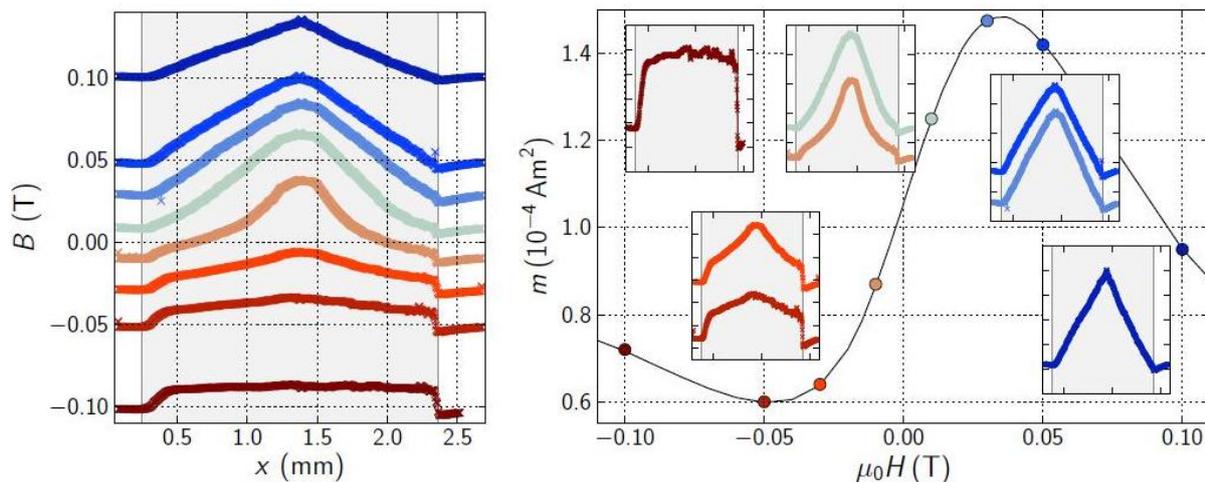


Abbildung 3.7: Hallmessungen der Probe K-3 im abnehmenden Feld. Die Probe wurde bei  $\mu_0 H_{\text{bg}} = 0$  T gekühlt und das äußere Feld anschließend auf 0.5 T erhöht. Die darauffolgenden Hallmessungen der Probenoberfläche wurden bei  $\mu_0 H_{\text{ap}} = \pm 0.01, \pm 0.03, \pm 0.05$  und  $\pm 0.1$  T durchgeführt und sind in der linken Abbildung dargestellt. In der rechten Abbildung sind diese Schritte in Form farbiger Punkte entlang der entsprechenden Magnetisierungsschleife eingezeichnet. Die farblich dazu korrespondierenden Kurven der Hallmessungen sind um diese Magnetisierungskurve angeordnet.

Hallmessung ist ein relativer Anstieg der Flankensteigung des Feldprofils zu sehen. Dies entspricht der Ausbildung eines höheren magnetischen Moments, wie auch anhand der Magnetisierungsschleife erkennbar ist. Die Hallmessungen der nächsten vier Messpunkte nach dem Maximum zeigen den fortschreitenden Zusammenbruch des Probenfeldprofils und den gleichzeitigen Aufbau der Kornfeldprofile. Die Hallmessung des letzten Punktes zeigt deutlich ausgebildetes Kornfeldprofil über die ganze Probe. Ein Feldprofil über die Probe lässt sich noch schwer erkennen, was sich in einer Reduktion der globalen kritischen Stromdichte äußert.  $j_c^K$  wird immer stärker und ist für das zweite Maximum von  $m$  verantwortlich. Zusammenfassend bestätigen die SHPM-Messungen die Interpretationen der zuvor durchgeführten Messungen von  $m$  mit dem VSM und SQUID Magnetometer.

### 3.1.5 Remanente Magnetisierung

Nach der ausführlichen Darstellung der Magnetisierungskurven im auf- und absteigenden Feld folgt in diesem Abschnitt die Untersuchung der remanenten Magnetisierung der Probe. Details zu dieser Messmethode sind in Abschnitt 2.3 zu finden. Es wurden Messungen bei verschiedenen Temperaturen und  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  durchgeführt. Eine Zusammenfassung dieser Messparameter ist in Tabelle 3.3 zu finden. Um mit der Messung der remanenten Magnetisierung verschiedene Effekte zu visualisieren, wird entweder die Temperatur oder  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  konstant gehalten und der jeweils andere Parameter variiert. Dieses Vorgehen ermöglicht den direkten Vergleich der Messkurven. Eine Besonderheit dieser Messmethode ist die

Tabelle 3.3: Messparameter für die Bestimmung des remanenten magnetischen Moments der Probe K-3.

Temperatur (K)	$\mu_0 H_{bg}$ (T)					
5	-0.2	-0.05	0	0.03	0.2	0.5
10	-0.2	-0.05	0	0.03	0.2	0.5
20			0			
30			0			

Möglichkeit Proben- und Kornströme getrennt voneinander zu beschreiben, wie im weiteren Verlauf erläutert wird.

Abbildung 3.8(a) zeigt drei Messungen bei positiven  $\mu_0 H_{bg}$  und einer Messtemperatur von 5 K. Die verschiedenen Farben der Kurven korrespondieren mit den Farben jener Punkte im Einschub links oben, die auf der Magnetisierungskurve bei einem  $\mu_0 H_{max}$  von 7 T liegen. An dieser Stelle sei noch einmal erwähnt, dass die in der Abbildung dargestellten Messwerte den Endpunkten der verschiedenen zu  $H_{ap}$  korrespondierenden rücklaufenden Äste entsprechen.

Mit der Erhöhung von  $H_{ges}$  kommt es zunächst zu einem Anstieg von  $m_r$  aufgrund der Ausbildung von  $j_c^P$ . Die remanente Magnetisierung steigt bis zur Sättigung dieses Beitrages an. Dieses Verhalten der kritischen Ströme bzw. jenes der entsprechenden Feldprofile ist in Abbildung 3.8(b) ausgehend von links unten nach rechts oben schematisch dargestellt. Wird  $H_{ges}$  groß genug, beginnen Kornströme zu fließen und es baut sich ein entsprechendes Feldprofil auf (rechts unten) bis auch dieser Anteil von  $m_r$  gesättigt ist (rechts oben). Im Sättigungsbereich (ab  $\mu_0 H_{ap} \approx 1$  T) koexistieren beide Stromanteile und bilden so eine globale Magnetisierung der Probe (siehe entsprechende Feldprofile in Abb. 3.8(c)).

Wie im Einschub von Abbildung 3.8(a) zu sehen ist, befinden sich die  $H_{bg}$  aller drei Messungen noch vor dem Bereich, in dem das magnetische Moment zusammenbricht. Nach den Hallmessungen der Probenmagnetisierung am Ende des vorigen Abschnittes sind im abfallenden Feld (bei  $H_{max} \geq 0.5$  T) hauptsächlich Probenströme für das Auftreten des globalen Maximums der Magnetisierung verantwortlich. Außerdem ist zu beobachten, dass ein höheres  $H_{bg}$  eine schwächere remanente Magnetisierung bedingt.

Abbildung 3.9(a) zeigt Messkurven der remanenten Magnetisierung bei verschiedenen  $\mu_0 H_{bg} \leq 0$  T. Man erkennt hier ein deutlich anderes Verhalten als bei positiven  $H_{bg}$ . Im Einschub links oben sieht man die jeweiligen  $H_{bg}$ , welche von rechts nach links gesehen nach dem ersten Maximum der Magnetisierungsschleife liegen. Damit liegen sie in jenem Bereich, der bereits vom Zusammenbruch des globalen kritischen Stromes betroffen ist.

Bei anfänglicher Erhöhung von  $H_{ap}$  steigt das remanente magnetische Moment der Probe also aufgrund der Ausbildung von  $j_c^P$  an. Im Falle der grünen Kurve ( $H_{bg} = 0$  T) bildet

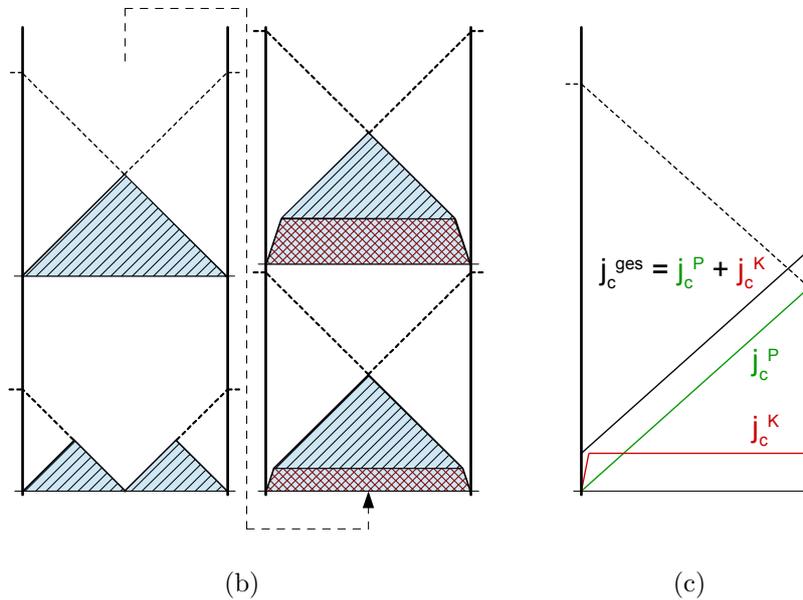
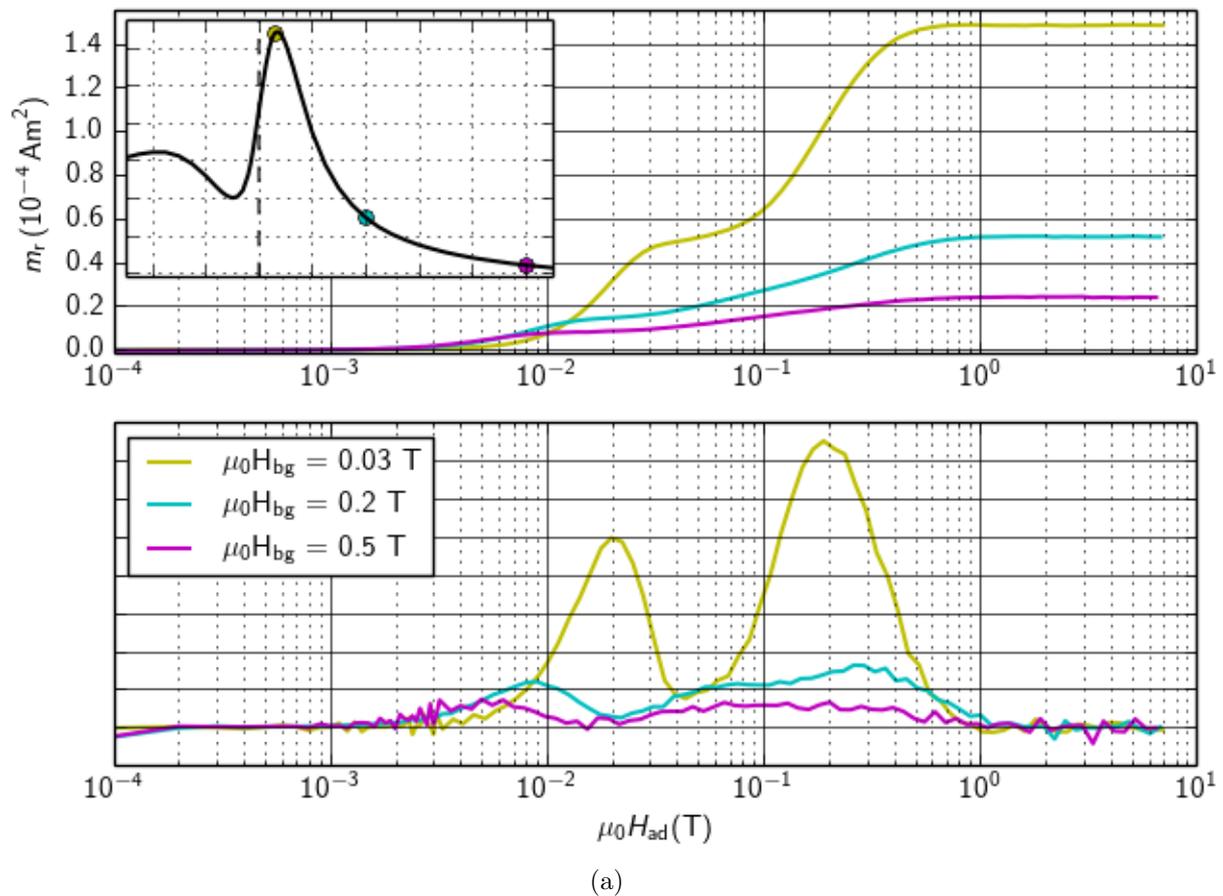
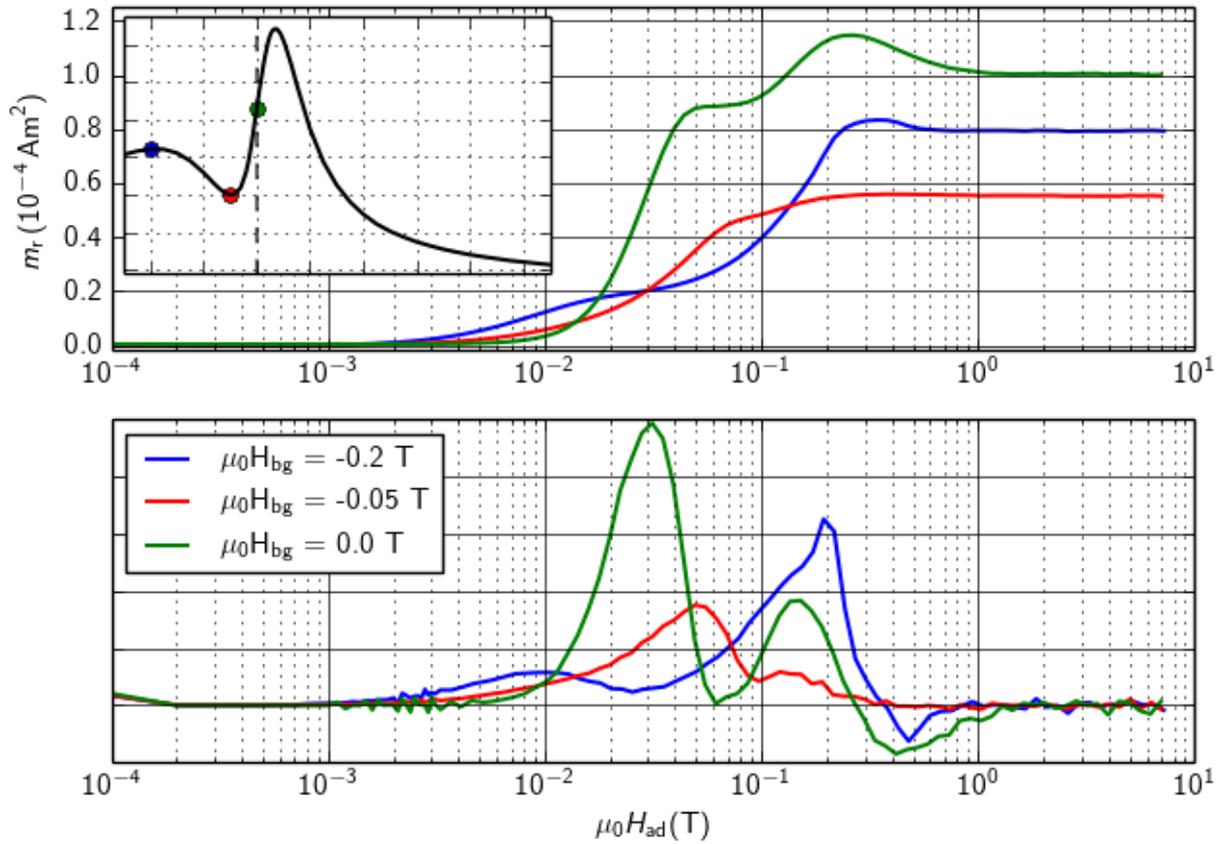
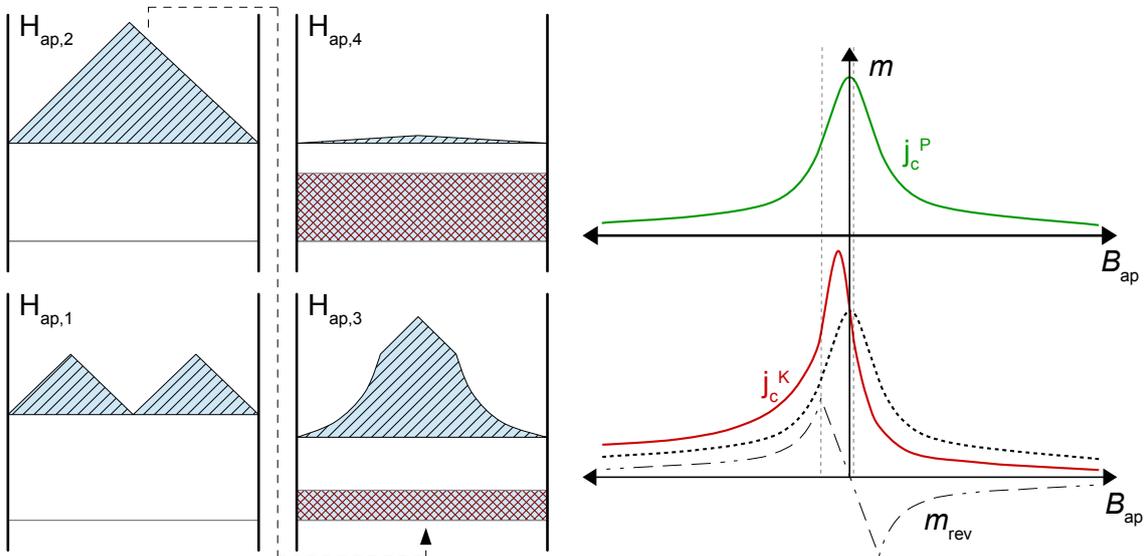


Abbildung 3.8: Abbildung (a) zeigt die Messdaten der remanenten Magnetisierung bei positiven  $H_{bg}$  und 5 K. Die Farben der Kurven korrespondieren dabei mit den Farben der Punkte im Einschub links oben. Dieser zeigt einen Ausschnitt der Magnetisierungskurve im abfallenden Feld bei einem  $H_{max}$  von 7 T. Die vertikale grau strichlierte Linie markiert  $H_{ap} = 0$  und dient der Orientierung. Die Abbildungen (b) und (c) soll das Verhalten der Feldprofile entsprechend der zwei Stromdichten  $j_c^P$  und  $j_c^K$  im Verlauf der Messung illustrieren. Für Details siehe Fließtext.



(a)



(b)

(c)

Abbildung 3.9: Abbildung (a) zeigt die Messkurven der remanenten Magnetisierung bei  $\mu_0 H_{bg} \leq 0$  T und 5 K. Die Farben der Kurven korrespondieren dabei mit den Farben der Punkte im Einschub links oben. Dieser zeigt einen Ausschnitt der Magnetisierungskurve im abfallenden Feld bei einem  $\mu_0 H_{max}$  von 7 T. Die vertikale grau strichlierte Linie markiert  $\mu_0 H_{ap} = 0$  T und dient der Orientierung. Abbildung (b) soll das Verhalten der zwei Stromdichten  $j_c^P$  und  $j_c^K$  im Verlauf der Messung illustrieren ( $H_{ad,1} < H_{ad,2} < H_{ad,3} < H_{ad,4}$ ). Abbildung (c) zeigt die schematische Darstellung des Proben- und Kornstromverlaufs im variablen Feld.

sich ab einem  $H_{\text{ap}}$  von etwa  $5.5 \cdot 10^{-2}$  T ein Plateau aus. Dies entspricht der Sättigung von  $j_c^{\text{P}}$ . Weitere Erhöhung von  $H_{\text{ap}}$  bewirkt einen erneuten Anstieg des Messsignals. In diesem Bereich werden Kornströme  $j_c^{\text{K}}$  aufgebaut. Das Signal steigt bis zu einem Maximum an und sinkt anschließend wieder auf einen konstanten Wert ab. Dieses Verhalten lässt sich mithilfe der Überlagerung der Stromanteile  $j_c^{\text{P}}$  und  $j_c^{\text{K}}$  verstehen und ist in Abbildung 3.9(c) schematisch dargestellt. Die obere Abbildung zeigt den Verlauf von  $j_c^{\text{P}}$  (grün), der untere jenen von  $j_c^{\text{K}}$  (rot). Es lässt sich erkennen, dass der Bereich um das Maximum von  $j_c^{\text{K}}$  von der Position auf der Feldachse her links vom Maximum von  $j_c^{\text{P}}$  liegt. Überlagert man beide Kurven miteinander und berücksichtigt, dass der Anstieg von  $j_c^{\text{K}}$  eine unterdrückende Wirkung auf  $j_c^{\text{P}}$  hat, erhält man jenes charakteristische Verhalten des gesamten kritischen Stromes, welches in den vorigen Abschnitten beobachtet wurde.

Nach dem Maximum der grünen Kurve in Abbildung 3.9(a) steigt  $j_c^{\text{K}}$  zwar an,  $j_c^{\text{P}}$  wird jedoch unterdrückt und es kommt zu einer Sättigung von  $j_c^{\text{K}}$ , sodass dieser Stromanteil ausschlaggebend für das remanente magnetische Moment bei hohen Feldern  $H_{\text{ap}}$  ist. Der Grad der Unterdrückung ist jedoch nicht genau nachvollziehbar, was die weitere Bestimmung kritischer Stromdichten mithilfe dieser Kurven verhindert. Es lässt sich anhand dieser Messungen nicht feststellen, ob es sich um ein reines Aufkommen von  $j_c^{\text{K}}$  handelt.

Das Verhalten der Feldprofile der Probe ist in Abbildung schematisch 3.9(b) dargestellt. Die Abbildung ist von links unten nach rechts oben zu lesen. Bei anfänglicher Erhöhung von  $H_{\text{ap}}$  werden Probenströme ausgebildet, was zu einer nach Bean charakteristischen Verteilung der Feldlinien führt ( $H_{\text{ap},1}$  und  $H_{\text{ap},2}$ ). Bei höheren Feldern ( $H_{\text{ap},3}$ ) bilden sich Kornströme aus. Diese steigen mit höher werdenden Feld  $H_{\text{ap}}$  weiter und beginnen, analog zu den Hallmessungen der Probenmagnetisierung des vorigen Abschnittes,  $j_c^{\text{P}}$  zu unterdrücken, was den Einbruch der Flanken des Feldprofils der Probe zur Folge hat (rechts unten). Je stärker  $j_c^{\text{K}}$  ansteigt, desto mehr wird  $j_c^{\text{P}}$  unterdrückt, bis schlussendlich nur noch ein minimaler Beitrag von  $j_c^{\text{P}}$  vorhanden ist (rechts oben).  $j_c^{\text{P}}$  spielt nach diesem Modell bei höheren Feldern eine untergeordnete Rolle.

Die beiden Kurven mit negativen  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  (rot und blau) weisen kein deutlich ausgeprägtes Plateau auf, da die jeweiligen  $j_c^{\text{P}}$  bereits vor ihrer Sättigung von den  $j_c^{\text{K}}$  beeinflusst bzw. unterdrückt werden. Es fällt auf, dass die rote Kurve ein weit schwächer ausgeprägtes globales Maximum besitzt als die anderen Messkurven. Der Grund dafür liegt darin, dass  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  gerade so gewählt wurde, dass es beim lokalen Minimum der Magnetisierungsschleife mit einem  $H_{\text{max}}$  von 7 T liegt und  $j_c^{\text{P}}$  daher viel geringer als bei der Messung von  $m_{\text{r}}$  bei  $\mu_0 H_{\text{bg}} = 0$  T ist. Abbildung 3.9(c) zeigt schematisch das Verhalten von  $j_c^{\text{K}}$  und  $j_c^{\text{P}}$  im äußeren Feld. Der untere Graph zeigt eine Überlagerung von reversiblen und irreversiblen magnetischen Momenten der Körner. Der dazu korrespondierende kritische Strom  $j_c^{\text{K}}$  ist in rot dargestellt. Im darüber liegenden Graphen findet sich eine Kurve für  $j_c^{\text{P}}$ , welche die Einhüllende des Josephsonstromes darstellen soll. Wie in Abschnitt 1.1 erläutert, wird dieses Verhalten aufgrund der Vielzahl an Josephson-Kontakten angenommen. Da diese

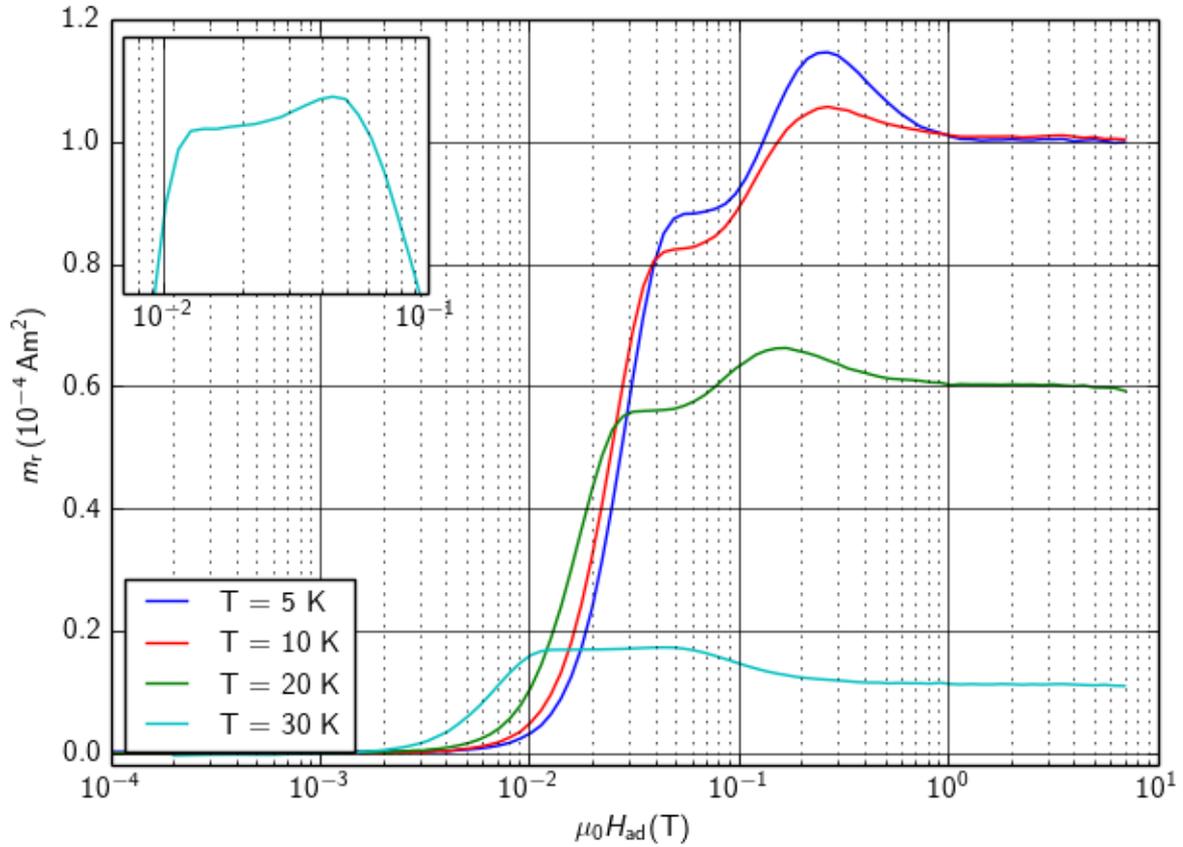


Abbildung 3.10: Abbildung (a) zeigt Messdaten der remanenten Magnetisierung  $\mu_0 H_{bg} = 0$  und den Temperaturen von 5, 10, 20 und 30 K. Der Einschub zeigt einen vergrößerten Bereich der 30 K Messung. Alle vier Kurven zeigen ein qualitativ sehr ähnliches Verhalten.

Kurve allerdings einem  $\frac{1}{B}$ -Verhalten folgt, ist diese Beschreibung nur qualitativer Natur, da sie bei  $B = 0$  T divergieren müsste. Betrachtet man Ausdruck (1.24) in Abschnitt 1.1 für Josephsonströme, erkennt man, dass die Sinusfunktion im Nenner diese Divergenz verhindert.

Die beiden Graphen sind durch grau strichlierte Linien verbunden, welche jenen Bereich andeuten sollen, in denen  $j_c^K$  maximal ist und eine entsprechend unterdrückende Wirkung auf  $j_c^P$  haben. Diese vertikalen Linien liegen nicht symmetrisch um das Nullfeld und schaffen demzufolge auch eine Asymmetrie in  $j_c^P$ . Allgemein lässt sich beobachten, dass der Abfall der Magnetisierungskurve nach dem Maximum steiler ist, je näher  $\mu_0 H_{bg}$  bei  $\mu_0 H_{ap} = 0$  T ist (siehe Abbildung 3.9(a)). Dies fällt bei  $\mu_0 H_{bg} = -0.05$  T (rote Kurve) nicht auf, da der Anteil  $j_c^P$  kleiner als bei den anderen Messkurven ist.

Nachdem das Verhalten bei variablen  $H_{bg}$  untersucht wurde, folgt nun die Analyse bei variabler Temperatur. Abbildung 3.10 zeigt das remanente magnetische Moment der Probe K-3 bei den Temperaturen 5, 10, 20 und 30 K unter zfc-Bedingungen. Alle vier Kurven zeigen qualitativ dasselbe Verhalten. Zu Beginn baut sich bei kleinen Feldern der Probenstrom auf, was sich in einem ersten Anstieg der remanenten Magnetisierung

äußert. Wie zuvor erläutert, ist dieser Anstieg durch den Aufbau von  $j_c^P$  bedingt.

Bei allen vier Messtemperaturen lässt sich eine Sättigung dieses Stromanteils erkennen, noch bevor ein globales Maximum vom  $m_r$  entsteht. Bei höheren Feldern sinkt  $m_r$  wieder ab und sättigt auf einen konstanten Wert ab. Der Einschub in Abbildung 3.10 zeigt einen vergrößerten Ausschnitt der 30 K Messung. Auch hier ist die Ausbildung eines Plateaus sowie ein darauf folgendes Maximum der remanenten Magnetisierung zu sehen. Die Temperatur hat somit bei  $\mu_0 H_{bg} = 0$  keinen signifikanten Einfluss auf das Magnetisierungsverhalten der Proben. Mit höherer Temperatur lässt sich eine Verschiebung der Messkurven inklusive aller Auffälligkeiten zu kleineren  $\mu_0 H_{ap}$  sowie ein generelles Absinken der Signalstärke beobachten. Diese Entwicklung ist leicht einzusehen, wenn man bedenkt, dass gleichzeitig bei Anstieg der Temperatur der kritische Strom und damit das magnetische Moment sinkt.

Es bietet sich an, anhand der Messungen der remanenten Magnetisierung, Abschätzungen der verschiedenen Ströme aufzustellen. Mithilfe der Ausführungen in Abschnitt 2.3.2 kann mit dem bekannten irreversiblen magnetischen Moment auf die kritische Stromdichte geschlossen werden. Mit den hier vorliegenden Messungen lässt sich genau diese Größe bestimmen. Das reversible magnetische Moment wird über eine Offsetkorrektur während der Auswertung eliminiert. Für diese Korrektur wird mit den ersten paar Messpunkten ein Mittelwert gebildet und anschließend von den einzelnen Messungen von  $m_r$  abgezogen. Damit fallen reversible Beiträge zu  $m_r$  weg und alle Kurven liegen bei den ersten Messpunkten auf der Höhe null. Die in diesem Abschnitt präsentierten Messkurven entsprechen also den jeweiligen irreversiblen magnetischen Momenten von  $m_r$ . Die Ergebnisse dieser Abschätzungen werden allerdings erst am Ende von Abschnitt 3.3 präsentiert, damit eine geschlossene Behandlung der Kalium dotierten Proben ermöglicht wird.

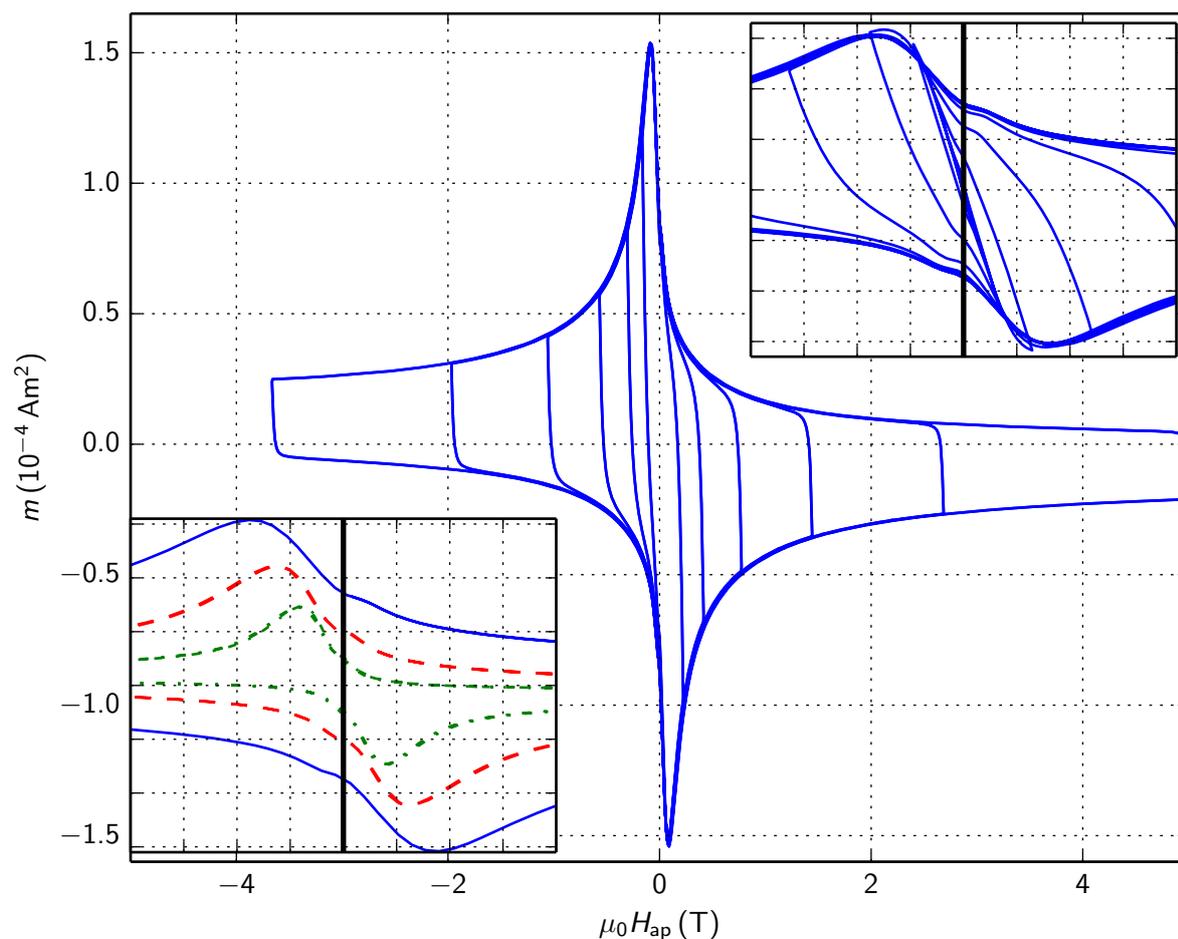


Abbildung 3.11: Messungen des magnetischen Moments der Probe K-15 via VSM. Zu sehen ist das magnetische Moment bei verschiedenen  $H_{\max}$ . Der Einschub rechts oben zeigt einen vergrößerten Ausschnitt des vollständigen Datensatzes der 5 K Messung im Bereich  $\mu_0 H_{\text{ap}} = \pm 0.2$  T. Der Einschub links unten zeigt die äußersten Messschleifen bei den Temperaturen 5 (blau, durchgezogen), 10 (rot, strichliert) und 20 K (grün, punkt-strichliert).

## 3.2 Probe K-15

Die zweite Kalium dotierte Probe ist mit einer durchschnittlichen Korngröße von  $15 \mu\text{m}$  aus größeren Körnern aufgebaut als die der Probe K-3, welche im letzten Abschnitt behandelt wurde. Da für diese großkörnige Probe zum Zeitpunkt des Verfassens dieser Arbeit keine Hallmessungen zur Verfügung standen, wird im Folgenden die Annahme getroffen, dass ähnliche Mechanismen für das magnetische Verhalten der Proben verantwortlich sind. Das bedeutet, dass für die angenommenen Feldprofile der Probe in verschiedenen Stadien der Magnetisierung dieselben Verhaltensweisen erwartet werden. Die präsentierten Daten dieses Abschnittes bestärken diese Annahme, weshalb die Diskussion der Probe K-15 nicht so ausführlich durchgeführt wird. Alle qualitativen Ergebnisse können aus Abschnitt 3.1 übernommen werden.

### 3.2.1 Magnetisierungsmessungen des magnetischen Moments

Analog zur feinkörnigen Probe wurden mit dem VSM Magnetisierungsmessungen durchgeführt. Abbildung 3.11 zeigt die Resultate dieser Messungen. Bei dieser Probe wurde eine Korrektur des Messsignals durchgeführt, indem eine Hintergrundmessung bei 40 K<sup>6</sup> durchgeführt und von den Messdaten bei 5, 10 und 20 K abgezogen wurde.

Der Einschub rechts oben in Abbildung 3.11 zeigt einen vergrößerten Ausschnitt der Messdaten im Feldbereich von  $\pm 0.2$  T. Die schwarze Linie markiert das Nullfeld. Im Gegensatz zur feinkörnigen Probe ist das ausführlich diskutierte Maximum von  $m$  vor dem Nulldurchgang nur sehr schwach ausgeprägt. Die Temperaturabhängigkeit des magnetischen Moments dieser Probe ist im linken unteren Einschub dargestellt. Die Feldbegrenzung liegt abermals bei  $\pm 0.2$  T. Es lassen sich wie bei der feinkörnigen Probe qualitativ keine signifikanten Unterschiede erkennen. Der zu erkennende Drift des dem Probenstrom zugeschriebenen Beitrages nach links lässt sich mit dem reduzierten Selbstfeld der Körner erklären. Bei höherer Temperatur sind diese Felder geringer, womit auch die Verschiebung nach rechts nicht mehr so stark ausgeprägt ist. Für eine ausführlichere Untersuchung der magnetischen Eigenschaften der Probe wurde abermals auf das SQUID Magnetometer zurückgegriffen.

### 3.2.2 Messungen des magnetischen Moments im SQUID

Um einen besseren Vergleich zwischen den beiden Proben gewährleisten zu können, wird die Datenauswertung dieser Probe analog zur Probe K-3 durchgeführt. Da für diese Probe keine Hallmessungen zur Verfügung stehen, wird davon ausgegangen, dass bezüglich Proben- und Kornstrom die gleichen Mechanismen gelten.

Das Magnetisierungsverhalten im ansteigenden Feld wurde im zfc- und in verschiedenen fc-Fällen untersucht. Abbildung 3.12(a) zeigt einige ausgewählte Datensätze. Der Kurvenverlauf zeigt nur ein deutlich ausgeprägtes Maximum bei kleinen Felderhöhungen, welches bei höheren  $H_{bg}$  immer schwächer ausgeprägt ist. Es ist kein zweites Maximum zu sehen. Der Anteil des Probenstroms dürfte demnach vom Kornstrom unterdrückt und für das magnetische Moment einer Probe bei zfc-Bedingungen im ansteigenden Feld vernachlässigbar sein. Abbildung 3.12(b) verdeutlicht mithilfe einer logarithmischen Darstellung der Feldachse das Fehlen einer entsprechenden Unregelmäßigkeit in den Magnetisierungskurven.

Tabelle 3.4 zeigt eine Zusammenfassung der abgeschätzten Werte für  $\mu_0 H^{*,K}$  und  $\mu_0 H^{*,K_{ges}}$ . Analog zu Tabelle 3.2 in Abschnitt 3.1.2 wurden die Werte aus der zweiten Spalte anhand der Maxima der Kurven aus Abbildung 3.12(a) bestimmt. Die Werte der dritten Spalte wurden aus jenem Bereich der Messungen abgelesen, in dem eine einzelne Messkurve mit der vorherigen überlappt. In diesem Fall diente die Messkurve bei

<sup>6</sup>Zur Erinnerung: Die kritische Temperatur dieser Probe liegt bei etwa 38 K.

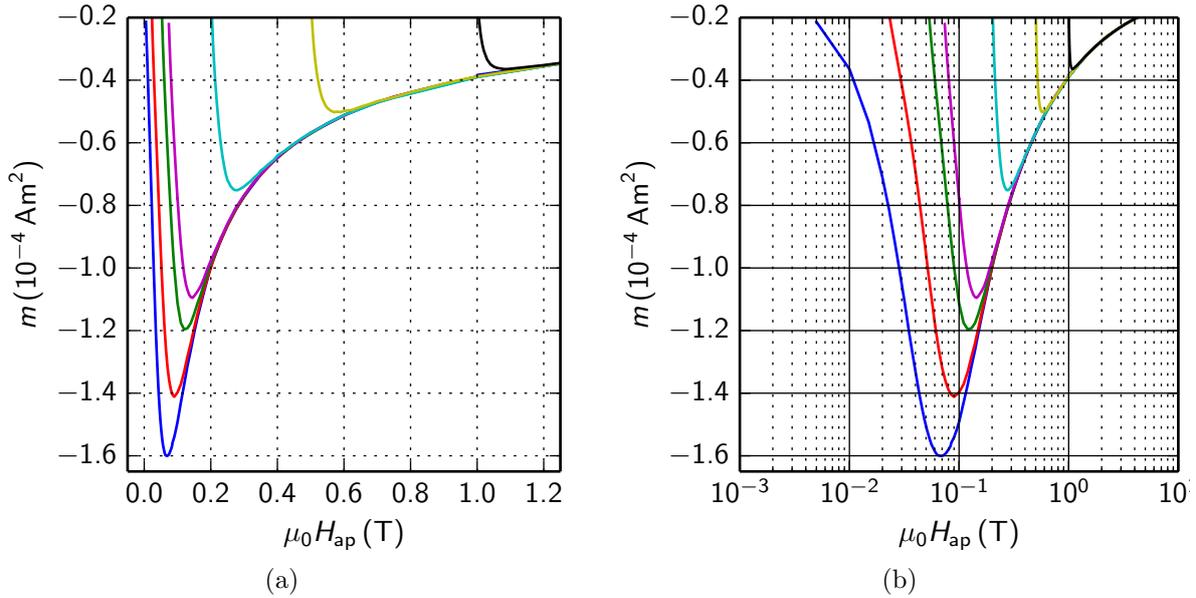
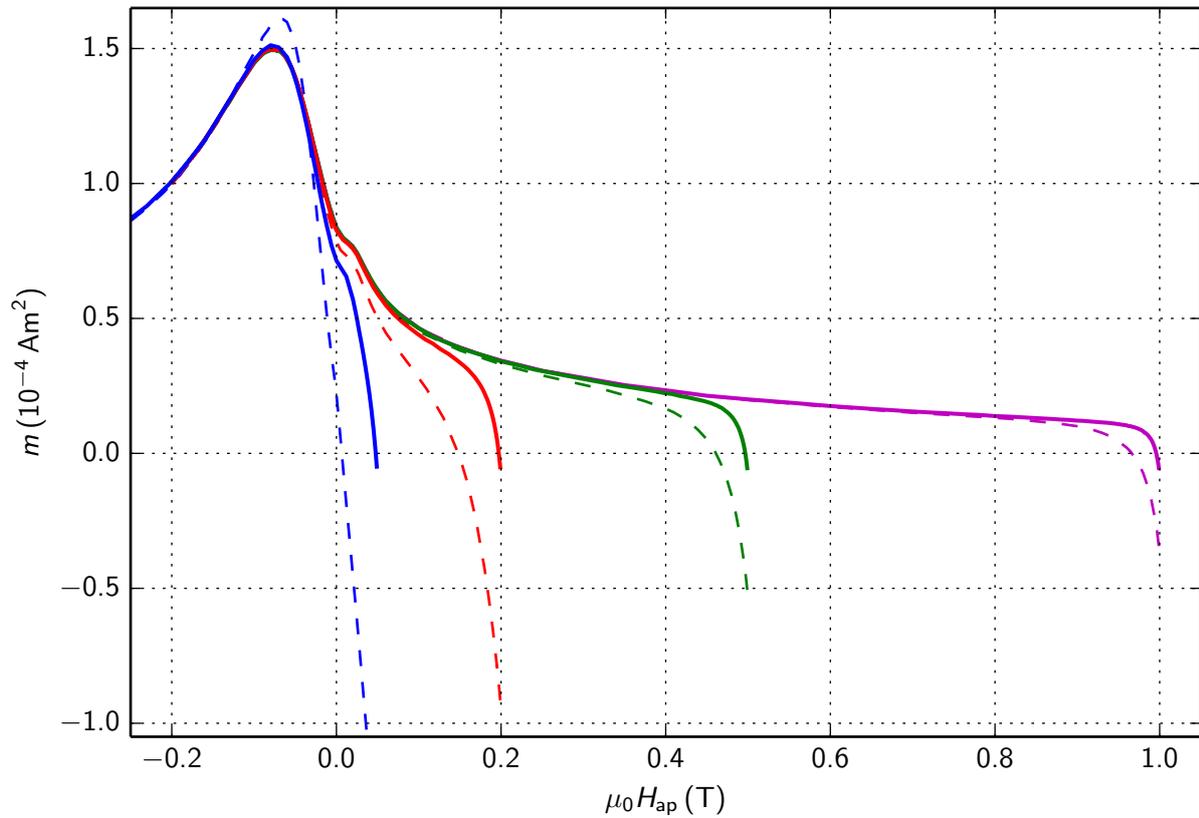


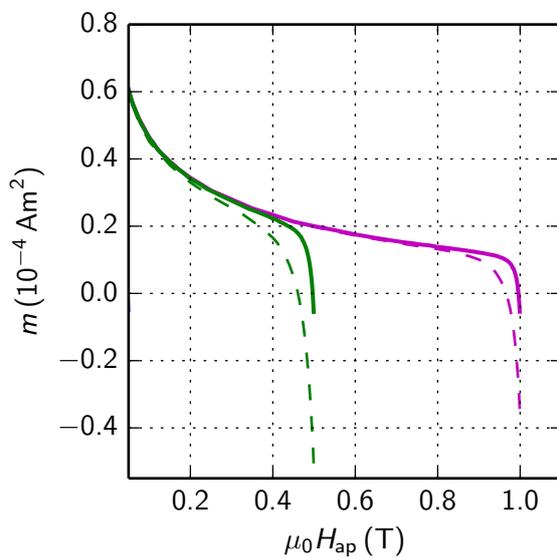
Abbildung 3.12: Abbildung (a) zeigt den Verlauf des magnetischen Moments bei  $\mu_0 H_{bg} \geq 0$  T im ansteigenden Feld  $H_{ap}$  bei 5 K. Die exakten Werte für die jeweiligen  $\mu_0 H_{bg}$  sind in aufsteigender Reihenfolge in Tabelle 3.4 zu finden. Abbildung (b) zeigt dieselben Daten, jedoch mit logarithmischer Darstellung der Feldachse.

$\mu_0 H_{bg} = 0$  T als Referenzkurve. Diese Werte für die verschiedenen  $\mu_0 H^{*,K}$  entsprechen nach dem Bean Modell bei einem Korndurchmesser von  $15 \mu\text{m}$  grob einer Stromdichte von etwa  $7.4 \cdot 10^9 \text{ Am}^{-2}$ . Eine Abschätzung von  $\mu_0 H^{*,P}$  konnte anhand dieser Messkurven nicht durchgeführt werden, da kein sichtbarer Anteil dieser Größe vorhanden ist. Umgekehrt lässt sich bei bekanntem kritischem Strom sowie  $\mu_0 H^{*,K}$  abermals auf die Korngröße schließen. Bei einem kritischen Kornstrom von  $j_c^K = 10^{10} \text{ Am}^{-2}$  und einem  $B^{*,K}$  von  $0.07$  T erhält man für den halben Korndurchmesser einen Wert von etwa  $5.5 \mu\text{m}$ . Der vollständige Korndurchmesser beträgt demnach  $11 \mu\text{m}$  und stimmt gut mit der beobachteten Größe von etwa  $15 \mu\text{m}$  überein.

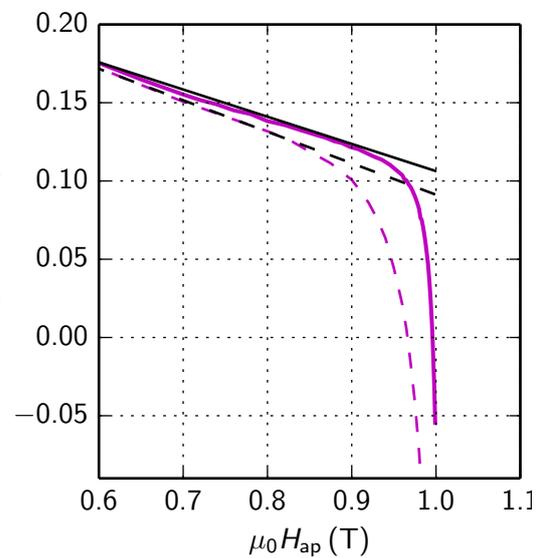
Das magnetische Verhalten im abfallenden Feld ist in Abbildung 3.13(a) zu sehen. Die Farben der Messkurven deuten die verschiedenen  $H_{max}$  an. Durchgezogene Linien kennzeichnen fc-Messungen, gestrichelte zfc-Messungen. Wie nach dem Bean Modell erwartet und analog zur feinkörnigen Probe kommt es bei der ersten Feldreduktion zu einer rapiden Änderung des magnetischen Moments. Dies entspricht dem Aufbau eines Feldprofils (fc) bzw. der Invertierung eines Vorhandenen (zfc) in den Körnern der Probe. Dieses erste Verhalten wird von einem Bereich abgelöst, in dem sich das magnetische Moment nur langsam ändert. Dies entspricht einem Anstieg des Feldprofilgradienten und damit dem Anstieg des kritischen Stromes in den Körnern. Dieser Vorgang schreitet fort, bis bei etwa  $0.025$  T eine Abweichung vom nach Bean erwarteten Verhalten auftritt. Vergleicht man die entsprechenden Messdaten der feinkörnigen Probe mit den hier diskutierten, so lässt



(a)



(b)



(c)

Abbildung 3.13: Abbildung (a) zeigt den Verlauf von  $m$  der Probe K-15 bei verschiedenen  $\mu_0 H_{\max}$  bei fc (durchgezogen) sowie zfc (strichliert). In Abbildung (b) sind Ausschnitte der Messkurven bei  $\mu_0 H_{\max} = 0.5$  und 1 T bei fc und zfc zu sehen. Abbildung (c) zeigt Anpassungsgeraden (voll bzw. strichliert) an die unter fc und zfc aufgenommenen Messkurven.

Tabelle 3.4: Zusammenfassung von verschiedenen  $\mu_0 H^{*,K}$  der Probe K-15, welche anhand der Messungen des magnetischen Moments  $m$  im ansteigenden Feld abgeschätzt wurden.

$\mu_0 H_{bg}$ (T)	$\mu_0 H^{*,K}$ (T)	$\mu_0 H^{*,K_{ges}}$ (T)
0	0.07	
0.02	0.07	0.17
0.05	0.07	0.18
0.07	0.07	0.18
0.2	0.07	0.19
0.5	0.08	0.2
1	0.08	0.19

sich der Höcker kurz vor dem Nulldurchgang mit dem Inter-Maximum identifizieren. Für diese Vermutung spricht auch die Abhängigkeit der Position und der Höhe des Höckers von  $H_{max}$ , der bei der feinkörnigen Probe jedoch viel dominanter ausgeprägt ist. Wird das Feld negativ, tritt ein Maximum der Magnetisierung auf. Auch hier sieht man einen Effekt, der schon bei der feinkörnigen Probe aufgetreten ist, nämlich ein Überschießen der Magnetisierung bei kleinen  $H_{bg}$ . Bei diesem Maximum handelt es sich um den Beitrag von  $j_c^K$  zur globalen kritischen Stromdichte.

Abbildung 3.13(c) zeigt einen vergrößerten Bereich der Messkurven mit einem  $H_{max}$  von 0.5 und 1 T unter fc- und zfc-Bedingungen. Um eine Einschätzung des kritischen Stromes nach dem Bean Modell durchzuführen, wird anhand dieser Abbildung das  $H^*$  der Probe abgeschätzt. Die Kurvendarstellung ist analog zu Abbildung 3.13(a) gewählt. Wie bereits bei der feinkörnigen Probe ausgeführt, wird eine Feldreduktion um  $\mu_0 H^*$  benötigt, um im fc-Fall ein vollständiges Feldprofil aufzubauen. Im zfc-Fall ist eine Reduktion um  $2 \cdot \mu_0 H^*$  notwendig, um das vorhandene Feldprofil zu invertieren, was zu einer Abschätzung von  $\mu_0 H^*$  auf etwa 0.09 T und im fc-Fall auf etwa 0.08 T führt. Die entsprechenden Kornstromdichten lauten  $9.6 \cdot 10^9$  (zfc) bzw.  $8.5 \cdot 10^9$  Am<sup>-2</sup>. Bei dieser Probe ist bei einer Reduktion von  $H_{ap}$  um den doppelten Wert von  $H^*$  eine bessere Übereinstimmung der beiden Magnetisierungsäste zu sehen, jedoch keine vollständige. Dies spricht analog zur feinkörnigen Probe dafür, dass im zfc-Fall Effekte auftreten, die zu einem geringeren Messsignal gegenüber dem fc-Fall führen.

### 3.2.3 Remanente Magnetisierung

Analog zur feinkörnigen Probe wurden auch an dieser Probe Messungen des remanenten magnetischen Moments durchgeführt. Die entsprechenden Messparameter sind in Tabelle 3.5 zu finden. Abbildung 3.14 zeigt die Ergebnisse dieser Messungen bei  $\mu_0 H_{bg} \leq 0$  T und 5 K. Der Einschub links oben in Abbildung 3.14 zeigt die jeweiligen  $H_{bg}$  der Messungen.

Tabelle 3.5: Messparameter für die Messungen der remanenten Magnetisierung der Probe K-15.

Temperatur (K)	$\mu_0 H_{\text{bg}}$ (T)							
5	-0.2	-0.075	-0.05	0	0.02	0.03	0.2	0.5
10	-0.2	-0.075	-0.05	0	0.02	0.03	0.2	0.5
20	-0.2	-0.075	-0.05	0	0.02	0.03	0.2	0.5
30					0			

Die Messung bei  $\mu_0 H_{\text{bg}} = -0.05$  T (grün) zeigt bei erster Erhöhung von  $H_{\text{ad}}$  einen Anstieg der remanenten Magnetisierung. Verfolgt man den Flankenverlauf, erkennt man einen Abfall der Steigung bei etwa  $4.5 \cdot 10^{-2}$  T. Mithilfe der Ableitungen der Messkurven im unteren Bereich von Abbildung 3.14 lässt sich dieser Umstand deutlich erkennen. Ab diesem Feld beginnt  $m_r^{\text{P}}$  abzusinken und Kornströme werden ausgebildet, was den weiteren Anstieg von  $m_r$  erklären kann. Bei etwa  $1.5 \cdot 10^{-1}$  T lässt sich ein schwaches Maximum erkennen, welches wie zuvor bei der feinkörnigen Probe als Überlagerung von Korn und Probenströmen interpretiert wird. Danach sinkt  $m_r^{\text{P}}$  weiter ab und das remanente magnetische Moment sättigt auf einen konstanten Wert. Die rote Kurve ( $\mu_0 H_{\text{bg}} = -0.075$  T) zeigt ein ähnliches Verhalten. Wie bei der Probe K-3 lässt sich anhand dieser Messungen nicht eindeutig feststellen, wie weit der Zusammenbruch von  $j_c^{\text{P}}$  fortgeschritten ist.

Bei  $\mu_0 H_{\text{bg}} = 0$  T lässt sich zuerst der Aufbau von  $j_c^{\text{P}}$  beobachten, gefolgt von einem Anstieg von  $m_r$ , der den Kornströmen zugeschrieben wird. Dabei scheint  $j_c^{\text{P}}$  unbeeinflusst von  $j_c^{\text{K}}$  zu sein. Die blaue Kurve ( $H_{\text{bg}} = -0.2$  T) zeigt keine Spur von  $j_c^{\text{P}}$  und beschreibt den alleinigen Aufbau von  $j_c^{\text{K}}$ .

Abbildung 3.15 zeigt Messungen der remanenten Magnetisierung bei  $H_{\text{bg}} > 0$  T und einer Temperatur von 5 K. Das remanente magnetische Moment wächst mit  $H_{\text{ges}}$  an und sättigt ab einem gewissen Feld auf einen konstanten Wert ab. Sowohl die vorliegenden Messungen als auch die inverse Feldabhängigkeit von  $j_c^{\text{P}}$  sprechen dafür, dass  $j_c^{\text{P}}$  hier keinen offensichtlichen Einfluss zeigt. Da bei hohen Feldern lediglich Kornströme signifikant beteiligt sind, liegt die Vermutung nahe, dass das Auftreten von Probenströmen bei dieser Probe und hohen Feldern vernachlässigbar ist. Möglicherweise spricht die erste Steigung um  $\mu_0 H_{\text{ges}} \approx 10^{-2}$  T für das schwache Auftreten von  $j_c^{\text{P}}$ , aber hierbei handelt es sich um reine Spekulation.

Um die Temperaturabhängigkeit der supraleitenden Eigenschaften der Probe K-15 zu untersuchen, wurden in Abbildung 3.16 Messungen bei  $H_{\text{bg}} = 0$  und den Temperaturen 5, 10, 20 und 30 K einander gegenübergestellt. Die nicht normierte Darstellung der Kurven (siehe Abb. 3.16(a)) zeigt bei allen Kurven ein typisches Verhalten, das für das Auftreten von inter- und intragranularen Strömen spricht. Das erste Flusseindringen in den intergranularen Bereich geschieht mit steigender Temperatur bei immer kleineren Feldern. Es

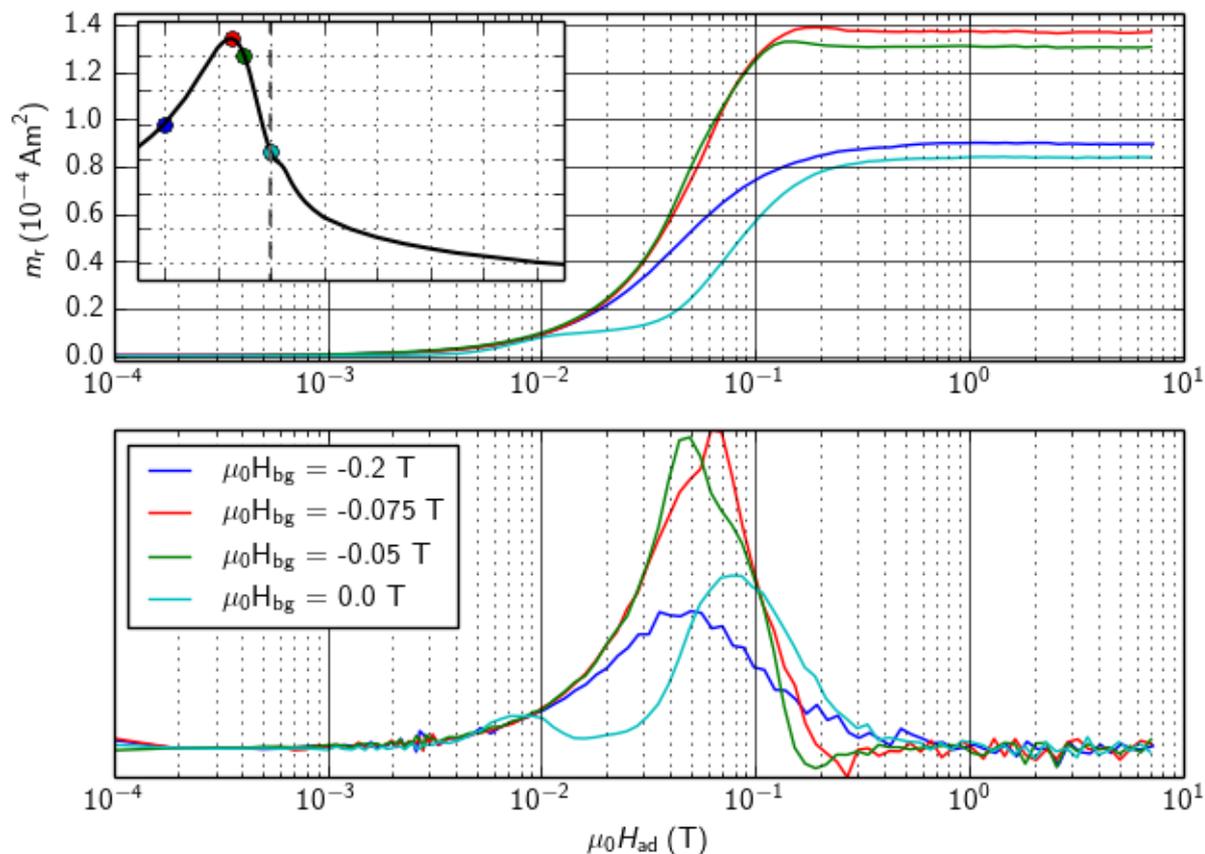


Abbildung 3.14: Der obere Graph zeigt Messkurven der remanenten Magnetisierung der Probe K-15 bei negativen  $\mu_0 H_{bg}$  und  $\mu_0 H_{bg} = 0 \text{ T}$ . Der untere zeigt die entsprechenden Ableitungen dieser Kurven. Der Einschub links oben zeigt den Ausschnitt einer Magnetisierungsschleife mit  $\mu_0 H_{max} = 7 \text{ T}$ . Die verschiedenfarbigen Punkte entsprechen den  $H_{bg}$  der Messungen. Die vertikale grau strichlierte Linie markiert  $H_{bg} = 0$ .

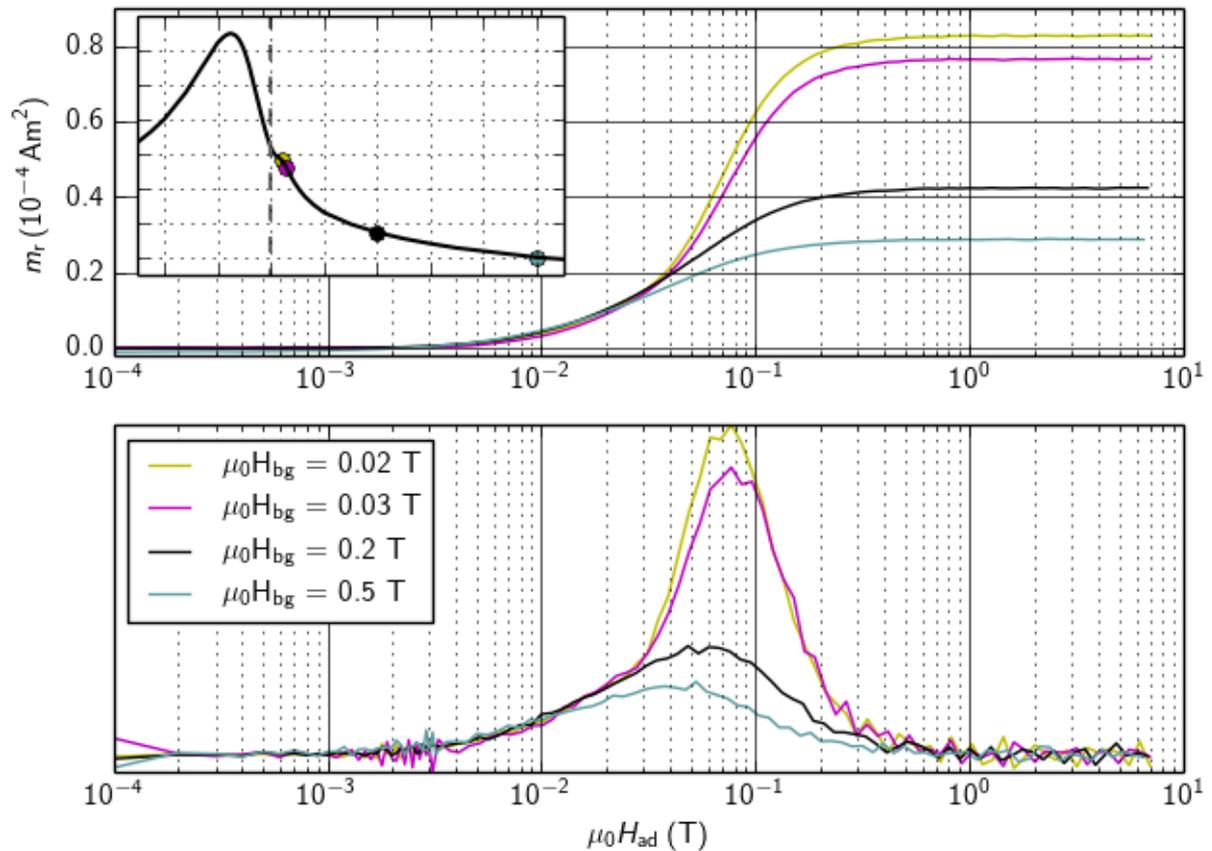


Abbildung 3.15: Der obere Graph in Abbildung zeigt Messkurven der remanenten Magnetisierung bei positiven  $H_{bg}$ . Der untere zeigt die entsprechenden Ableitungen der Kurven. Der Einschub links oben zeigt den Ausschnitt einer Magnetisierungsschleife bei  $\mu_0 H_{max} = 7$  T. Die verschiedenfarbigen Punkte entsprechen den jeweiligen Messkurven. Die vertikale grau strichlierte Linie markiert  $H_{bg} = 0$ .

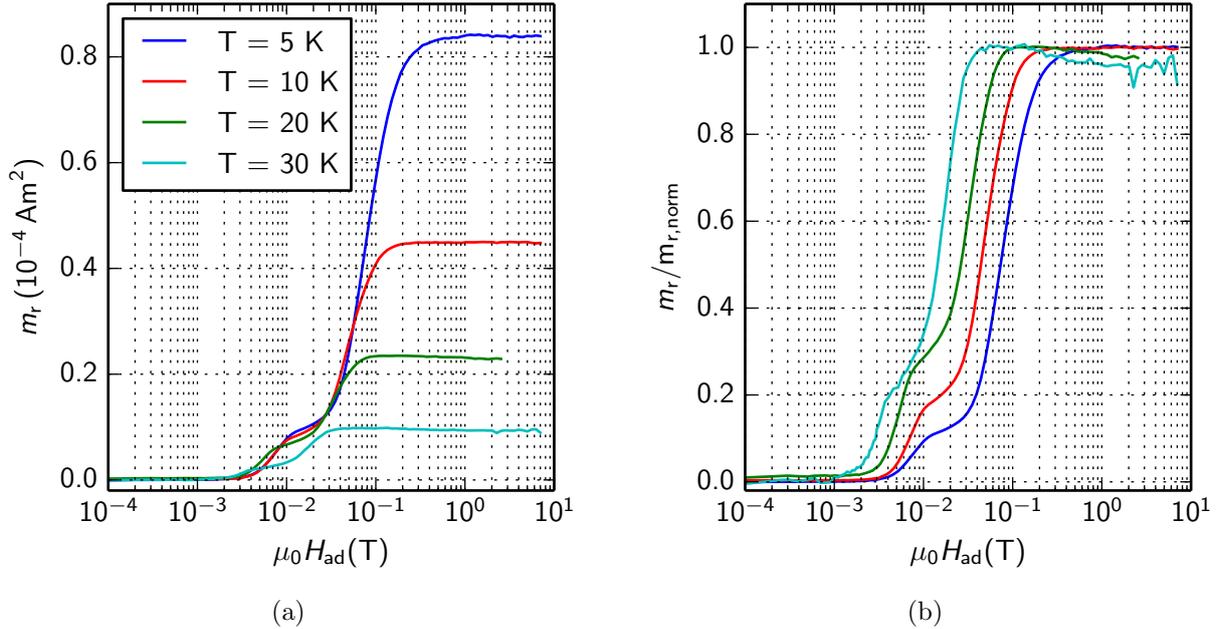


Abbildung 3.16: Messungen des remanenten magnetischen Moments bei  $H_{bg} = 0$  und den Temperaturen 5 (blau), 10 (rot), 20 (grün) und 30 K (cyan). Abbildung (a) zeigt unnormierte Messkurven von  $m_r$ . In Abbildung (b) sind diese Kurven auf ihre jeweilige Sättigungsmagnetisierung normiert.

sei angemerkt, dass das erste Flusseindringen bei 10 K bei nur geringfügig kleinerem Feld auftritt als bei 5 K. Betrachtet man zusätzlich die Messkurve der kritischen Temperatur der Probe (siehe Abb. 2.5 in Abschnitt 2.4.1), sieht man, dass es in diesem Temperaturbereich nur zu geringfügigen Änderungen des Messsignals kommt. Damit lassen sich anhand Abbildung 3.16(a) keine Auffälligkeiten bezüglich  $j_c^P$  und  $j_c^K$  beobachten. Erreicht das Feld die jeweiligen Werte für  $H_{c1}$  der Körner, dringt Fluss in sie ein, was sich in einem weiteren starken Anstieg der Messkurven äußert. Wie erwartet bilden die Körner bei geringeren Temperaturen höhere kritische Ströme aus, was sich in anhand der entsprechenden Kurven zeigt.

Abbildung 3.16(b) zeigt die vier normierten Messkurven der remanenten Magnetisierung. Beim Normierungsfaktor handelt es sich um ihre jeweilige Sättigungsmomente  $m_{r, \text{norm}}$ . Bei den Messungen bei 20 und 30 K lässt sich bei höheren Feldern erkennen, dass es im Bereich der Sättigung zu einem Signalabfall bzw. -rauschen kommt. Der Ursprung dieses Verhaltens ist schwer zu bestimmen und wird auch nicht weiter verfolgt.

Betrachtet man der Reihe nach die Messkurven bei den Temperaturen 5, 10 und 20 K, zeigt sich ein immer geringer werdender Anteil der Probenströme am Gesamtsignal, was an dem relativen Höhenanstieg des intergranularen Anteils zu erkennen ist. Bei 30 K zeigt sich jedoch wieder eine umgekehrte Tendenz dieses Verhaltens.

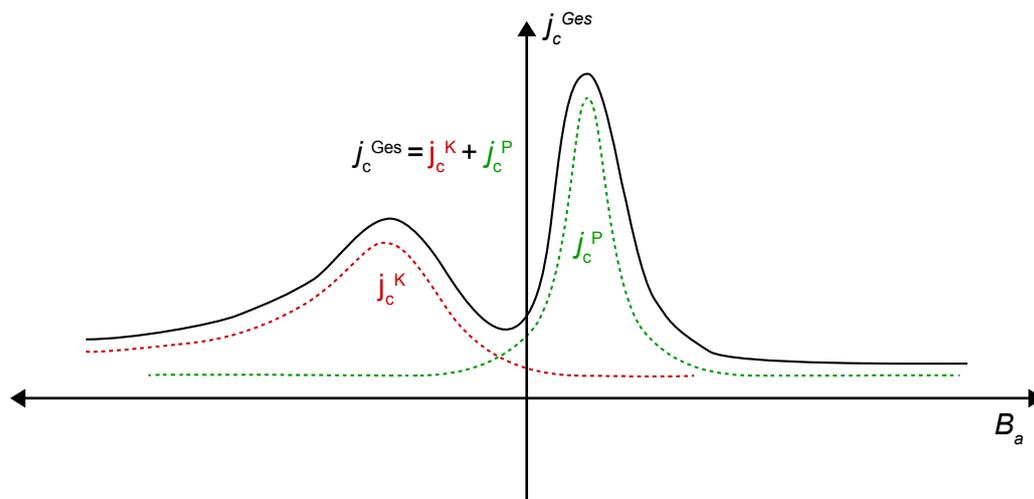


Abbildung 3.17: Schematische Darstellung der Superposition von zwei Stromdichten  $j_c^P$  und  $j_c^K$  zu einer gesamten Stromdichte  $j_c^{\text{Ges}}$ .

### 3.3 Zusammenfassung der Kalium dotierten Proben

In diesem Abschnitt werden die Probeneigenschaften der zuvor untersuchten Proben verglichen, um den Einfluss der Korngröße auf das supraleitende Verhalten herauszuarbeiten. Mithilfe der Magnetisierungsschleifen des VSMs lässt sich eine starke Asymmetrie des magnetischen Moments zwischen an- und absteigendem Feld erkennen. Dieses Auftreten liegt wahrscheinlich darin begründet, dass im aufsteigendem Ast Feldlinien über die Korngrenzen in die Körner eindringen, wohingegen im absteigendem Ast Feldlinien aus den Körnern austreten und dass bei diesen unterschiedlichen Vorgängen Effekte auftreten, die für das beobachtete Verhalten verantwortlich sind. Beide Proben zeigen ein qualitativ gesehen gleiches Verhalten. Aufgrund der Kornstruktur der Materialien bilden sich auf zwei Längenskalen kritische Ströme aus, welche mit verschiedenen Zugängen abgeschätzt wurden. Die Magnetisierungskurven der feinkörnigen Probe K-3 zeigen die Ausbildung zweier Maxima, die durch eine Superposition der entsprechenden Stromdichten entstehen. Eine schematische Darstellung davon ist in Abbildung 3.17 zu sehen. Die grobkörnige Probe K-15 zeigt dieses Verhalten auch, jedoch in abgeschwächter Form, da in diesem Fall die Kornströme gegenüber den Probenströmen dominieren (vgl. Abb. 3.18).

Mithilfe des SQUID Magnetometers wurden diverse Magnetisierungsmessungen im auf- und absteigendem Feld sowie Messungen der remanenten Magnetisierung durchgeführt. Anhand von Abbildung ?? lässt sich gut erkennen, dass die Maxima der magnetischen Momente bei voll ausgebildeten Feldprofilen der beiden Proben in etwa gleich hoch sind. Die Ursachen dieser sind jedoch unterschiedlicher Natur: Bei der feinkörnigen Probe sind Probenströme ausschlaggebend, wohingegen die Grobkörnige großteils aufgrund ihrer Kornströme eine entsprechende Magnetisierung aufweist. Außerdem ist beim Vergleich von zfc- und fc-Messungen zu sehen, dass es, je kleiner die vorhandenen Körner der Proben

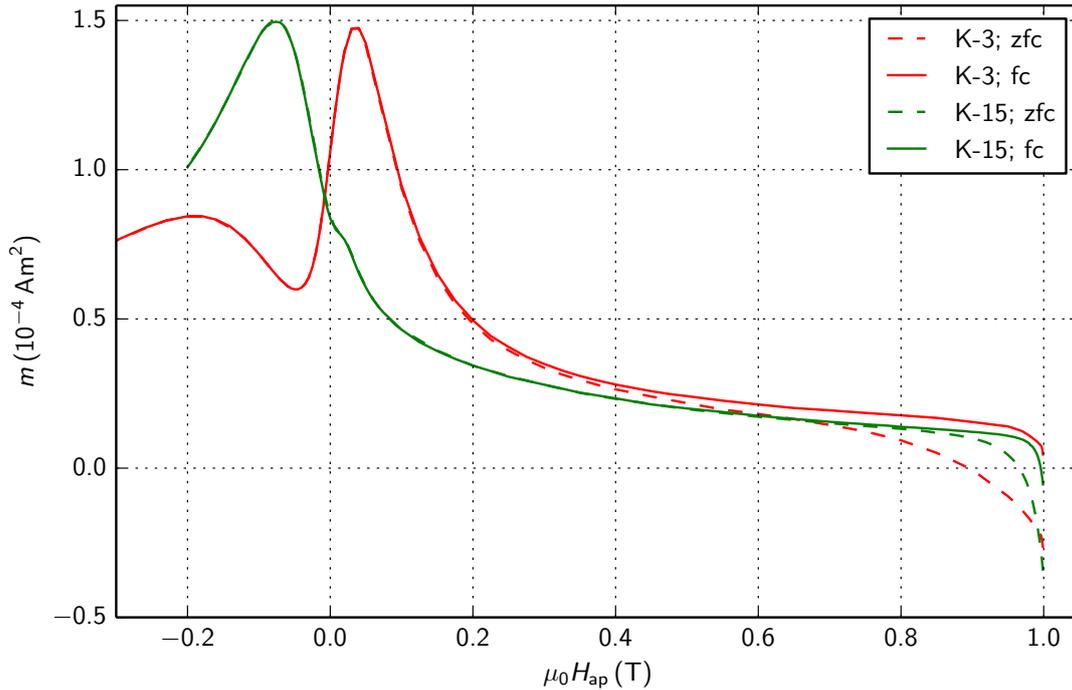


Abbildung 3.18: Gegenüberstellung der Magnetisierungsmessungen beider Kalium dotierten Proben bei 5 K und  $\mu_0 H_{bg} = 1$  T. Bei den roten Messkurven handelt es sich um Daten der feinkörnigen Probe K-3 und bei den grünen um jene der grobkörnigen Probe K-15. Für beide Proben wurden zfc-Messungen strichliert und fc-Messungen mit durchgezogenen Linien dargestellt.

sind, einer höheren Feldreduktion bedarf, um eine Übereinstimmung der Magnetisierungen zu erhalten. Es kommt also zu einer scheinbaren Erhöhung von  $H^*$  bei zfc- gegenüber fc-Messungen, die umso stärker ist, je kleiner die Körner sind. Ein möglicher Effekt, der in diesem Zusammenhang diskutiert wird, ist die Oberflächenbarriere für das Flusseindringen<sup>7</sup>: Ohne auf nähere Details einzugehen, wird eine Flusslinie am Rand innerhalb eines Kornes aufgrund von Grenzflächeneffekten zur Kornoberfläche gezogen, gleichzeitig existiert aber eine abstoßende Kraft zwischen dieser Flusslinie und dem vom äußeren Feld induzierten Abschirmstrom im Bereich der Eindringtiefe  $\lambda$ .

Anhand der Magnetisierungsmessungen wurde versucht kritische Stromdichten der Körner und der Probe abzuschätzen. Für die Probe K-3 ergeben sich nach Formel (2.7) Kornstromdichten im oberen Bereich von  $10^{10} \text{ Am}^{-2}$ . Diese Stromdichten sind zu hoch für dieses Material. Probe K-15 zeigt geringere Kornstromdichten von etwa  $9 \cdot 10^9 \text{ Am}^{-2}$ . Eine Zusammenfassung dieser Werte findet sich in Tabelle 3.6.

Ein weiterer Zugang zur Bestimmung der kritischen Stromdichten  $j_c^P$  und  $j_c^K$  besteht in der Auswertung der irreversiblen magnetischen Momente nach Formel (2.14). Um  $j_c^K$  abzuschätzen, wurde der Einfachheit halber angenommen, dass die Probenvolumina aus

<sup>7</sup>Für nähere Details siehe [4].

Tabelle 3.6: Zusammenfassung einiger Eigenschaften der Kalium dotierten Proben. Alle Stromdichten sind in Einheiten von  $\text{Am}^{-2}$  angegeben. Die ersten zwei Gruppen von kritischen Strömen wurden anhand von Magnetisierungskurven im auf- ( $\mu_0 H^* \uparrow$ ) bzw. abfallenden Feld ( $\mu_0 H^* \downarrow$ ) bestimmt. Die Werte der letzten Gruppe wurden anhand des remanenten irreversiblen magnetischen Moments bestimmt.

Probe	Magnetisierungsmessungen				$m_r$	
	$\mu_0 H^* \uparrow$		$\mu_0 H^* \downarrow$			
	$j_c^P$	$j_c^K$	$j_c^{K,zfc}$	$j_c^{K,fc}$	$j_c^P$	$j_c^K$
K-3	$8.8 \cdot 10^6$	$9 \cdot 10^{10}$	$8 \cdot 10^{10}$	$6.4 \cdot 10^{10}$	$7.5 \cdot 10^7$	$9.8 \cdot 10^{10}$
K-15		$7.4 \cdot 10^9$	$9.6 \cdot 10^9$	$8.5 \cdot 10^9$	$1.4 \cdot 10^7$	$1.7 \cdot 10^{10}$

quaderförmigen Körnern aufgebaut sind. Das magnetische Moment eines einzelnen Kornes  $m_{\text{Korn}}$  lässt sich anhand

$$m_{\text{Korn}} = \frac{m_r^K \cdot V_{\text{Korn}}}{V_{\text{Probe}}} \quad (3.2)$$

bestimmen.  $m_r^K$  wurde aus den Messungen der remanenten magnetischen Momente entnommen und gibt das remanente magnetische Momente aller Körner einer Probe an.  $V_{\text{Probe}}$  bzw.  $V_{\text{Korn}}$  stehen für Proben- bzw. Kornvolumen.

Es sei angemerkt, dass für eine zuverlässige Abschätzung von  $j_c^K$  nur jene Messungen des remanenten magnetischen Moments genutzt werden können, deren  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  in Feldbereichen liegen, die noch nicht vom Zusammenbruch des Inter-Maximums betroffen sind<sup>8</sup>. Nach diesem Maximum bricht  $j_c^P$  zusammen und da nicht festgestellt werden kann, wie weit dieser Stromanteil bei hohen Feldern noch vorhanden ist, ist eine getrennte Behandlung von  $j_c^P$  und  $j_c^K$  in diesem Bereich nicht möglich.

Eine Zusammenfassung dieser Ergebnisse ist in Tabelle 3.6 zu finden. Die nach Formel (2.7) bestimmten Werte der kritischen Stromdichten sind in der zweiten bis zur vierten Spalte zu finden. Dabei wurde eine Unterteilung zwischen ansteigendem ( $\mu_0 H^* \uparrow$ ) und abfallendem ( $\mu_0 H^* \downarrow$ ) Ast sowie Proben- und Kornstromdichten durchgeführt. Anhand der abfallenden Äste wurde ausschließlich versucht, Kornstromdichten für zfc- und fc-Messungen abzuschätzen. Die letzten zwei Spalten beinhalten die Messergebnisse der remanenten magnetischen Momente und tragen den Überbegriff  $m_r$ . Es wird sich auch im Laufe der Auswertung der Kobalt dotierten Proben zeigen, dass die Werte, die mithilfe der Magnetisierungsmessungen bestimmt wurden, um bis zu zwei Größenordnungen über jenen liegen, die mithilfe der Messungen der remanenten magnetischen Momente abgeschätzt wurden. Diese hohen Stromdichten sind unrealistisch, da Messungen von Ba122 Einkristallen mit gleicher Dotierung vorliegen, die ein  $j_c$  in der Größenordnung von  $10^{10} \text{Am}^{-2}$  aufweisen<sup>9</sup> und außerdem nahe an der sogenannten paarbrechenden Stromdichte

<sup>8</sup>Die entsprechenden Kurven wurden auch für die Abschätzung von  $j_c^P$  verwendet.

<sup>9</sup>Für nähere Details, siehe [22].

Tabelle 3.7: Probenbezeichnungen inklusive Korngrößen der Kobalt dotierten Proben.

Probenbezeichnung	Korngröße ( $\mu\text{m}$ )
Co-20	20
Co-5	5
Co-1	1

$j_d$  von etwa  $10^{11}$  bis  $10^{12}$   $\text{Am}^{-2}$  liegen. Bei  $j_d$  handelt es sich um jene Stromdichte, bei der die kinetische Energie der Elektronen ausreicht um die Energielücke zu überwinden. Anders ausgedrückt werden die Elektronenpaare aufgebrochen und verlieren so ihre supraleitenden Eigenschaften. Es wird sich zeigen, dass die Kobalt dotierten Proben nach dieser Methode noch höhere Ströme aufweisen. Das Bean Modell ist somit nicht geeignet, um anhand von Magnetisierungsschleifen zuverlässige kritische Stromdichten zu bestimmen.

### 3.4 Probe Co-20

Die folgenden Unterabschnitte dienen der Aufarbeitung und Präsentation der Messergebnisse der Kobalt dotierten Proben. In Tabelle 3.7 sind die entsprechenden Bezeichnungen der drei vorliegenden Proben sowie deren durchschnittliche Korngrößen zu finden. Die Korngröße musste nicht wie bei den Kalium dotierten Proben ermittelt werden, sondern konnte den von der Arbeitsgruppe der Tokio Universität, die diese Proben zur Verfügung gestellt hat, mitgelieferten Spezifikationen entnommen werden. Neben den Bezeichnungen Co-20, -5 und -1 werden die vorliegenden Materialien teilweise anhand ihrer Korngrößen benannt, d.h., dass jene Probe, deren Körner eine durchschnittliche Größe von  $20 \mu\text{m}$  aufweisen, als großkörnige Probe bezeichnet wird.

Wie sich im Laufe der Untersuchung zeigen wird, ist die Signalgröße der Kobalt dotierten Proben um ungefähr eine Größenordnung geringer als die der Kalium dotierten. Dieser Umstand als auch die äußerst schlechte mechanische Belastbarkeit der Proben waren der Grund dafür, dass ihre Vermessung nicht so eingehend durchgeführt wurde wie bei den vorangegangenen Kalium dotierten Proben. An dieser Stelle sei außerdem erwähnt, dass sich praktisch augenblicklich nach dem Brechen der Schutzatmosphäre der Probenbehälter dunkle Flecken auf der Oberfläche der Proben gebildet haben. Dies deutet auf eine chemische Reaktion mit der Umgebungsatmosphäre bzw. eine Änderung der Oberflächenzusammensetzung hin. Aus diesen Gründen wurde unter anderem teilweise auf Messungen der Hintergrundsignale verzichtet sowie die Anzahl der verschiedenen  $\mu_0 H_{bg}$  reduziert. Der Hauptteil des Messaufwandes wurde zugunsten der Messungen der remanenten Magnetisierung aufgewendet, um die wesentlichen Abschätzungen der kritischen Stromdichten der drei Proben durchführen zu können.

Im Laufe der Untersuchungen der verschiedenen Proben hat sich die Messstrategie

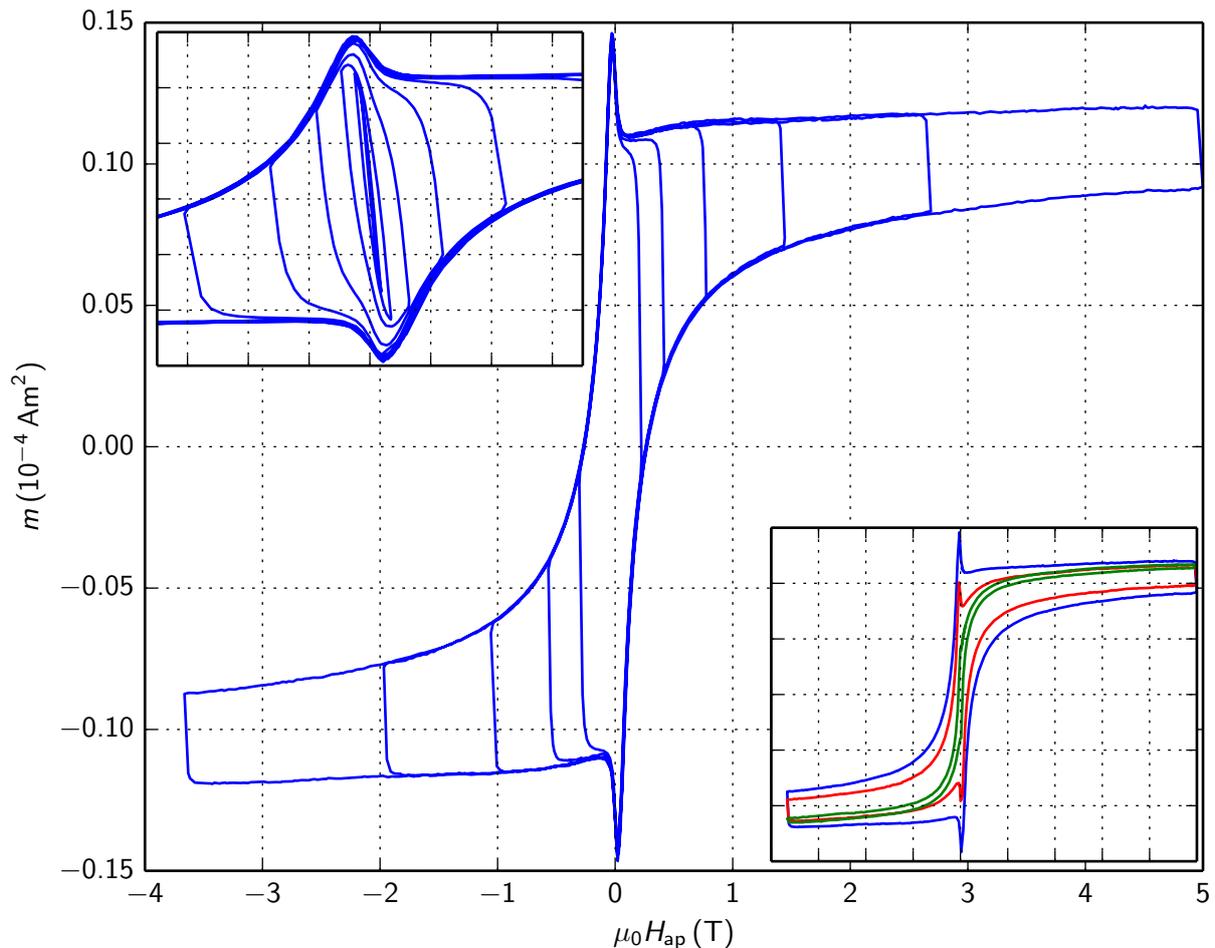


Abbildung 3.19: Magnetisches Moment der Probe Co-20 bei einer Temperatur von 5 K und diversen  $\mu_0 H_{\max}$ . Die Messung wurde mittels VSM durchgeführt. Der Einschub links oben zeigt einen vergrößerten Bereich der Messdaten der durch die Werte  $\mu_0 H_{\text{ap}} = \pm 0.35$  T begrenzt ist. Der Einschub rechts unten zeigt Messungen des magnetischen Moments bei den Temperaturen 5 (blau), 10 (rot) und 20 K (grün).

laufend weiterentwickelt. Auch wenn es interessant wäre, die Kobalt dotierten Proben unter neuen Aspekten (andere Kühlfelder für die Messungen der remanenten Magnetisierung, Änderung der Feldintervalle von  $\mu_0 H_{\text{ap}}$  bei den Magnetisierungsmessungen etc.) zu untersuchen, so ist dies leider nicht möglich, da diese Proben relativ bald nach Abschluss der ersten Untersuchung massive Qualitätsverluste aufwiesen. Daher wird nur mit jenen Daten gearbeitet, die gesammelt wurden, als die Proben noch intakt waren.

### 3.4.1 Magnetisierungsmessungen im VSM

Abbildung 3.19 zeigt eine mittels VSM durchgeführte Magnetisierungsmessung des magnetischen Moments der Co-20 bei 5 K und verschiedenen  $H_{\max}$ . Sie weist mit einer mittleren Korngröße von  $20 \mu\text{m}$  von allen untersuchten Proben die größte Korngröße auf. Wie Eingangs erläutert, wurde keine Hintergrundsignalkorrektur des Messsignals durch-

geführt. Es ist sofort zu sehen, dass das magnetische Moment der Probe einen massiven Hintergrundanteil aufweist. Dieser ist für die starke Verschiebung des magnetischen Moments des auf- bzw. absteigenden Astes in positiver Richtung für positive Felder und in negativer Richtung für negative Felder verantwortlich. Dieses Verhalten spricht für ein zusätzliches stark ferromagnetisches Verhalten der Probe neben den supraleitenden Eigenschaften. Der Ursprung des auftretenden Ferromagnetismus könnte an vereinzelt FeAs- bzw. CoAs-Phasen im Material liegen<sup>10</sup>, welche nicht zum gewünschten Ba122-Material reagiert haben und während der Herstellung als ferromagnetische Phasen im Material verblieben sind.

Das Maximum des magnetischen Moments liegt links vom Nulldurchgang, was dafür spricht, dass es von Kornströmen verursacht wird. Durch  $j_c^P$  verursachte Anteile von  $m$  lassen sich nicht erkennen. Es sei festgehalten, dass es die Verschiebung der Messkurve erschwert, kleine Anteile von  $m^P$  zu erkennen. Aufgrund der Korngröße wird aber vermutet, dass  $j_c^P$  gegenüber  $j_c^K$  vernachlässigt werden kann. Im Einschub links oben kann man erkennen, dass sich das Maximum von  $m$  mit steigendem  $\mu_0 H_{\max}$  leicht nach rechts verschiebt. Diese Verschiebung kommt dadurch zustande, dass die Körner bei kleinerem  $\mu_0 H_{\max}$  noch nicht gesättigt sind.

Der Einschub rechts unten in Abbildung 3.19 zeigt Messungen des magnetischen Moments bei den Temperaturen 5 (blau), 10 (rot) und 20 K (grün). Genau genommen wird hier zugunsten der Übersicht nur die jeweils äußerste Schleife präsentiert. Es zeigt sich, wie erwartet, dass das supraleitende Signal mit höher werdender Temperatur abnimmt, wohingegen das Hintergrundsignal temperaturunabhängig zu sein scheint.

### 3.4.2 Messungen des magnetischen Moments im SQUID

In Abbildung 3.20 sind diverse Messkurven des magnetischen Moments im ansteigendem äußeren Feld dargestellt. Die Messreihen wurden bei den Feldern  $\mu_0 H_{\text{ap}} = 0$  magenta, 1 (blau) und 2 T (rot) durchgeführt. Diese Kurven sind mit einer Messkurve hinterlegt, die zwischen -7 und +7 T aufgenommen wurde (blau strichliert). Nach einem anfänglichen Anstieg der globalen kritischen Stromdichte bei der ersten Felderhöhung kommt es zu einem starken Abfall des magnetischen Moments bzw. zu einem dominanten Auftreten eines ferromagnetischen Anteils und eine entsprechende Überlagerung der beiden Signale. Der den Körnern zugeschriebene kritische Strom bei hohen Feldern ist gegenüber diesem Hintergrundsignal schwach ausgeprägt. Die beiden Einschübe in Abbildung 3.20 zeigen vergrößerte Datenbereiche, um eine bessere Übersicht zu gewährleisten. Anhand dieser Messungen lässt sich im zfc-Fall ein  $\mu_0 H^{*,K}$  von etwa 0.04 T abschätzen. Zusammen mit einem Korndurchmesser von 20  $\mu\text{m}$  erhält man damit einen kritischen Kornstrom von etwa  $3.2 \cdot 10^9 \text{ Am}^{-2}$ .

<sup>10</sup>Für nähere Details zum Herstellungsprozess der Kobalt dotierten Proben siehe [9].

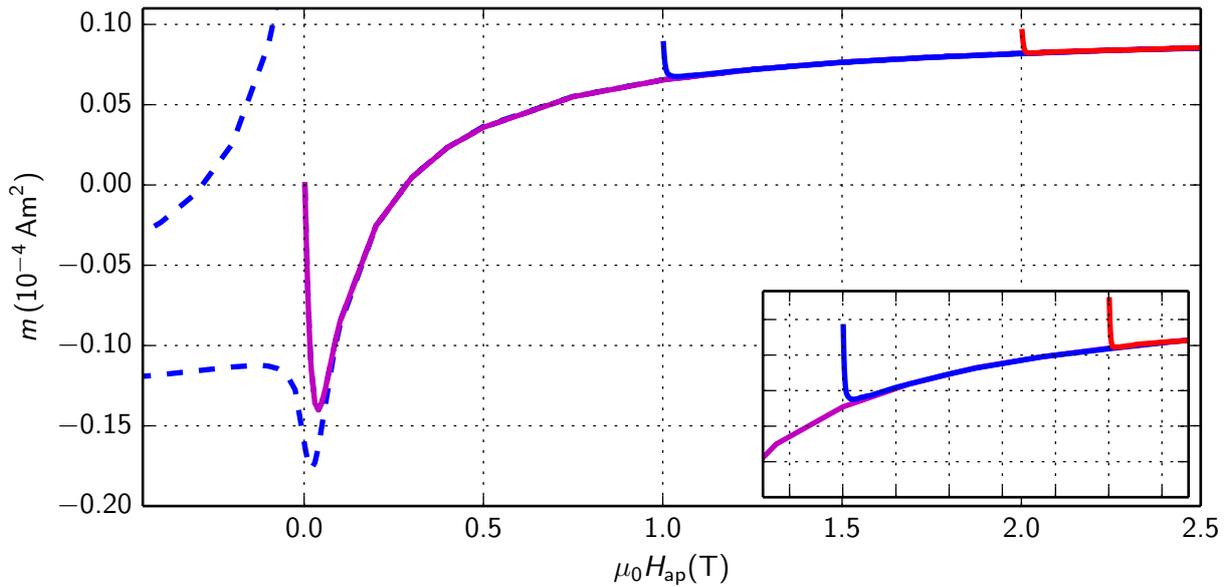


Abbildung 3.20: Magnetisierungsmessungen der Probe Co-20 mit dem SQUID Magnetometer im ansteigendem Feld. Zu sehen sind zfc- (magenta) und fc-Messungen bei 1 (blau), 2 (rot) und 4 T (grün). Diese Kurven sind mit einer Magnetisierungsschleife hinterlegt, die von +7 T bis -7 T und zurück gemessen wurde (blau liniert). Die beiden Einschübe zeigen vergrößerte Ausschnitte für die Bereiche der 1 und 2 T (oberer Einschub) sowie der 4 T Messung (unterer Einschub).

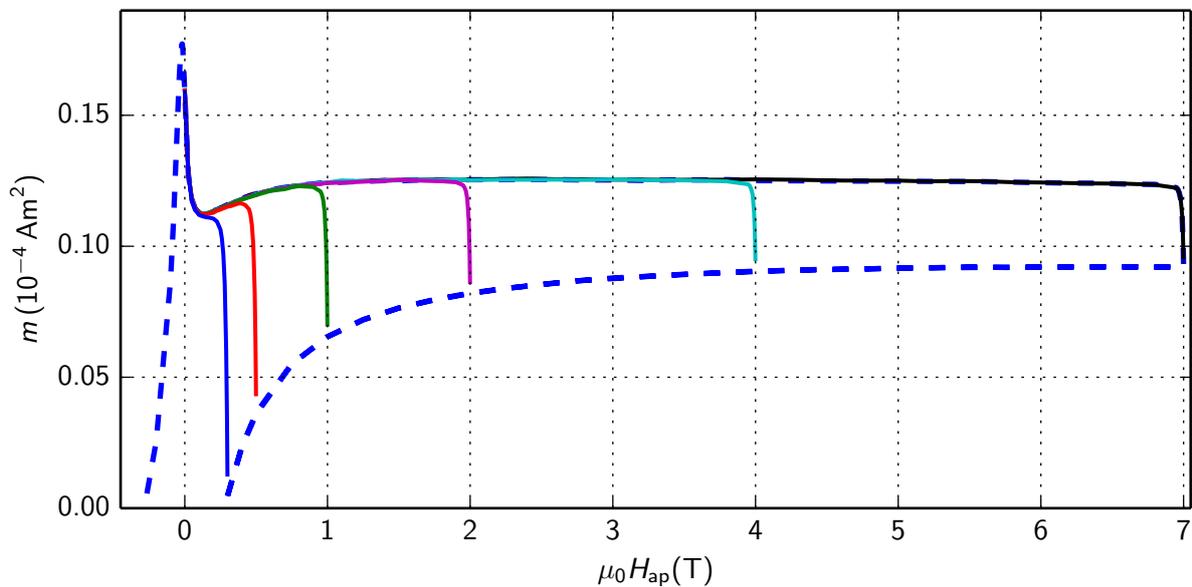


Abbildung 3.21: Magnetisierungsmessungen der Probe Co-20 mit dem SQUID Magnetometer im absteigendem Feld. Die Kühlfelder betragen in aufsteigender Reihenfolge 0.3 (blau), 0.5 (rot), 1 (grün), 2 (magenta), 4 (cyan) und 7 T (schwarz). Diese Kurven sind mit einer Magnetisierungsmessung hinterlegt, die von +7 T bis -7 T und zurück gemessen wurde (blau gestrichelt).

Tabelle 3.8: Zusammenfassung der Kühlfelder für die Messungen der remanenten Magnetisierung der Probe Co-20.

Temperatur (K)	$\mu_0 H_{bg}$ (T)			
5	0	0.01	0.1	0.2
10	0	0.01	0.1	0.2
20	0	0.01	0.1	0.2

In Abbildung 3.21 ist das magnetische Verhalten der Co-20 Probe im abfallendem Feld zu sehen, welche wieder mit einer kompletten Messschleife ( $\mu_0 H_{max} = \pm 7$  T) hinterlegt sind. Bei den  $\mu_0 H_{bg}$  handelt es sich um 7 (schwarz), 4 (cyan), 2 (magenta), 1 (grün), 0.5 (rot) und 0.3 T (blau). Unter der Annahme, dass dieselben Eigenschaften für Proben und Kornströme wie bei der K-3 Probe auftreten, lässt sich anhand Abbildung 3.21 erkennen, dass das Auftreten von Probenströmen gegenüber Kornströmen vernachlässigbar ist. Jener Anteil des Messsignals, der von supraleitenden Eigenschaften stammt, hat seinen Ursprung in den Kornströmen. Die Ströme bilden, wie in Abschnitt 3.1 aufgebracht, bei kleinen Feldern nach dem Nulldurchgang ein Maximum des magnetischen Moments aus. Anhand dieser Messungen lässt sich ein  $\mu_0 H^{*,K}$  von etwa 0.12 T abschätzen, was zu einer kritischen Kornstromdichte von  $9.6 \cdot 10^9$  Am<sup>-1</sup>–2 führt.

Im Hinblick auf den Vergleich des Korngrößeneinflusses wird darauf hingewiesen, dass es bei den verschiedenen Messungen der rücklaufenden Äste schon bei kleinen Feldänderungen zu einer Angleichung des magnetischen Moments an Kurven mit höheren  $H_{max}$  kommt.

### 3.4.3 Remanente Magnetisierung

Aufgrund der Tatsache, dass die Messmethodik mit dem Fortschritt der Untersuchung der Proben mitgewachsen ist, sind die gewählten  $\mu_0 H_{bg}$  für die Messungen der remanenten Magnetisierung nicht optimal. Eine Zusammenfassung der Messparameter findet sich in Tabelle 3.8. Abbildung 3.22 zeigt die Messungen von  $m_r$  bei einer Temperatur von 5 K. Nach den Ergebnissen der Kalium dotierten Proben ist das zu sehende Verhalten nicht unerwartet. Aufgrund der großen Körner ist  $j_c^P$  nur schwach bzw. nicht sichtbar vorhanden. Der Kornstrom ist beim remanenten magnetischen Moment bei allen Messungen dieser Probe als dominant anzusehen. Es ergibt sich also wieder ein Bild, welches ein Verhalten der remanenten Magnetisierung eines Einkristalls widerspiegelt. Der Einfluss der Temperatur wird an dieser Stelle nicht gezeigt, da keine interessanten Schlussfolgerungen daraus gezogen werden können. Mit höherer Temperatur sinkt das remanente magnetische Moment wie erwartet ab und es ist ebenfalls kein Auftreten von Probenströmen zu erkennen.

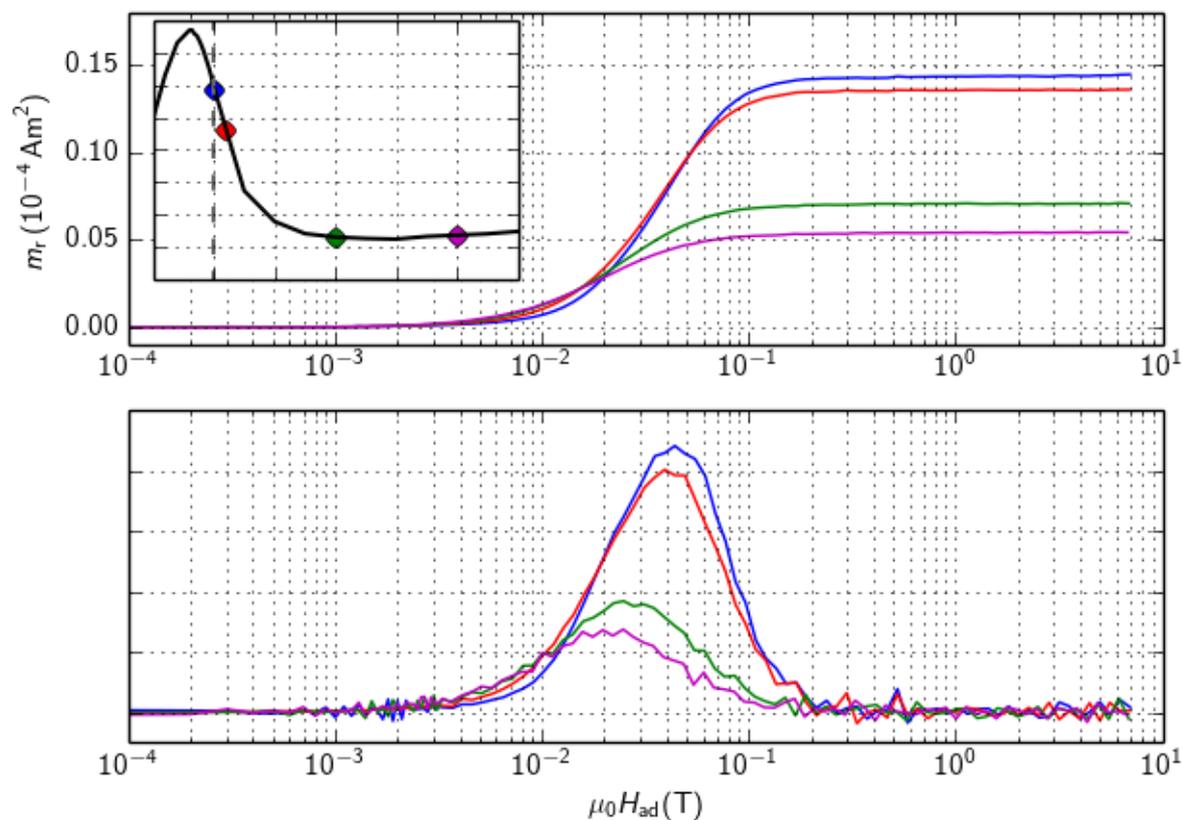


Abbildung 3.22: Messung des remanenten magnetischen Moments der Probe Co-20 bei 5 K und den Kühlfeldern  $\mu_0 H_{\text{bg}} = 0$  (blau), 0.01 (rot), 0.1 (grün) und 0.2 T (magenta). Die Kurven der unteren Abbildung stellen die jeweiligen Ableitungen der oberen dar. Dabei gibt die Farbe die Zugehörigkeit an. Auf die  $y$ -Achsenbeschriftung wurde verzichtet, da die untere Abbildung nur dazu dient, eine genauere Untersuchung des Kurvenverlaufs von  $m_r$  zu ermöglichen.

## 3.5 Probe Co-5

### 3.5.1 Magnetisierungsmessungen im VSM

Abbildung 3.23 zeigt das Magnetisierungsverhalten der Probe Co-5 im variablen äußeren Magnetfeld  $\mu_0 H_{\text{ap}}$ . Diese Messungen wurden via VSM durchgeführt. Die Probe Co-5 besitzt eine durchschnittliche Korngröße von  $5 \mu\text{m}$  und hat damit eine ähnliche wie die feinkörnige Kalium dotierte Probe K-3 ( $3 \mu\text{m}$ ). Im Gegensatz zu der  $20 \mu\text{m}$  Probe, der ein stark ferromagnetisches Verhalten überlagert ist, zeigt diese Probe kein offensichtliches Verhalten dieser Art. Da dieser Probe andere Herstellungsmechanismen zugrunde liegen (andere Methoden zur Zerkleinerung der zugrunde liegenden Rohstoffe, unterschiedliche Temperatur zum backen der Probenmaterialien etc. [9]), als jene der feinkörnigen Kobalt dotierten Probe, wird vermutet, dass dieses Verhalten nicht direkt von der Korngröße abhängt und wird daher auch nicht in den Vergleich der Proben mit einbezogen. Für diese Probe wurde ein Hintergrundsignal aufgezeichnet und eine entsprechende Anpassungskurve von den Messdaten abgezogen.

Aufgrund der Ähnlichkeiten im Magnetisierungsverhalten der Proben K-3 und Co-5 lässt sich darauf schließen, dass ähnliche Mechanismen am Werk sind. Ausgehend vom maximal möglichen Feld von 5 T mit dominierenden Kornströmen folgt bei Reduktion des angelegten Feldes ab etwa 1 T ein Anstieg des magnetischen Moments. Dieser Anstieg wird dem Aufbau von Probenströmen zugeschrieben, welche bei weiterer Reduktion bzw. Umkehr von  $\mu_0 H_{\text{ap}}$  zusammenbrechen und zu einem lokalen Minimum des magnetischen Moments führen. Im weiteren Verlauf wird der kritische Strom mehr und mehr von Kornströmen gebildet, was zur Ausbildung eines zweiten Maximums führt. Dieses Verhalten ist gut im linken unteren Einschub von Abbildung 3.23 zu erkennen. Dieser zeigt einen Ausschnitt des magnetischen Moments zwischen den Feldern  $\mu_0 H_{\text{ap}} = \pm 0.35 \text{ T}$ .

Der Temperatureinfluss ist in den beiden Einschüben rechts oben und rechts unten in Abbildung 3.23 zu sehen. Der obere zeigt die äußersten Messschleifen bei den Temperaturen 5 (blau), 10 (rot) und 20 K (grün). Der untere zeigt einen vergrößerten Ausschnitt im Bereich  $\mu_0 H_{\text{ap}} = \pm 0.35 \text{ T}$  der Feldachse. Es lässt sich gut erkennen, dass bei den Temperaturen von 10 und 20 K nur noch ein einzelnes Maximum auftritt, welches der Lage auf der Feldachse nach von Kornströmen verursacht wird. Für das Fehlen eines zweiten Maximums ist wahrscheinlich die große Schrittweite zwischen den Messpunkten verantwortlich und nicht die rapide Abnahme von Probenströmen bei höherer Temperatur. Diese Aussage stützt sich auf die Messungen der remanenten Magnetisierung im SQUID, welche das Auftreten von Probenströmen deutlich zeigen. Diese Messungen werden in Abschnitt 3.5.3 präsentiert und erläutert.

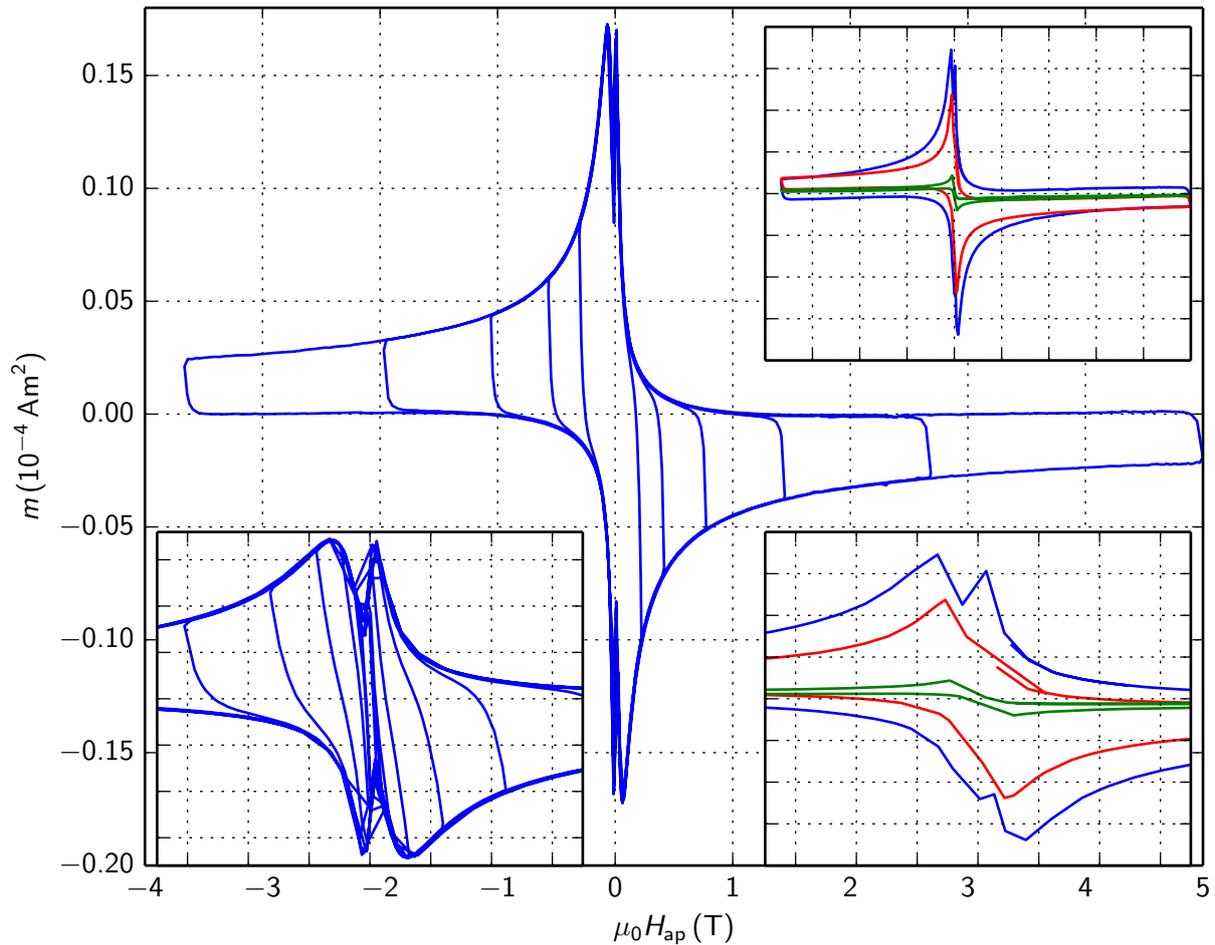


Abbildung 3.23: Mittels VSM durchgeführte Magnetisierungsmessungen der Probe Co-5 bei diversen  $H_{\max}$  und einer Temperatur von 5 K. Der linke untere Einschub zeigt einen vergrößerten Ausschnitt der Messdaten bei  $\mu_0 H_{\text{ap}} = \pm 0.35$  T, anhand dessen sich das Auftreten zweier Maxima des magnetischen Moments feststellen lässt. Der Einschub rechts oben zeigt die äußersten Kurven der Magnetisierungsmessungen bei den Temperaturen 5 (blau), 10 (rot) und 20 K (grün). Die restlichen Daten wurden hier zugunsten der Übersicht weggelassen. Der Einschub rechts unten zeigt einen vergrößerten Bereich dieser Abbildung zwischen  $\mu_0 H_{\text{ap}} = \pm 0.35$  T.

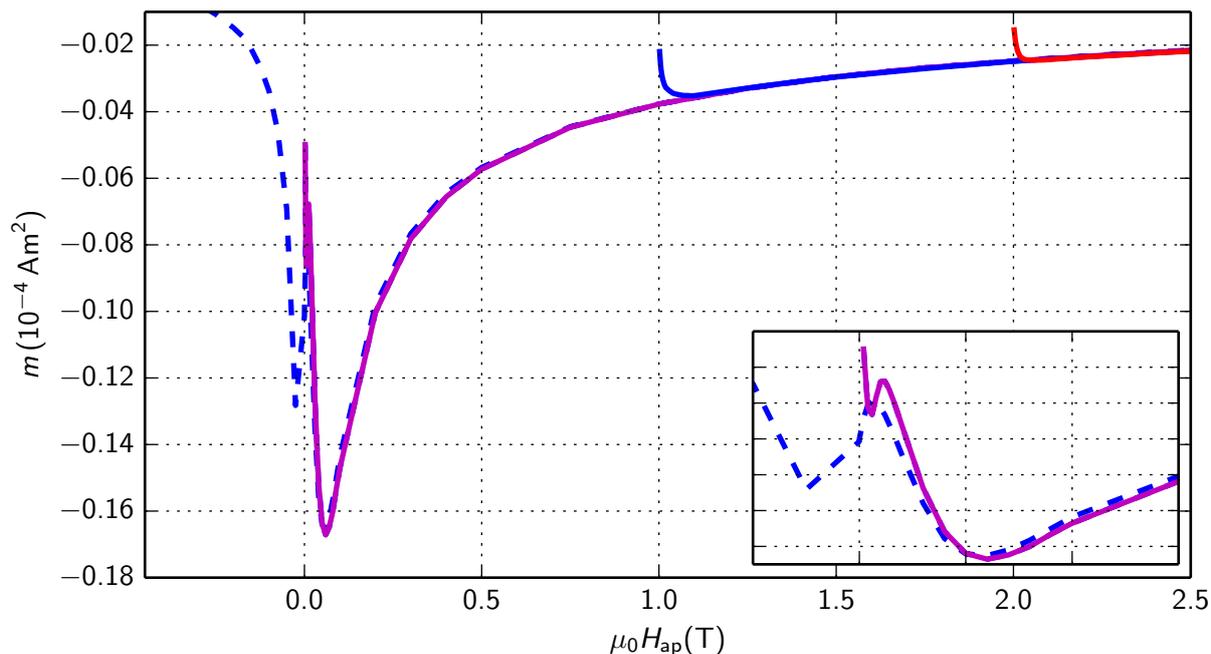


Abbildung 3.24: Messungen des magnetischen Moments der Probe Co-5 im ansteigenden Feld  $\mu_0 H_{\text{ap}}$  und bei einer Temperatur von 5 K. Bei den Kühlfeldern handelt es sich um  $\mu_0 H_{\text{ap}} = 0$  (magenta), 1 (blau) und 2 T (rot). Bei der blau gestrichelten Linie handelt es sich um eine Magnetisierungsmessung bei  $\pm 7$  T. Der Einschub zeigt einen vergrößerten Bereich bei kleinen Feldern.

### 3.5.2 Messungen des magnetischen Moments im SQUID

Nach den Messungen mit dem VSM wurden wie bei den anderen Proben Messungen des magnetischen Moments mittels SQUID Magnetometer durchgeführt. Abbildung 3.24 zeigt Messungen der Magnetisierung im ansteigenden Feld und bei einer Temperatur von 5 K. Bei den Kühlfeldern handelt es sich um  $\mu_0 H_{\text{ap}} = 0$  (magenta), 1 (blau) und 2 T (rot). Diese drei Messkurven sind von einer Magnetisierungsmessung bei  $\pm 7$  T hinterlegt (blau gestrichelt). Mit dem ersten Anstieg des äußeren Feldes kommt es zu einem Anstieg des magnetischen Moments, welches im weiteren Verlauf zusammenbricht und anschließend erneut ein Maximum ausbildet. Dieses Verhalten wurde schon bei der Kalium dotierten Probe K-3 festgestellt und spricht für den erstmaligen Aufbau von  $j_c^{\text{P}}$ , welches bei höheren Feldern zusammenbricht und von  $j_c^{\text{K}}$  überlagert wird. Ein Vergleich mit Abbildung 3.2(a) aus Abschnitt 3.1.2 zeigt, dass das Verhältnis  $\frac{j_c^{\text{P}}}{j_c^{\text{K}}}$  bei Probe K-3 größer ist als bei Probe Co-5. Dabei wurden die jeweiligen Maxima berücksichtigt, welche sich jeweils an einem anderen Punkt auf der Feldachse befinden. Dieses Ergebnis stimmt mit der allgemeinen Tendenz des Anstieges dieses Verhältnisses mit kleiner werdenden Körnern überein. Bei den Messungen bei  $\mu_0 H_{\text{bg}} = 1$  und 2 T ist kein Auftreten von  $j_c^{\text{P}}$  mehr zu erkennen. Hier kommt es lediglich zum Aufbau von  $j_c^{\text{K}}$ . Anhand dieser Kurven lassen sich bei einem Probenradius von etwa 0.7 mm bzw. einer Korngröße von  $5 \mu\text{m}$  und den Feldern  $\mu_0 H^{*,\text{P}} =$

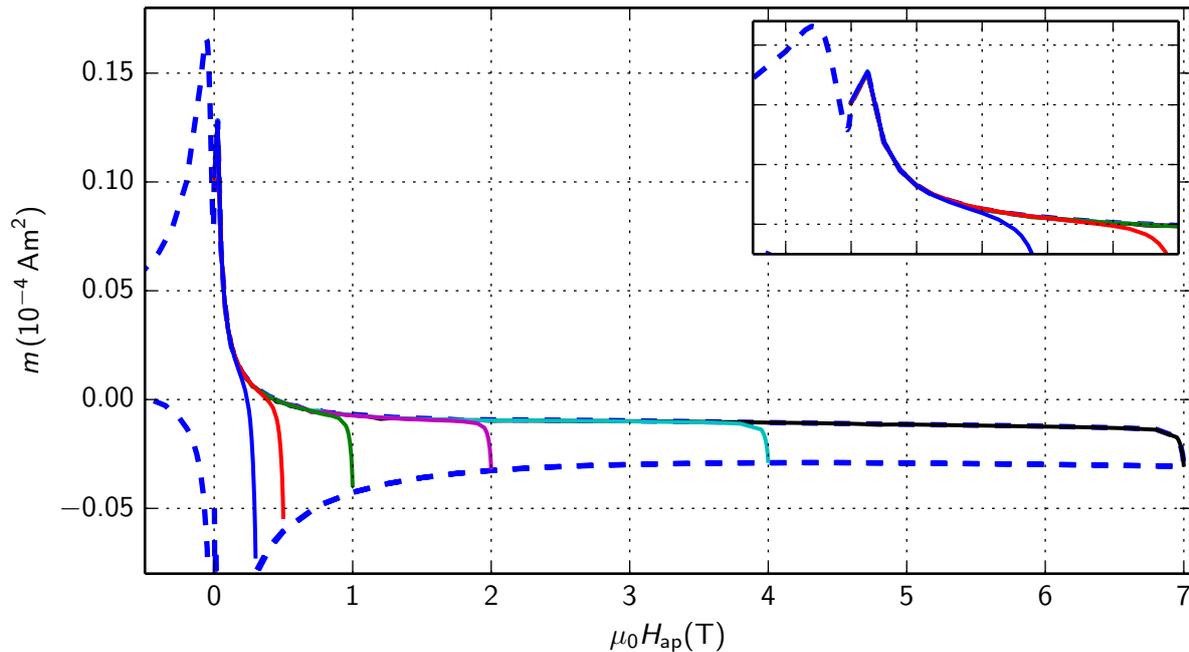


Abbildung 3.25: Messungen des magnetischen Moments der Probe Co-5 im abfallenden Feld  $\mu_0 H_{ap}$  und einer Temperatur von 5 K. Bei den Kühlfeldern handelt es sich um  $\mu_0 H_{bg} = 0.03$  (blau), 0.5 (rot), 1 (grün), 2 (magenta), 4 (cyan) und 7 T (schwarz). Bei der blau gestrichelten Linie handelt es sich um eine Magnetisierungsmessung bei  $\pm 7$  T. Der Einschub zeigt einen vergrößerten Bereich bei kleinen Feldern.

0.005 T bzw.  $\mu_0 H^{*,K} = 0.06$  T, Abschätzungen von etwa  $j_c^P = 5.7 \cdot 10^6$  bzw.  $j_c^K = 1.9 \cdot 10^{10}$   $\text{Am}^{-2}$  für die kritischen Stromdichten treffen.

Abbildung 3.25 zeigt das Magnetisierungsverhalten der Probe Co-5 im abfallenden äußeren Feld und einer Temperatur von 5 K. Die genauen Werte der Kühlfelder sind in der Bildunterschrift zu finden. Auch für diese Probe eignen sich diese Messungen leider nicht gut für die Beschreibung des Maximums des Probenstromes (erstes Maximum), vgl. Abschnitt 3.5.1. Im Wesentlichen zeigen die Messergebnisse der Co-5 Probe sehr ähnliche Eigenschaften des magnetischen Moments im variablen äußeren Feld wie die Probe K-3. Mithilfe der fc-Messkurven lässt sich für  $\mu_0 H^{*,K}$  ein Wert von etwa 0.3 T ablesen. Damit ließe sich mit einem Korndurchmesser von etwa  $5 \mu\text{m}$  eine kritische Kornstromdichte von etwa  $9.6 \cdot 10^{10}$   $\text{Am}^{-2}$  abschätzen.

### 3.5.3 Remanente Magnetisierung

Abbildung 3.26 zeigt in der oberen Grafik Messreihen der remanenten Magnetisierung der Probe Co-5 bei verschiedenen Kühlfeldern (siehe Tab. 3.9). Es ist zu beachten, dass diese Messreihen im Gegensatz zu den anderen Messreihen des remanenten magnetischen Moments bei einer Temperatur von 4.5 K durchgeführt wurden. Der Grund dafür liegt darin, dass zu jener Zeit Probleme bei der Temperaturregelung im SQUID Magnetometer

Tabelle 3.9: Zusammenfassung der Kühlfelder für die Messungen der remanenten Magnetisierung der Probe Co-5. Die leeren Felder deuten an, dass die Messung mit dem entsprechenden Kühlfeld bzw. Temperatur nicht durchgeführt wurde.

Temperatur (K)	$\mu_0 H_{bg}$ (T)				
	0	0.01	0.1	0.2	0.5
4.5	0	0.01	0.1	0.2	0.5
10	0	0.01	0.1	0.2	0.5
20	0		0.1	0.2	

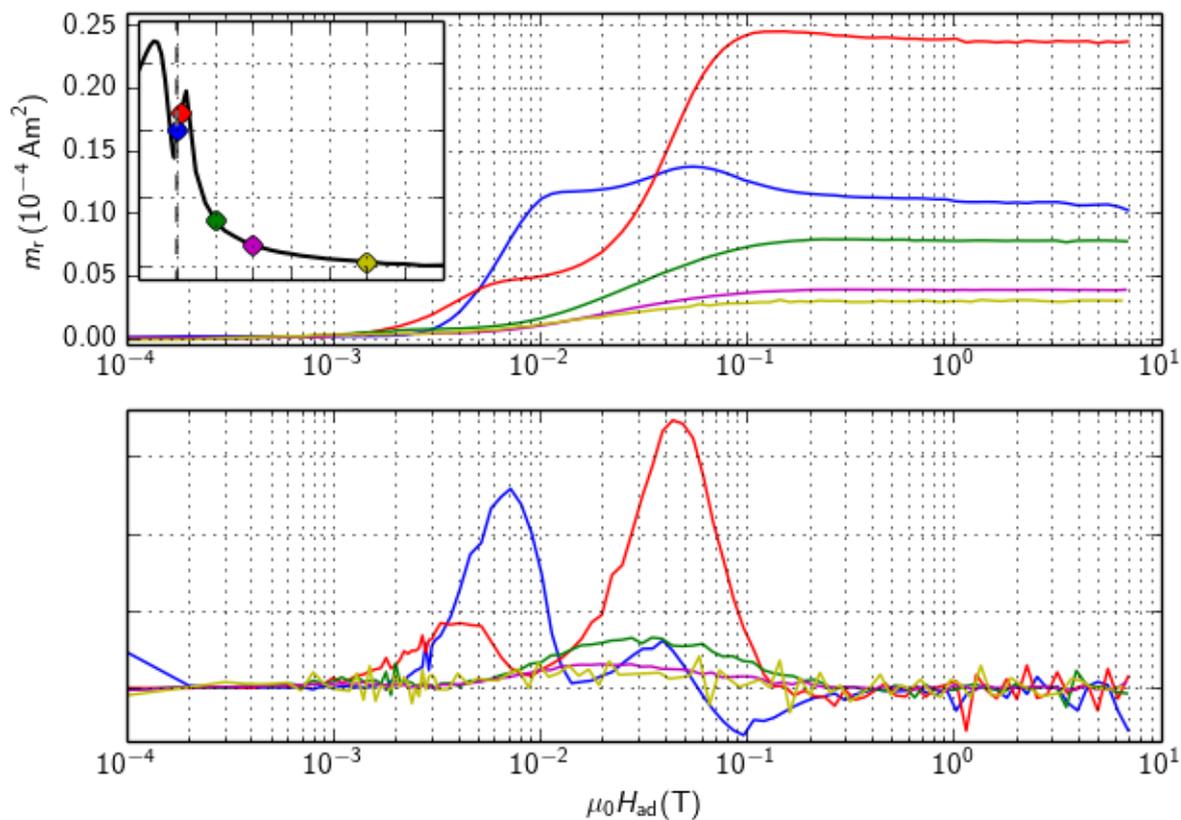


Abbildung 3.26: Messkurven der remanenten Magnetisierung  $m_r$  (obere Grafik) von Probe Co-5 bei einer Temperatur von 4.5 K. Der Einschub in der oberen Grafik zeigt die relative Position der verwendeten  $\mu_0 H_{bg}$  zu einer Magnetisierungsschleife mit einem  $\mu_0 H_{max}$  von 7 T. Die untere Grafik zeigt die Ableitungen der entsprechenden Kurven.

auftraten. Der Einschub in Abbildung 3.26 zeigt die Position der  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  in Relation zum abfallenden Ast einer Magnetisierungsmessung bei einem  $\mu_0 H_{\text{max}}$  von 7 T. Die untere Grafik zeigt die den Messkurven entsprechenden Ableitungen, um das Verhalten der  $m_r$  besser darzustellen. Abbildung 3.27 ist nach demselben Schema aufgebaut, wobei die Messtemperatur 10 K beträgt.

Betrachtet man jene Kurven, deren  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  im Einschub von Abbildung 3.26 rechts vom Inter-Maximum liegen, so zeigen sie dasselbe Verhalten, das auch schon bei den Kalium dotierten Proben gefunden wurde. Der erstmalige Anstieg des remanenten magnetischen Moments im ansteigenden Feld  $\mu_0 H_{\text{ad}}$  ist durch den Aufbau von Probenströmen zu erklären. Dieser Vorgang schreitet voran bis eine Sättigung von  $m_r$  eintritt. Bei weiterer Erhöhung des äußeren Feldes beginnen Kornströme zu fließen, was zu einem weiteren Anstieg von  $m_r$  bis zur Sättigung führt. Beide Stromdichten werden unabhängig voneinander aufgebaut, ohne dass eine gegenseitige Beeinflussung zu erkennen wäre.

Die Messung bei  $\mu_0 H_{\text{bg}} = 0.01$  T (rot) zeigt einen ähnlichen Verlauf wie die entsprechende Kurve der Probe K-3, deren  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  sich auf der Spitze des ersten Maximums des magnetischen Moments befindet. Einem ersten Anstieg aufgrund von  $j_c^{\text{P}}$  folgt (noch bevor dieser Stromanteil sättigt) ein weiterer Anstieg aufgrund von  $j_c^{\text{K}}$ . Bei ausreichend hohen Feldern  $\mu_0 H_{\text{ad}}$  sättigt  $m_r$  auf einen konstanten Wert. Im Fall der Probe Co-5 sinkt  $m_r$  jedoch bei höheren Feldern ( $\mu_0 H_{\text{ad}} > 0.2$  T) ab, was wahrscheinlich daran liegt, dass sich das entsprechende  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  etwas links vom Maximum befindet (siehe Abb. 3.26). Leider ist dieses Maximum im Einschub nicht vollständig aufgelöst, sodass die relative Lage von  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  dazu nicht genau bestimmbar ist.

Die Kurve bei einem  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  von 0 T (blau) zeigt ein Verhalten, welches schon bei der Probe K-3 bei Feldpositionen nach dem ersten Maximum beobachtet wurde. Nach dem ersten Anstieg von  $m_r$  aufgrund von Probenströmen sättigen diese ab, worauf ein erneuter Anstieg von  $m_r$  aufgrund der Kornströme folgt. Bei weiterer Felderhöhung fällt  $m_r$  wieder ab. Bei dieser Messung sättigt das magnetische Moment jedoch nicht bei hohen Feldern ab, sondern sinkt kontinuierlich ab.

Abschließend für diese Messreihe sei darauf hingewiesen, dass der große Unterschied zwischen den remanenten magnetischen Momenten bei  $\mu_0 H_{\text{bg}} = 0$  und 0.01 T im Bereich ihrer Sättigung ( $\mu_0 H_{\text{ad}} \gtrsim 0.1$  T) bei der Magnetisierungsmessung im Einschub nicht zu sehen ist. Der Grund dafür liegt in der bereits erwähnten Wahl zu großer Feldintervalle für die entsprechende Messung. Daher ist das Maximum vor dem Nulldurchgang nicht vollständig aufgelöst und es entsteht der Eindruck einer Inkonsistenz der Messung von  $m_r$ .

Abbildung 3.27 zeigt Messungen von  $m_r$  bei einer Temperatur von 10 K. Die Kurvenformen sind im Vergleich zu jenen, die bei 4.5 K aufgenommen wurden, gleich. Allein die Signalstärke sinkt aufgrund der Erhöhung der Messtemperatur. Wie im Laufe der Untersuchung der Daten, welche mit dem VSM aufgenommen wurden, vermutet wurde,

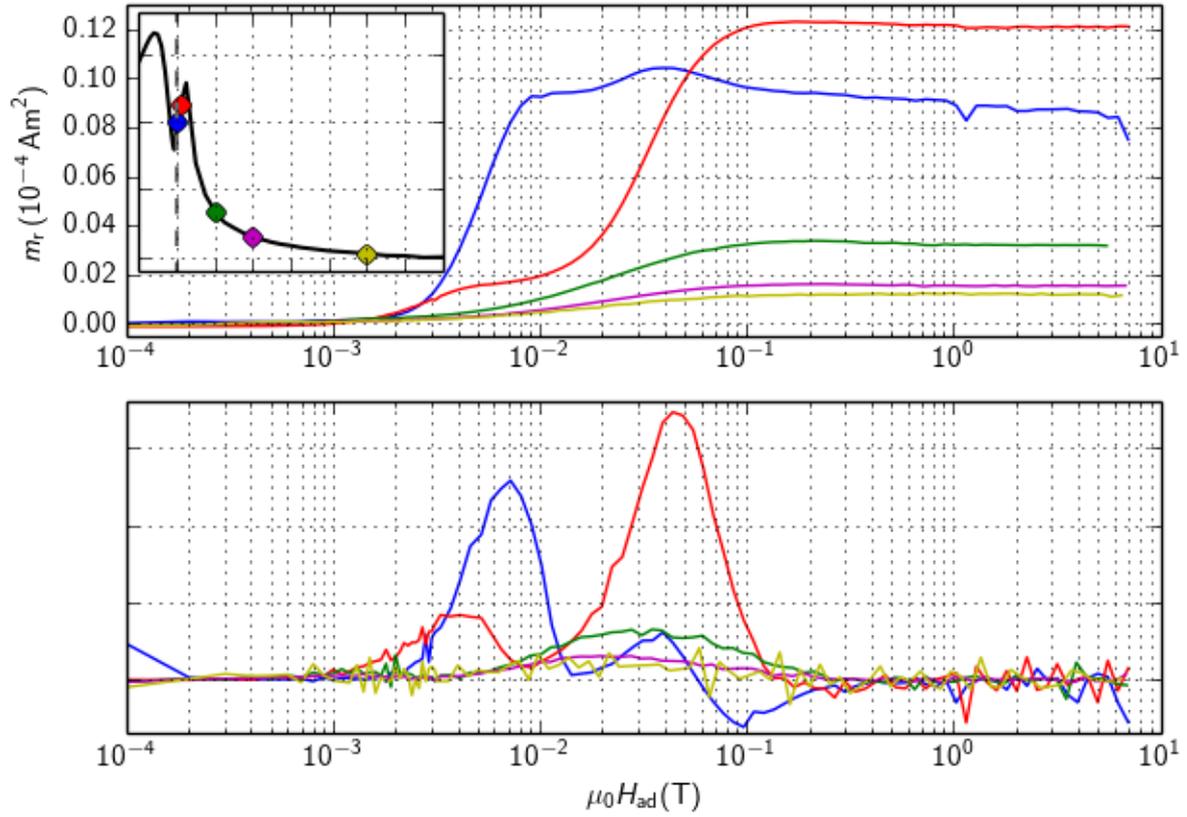


Abbildung 3.27: Wie Abbildung 3.26, jedoch bei 10 K.

existieren Probenströme auch bei einer Temperatur von 10 K.

## 3.6 Probe Co-1

Bei dieser Probe handelt es sich um jene mit den kleinsten Körnern. Mit einer durchschnittlichen Korngröße von etwa  $1 \mu\text{m}$  findet sie weder unter den Kalium dotierten noch unter den Kobalt dotierten Proben ein passendes Äquivalent in Bezug auf die Korngröße. Es zeigen sich interessante Eigenschaften sowohl bei den Messungen der Magnetisierung als auch der remanenten Magnetisierung, wie in den folgenden Abschnitten erläutert wird.

### 3.6.1 Magnetisierungsmessungen im VSM

Analog zu den übrigen Proben beginnt die Analyse des magnetischen Verhalten dieser Probe mit einer mittels VSM realisierten Messung der Magnetisierung in einem variablen äußeren Magnetfeld  $H_{\text{ap}}$ . Auch bei dieser Probe wurde keine Messung des magnetischen Hintergrundes bei einer Temperatur über der Sprungtemperatur durchgeführt.

Abbildung 3.28 zeigt das magnetische Verhalten der Probe Co-1 bei einer Temperatur von 5 K. Der Einschub zeigt einen vergrößerten Bereich bei einem äußeren Feld von etwa  $\pm 0.2 \text{ T}$ . Zu sehen sind Messschleifen mit verschiedenen  $H_{\text{max}}$  zwischen 0.1 und 5 T. Es ist auffällig, dass es erst nach relativ starker Feldreduktion zu einer Überschneidung der verschiedenen Messkurven kommt. Dieses Verhalten ist bei den großkörnigeren Proben nicht zu sehen. Im nächsten Abschnitt wird noch genauer darauf eingegangen. Es sei angemerkt, dass diese Probe ein weit größeres Maximum von  $m$  aufweist als die beiden anderen Kobalt dotierten Proben. Es befindet sich mit ungefähr  $0.8 \cdot 10^{-4} \text{ Am}^2$  in der gleichen Größenordnungen wie jene der Kalium dotierten Proben (etwa  $1.5 \cdot 10^{-4} \text{ Am}^2$ ). Die beiden unteren Einschübe in Abbildung 3.28 zeigen vergrößerte Bereiche bei  $\mu_0 H_{\text{ap}} = \pm 0.2 \text{ T}$ . Rechts sind alle Daten bei 5 K, links nur die äußersten Messschleifen bei den Temperaturen 5 (blau), 10 (rot) und 20 K (grün) zu sehen. Die Erhöhung der Temperatur zeigt, abgesehen von der üblichen Abnahme des magnetischen Moments, keine Anomalien. Der Einschub rechts oben zeigt einen vergrößerten Bereich zwischen  $-0.05$  und  $0.8 \text{ T}$ .

### 3.6.2 Messungen des magnetischen Moments im SQUID

Anhand der Magnetisierungsmessungen im SQUID Magnetometer, wurde das Verhalten der absteigenden Äste dieser Probe genauer untersucht. Da die Messungen der aufsteigenden Äste keine interessanten Verhaltensweisen offengelegt haben, wird auf eine entsprechende Darstellung verzichtet. Abbildung 3.29 zeigt Messungen des magnetischen Moments im abfallenden Feld bei verschiedenen  $\mu_0 H_{\text{max}}$ . Wie bei den Proben zuvor deuten gestrichelte Linien zfc-Messungen an und durchgezogene fc-Messungen. Die den Farben zugehörigen  $\mu_0 H_{\text{max}}$  der Messkurven sind der Bildunterschrift von Abbildung 3.29 zu entnehmen.

Wie erwartet, beginnen die Messkurven bei zfc-Bedingungen aufgrund eines bereits

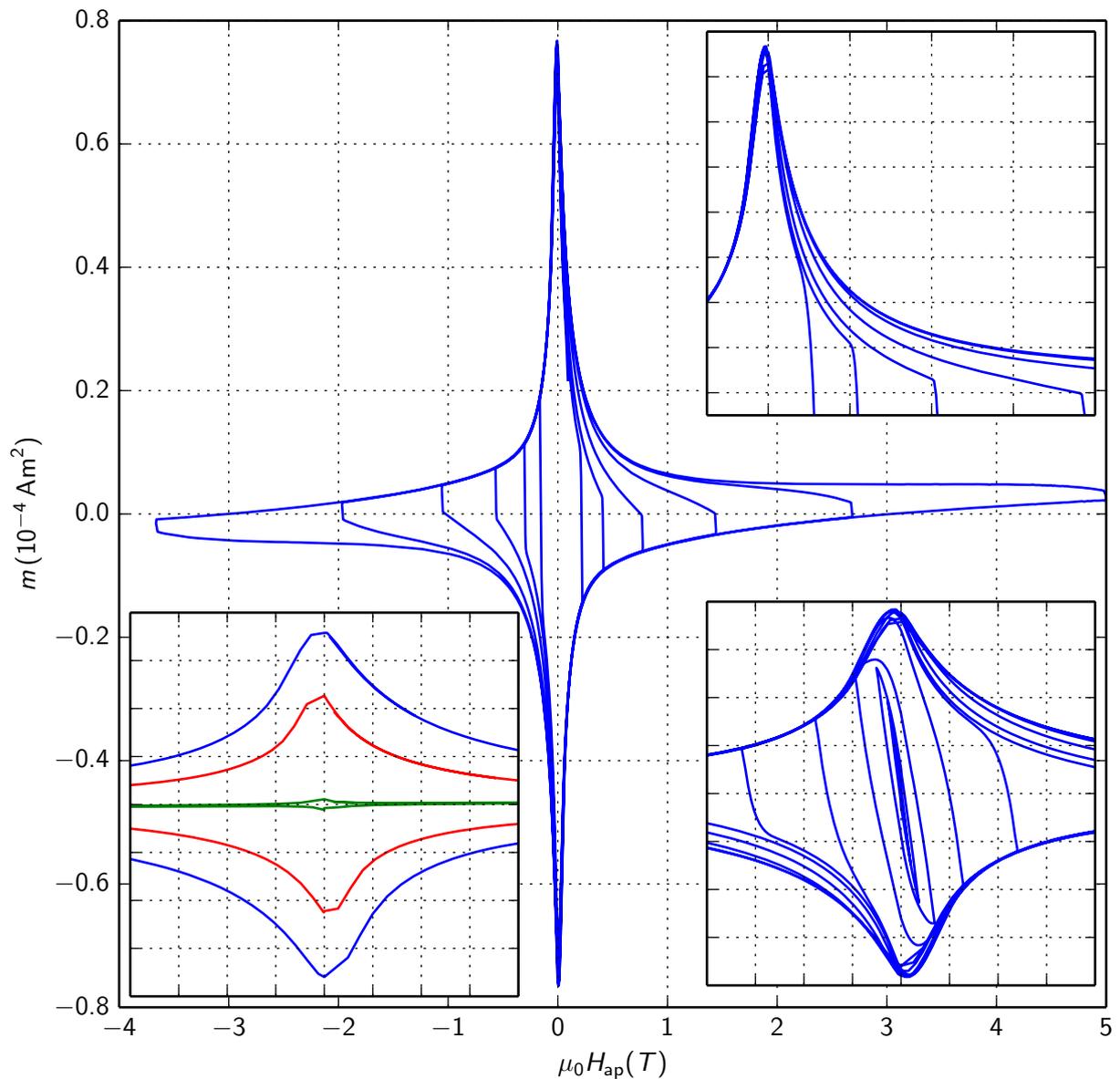


Abbildung 3.28: Mittels VSM durchgeführte Magnetisierungsmessungen der Probe Co-1 bei diversen  $H_{\max}$  und einer Temperatur von 5 K. Der rechte untere Einschub zeigt einen vergrößerten Ausschnitt der Messdaten bei  $H_{\text{ap}} = \pm 0.2$  T, der deutlich zeigt, dass diese Probe nur ein Maximum des magnetischen Moments aufweist. Der Einschub rechts oben zeigt einen vergrößerten Bereich zwischen  $-0.05$  und  $+0.8$  T. Zu sehen sind Messkurven mit  $0.1 < \mu_0 H_{\max} < 5$  T. Links unten sind die äußersten Kurven der Magnetisierungsmessungen bei den Temperaturen 5 (blau), 10 (rot) und 20 K (grün) dargestellt. Die restlichen Daten wurden hier zugunsten der Übersicht weggelassen.

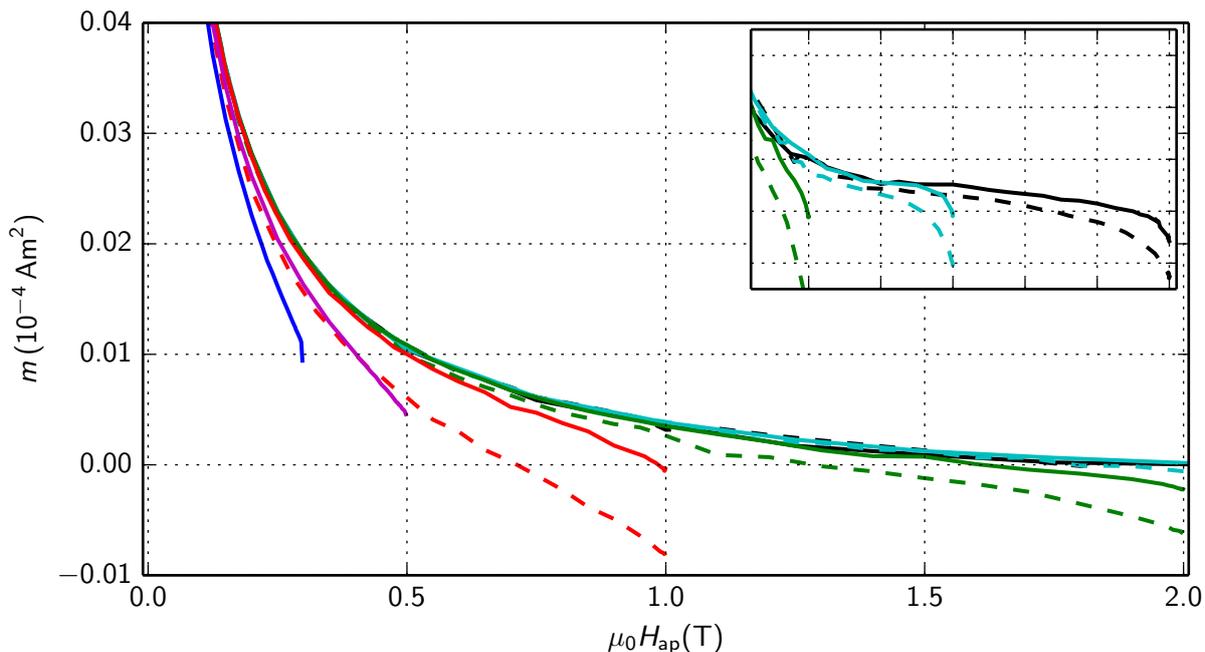


Abbildung 3.29: Messungen des magnetischen Moments der Probe Co-1 im abfallenden Feld  $\mu_0 H_{ap}$  und einer Temperatur von 5 K. Bei den Kühlfeldern handelt es sich um  $\mu_0 H_{bg} = 0.03$  (blau), 0.5 (magenta), 1 (rot), 2 (grün), 4 (cyan) und 7 T (schwarz). Der Einschub zeigt einen vergrößerten Bereich zwischen 1.05 und 7 T.

ausgebildeten Feldprofilen in der Probe, mit einem größeren Signal als die fc-Messungen. Vergleicht man das Verhalten der zfc- mit den fc-Messungen bei gleichem  $H_{max}$  im abfallenden Feld, so sieht man wie schon bei den Kalium dotierten Proben, dass die notwendige Feldreduktion um beide Äste zur Überlappung zu bringen mit kleiner werdenden Körnern zunimmt.

Wie im Einschub von Abbildung 3.28 erkennen ist, muss das Feld bei einem  $\mu_0 H_{max} = 7$  T um mehr als 5 T reduziert werden, damit sich die zfc- und die fc-Messkurve überschneiden. Das entspricht bei  $2\mu_0 H^* \approx 5$  T einem Kornstrom  $j_c^K$  von etwa  $4 \cdot 10^{12}$  Am $^{-2}$ . Auch bei den anderen Messkurven dauert es ungewöhnlich lange bis sie sich überschneiden. Anhand der Messkurve bei  $\mu_0 H^{*,K} = 2$  T wurden ebenfalls Abschätzungen der kritischen Stromdichten durchgeführt. Hier finden sich Werte für  $j_c^K$  von etwa  $4.5 \cdot 10^{11}$  (fc) bzw.  $4.8 \cdot 10^{11}$  Am $^{-2}$  (zfc). Dies ist mit dem Bean Modell nur schwer vereinbar, weshalb zusätzliche Effekte in Betracht gezogen werden müssen, um dieses Verhalten zu verstehen. Diese waren jedoch nicht Teil dieser Arbeit und werden deswegen nicht genauer behandelt. Da die Messdaten der absteigenden Äste kein zweites Maximum zeigen, wurde nur der für die Körner relevante Ausschnitt der Messkurven dargestellt.

Tabelle 3.10: Zusammenfassung der Kühlfelder für die Messungen der remanenten Magnetisierung der Probe Co-1. Die leeren Felder deuten an, dass die Messung mit dem entsprechenden Kühlfeld bzw. Temperatur nicht durchgeführt wurde.

Temperatur (K)	$\mu_0 H_{bg}$ (T)					
5	0	0.01	0.1	0.2	0.3	0.5
10	0	0.01	0.1	0.2	0.3	
20	0	0.01	0.1	0.2	0.3	

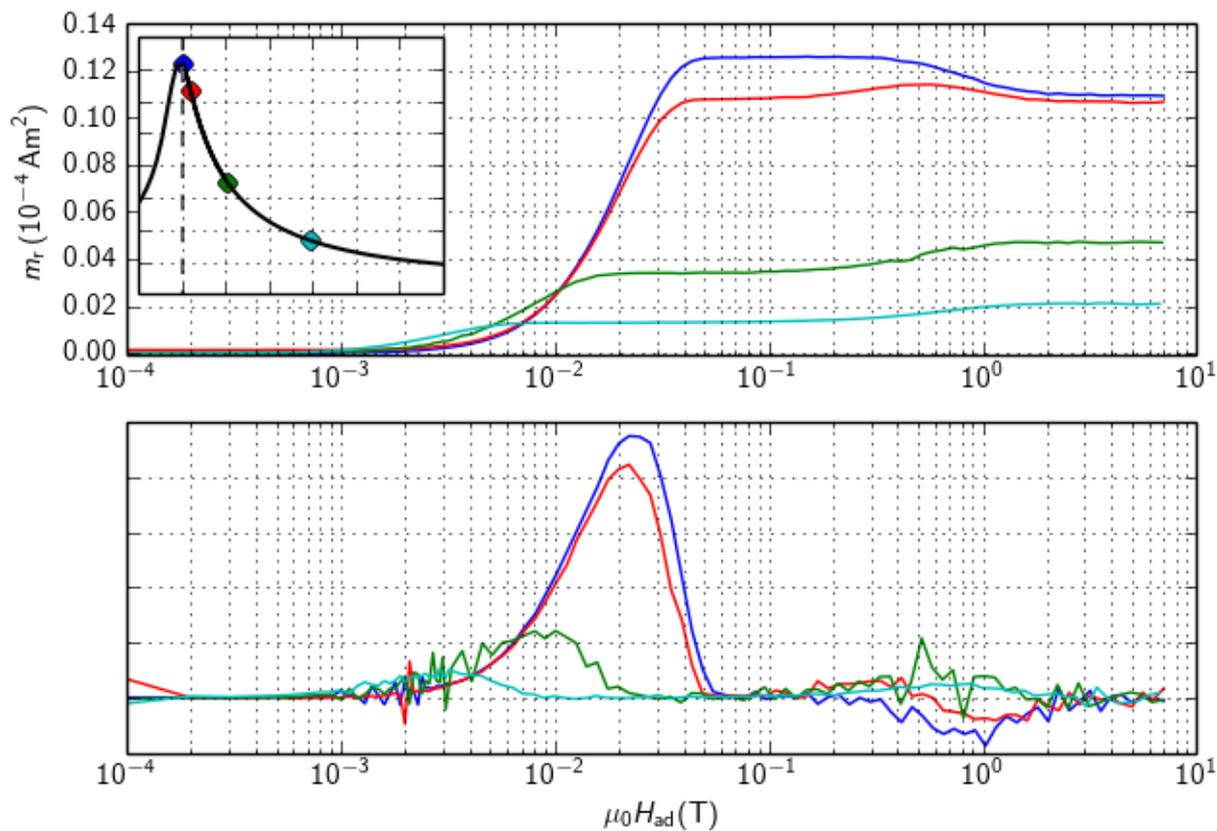


Abbildung 3.30: Messkurven der remanenten Magnetisierung  $m_r$  (obere Grafik) von Probe Co-1 bei einer Temperatur von 5 K. Der Einschub zeigt die relative Position der verwendeten  $\mu_0 H_{bg}$  auf einer Magnetisierungsschleife die per VSM aufgenommen wurde.  $\mu_0 H_{max}$  betraegt dabei 5 T. Die untere Grafik zeigt die Ableitungen der entsprechenden Kurven von  $m_r$ .

### 3.6.3 Remanente Magnetisierung

Auch die Messungen von  $m_r$  der Probe Co-1 zeigen ein Verhalten, dass bei den vorherigen Proben nicht beobachtet wurde. Eine Zusammenfassung der Messparameter findet sich in Tabelle 3.10. Abbildung 3.30 zeigt Messungen von  $m_r$  bei einer Temperatur von 5 K. Um die Übersicht zu wahren, wurden die entsprechenden Graphen der Datensätze mit den Kühlfeldern  $\mu_0 H_{bg} = 0.2$  und  $0.5$  T nicht in die Abbildung eingebunden. Bei Kühlfeldern  $\mu_0 H_{bg} \geq 0.1$  T kann man erkennen, dass es bei kleinen Feldern von etwa  $10^{-3}$  T zum Eindringen von magnetischem Fluss kommt. Entsprechend wird  $j_c^P$  aufgebaut. Bei ausreichender weiterer Erhöhung kommt es zur Penetration von magnetischen Fluss in die Körner, was zu einem weiteren Beitrag zu  $m_r$  in Form von  $j_c^K$  führt. Bei hohen Feldern ab etwa  $0.1$  T kommt es bei diesen Messreihen zu einer Sättigung von  $m_r$  auf ihren Maximalwert. Je näher  $\mu_0 H_{bg}$  zum Maximum der Magnetisierungsmessung rückt, desto mehr zeigen sich die Auswirkungen von nicht näher bestimmten Effekten, welche dazu führen, dass Proben und Kornstrom nicht mehr getrennt voneinander behandelbar sind. Bei allen vier dargestellten Messungen zeigt sich eine äußerst späte Kornpenetration bei relativ hohen Feldern. Außerdem tritt sie praktisch gleichzeitig für alle dargestellten Messungen auf.

Im Fall  $\mu_0 H_{bg} = 0$  T ist keine unabhängige Ausbildung von  $j_c^K$  und  $j_c^P$  mehr auszumachen, dafür tritt der bereits bei anderen Proben beobachtete Einbruch von  $m_r$  auf. Wahrscheinlich sind die Beiträge von  $j_c^K$  so gering, dass sie von den Selbstfeldeffekten völlig maskiert werden. Die Gleichzeitigkeit der Kornpenetration lässt sich möglicherweise über die Korngröße erklären. Je kleiner die Körner, desto später können Flusslinien eindringen.

Bei genauerer Betrachtung des Einschubes in Abbildung 3.30 fällt auf, dass der Unterschied der magnetischen Momente zwischen blauen und roten Punkt scheinbar größer ist, als der Unterschied der roten und blauen Messpunkte von  $m_r$  bei  $\mu_0 H_{ad} > 1$  T. Dies liegt vermutlich an der Tatsache, dass die verwendete Magnetisierungsmessung des Einschubes von Daten stammt, welche per VSM gesammelt wurden. Nachdem die Schrittweite der Feldvariationen nicht immer optimal gewählt wurde, kann es durchaus sein, dass bei gründlicheren Messungen lokal andere Steigungen vorhanden sind. Damit könnte dieser Unterschied des Abstandes der zwei Größen erklärt werden. Abbildung 3.31 zeigt Messungen von  $m_r$  bei einer Temperatur von 10 K. Es zeigen sich abgesehen von einer allgemeinen Abnahme der Höhe von  $m_r$  keine relevanten Änderungen zu den Messungen bei 5 K.

Abschließend für diese Probengruppe finden sich in den Tabellen 3.11 und 3.12 Zusammenfassungen der ermittelten kritischen Stromdichten aller vorliegenden Proben. Wie zu Beginn der Behandlung der Kobalt dotierten Probe bereits erläutert, wurden die drei Proben nicht so ausführlich vermessen wie die Kalium dotierten. Im Falle der Bestimmungen von  $j_c^K$  und  $j_c^P$  mittels remanenten magnetischen Moments, wurden die höchsten Werte der Sättigungsmagnetisierungen jener Kurven verwendet, die keine Anzeichen von

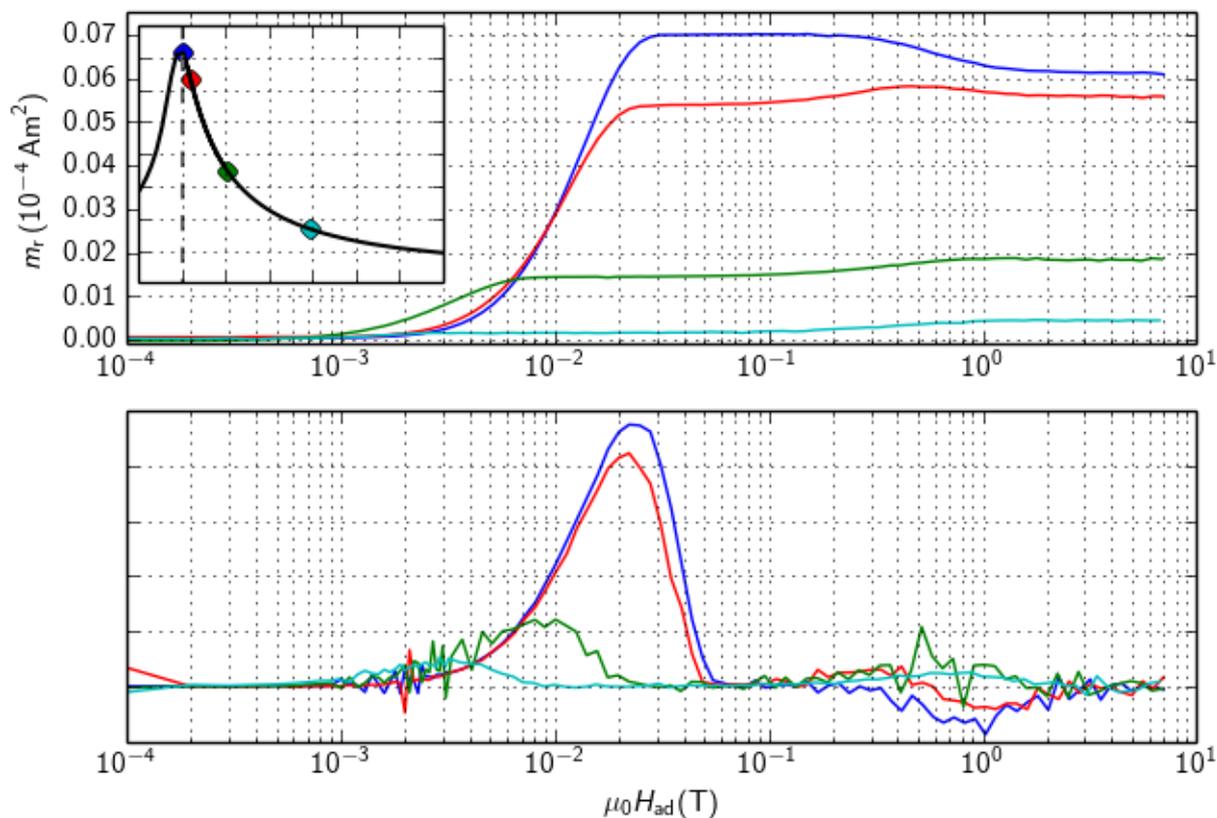


Abbildung 3.31: Wie bei Abbildung 3.30, jedoch bei einer Temperatur von 10 K.

Tabelle 3.11: Zusammenfassung der Korngrößen und einiger kritischer Stromdichten der Kalium und Kobalt dotierten Proben. Die ersten zwei Gruppen von kritischen Stromdichten wurden anhand von Magnetisierungskurven im auf- ( $\mu_0 H^* \uparrow$ ) bzw. abfallenden Feld ( $\mu_0 H^* \downarrow$ ) bestimmt. Im abfallenden Feld wurden nur Kornstromdichten anhand von zfc- und fc-Messungen abgeschätzt. Alle Stromdichten sind in  $\text{Am}^{-2}$  angegeben.

Probe	$D_K$ ( $\mu\text{m}$ )	Magnetisierungsschleifen			
		$\mu_0 H^* \uparrow$		$\mu_0 H^* \downarrow$	
		$j_c^P$	$j_c^K$	$j_c^{K,zfc}$	$j_c^{K,fc}$
K-15	15		$7.4 \cdot 10^9$	$9.6 \cdot 10^9$	$8.5 \cdot 10^9$
K-3	3	$8.8 \cdot 10^6$	$9 \cdot 10^{10}$	$8 \cdot 10^{10}$	$6.4 \cdot 10^{10}$
Co-20	20		$3.2 \cdot 10^9$		$9.6 \cdot 10^9$
Co-5	5	$5.7 \cdot 10^6$	$1.9 \cdot 10^{10}$		$9.6 \cdot 10^{10}$
Co-1	1			$4.8 \cdot 10^{11}$	$4.5 \cdot 10^{11}$

Tabelle 3.12: Zusammenfassung der kritischen Proben- und Kornströme, welche anhand der Messungen des remanenten magnetischen Moments bestimmt wurden. Alle Stromdichten sind in  $\text{Am}^{-2}$  angegeben.

Probe	$D_K$ ( $\mu\text{m}$ )	$m_r$	
		$j_c^P$	$j_c^K$
K-15	15	$1.4 \cdot 10^7$	$1.4 \cdot 10^{10}$
K-3	3	$7.5 \cdot 10^7$	$9.8 \cdot 10^{10}$
Co-20	20		$4.7 \cdot 10^9$
Co-5	5	$2.9 \cdot 10^6$	$5.5 \cdot 10^9$
Co-1	1	$4.1 \cdot 10^7$	$6.5 \cdot 10^9$

einem Zusammenbruch von  $j_c^P$  zeigen. Die relativen Lagen der  $\mu_0 H_{bg}$  zu den jeweiligen Magnetisierungsschleifen sind in den entsprechenden Einschüben der Abbildungen zu sehen.

Es lässt sich bei der Bestimmung der kritischen Stromdichten anhand der Magnetisierungsschleifen eindeutig erkennen, dass es, je kleiner die Körner sind, zu immer höheren Werten von  $j_c^K$  kommt. Probe Co-1 zeigt nach anhand dieser Messungen sehr hohe kritische Kornstromdichten  $j_c^K$  von bis zu  $10^{11} \text{Am}^{-2}$ . In Kombination mit der Tendenz von steigenden Strömen mit kleiner werdenden Körnern, lässt sich die Vermutung aufstellen, dass diese Art kritische Stromdichten zu bestimmen, nicht für kleine Korngrößen geeignet ist.  $H^*$  würde demzufolge mit kleineren Körnern anwachsen, was darauf hinweist, dass dieses einfache Modell von zwei separat behandelbaren Strömen nicht für Polykristalle mit kleinen Körnern geeignet ist. Wie bereits in Unterabschnitt 3.3 angeführt, wird derzeit diskutiert, ob der Effekt der Oberflächenverankerung von Flusslinien qualitative Erklärungen für das Probenverhalten liefern könnte. Der Anstieg des Verhältnisses von Kornoberfläche zu -volumen mit kleiner werdenden Körnern, sodass dieser Effekt bei kleineren Körnern dominanter in Erscheinung tritt spricht für diesen Ansatz.

Die Untersuchung der remanenten Magnetisierung zeigt mit Ausnahme der Probe K-3 durchgehend für alle Korngrößen und Dotierungen durchaus realistische Werte für  $j_c^K$ . Es sei angemerkt, dass aufgrund der Natur der Berechnung bzw. der im Falle der Kobalt dotierten Proben bestehenden Abweichung von einer quaderförmigen Geometrie möglich ist, dass die angegebenen Werte bis zu einem Faktor 2 von den tatsächlichen Werten entfernt liegen können. Dennoch sind die Größenordnungen der Kornstromdichten im realistischen Bereich. Auch die Werte für die intergranularen Stromdichten  $j_c^P$  sind mit  $10^6$  bis  $10^7 \text{Am}^{-2}$  für polykristalline supraleitende Strukturen realistisch.

# Kapitel 4

## Zusammenfassung und Schlussfolgerung

Ziel dieser Arbeit war es, das Magnetisierungsverhalten von polykristallinen Supraleitern auf Eisenbasis mit unterschiedlicher Korngröße und Dotierung zu untersuchen. Sie wurden hinsichtlich verschiedener Kühlfelder unter zfc- und fc-Bedingungen sowie verschiedener Temperaturen mit magnetometrischen Methoden in einem VSM und einem SQUID Magnetometer analysiert. Die vorliegenden Proben zeigen ein bisher unbeobachtetes Magnetisierungsverhalten, was sich in der Ausbildung zweier deutlich unterscheidbarer Maxima äußert. Diese Maxima werden im Zuge der Interpretation der Messdaten zwei Stromdichten zugeordnet, welche auf zwei unterschiedlichen Längenskalen entstehen. Dabei handelt es sich um Ströme, die ausschließlich innerhalb der einzelnen Körner auftreten sowie dem globalen Transportstrom, der über die ganze Probe verläuft. Durch ein Wechselspiel dieser beiden Beiträge kommt es zu unterschiedlichen Verhaltensweisen im an- und absteigenden äußeren Feld.

Der erste Schritt zur Untersuchung des magnetischen Verhaltens der Proben lag darin, anhand von Messungen des magnetischen Moments bzw. mithilfe dieser auf die probenspezifischen Größen  $H^*$  und damit auf die auftretenden kritischen Stromdichten zu schließen. Dabei wurden Abschätzungen der charakteristischen Felder  $H^*$  auf den auf- und absteigenden Ästen durchgeführt. Bei Proben mit Korngrößen  $\geq 3 \mu\text{m}$  lassen sich anhand dieser Messungen durchaus realistische Werte von kritischen Strömen bei bekannten Korngrößen bzw. vice versa bestimmen. Obwohl diese Methode bei den großkörnigen Proben zu mehr oder weniger vernünftigen Werten geführt hat, waren die zugehörigen Ergebnisse der kleinkörnigen Probe mit einer durchschnittlichen Korngröße von  $1 \mu\text{m}$  unrealistisch. Die Messdaten zeigen eine deutlich ansteigende Tendenz der intergranularen Stromdichte mit fallender Korngröße, wobei zu sagen ist, dass diese Stromdichten eindeutig zu groß werden und das einfache Modell nach Bean nicht mehr anwendbar ist. Für kleine Körner scheint das probenspezifische Feld  $H^*$  nicht mehr jenem des Bean Modells zu entsprechen. Dies äußert sich darin, dass es einer höheren Feldreduktion bedarf, bis sich fc- und

zfc-Messungen bei gleichem  $\mu_0 H_{\max}$  überlappen, als vom Bean Modell vorhergesagt. Dieses Verhalten ist bei großen Körnern ( $D_K \approx 15 - 20 \mu\text{m}$ ) nicht so deutlich ausgeprägt, wie es z.B. bei der Probe Co-1 ( $D_K \approx 1 \mu\text{m}$ ) der Fall ist, da die zu den entsprechenden  $H^*$  korrespondierenden Stromdichten sehr nahe an dem Bereich der paarbrechenden kritischen Stromdichte liegen. In diesem Zusammenhang wird die Oberflächenverankerung von Flusslinien diskutiert, die bei kleiner werdenden Körnern an Relevanz gewinnt, da das Verhältnis von Kornoberfläche zu -volumen ansteigt.

Eine weitere Untersuchungsmethode stellt die Messung der remanenten Magnetisierung bzw. des remanenten magnetischen Moments in den Mittelpunkt. Diese Methode bietet den Vorteil, dass man Auftreten von Proben- und Kornströmen separat voneinander beobachten und analysieren kann. Dies erlaubt die Analyse der beiden Anteile bei verschiedenen  $\mu_0 H_{\text{bg}}$ . Aus den Messdaten lassen sich relativ zuverlässige Werte für kritische Korn- und Probenströme ermitteln. Für Messungen von  $m_r$  bei  $\mu_0 H_{\text{bg}}$  nach dem Einbruch von  $m^P$  ist diese Methode allerdings nicht anwendbar, da die Verhaltensweisen von Proben- und Kornströmen es nicht erlauben eindeutige Werte für die beiden Größen zu ermitteln. Es lässt sich anhand dieser Messungen nicht feststellen, ob der Anteil  $m_r^P$  bei hohen Feldern  $\mu_0 H_{\text{ges}}$  wirklich vollständig auf null abfällt oder zu einem Teil bestehen bleibt.

Für eine exaktere Untersuchung von  $j_c^P$  und  $j_c^K$  ist es daher ratsam, auf Hall-Messungen zurückzugreifen, da diese eine präzisere und lokalisierte Untersuchung der Probe erlauben, wodurch quantitative Berechnungen der kritischen Ströme möglich werden.

# Literaturverzeichnis

- [1] Alireza, P.L., Ko, Y. T. C., Gillet, J., Petrone, C. M., Cole, J. M., Lonzarich, G. G. & Sebastian., S. E. *Superconductivity up to 29 K in SrFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> and BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> at high pressures.* J. Phys.: Condens. Matter, **21**, 2009.
- [2] Bardeen, J., Cooper, L .N. & Schrieffer, J. R. *Theory of Superconductivity.* Phys. Rev., **108**, 1957.
- [3] Bean, C. P. *Magnetization of High-Field Superconductors.* Rev. Mod. Phys., **36**, 1964.
- [4] Bean, C. P. & Livingston, J. D. *Surface Barrier in Type-II Superconductors.* Phys. Rev. Lett., **12**, 1964.
- [5] Buckel, W. & Kleiner, R. *Supraleitung: Grundlagen und Anwendungen.* Wiley-VCH, 7. Auflage, Weinheim, 2013.
- [6] Cyrot, M: *Ginzburg-Landau Theory for Superconductors.* Rep. Prog. Phys., **36**, 1973.
- [7] Cardwell, D. A. & Ginley, D. S. *Handbook of Superconducting Materials, Vol. I: Superconductivity, Materials and Processes.* IOP Publishing Ltd., 2003.
- [8] Demtröder, W. *Demtröder Experimentalphysik 3, Atome, Moleküle und Festkörper.* Springer, Bd. 3., Kaiserslautern, 2005.
- [9] Hayashi, Y., Yamamoto, A., Ogino, H., Shimoyama, J. & Kishio, K. *Influences of material processing on the microstructure and inter-granular current properties of polycrystalline bulk Ba(Fe,Co)<sub>2</sub>As<sub>2</sub>.* Phys. C, **504**, 2014.
- [10] Hecher, J. *Titel in Arbeit.* Dissertation, TU Wien.
- [11] Jackson, J. *Classical Electrodynamics.* Wiley-VCH, 3<sup>rd</sup> ed., New York, 1998.
- [12] Kamihara, Y., Watanabe, T., Hirano, M. & Hosono, H. *Iron-Based Layered Superconductor La [O<sub>1-x</sub>F<sub>x</sub>] FeAs (x = 0.05-0.12) with T<sub>c</sub> = 26 K.* J. Am. Chem. Soc., **130**, 2008.
- [13] Meissner, W. & Ochsenfeld, R. *Ein neuer Effekt bei Eintritt der Supraleitfähigkeit.* Die Naturwissenschaften, **21**, 1933.

- [14] Mizuguchi, Y., Tomioka, F., Tsuda, S., Yamaguchi, T. & Takano, Y. *Superconductivity at 27 K in tetragonal FeSe under high pressure*. Appl. Phys. Lett., **93**, 2008.
- [15] Müller, K.-H. & Andrikidis, C. *Intergranular and intragranular critical currents in silver-sheathed Pb-Bi-Sr-Ca-Cu-O tapes*. Phys. Rev. B, **50**, 1994.
- [16] Paglione, J. & Greene, L. R. *High-temperature superconductivity in iron-based materials*. Nat. Phys., **6**, 2010.
- [17] Pippard, A. B. *An experimental and theoretical study of the relation between magnetic field and current in a superconductor*. Proc. Roy. Soc., **A 216**, 1953.
- [18] Quantum Design. *IMPMS MultiVu Application User's Manual*. 3<sup>rd</sup> ed., 2004.
- [19] Rotter, M., Tegel, M. & Johrendt, D. *Spin-density-wave anomaly at 140 K in the ternary iron arsenide BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>*. Phys. Rev. B, **78**, 2008.
- [20] Rotter, M., Tegel, M. & Johrendt, D. *Superconductivity at 38 K in the Iron Arsenide (Ba<sub>1-x</sub>K<sub>x</sub>)Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>*. Phys. Rev. Lett., **101**, 2008.
- [21] Sefat, A. S., Jin, R., McGuire, M. A., Sales, B. C., Singh, D. J. & Mandrus, D. *Superconductivity at 22 K in Co-doped BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> Crystals*. Phys. Rev. Lett., **101**, 2008.
- [22] Ventsislav, M. *Studying flux pinning phenomena in BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> based superconducting single crystals and single crystalline thin films*. Dissertation, TU Wien, 2015.
- [23] Weber, H. W. & Hittmair, O. *Supraleitung*. Thiemig-Taschenbücher, Bd. 64, 1979.
- [24] Weiss, J., Tarantini, C. & Jiang, J., Kametani, F., Polyanskii, A. A., Larbalestier, D. C. & Hellstrom, E.E. *High intergrain critical current density in fine-grain (Ba<sub>0.6</sub>Fe<sub>0.4</sub>)Fe<sub>2</sub>As<sub>2</sub> wires and bulks*. Nature Materials, **11**, 2012.