

Versuch „Magnetisierung“

1. Einleitung:

In dieser Arbeit zum Thema „Aufbau und Erprobung eines SQUID-Magnetometers im Fortgeschrittenen Praktikum“ geht es hauptsächlich um Magnetisierungsmessungen und ein SQUID. SQUID ist die Abkürzung für Superconducting Quantum Interference Devices. Mit ihm können sehr kleine, höchst empfindliche Magnetfeldmessungen realisiert werden. Diese Fähigkeit, extrem kleine magnetische Felder messen zu können, wird von keinem anderen Magnetfelddetektor übertroffen.

Das SQUID im Praktikum ist ein RF-SQUID mit einem Hochtemperatursupraleiter (Yttrium Barium Kupfer Oxid = YBCO). Damit das SQUID arbeiten kann, muss es auf seine „Arbeitstemperatur“ gebracht werden, wodurch das YBCO supraleitend wird. Dies ist bei Stickstofftemperatur von ca. 77 Kelvin der Fall.

2. Theoretische Grundlagen

2.1. Supraleitung

2.1.1. Entdeckung

Die Supraleitung wurde im 20. Jahrhundert entdeckt. Heike Kamerlingh Onnes beobachtete die Supraleitung erstmals in Leiden, als er die Temperaturabhängigkeit des spezifischen Widerstands von Metallen untersuchen wollte. Bei seinen Versuchen stellte er fest, dass seine Quecksilber-Probe bei ca. 4 K ($K \equiv \text{Kelvin}$) einen nicht messbar kleinen Widerstand von nahezu null besitzt. Dieses Phänomen wurde Supraleitung genannt und auch noch bei anderen Stoffen festgestellt.

Durch weitere Untersuchungen wurden noch andere Phänomene der Supraleitung entdeckt. So stießen Meißner und Ochsenfeld 1933 auf die Eigenschaft, dass ein homogener Supraleiter nicht nur ein idealer Leiter sondern auch ein idealer Diamagnet ist. Es gilt also für die

magnetische Suszeptibilität $\chi = \frac{dM}{dB} = -1$. Das heißt, in einem Leiter, der unter seine kritische

Temperatur abgekühlt wird, existiert kein Magnetfeld, selbst wenn von außen eines angelegt wird oder schon angelegt worden war. Im letzteren Fall wird das Feld aus dem Supraleiter verdrängt. Dieser Effekt wird auch als Meißner-Ochsenfeld-Effekt bezeichnet.

Theoretisch konnte die Supraleitung erst spät erklärt werden. Ca. 40 Jahre nach der Entdeckung der Supraleitung stellten J. Bardeen, L.N. Cooper und J.R. Schrieffer ein Modell auf, das das Phänomen der Supraleitung erklären konnte. Dies war eine mikroskopische Beschreibung, die nach den drei Physikern mit BCS-Theorie bezeichnet wurde. Darin geht man von der Bildung so genannter Cooper-Paare aus, bei welchen zwei Elektronen mit entgegengesetztem Spin und Impuls ($k \uparrow, -k \downarrow$) zu einem Teilchen (Cooper-Paar) koppeln. Diese Teilchen mit ganzzahligem Gesamtspin (0) unterliegen der Bose-Einstein-Statistik im Gegensatz zu den Elektronen.

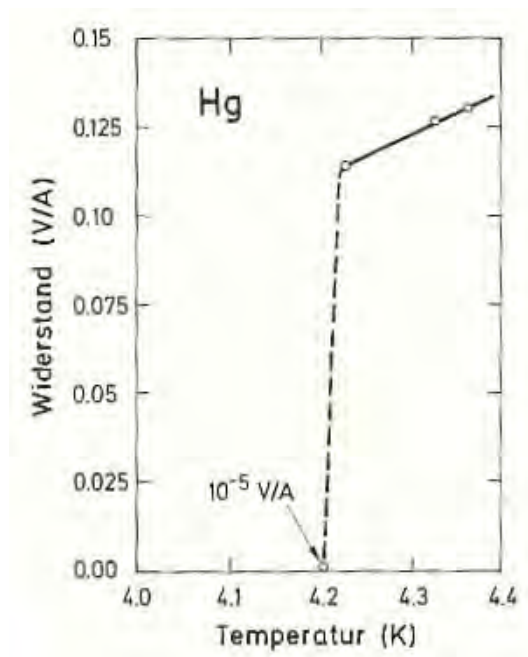


Abb.1: Originalmesskurve, mit der 1911 das Phänomen der Supraleitung an Hg entdeckt wurde. Bei Abkühlung unter 4,2 K fällt der elektr. Widerstand unter die Messbarkeitsgrenze (damals $\approx 10^{-5} \Omega$), aus Ref.[1] Abb. 10.1

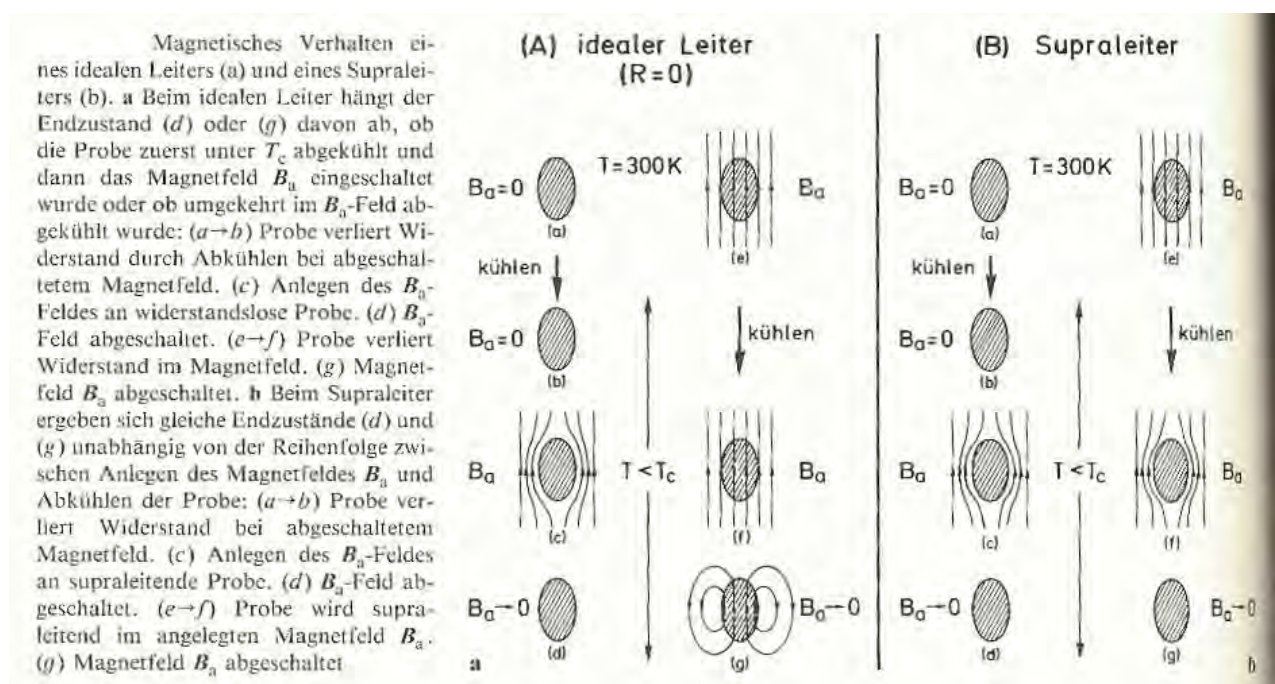


Abb.2: magnetisches Verhalten eines idealen Leiters und eines Supraleiters im äußeren Magnetfeld B_a , aus Ref. [1] Abb. 10.4

Dieses Modell führte zu einem weiteren Effekt dem Josephson-Effekt (1962). Josephson betrachtete zwei Supraleiter die durch eine dünne Isolierschicht getrennt waren und so eine

Barriere für den Stromfluss bilden sollten. Die quantenmechanischen Wellenfunktionen der Cooperpaare können von beiden Seiten in diese Schicht „eindringen“ und können sich sogar, wenn die Schicht ausreichend dünn ist (ca. ein bis zwei nm), überlagern. Wenn man nun das Teilchenmodell betrachtet, bedeutet das, dass die Cooper-Paare diese Isolationsschicht durchtunneln können. Die beiden Supraleiter sind somit schwach gekoppelt „weak link“. Diesen Kontakt nennt man Josephson-Kontakt. Er verhält sich wie ein schwacher Supraleiter. Dieser Effekt ist zum Verständnis des SQUID's von großer Bedeutung (siehe auch Kapitel 2.1.4.).

1986 gelang J.G. Bednorz und K.A.Müller der Durchbruch auf dem Gebiet der so genannten Hochtemperatursupraleitung. Sie entdeckten, dass metallische, sauerstoffarme Kupferoxidverbindungen Sprungtemperaturen um 30 Kelvin zeigen. Andere Wissenschaftler konnten durch Erzeugung anderer spezieller Oxidkeramiken immer höhere Sprungtemperaturen (bis mehr als 100 Kelvin) erzeugen. Nun war das Abkühlen mit flüssigem Stickstoff möglich, der bei Atmosphärendruck eine Siedetemperatur von 77 Kelvin hat. Dies bedeutete, dass es nun technisch einfacher zu realisieren und viel kostengünstiger war ein Material in den supraleitenden Zustand zu bringen. Jedoch war eine Beschreibung der Hochtemperatursupraleitung HTS durch eine einheitliche Theorie bis heute noch nicht möglich, obwohl sie in den verschiedenen keramischen Materialien unterschiedlich erklärt werden kann. Der folgende Abschnitt befasst sich mit den wichtigen Eigenschaften der Supraleitung zum Verständnis des SQUID's.

2.1.2 Flußquantisierung

Eine wichtige Eigenschaft der Supraleitung ist die Flußquantisierung, bei der der magnetische Fluß Φ in einem geschlossenen supraleitenden Ring quantisiert ist.

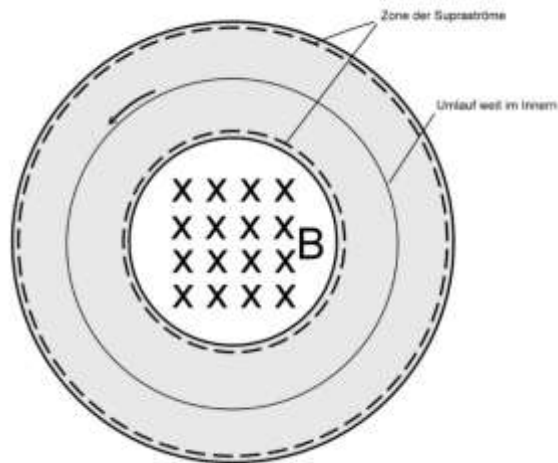


Abb.6: Supraleitender Ring (grau), der von einer magnetischen Flussdichte B durchsetzt ist. In den gestrichelten Zonen laufen Supradauerströme. Ein gedachter Umlauf im Innern berührt im wesentlichen stromloses Gebiet.

Stellen wir uns zunächst einen supraleitenden Ring vor, in welchem durch einen Induktionsvorgang ein Dauerstrom angeworfen wurde. Solange der Ring supraleitend bleibt (Widerstand „null“), klingt der Strom nicht ab. Das System befindet sich in einem stabilen

Zustand. Man kann den Zustand des Ringes ändern, indem man das Abkühlen des Ringes unter T_C (Ring wird supraleitend) bei anderen Magnetfeldern durchführt und dann das Magnetfeld abschaltet. Eigentlich könnte dadurch jeder beliebige Dauerstrom erzeugt werden, jedoch schreibt andererseits die Quantenmechanik vor, dass stationäre Zustände durch Randbedingungen festgelegt sind. Das bedeutet für unseren Ring, dass er auch je nach induziertem Dauerstrom diskrete Zustände annehmen muss.

Das heißt, ein geschlossener Suprastromkreis kann nur magnetische Flüsse einschließen, die sich als ein ganzzahliges Vielfaches eines sogenannten Flussquants darstellen lassen. Der Fluss muss also gequantelt vorkommen.

Nun kann man dem ringförmigen Suprastrom die Bohr-Sommerfeldsche Quantisierungsbedingung auferlegen. Angenommen, Teilchen tragen die Ladung q und haben eine Dichte ρ und sie tragen die Stromdichte j , so gilt für den Impuls eines Teilchens:

$$\vec{p} = m \cdot \vec{v} + q \cdot \vec{A} \quad (\vec{j} = N \cdot q \cdot \vec{v}) \quad (2.1)$$

$$\Rightarrow p = \frac{m}{Nq} \cdot \vec{j} + q \cdot \vec{A} \quad (2.2)$$

Aus der Quantisierungsbedingung weiß man, dass das geschlossenen Wegintegral über p ein Vielfaches des Plankschen Wirkungsquantum h ist.

$$\oint \vec{p} \cdot d\vec{s} = \underbrace{\frac{m}{Nq} \cdot \oint \vec{j} \cdot d\vec{s}}_{=0 \text{ weil Suprastrom nur in einer sehr dünnen Schicht an der Oberfläche vorkommt d.h. nur dort ist } j \neq 0; \text{ das Integral verschwindet also bei allen tiefer vorkommenden Integrationswegen}} + q \cdot \oint \vec{A} \cdot d\vec{s} = n \cdot h \quad (2.3)$$

$\oint_{\text{rot} \vec{A} = \vec{B}}$

$$\frac{n \cdot h}{q} = \iint_F \vec{B} \cdot d\vec{F} = n \cdot \Phi_0 \quad (2.4)$$

Φ_0 wird das Flussquant genannt. Der Suprastrom wird von Cooper-Paaren getragen, diese besitzen die Ladung $q = 2e$. Daraus ergibt sich der Wert für ein Flussquant von

$$\Phi_0 = 2,07 \cdot 10^{-15} \text{ Vs.} \quad (2.5)$$

Hier haben wir den stromführenden Kreis wie ein Riesenmolekül behandelt, d.h. Quantenbedingungen für ein makroskopisches System gefordert. Nun sieht man, wie die supraleitende Phase durch eine makroskopische Vielteilchen-Wellenfunktion beschrieben werden muss. Bei einem nicht supraleitenden Ring dürfte die Quantenbedingung (2.3.) nicht angewandt werden. Für einzelne Elektronen gibt es keine den Ring umschließende Wellenfunktion. Dies existiert nur für eine Cooper-Paarbindung.

Es gibt zwei Typen von Supraleitern. Supraleiter des Typ I schirmen im Bereich „mittlere Felder“ den magnetischen Fluss ab. Supraleiter des Typs II lassen den magnetischen Fluss für Feldstärken $B_{C1} < B < B_{C2}$ in Form von Flussschläuchen eindringen, die jeweils ein Flussquant Φ_0 tragen.

2.1.4. Josephson-Effekt

Eine weitere Folge der makroskopischen Quantenzustände, die den Supraleiter beschreiben, sind die Josephson-Effekte. Diese scheinen sehr ungewöhnlich und unanschaulich zu sein. Wenn man sie jedoch aus der Sicht der Quantenmechanik betrachtet, sind sie einleuchtend. Sie sind ein gutes Beispiel für den makroskopischen Quantenzustand eines Supraleiters, der durch die Quantentheorie beschrieben wird.

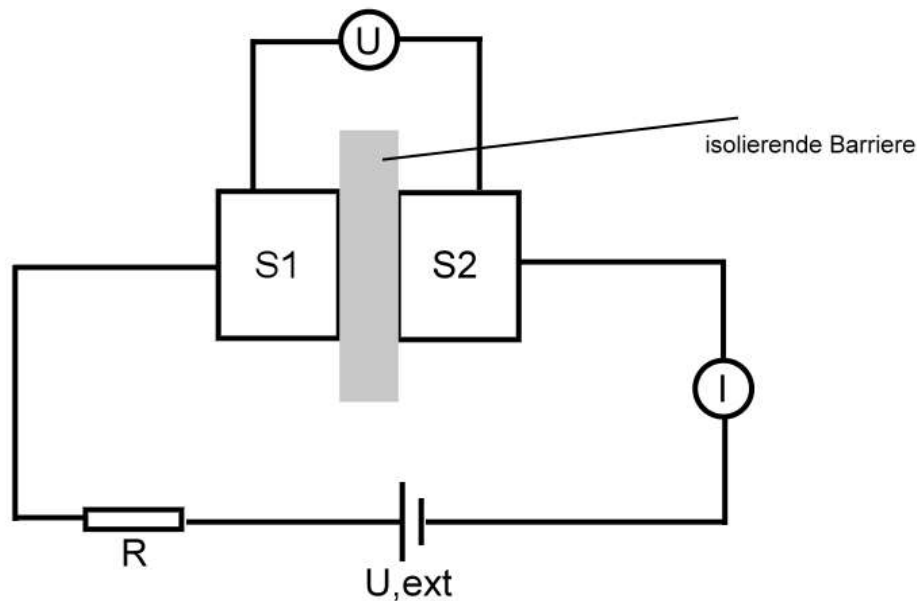


Abb.9: Schematische Darstellung einer Anordnung zur Messung des Josephson-Tunneleffektes an einem Kontakt bestehend aus 2 Supraleitern 1 und 2 mit isolierender Barriere.

Es handelt sich bei diesen Effekten um Tunneleffekte. Die Experimente dazu werden an ganz dünnen Tunnelbarrieren durchgeführt. Diese Barrieren koppeln zwei Supraleiter aneinander. Josephson zeigte 1962 erstmals, dass auch Cooper-Paare durch die dünne Barriere tunneln. Hier tritt die deutlich hohe Kohärenz der Cooper-Paare bzw. des BCS-Grundzustand zu Tage. In der Grundschaltung (Abb. 9) zur Beobachtung der Josephson-Effekte wird eine Spannung U_{ext} über einen Widerstand an einen Tunnelkontakt (S1/S2) angelegt. Es können der Strom und auch die abfallende Spannung am Kontakt mit Hilfe von Messgeräten gemessen werden. Solch einen Kontakt nennt man Josephson-Kontakt bzw. auch „weak link“.

Für die Beschreibung des Josephson-Kontakts nehmen wir ein vereinfachtes Modell (Abb.9) an. Ein dünnes Material verbindet die Supraleiter 1 und 2, die aus gleichem Material bestehen, miteinander. Die Supraleiter sind so tief abgekühlt, damit sich die Elektronen im BCS-Grundzustand befinden. Durch die Vielteilchenwellenfunktionen Φ_1 und Φ_2 werden in den beiden Supraleitern die Cooper-Paar-Zustände beschrieben. H_1 und H_2 seien die Gesamt-Hamilton-Operatoren (Energien) der jeweiligen Supraleiter. Dann gilt für das System Folgendes:

$$i \cdot \hbar \cdot \frac{\partial \Phi_1}{\partial t} = H_1 \Phi_1 + T \Phi_2 \quad (2.6)$$

$$i \cdot \hbar \cdot \frac{\partial \Phi_2}{\partial t} = H_2 \Phi_2 + T \Phi_1 \quad (2.7)$$

T drückt in diesen Gleichungen die für die Tunnelübertragung charakteristische Kopplungskonstante aus. Durch $T\Phi_1$ und $T\Phi_2$ werden Energien in den einzelnen Supraleitern beschrieben. Wäre es eine total undurchlässige Barriere, so ergäben die Gleichungen (2.6) und (2.7) zwei ungekoppelte zeitabhängige Vielteilchen-Schrödinger-Gleichungen für die getrennten Supraleiter.

Wir betrachten zur Vereinfachung zwei gleiche Supraleiter. Wenn man annimmt, dass Φ_1 und Φ_2 die jeweiligen Eigenlösungen von H_1 und H_2 sind, ersetzen wir also H_1 und H_2 durch die Energien des einzelnen supraleitenden Zustandes. Die Energien in beiden Supraleitern werden durch die Spannung über der Diode um qU gegeneinander verschoben ($q = -2e$). Wird der Nullpunkt symmetrisch zwischen die beiden Supraleiter gelegt, so erhält man:

$$i\hbar \dot{\Phi}_1 = \frac{qU}{2} \Phi_1 + T \Phi_2, \quad (2.8)$$

$$i\hbar \dot{\Phi}_2 = \frac{-qU}{2} \Phi_2 + T \Phi_1 \quad (2.9)$$

da $|\Phi|^2 = \frac{n_s}{2} = n_c$ die Dichte der Cooper Paare ist, lassen sich die Funktionen Φ darstellen als:

$$\Phi_1 = \sqrt{n_{c1}} \cdot e^{i\varphi_1}, \quad (2.10)$$

$$\Phi_2 = \sqrt{n_{c2}} \cdot e^{i\varphi_2} \quad (2.11)$$

φ_1 φ_2 sind die Phasen der Vielteilchen-Wellenfunktionen. Man erhält nun mit (2.8) und (2.9)

$$\dot{n}_{c1} = \frac{2}{\hbar} \cdot T \cdot \sqrt{n_{c1} \cdot n_{c2}} \cdot \sin(\varphi_2 - \varphi_1), \quad (2.12)$$

$$\dot{n}_{c2} = -\frac{2}{\hbar} \cdot T \cdot \sqrt{n_{c1} \cdot n_{c2}} \cdot \sin(\varphi_2 - \varphi_1), \quad (2.13)$$

bzw.

$$\dot{\varphi}_1 = \frac{1}{\hbar} \cdot T \cdot \sqrt{\frac{n_{c2}}{n_{c1}}} \cdot \cos(\varphi_2 - \varphi_1) - \frac{qU}{\hbar}, \quad (2.14)$$

$$\dot{\varphi}_2 = \frac{1}{\hbar} \cdot T \cdot \sqrt{\frac{n_{c1}}{n_{c2}}} \cdot \cos(\varphi_2 - \varphi_1) + \frac{qU}{\hbar} \quad (2.15)$$

Da eine symmetrische Anordnung mit zwei gleichen Supraleitern gewählt wurde, ergibt sich einfach mit $n_{c1} = n_{c2} = n_c$:

$$\dot{n}_{c1} = \frac{2}{\hbar} \cdot T \cdot n_c \cdot \sin(\varphi_2 - \varphi_1) = -\dot{n}_{c2} \quad (2.16)$$

$$\hbar \cdot (\dot{\varphi}_2 - \dot{\varphi}_1) = -qU \quad (2.17)$$

Mit diesen beiden Gleichungen kann man nun die Josephson-Effekte erklären.

1. Der Josephson Gleichstrom:

Die obigen Gleichungen haben auch ohne Spannungsabfall ($U=0$) über der Tunnelbarriere als Lösung einen Stromfluss ($\dot{n}_c \neq 0$). Es fließt ein Tunnelstrom von Cooper-Paaren zwischen den beiden Supraleitern. Die Richtung des Stromes hängt von der Phasendifferenz $\varphi_1 - \varphi_2$ ab. Der Tunnelstrom lässt sich wie folgt darstellen:

$$I_{Co} = I_{Co}^{\max} \sin(\varphi_2 - \varphi_1)$$

2. Der Josephson Wechselstrom:

Der Maximalstrom bleibt solange stabil, wie sich die Phasenverschiebung $\varphi_1 - \varphi_2$ zeitlich nicht ändert. Durch die Gleichung (2.17) sieht man, dass dies eintritt solange keine Spannung über der Diode abfällt. Tritt also eine Spannung $U \neq 0$ an der Barriere auf, so wird der Strom durch die Barriere von den Elektronen der aufgebrochenen Cooper-Paare getragen.

Durch Integration von (2.17) erhält man:

$$\varphi_2 - \varphi_1 = \frac{1}{\hbar} 2eUt + \Delta\varphi_{init} . \quad (2.18)$$

Durch Einsetzen in (2.16) erhält man einen Wechselstrom im Tunnelkontakt, der dem Gleichstrom vom Einelektron-Tunneln überlagert ist.

$$I_{Co}^{\approx} \sim \dot{n}_{Co1} = \frac{1}{\hbar} \cdot 2Kn_{Co} \sin(\omega_{Co}t + \Delta\varphi_{init}) , \quad (2.19)$$

$$\text{mit} \quad \omega_{Co} = \frac{1}{\hbar} \cdot 2eU . \quad (2.20)$$

Hiermit kann man $\frac{\hbar}{e}$ bestimmen, indem man Spannung U und Frequenz ω_{Co} misst.

Besondere Bedeutung für einen Josephson Gleichstrom hat ein äußeres Magnetfeld das in der Barriere parallel zur Grenzschicht anliegt. Der Maximalwert des Josephson Gleichstroms hängt

ganz deutlich von der Größe des Magnetfeldes ab. Abb.11 zeigt dies eindrücklich. Man sieht, dass Nullstellen gerade bei Magnetfeldern ganzzahliger Vielfache des Flussquants auftreten. Das Schaubild hat starke Ähnlichkeit mit einem Interferenzmuster der optischen Beugung am Einzelspalt bei Wellen.

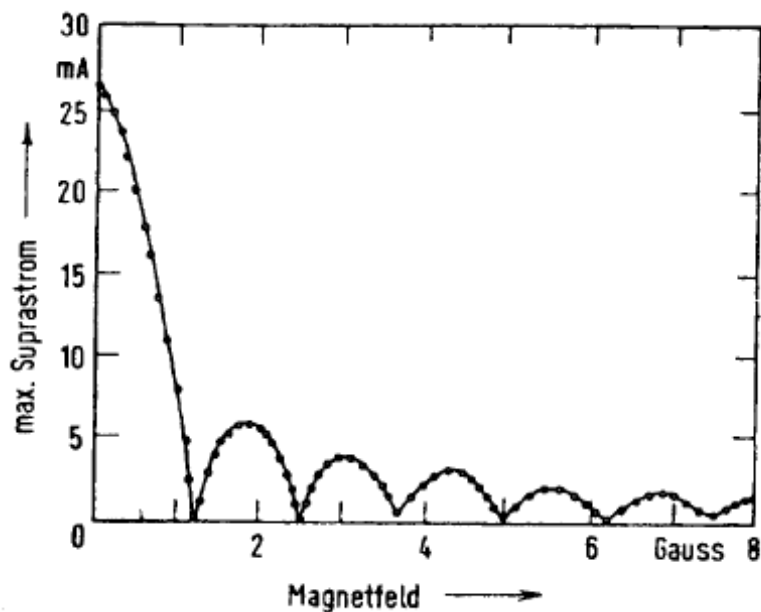


Abb.11: Modulation des Josephson - Gleichstromes durch ein externes Magnetfeld, aus Ref. [22] Abb.10

2.2. Das SQUID

Ein SQUID ist ein Superconducting Quantum Interference Device (Supraleitendes Quanteninterferometer). Das hier verwendete SQUID ist aus YBCO hergestellt. Im vorigen Kapitel wurde gezeigt, dass der Widerstand eines Josephson-Kontaktes das Strom-Spannungs-Verhältnis bestimmt. Damit man ein Magnetfeld messen kann, bedarf es noch einer Elektronik, die die auftretenden Effekte messen kann. Hier gibt es zwei unterschiedliche Arten von SQUID's (Abb.12) ein DC- bzw. ein RF-SQUID. DC bedeutet „direct current“, das SQUID auch Gleichstrom-SQUID, und RF heißt „radio frequency“, das SQUID auch Hochfrequenz-SQUID. Das DC-SQUID wird hier nur am Rande behandelt, da es im Praktikum nicht angewendet wird.

2.2.1. Das Prinzip

Im supraleitenden Zustand eines SQUID's ist jeder magnetische Fluss in der Schleife eingefangen. Der Suprastrom rundet den Fluss auf ein ganzzahliges Fluxoid Φ_0 auf oder ab. Es gilt folgendes:

$$\Phi_{\text{innen,ges}} = n \cdot \Phi_0 = \Phi_{\text{ext}} + I_{\text{suprastrom}} \cdot L \quad L \equiv \text{Induktivität des Ringes} \quad (2.21)$$

mit $\Phi_0 = 2 \cdot 10^{-15} \text{ Vs} = 2 \cdot 10^{-7} \text{ G/cm}^2$

Durch eine Änderung des äußeren Magnetfeldes um zum Beispiel 1nT (nT = Nanotesla), muss schon ein Abschirmstrom von $1,3\mu\text{A}$ fließen, falls eine typische Ringfläche von $0,2 \text{ mm}^2$ angenommen wird. Zum Vergleich: das Erdmagnetfeld beträgt ca. $1 \text{ G (Gauss)} = 100 \mu\text{T} = 100000 \text{ nT}$. Man kann also sehr geringe Felder mit solch einem SQUID messen.

Durch die externe Feldänderung Φ_{ext} , wird der Supraleiter durch die Änderung $I_{\text{Suprastrom}}$ diese Änderung ausgleichen. Ein Supraleiter versucht immer den Gesamtfluss konstant zu halten, nun kommt der Josephson-Kontakt ins Spiel. Ein typischer Kontakt besitzt eine Querschnittsfläche von $0,2 \cdot 3 \mu\text{m}^2$. Wir erhalten also durch einen Strom von 1 mA bereits eine Stromdichte $j = 1,7 \cdot 10^5 \text{ A/cm}^2$.

Genau genommen ist bei unserem YBCO-SQUID die Schwachstelle nicht der Brückenquerschnitt, sondern es sind vier Korngrenzen innerhalb der Brücke. Diese sind die „weak links“, da sie nur einen maximalen Suprastrom von ca. 10 μA tragen können.

Der maximale Strom wird soweit begrenzt, dass nur ein 1 Flussquant abgeschirmt werden kann. Wenn das äußere Magnetfeld um mehr als ein Flussquant geändert werden würde, bricht die Supraleitung, da die kritische Stromdichte überschritten wurde, zusammen. Nun kann an dieser Stelle ein Flussquant in den Ring eindringen bzw. ihn wieder verlassen. Das Verlassen ist möglich, wenn das externe Feld kleiner wird. Bei diesem Übergang erfolgt Energiedissipation, welche daher rührt, dass der Suprastrom zur Erzeugung Joulescher Wärme verbraucht und die Brücke resistiv wird.

Das RF-SQUID hat nur eine Schwachstelle und ist induktiv gekoppelt (s.u.). Die Schwachstellen sind bei allen SQUID's hochempfindlich und können durch eine statische Entladung sehr leicht zerstört werden.

2.2.2. Funktionsweise eines RF-SQUID:

Das RF-SQUID steht nicht wie das DC-SQUID in direktem Kontakt zur Elektronik, sondern ist durch magnetische Induktion an ein hochfrequentes Wechselfeld gekoppelt. Das Wechselfeld entsteht mit Hilfe eines elektrischen Schwingkreises, der aus einer kupfernen Leiterspule, zu der ein Kondensator parallel geschaltet ist, gebildet wird. Die Resonanzfrequenz liegt dabei zwischen 100 MHz und bis zu 1 GHz. Durch diesen Schwingkreis kann man Wechselfelder in die SQUID-Schleife einkoppeln. Durch diesen Fluss entsteht im SQUID-Ring ein Wechselstrom, der je nach Größe den Josephson-Kontakt periodisch vom supraleitenden Zustand in den normalleitenden Zustand umschaltet. Der Josephson Kontakt verbraucht im normalleitenden Zustand Energie, die er aus dem Schwingkreis wieder erhält. Dadurch wird der Schwingkreis gedämpft und die Spannung nimmt ab. Diese Spannung misst nun die Elektronik, welche wesentlich zur Bestimmung des Messsignals ist. Das bedeutet, dass vom magnetischen Fluss durch das SQUID die Dämpfung des Schwingkreises und daher auch die Spannung abhängt. Wenn also von außen ein externes Magnetfeld anliegt, bewirkt dies eine Änderung des Flusses durch den Ring bzw. eine Änderung der Spannung im Schwingkreis. So kann man die Flußänderung bzw. die Änderung des Magnetfelds messen.

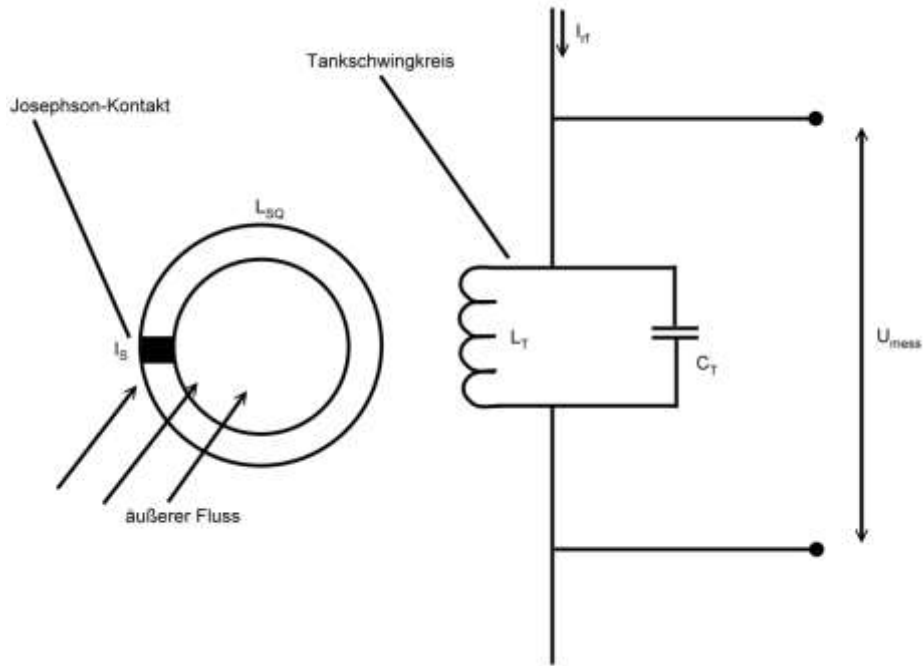


Abb.14: Prinzipschaltung eines rf-SQUID

Wie wir in Kapitel 2.1.2. gesehen haben, fordert die Flussquantisierungsbedingung in einem supraleitenden Ring eine ganzzahlige Anzahl von Flussquanten. Sollte das externe Magnetfeld einen Fehlbetrag erzeugen, wird dieser augenblicklich durch einen Suprastrom I_S im Ring ausgeglichen und muss auch durch den weak link des SQUID's fließen. Mit Hilfe eines Wechselstroms wird der Schwingkreis angeregt. Dabei trägt er die Amplitude I_{rf} und eine Resonanzfrequenz von 100 MHz bis 1 GHz. Dadurch wird im SQUID durch die Koppelinduktivität M_G des Schwingkreises ein magnetischer Wechselfluss erzeugt.

$$\Phi_{rf} = M_G \cdot Q \cdot I_{rf} \cdot \sin(\omega_0 \cdot t) \quad (2.22)$$

mit

$$Q = \frac{R_T}{\omega_0 \cdot L_T} \quad (2.23)$$

$$M_G = k \cdot \sqrt{L_{SQ} \cdot L_T} \quad (2.24)$$

Dieser überlagert sich dem externen Fluss. Q stellt die Güte des Gesamtsystems dar. M_G ist die Gegeninduktivität des Schwingkreises und direkt abhängig von der Geometrie der durch das SQUID eingeschlossenen Fläche, der Spule und der relativen Positionierung. L_{SQ} und L_T sind die Induktivitäten des SQUID's bzw. des Schwingkreises, der auch Tankschwingkreis genannt wird, k ist eine Koppelkonstante, R_T ist der elektrische Widerstand des Tankschwingkreises und ω_0 seine Resonanzfrequenz. Gemessen wird die Schwingkreisspannung U_{mess} .

Das SQUID ist so dimensioniert, dass es ca. ein Flussquant Φ_0 im Ring kompensieren kann, bevor der kritische Strom I_C erreicht ist.

Für den Fall $\Phi_{\text{ext}} = n\Phi_0$, befinden sich n Flussquanten im supraleitenden Ring, was durch das äußere Feld bedingt wird. Wenn der Tankkreis ein Wechselfeld erzeugt, so muss das SQUID nur diese Wechselfeld kompensieren. Durch den Wechselstrom Φ_{rf} wird der Suprastrom I_s induziert. Solange dieser nicht den kritischen Strom übertrifft, steigt die Spannungsamplitude U_{mess} der Koppelspule linear mit dem Strom I_{rf} an (Abb.15 0 – B). Dies geschieht, da der Schwingkreis durch den vollständig supraleitenden Ring (SQUID) nicht gedämpft wird. Erreicht der Strom im SQUID I_c (kritischer Strom) und damit auch im SQUID den maximalen Fluss Φ_c , so führt dies bei der Spannungsamplitude im Tankkreis auch zu einem Limit. Diese wird wie folgt dargestellt:

$$U_c = \frac{\omega_0 \cdot L_T}{M} \cdot \Phi_c$$

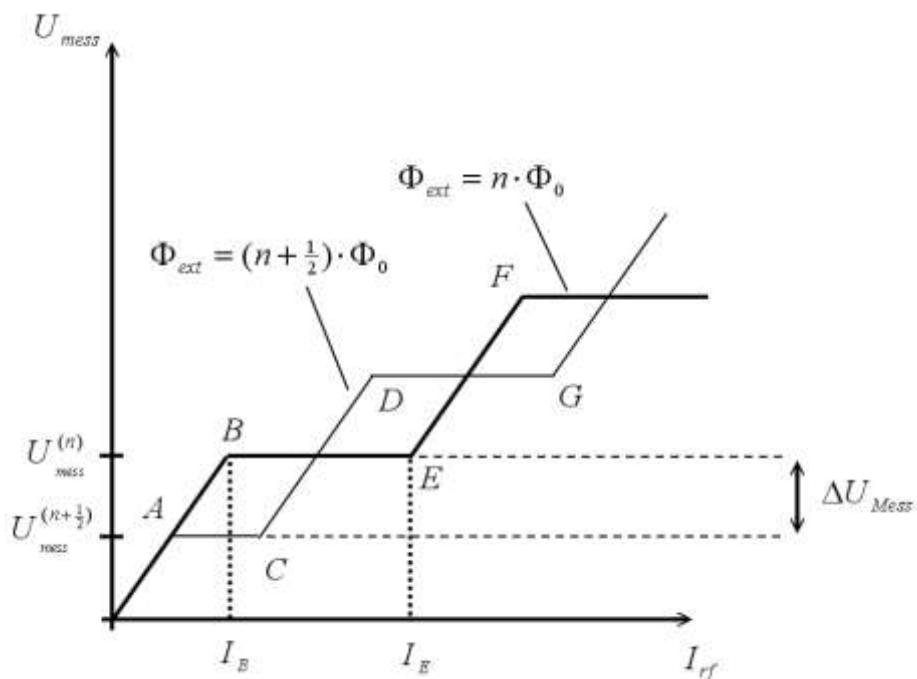


Abb.15: Abhängigkeit der über den Tankschwingkreis abfallenden Spannung \hat{U}_{mess} vom Speisestrom I_{rf} für die magnetischen Flüsse $\Phi_{\text{ext}} = n\Phi_0$ und $\Phi_{\text{ext}} = (n+1/2)\Phi_0$.

IM SQUID läuft nun ein Sprung von dem Zustand n in den Zustand $(n+1)$ oder $(n-1)$ ab, da der Abschirmstrom nun I_c erreicht. Der Supraleiter ist lokal normalleitend, so tritt Dissipation auf. Dem Schwingkreis wird Energie entzogen, was zu einer sofortigen drastischen Abnahme der Amplitude im Tankkreis führt. Nun muss die Energie mehrere Perioden lang vom externen Oszillator geliefert werden und zwar solange bis sich die Spannung wieder auf U_c erholt hat. Durch die scharfe Einsatzschwelle des Dissipationsprozesses wird die gemittelte Amplitude U_{mess} begrenzt. D.h. sie steigt für einen weiteren Bereich von I_{rf} nicht weiter an (Abb.15 B). Durch die Erhöhung von I_{rf} finden häufiger Sprünge statt, so dass nur der mittlere Energieentzug aus dem Tankschwingkreis weiter wächst. Mit anderen Worten, die energiedissipierenden hysteretischen Flusssprünge folgen immer schneller hintereinander. Die mittlere abfallende Spannung U_{mess} des Tankschwingkreises bleibt jedoch konstant. Es entsteht ein Plateau (Abb.15 B – E). Wird der Pumpstrom so groß, dass mit jeder Hochfrequenzperiode ein Sprung induziert wird, ist das „Ende“ erreicht. Der Pumpstrom erreicht I_E . Erhöht man den

Strom I_{rf} weiter und ist $I_S < 2I_C$, bleibt zunächst die hohe konstante Dissipation erhalten, und die Spannung U_{mess} kann nun wieder linear ansteigen (Abb. 15 E – F). Dies passiert nun solange, bis sogar zwei Flussquanten zur Dissipation beitragen, dann bildet sich analog am Plateau F das nächste Plateau aus. Damit ist die Betrachtung von $\Phi_{ext} = n\Phi_0$ abgeschlossen.

Falls nun $\Phi_{ext} = (n+1/2)\Phi_0$ ist, benötigt man einen maximalen Abschirmstrom zur Einhaltung der Flussquantisierungsbedingung. Weil hier schon ein Abschirmstrom I_S für die Flussdifferenz $\Delta\Phi = \Phi_{ext} - \Phi_i = \frac{\Phi_0}{2}$ auftritt, ist es logisch, dass der kritische Strom I_C im Josephson-Kontakt schon bei niedrigerem Pumpstrom erreicht wird. So kann sich schon früher ein Plateau (Abb. 15 A – C) ausbilden, was auch bei $\Phi_{ext} = (n + \frac{1}{2}) \cdot \Phi_0$ passiert. Für die abfallende Spannung im Tankschwingkreis gilt nun:

$$U_{Mess}^{(n+\frac{1}{2})} = \frac{\omega_0 \cdot L_T}{M} \cdot (\Phi_C - \frac{1}{2} \cdot \Phi_0) \quad (2.26)$$

Der weitere Vorgang läuft analog zu $\Phi_{ext} = n \cdot \Phi_0$.

Jetzt kennen wir für beide Extremfälle des Abschirmstromes den Verlauf der Tankreisamplitude. Bei allen anderen Zwischenwerten des externen Flusses sind Abschirmströme nötig, die zwischen diesen Extremfällen liegen. Dies ist von sehr großer Bedeutung. Ist die Erregerstromstärke I_{rf} knapp oberhalb von I_B eingestellt, bewegt sich nämlich die Tankschwingkreisamplitude der mittleren Spannung zwischen den Werten $U_{mess}^{(n)}$ und $U_{mess}^{(n+1/2)}$, wobei U_B abhängig vom externen Fluss ist.

Durch diesen Zusammenhang wird die Sensorcharakteristik des SQUID beschrieben, die dazugehörige $\Phi(U)$ -Transfer-Funktion ist in Abb. 16 dargestellt. Natürlich hängt die Form der Transferfunktion mit den elektrotechnischen Details des Sensors wie auch der rf-Anordnung zusammen, aber sie ist in jedem Falle Φ_0 -periodisch.

Man erhält also ein Signal zwischen den Werten $\Phi_{ext} = n \cdot \Phi_0$ und $\Phi_{ext} = (n + \frac{1}{2}) \cdot \Phi_0$, entsprechend der maximalen Flussänderung von $\Phi_0/2$, genau dann, wenn man den Pumpstrom konstant auf einen Wert nahe I_B einstellt und der externe Fluss ansteigt. Hier ergibt sich dann für die Spannungsamplitude ΔU_{mess} :

$$\Delta U_{mess} = \hat{U}_{mess}^{(n)} - \hat{U}_{mess}^{(n+\frac{1}{2})} = \frac{\omega_0 \cdot L_T \cdot \Phi_0}{2 \cdot M_G} \quad (2.27)$$

Damit man mit einem SQUID sehr kleine Flussänderungen messen kann, muss die Spannungsamplitude so groß wie möglich sein. Dies passiert, wenn das SQUID im Bereich des ersten Plateaus (bei B und C in Abb. 15) betrieben wird.

Mit solch einem Aufbau können wir ein SQUID zum Messen einsetzen. Damit können Magnetfeldänderungen von bis zu maximal $1/2\Phi_0$ verfolgt werden. Stärkere Feldänderungen ergeben aufgrund der Periodizität der Kennlinie mehrdeutige Spannungssignale. Wie oben schon des öfteren erwähnt, haben wir eine effektive Sensorfläche von $0,2\text{mm}^2$, bei der ein Fluss von $\Phi/2$ eine Feldänderung von $5 \cdot 10^{-5}$ Gauss entspricht. Für realistische Anwendungen ist dieser Bereich viel zu klein, da man Feldänderungen messen will, die 4 bis 6 Größenordnungen

stärker sind. Jedoch will man auch nicht die Nachweisbarkeit des SQUID's dabei verschlechtern.

Daher muss man externe Feldänderungen mit Hilfe einer Spule ausgleichen, so dass das SQUID nur noch als Nulldetektor arbeitet. Dazu sucht man sich die steilste Stelle der $\Phi(U)$ -Kennlinie und gleicht durch eine elektronische Gegenkopplung die externen Feldänderungen aus. Der Gegenkopplungs-Gleichstrom ist dabei direkt proportional zur externen Feldänderung. Die Empfindlichkeit des SQUID Sensors ist entscheidend für die Signalauflösung. Es bietet sich an, den Gleichstrom auch in die Tankkreisspule einzuspeisen.

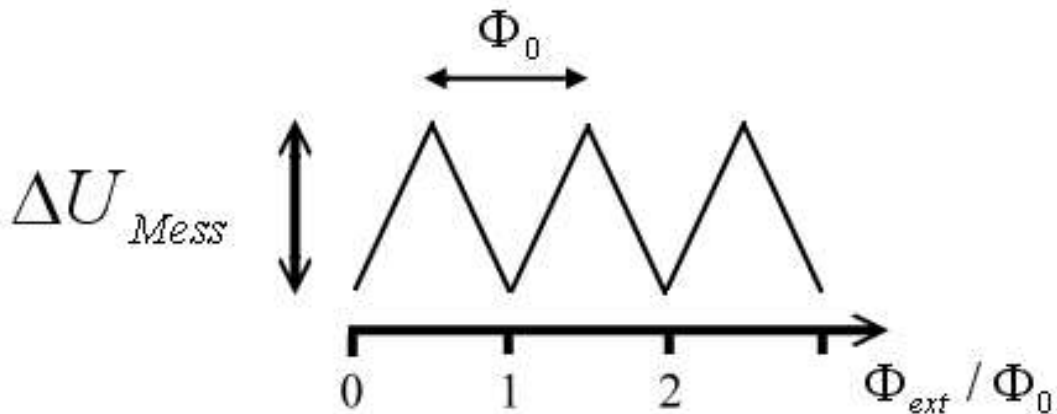


Abb.16: $\Phi(U)$ - Transferfunktion eines rf-SQUID.

2.3. Magnetismus

2.3.1. Grundbegriffe

Für die magnetischen Eigenschaften von Festkörpern sind hauptsächlich die Spin- und Bahnmomente der Elektronen verantwortlich. Auf der einen Seite ändern Magnetfelder die Materialeigenschaften, auf der anderen Seite wird auch durch das magnetisierte Material die magnetische Flussdichte geändert, was man beispielsweise mit einem SQUID messen kann.

Das Magnetfeld H und die magnetische Flussdichte B hängen im Vakuum über die magnetische Feldkonstante zusammen. Es gilt Folgendes (dabei werden nur die Beträge betrachtet):

$$B = \mu_0 \cdot H, \text{ wobei } \mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \frac{Vs}{Am} \quad (2.28)$$

Zusätzlich kann Materie magnetisiert werden, die entstehenden Abweichungen werden durch die Permeabilität μ oder die magnetische Suszeptibilität χ ausgedrückt.

$$B = \mu_0 \cdot (H + M) = \mu\mu_0 H = \mu_0 (1 + \chi_m) H \quad (2.29)$$

M ist hierbei die Magnetisierung. Sie ist nichts anderes als die Dichte magnetischer Momente m und wie folgt definiert:

$$M = m \cdot \frac{N}{V} \quad (2.30)$$

Um die weiteren Betrachtungen zweckmäßiger zu beleuchten, nehmen wir anstelle von H eine äußere Induktion $B_0 = \mu_0 H$ zur Hilfe. Diese Größe B_0 nennen wir nun einfach „Magnetfeld“. Zwischen B_0 und M besteht für schwache Felder $B_0 \rightarrow 0$ ein linearer Zusammenhang.

$$\mu_0 \cdot M = \chi \cdot B_0 \quad (2.31)$$

Ist χ kleiner null, also negativ, so ist die induzierte magnetische Polarisierung dem angelegten Feld entgegengesetzt orientiert. Dieses Verhalten nennt man diamagnetisch. Paramagnetisch nennt man das umgekehrte Verhalten, bei dem χ positiv ist. Dazu gibt es noch verschiedene Arten der langreichweitigen magnetischen Ordnung, wie den Ferromagnetismus und den Antiferromagnetismus.

Man kann noch die relative Suszeptibilität χ_r einführen, die aus

$$\chi_r = \frac{\chi}{\mu_0} \quad (2.32)$$

berechnet wird. Diese relative Suszeptibilität ist bei diamagnetischen Materialien klein, was bedeutet sie liegt im Bereich von 10^{-5} Größenordnungen. Auch ist auffällig, dass sie nicht von der Temperatur und vom Feld H abhängt, wie das bei anderen magnetischen Substanzen der Fall ist. Als Beispiele für diamagnetische Materialien seien genannt: Atome und Ionen mit abgeschlossenen Elektronenschalen, z.B.: He, Ne, Ar, Kr, Xe, Cl^- , Br^- , Na^+ , K^+ , O^{2-} , S^{2-} , Mg^{2+} , Ca^{2+} , usw. Moleküle und Molekül-Ionen in solchen Elektronen-Zuständen, welche spektroskopisch Singulett-Charakter aufweisen, dies bedeutet ihre Spektren weisen bei Anlegung eines Magnetfeldes keine Aufspaltung auf, z.B.: NaCl, KCl, HCl, H_2O , H_2S , NH_3 , usw. sowie auch viele organische Substanzen. Diamagnetismus tritt also bei allen Substanzformen auf, wird aber bei vielen Materialklassen von den anderen Magnetismusformen überlagert. Von diamagnetischen Materialien spricht man daher nur, wenn keine weiteren magnetischen Formen auftreten.

Die Suszeptibilität der Atome setzt sich im Allgemeinen immer aus einem dia- und paramagnetischem Anteil zusammen. Der paramagnetische Anteil beruht auf der Ausrichtung schon vorhandener magnetischer Momente. Diese sind durch den Bahndrehimpuls und den Spin der Elektronen erzeugt worden. So gilt für das magnetische Dipolmoment infolge von Elektronen Bahndrehimpulsen:

$$m = -\frac{e}{2m} \sum_i r_i \times p_i = -\mu_B \cdot L \quad (2.33)$$

mit dem Bohrschen Magneton $\mu_B = \frac{e\hbar}{2m} = 9,2741 \cdot 10^{-24} \frac{\text{J}}{\text{T}}$. Zusätzlich zu diesem Bahnmoment bringen Elektronen auch noch ein Spinnmoment mit, welches sich wie folgt zusammensetzt:

$$m = -\mu_B g_0 S \quad (2.34)$$

Wobei $g_0 = 2,0023$ der elektronische g-Faktor. Errechnet man den Erwartungswert der Operatoren L und S in den Gleichungen (2.33) und (2.34), so erhält man, dass der Wert nur für

nichtabgeschlossene Schalen nicht verschwindet. Sind die Schalen abgeschlossen, so ist die Summe aus Bahndrehimpulsen und Spinquantenzahlen null. In einem Festkörper haben die Übergangsmetalle und die Seltenen Erden nichtabgeschlossene Schalen.

Beim Paramagnetismus sind bereits atomare Dipolmomente vorhanden, d.h. Gesamtspin $\neq 0$. Die Dipolmomente können sich im Feld ausrichten, durch Drehen bzw. Ordnen der Spins des Materials wird das von außen angelegte Feld verstärkt. χ ist deshalb positiv. χ ist hier abhängig von H und der Temperatur T . χ liegt im Größenbereich von 10^{-4} bis 10^{-3} . Es gilt das Curie-Weißsche Gesetz,

$$\chi_m(T) = \frac{C}{T - T_C} \quad (2.35)$$

C bezeichnet man als Curie-Konstante. T_C ist hier die Curie-Temperatur. Beispiele für paramagnetische Substanzen sind Chrom, Platin, flüssiger Sauerstoff, Aluminium, Natrium und Kupferchlorid.

Beim kollektiven Magnetismus, zu dem der Ferromagnetismus, Antiferromagnetismus und der Ferrimagnetismus zählen, ist die Suszeptibilität meist eine sehr komplizierte Funktion des Feldes und der Temperatur. Voraussetzung ist wie beim Paramagnetismus das Vorkommen von permanenten magnetischen Dipolen. Diese richten sich unterhalb einer kritischen Temperatur spontan, d.h. ohne äußeres Feld, aus. Dies ist nur mit Hilfe der Austausch-Wechselwirkung quantenmechanisch zu erklären. Eine wesentliche Konsequenz aus der Berücksichtigung der Austausch-Wechselwirkung ist die Ausbildung einer langreichweitigen magnetischen Ordnung.

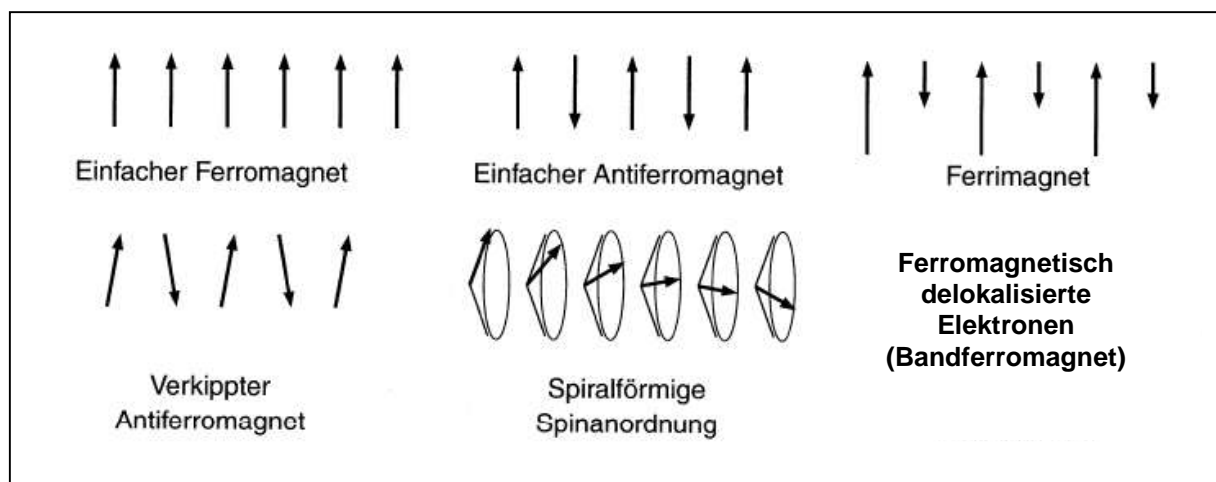


Abb.17: Ordnungszustände von lokalisierten atomaren Momenten bzw. delokalisierten Momenten in Band-Ferromagneten, aus Ref. [3], Abb.15.1

Beim Ferromagnetismus sind beim absoluten Nullpunkt (0 Kelvin) alle Momente parallel ausgerichtet. Wird T größer, nimmt die Unordnung zu, wenn T_C überschritten ist, verhält sich der Ferromagnet wie ein normaler Paramagnet. Bei einem Ferromagneten ist die große Suszeptibilität und die starke Abhängigkeit von der Vorbehandlung des Materials sehr typisch.

Dies führt zu Hystereseeffekten in der Magnetisierungskurve $M(H)$. Eine solche Hystereseschleife zeigt Abb.18. Die entscheidenden Größen hierbei sind:

M_S : Sättigungsmagnetisierung. M_S entspricht der maximalen Magnetisierung eines Materials. Sie ist temperaturabhängig und verschwindet für $T > T_C$. Dies bedeutet, die Hystereseschleife wird bei wachsender Temperatur immer kleiner.

H_C : Koerzitivfeldstärke. Durch diese Größe können hart- bzw. weichmagnetische Materialien unterschieden werden. Als Grenze wird typischerweise 1 A/m angegeben. Materialien mit $H_C \ll 1 \text{ A/m}$ gelten als magnetisch weich (leicht umzumagnetisieren) und bei $H_C > 1 \text{ A/m}$ als hartmagnetisch.

M_R : Remanenz. Sie ist die Größe der verbleibenden Magnetisierung, wenn das äußere Feld wieder abgeschaltet wird (deshalb auch bei $H = 0$ auf der M Achse anzutreffen). Diese remanente Magnetisierung wird im Praktikum mit dem SQUID gemessen.

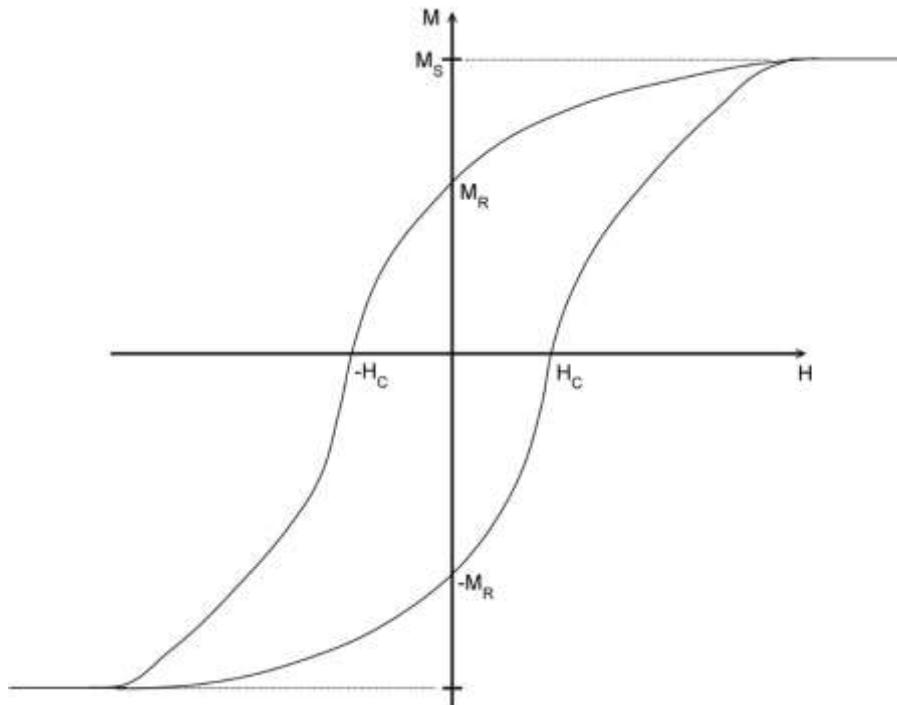


Abb.18: Hysteresekurve eines Ferromagnetikums mit Koerzitivfeld H_C , Sättigungsmagnetisierung M_S , remanenter Magnetisierung M_R .

Ein magnetisches Material zerfällt in kleine mikroskopische Bereiche, sogenannte magnetische Domänen oder auch Weißschen Bezirke, die jeweils spontan magnetisiert sind. Damit die Gesamtenergie möglichst klein bleibt, weisen die einzelnen Bereiche unterschiedliche Richtungen der Magnetisierung auf. Ein äußeres Feld schafft es, diese bis zur Parallelstellung wieder auszurichten.

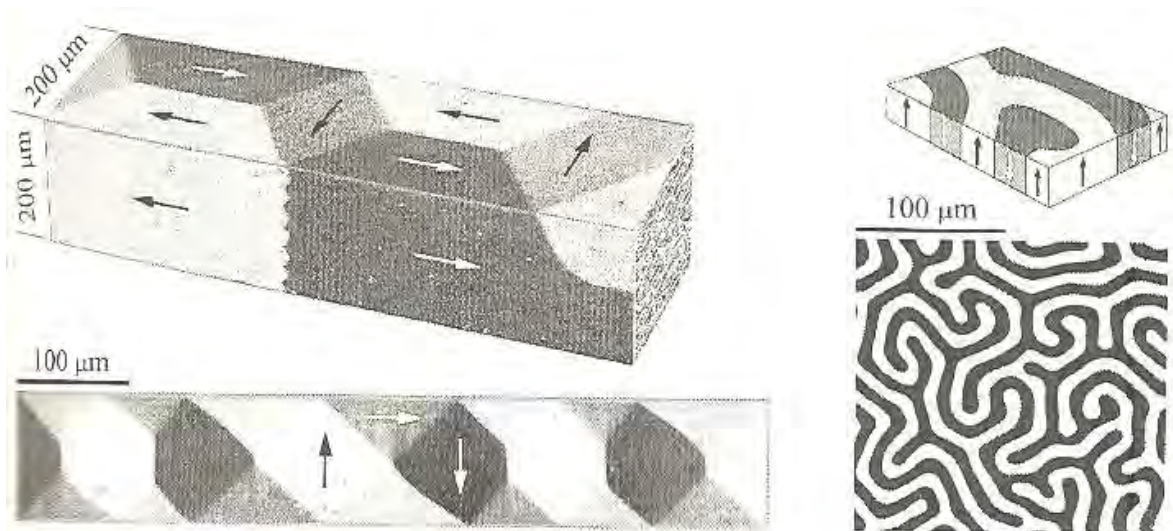


Abb.19: Magnetische Domänenstrukturen, aus Ref. [6] Fig 1.1

2.3.2. Magnetische Ordnung in Selten-Erdmetallen

Die zu messenden Proben (Tb, Gd und Dy) in diesem Versuch gehören zu der Gruppe der Lanthanide oder auch Selten-Erd-Metalle genannt. Die Seltenen-Erd-Metalle sind sich in ihren chemischen Eigenschaften sehr ähnlich. Daher konnte man diese auch erst sehr lange nach der Entdeckung in hoher Reinheit darstellen. Ihr magnetisches Verhalten ist beeindruckend, da sie eine systematische Vielfalt und eine überschaubare Komplexität ihrer magnetischen Eigenschaften zeigen. Das unterschiedliche magnetische Verhalten der jeweiligen Ionensorte ergibt sich aus der Anzahl der 4f-Elektronen. Diese sind im Atom/Ion auf der sehr weit im Innern liegenden Schale mit einem Radius von ca. 0,3 Å zusammengedrängt.

Durch die gute Abschirmung dieser Momente durch die äußeren Elektronen können die 4f-Momente als lokalisiert am Atomort betrachtet werden. Die langreichweitige Ordnung dieser Momente wird vermittelt durch die sogenannte RKKY-Austauschwechselwirkung. Im Bild der indirekten RKKY-Austauschwechselwirkung zwischen lokalisierten Elektronen wird die magnetische Wechselwirkung durch die Leitungselektronen vermittelt. Hierfür gibt der Heisenbergsche Hamilton Operator für die Austauschwechselwirkung zwischen zwei Elektronen die Grundlage. Für das folgende Modell wird eine primitive Struktur von Atomen mit je einem ungepaarten Elektron mit Bahndrehimpuls Null zugrunde gelegt. Durch dieses Modell eines Spingitters, werden die wesentlichen Eigenschaften bzw. Konsequenzen der Austauschkopplung gezeigt. Durch ein zusätzliches äußeres Magnetfeld bekommt man den Hamilton Operator wie folgt:

$$H = -\sum_i \sum_{\delta} J_{i\delta} S_i \cdot S_{i\delta} - g\mu_B B_0 \sum_i S_i \quad (2.36)$$

i läuft hier über alle Atome und δ über alle Nachbarn, mit welchen Austauschwechselwirkung besteht. Da der Heisenberg-Operator nicht linear ist, kann man Lösungen nur in speziellen Fällen oder durch Einführung einer linearisierenden Näherung angeben. Die Molekularfeldnäherung ist eine solche Näherung.

In dieser Näherung ersetzt man das Operatorprodukt in (2.42) durch das Produkt des Spinoperators S_i mit dem Erwartungswert des Spinoperators der Nachbarn $\langle S_{i\delta} \rangle$. Daraus folgt

$$H = -\sum_i S_i \cdot \left(\sum_{\delta} J_{i\delta} \langle S_{i\delta} \rangle + g\mu_B B_0 \right) \quad (2.37)$$

Nun entsteht der Charakter eines Inneren Feldes mit:

$$B_{MF} = \frac{1}{g\mu_B} \sum_{\delta} J_{i\delta} \langle S_{i\delta} \rangle \quad (2.38)$$

Bei homogenen Systemen (ohne Oberfläche) ist $\langle S_{i\delta} \rangle$ für alle Atome gleich. Durch die Magnetisierung lässt sich der Mittelwert $\langle S_{i\delta} \rangle = \langle S \rangle$ ausdrücken.

$$M = g\mu_B \cdot \frac{N}{V} \cdot \langle S \rangle \quad (2.39)$$

N/V : Anzahl der Atome pro Volumen. Daraus folgt für das Molekularfeld:

$$B_{MF} = \frac{V}{Ng^2\mu_B^2} \cdot \nu \cdot J \cdot M \quad (2.40)$$

Dabei wird sich noch auf die Austauschkopplung zwischen den ν nächsten Nachbarn beschränkt. Jetzt ist der Hamilton Operator der Molekularfeldnäherung (2.37) mathematisch identisch mit dem Hamilton Operator von N unabhängigen Spins in einem effektiven Magnetfeld $B_{eff} = B_{MF} + B_{ext}$. Die Energieeigenwerte für jeden Elektronenspin ergeben sich zu:

$$E = \pm \frac{1}{2} g\mu_B B_{eff} \quad (2.41)$$

Die Anzahl der Elektronen in den beiden Zuständen werden mit dem Spin parallel bzw. antiparallel zum B-Feld $N\uparrow$ und $N\downarrow$ bezeichnet. Im thermischen Gleichgewicht gilt

$$\frac{N\downarrow}{N\uparrow} = e^{\frac{-g\mu_B B_{eff}}{k_B T}} \quad (2.42)$$

und daraus folgt für die Magnetisierung

$$M = \frac{1}{2} g\mu_B \frac{N\uparrow - N\downarrow}{V} = \frac{1}{2} g\mu_B \frac{N}{V} \tanh\left(\frac{1}{2} g\mu_B \cdot \frac{B_{eff}}{k_B T}\right) \quad (2.43)$$

(2.40) und diese Gleichung hat Lösungen mit von Null verschiedener Magnetisierung auch ohne äußeres Magnetfeld, wenn $J > 0$ bei ferromagnetischer Kopplung der Elektronenspins ist.

$$M_s = \frac{N}{V} \frac{1}{2} g\mu_B \quad \text{und} \quad (2.44)$$

$$T_C = \frac{1}{4} \nu \cdot \frac{J}{k_B} \quad (2.45)$$

und ohne äußeres Magnetfeld erhalten wir aus (2.40) und (2.43)

$$\frac{M(T)}{M_s} = \tanh\left(\frac{T_C}{T} \cdot \frac{M}{M_s}\right) \quad (2.46)$$

Dies bedeutet also, dass der Temperaturverlauf der Magnetisierung in der Molekularfeldnäherung im Bandmodell [siehe Ibach und Lüth „Festkörperphysik“ Kapitel 8.5] und im Modell lokalisierter Elektronen gleich ist. Daraus ergeben sich für $T \rightarrow 0$ und $T \approx T_C$

$$M(T) = M_s \left(1 - 2e^{\frac{-2T_C}{T}}\right), T \ll T_C \quad (2.47)$$

$$\frac{M(T)}{M_s} \approx \sqrt{3} \cdot \left(1 - \frac{T}{T_C}\right)^{\frac{1}{2}}, T \sim T_C. \quad (2.48)$$

Für Temperaturen oberhalb von T_C kann man wiederum das Curie-Weiss-Gesetz herleiten. Mit einem äußeren Feld B_{ext} erhalten wir aus (2.49) mit (2.53)

$$M(T) = \frac{g^2 \mu_B^2 N}{4V k_B} \cdot \frac{1}{T - T_C} \cdot B_{\text{ext}} \quad (2.49)$$

2.3.3. Das Blochsche $T^{3/2}$ -Gesetz

Bei tiefen Temperaturen sind die niederenergetischen Anregungen in einem Ferromagneten Spinwellen oder „Magnonen“¹. Dazu betrachten wir ein ferromagnetisches Metall mit N Gitteratomen. Wenn die Temperatur T gegen Null geht, befindet sich das System im (ferromagnetischen) Grundzustand, wo es durch die Spinquantenzahl $N \cdot S$ charakterisiert ist. Die Anregung eines Magnons entspricht dem Umkappen eines atomaren Moments mit Spin S . Bei Anregung eines Magnons wird der Gesamtspin eines Systems also um $2S$ herabgesetzt. Bei endlicher Temperatur mit n thermisch angeregten Magnonen beträgt die Spinquantenzahl des gesamten Systems $NS - n$. Die thermische Anregung eines Magnons ist auch bei tiefen Temperaturen möglich, nicht jedoch das Umkappen eines einzigen Moments. Die T -Abhängigkeit der spontanen Magnetisierung erhält man somit aus der Bestimmung der Gesamtzahl der Magnonen, die bei einer vorgegebenen Temperatur angeregt sind:

$$\frac{M_s(0) - M_s(T)}{M_s(0)} = \frac{n}{NS} \quad (2.50)$$

Im thermischen Gleichgewicht ist die Besetzungswahrscheinlichkeit für Magnonen durch die Bose-Einstein-Verteilung $(e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1)^{-1}$ gegeben.

$D(\omega)d\omega$ ist die Zahl der Magnonenzustände im Frequenzintervall $(\omega, \omega + d\omega)$. Die Gesamtzahl der Magnonen ist

$$n = \int \frac{D(\omega)}{e^{\frac{\hbar\omega}{k_B T}} - 1} d\omega \quad (2.51)$$

Die Situation bei sehr tiefen Temperaturen:

→ Anregung nur von Magnonen mit sehr kleinem $k^{(2)}$

⇒ Grenzfall $\hbar\omega = 2JSa^2 \cdot k^2$ der Dispersionsrelation.

¹ Magnonen sind quantisierte Spinwellen

D.h. die Kreisfrequenz ω und damit die Energie $\hbar\omega$ der Magnonen hängt nur vom Betrag des \vec{k} -Vektors ab. Die Zahl der Magnonen im Frequenzintervall $d\omega$ erhält man:

$$D(\omega)d\omega = \frac{V}{\pi^2} \left(\frac{\hbar}{2JSa^2} \right)^{\frac{3}{2}} \sqrt{\omega} d\omega \quad (2.52)$$

Eingesetzt in (2.37) erhält man:

$$n = 0,0587 \frac{V}{a^3} \left(\frac{k_B T}{2JS} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (2.53)$$

Dies nun eingesetzt in (2.36) erhält man:

$$\frac{M_s(0) - M_s(T)}{M_s(0)} = 0,0587 \frac{V}{Na^3} \frac{1}{S} \left(\frac{k_B T}{2JS} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (2.54)$$

V/a^3 ist gleich der Einheitszellen im Kristall. $\Rightarrow s = Na^3/V$ ist die Anzahl der Gitteratome je Einheitszelle ($s = 1$ kubisch einfach Gitter; $s = 2$ (bcc); $s = 4$ (fcc))

Daraus erhält man die gesuchte T Abhängigkeit der Magnetisierung M mit

$$\frac{M_s(0) - M_s(T)}{M_s(0)} = \frac{0,0587}{sS} \left(\frac{k_B T}{2JS} \right)^{\frac{3}{2}} \quad (2.55)$$

das so genannte Blochsche $T^{3/2}$ Gesetz, welches experimentell an vielen Ferromagneten bestätigt wurde.

3. Versuchsaufbau

Bei dem uns vorliegenden SQUID handelt es sich um das „JSQ Duo Sensor SQUID“ der Jülicher SQUID GmbH. Im folgenden Abschnitt wird der Versuchsaufbau beschrieben. Dies zeigt, welche zusätzlichen Geräte, Halterungen, etc. benötigt werden um die Messung bei unserem SQUID durchzuführen und wie und wo diese angeordnet sind. Im ersten Unterkapitel beschäftigen wir uns mit dem Kryostat, in welchem das SQUID eingelassen ist.

3.1. Kryostat

Den Behälter, der doppelwandig und vakuumisoliert ist und in welchen das SQUID eingelassen wird, bezeichnen wir als Kryostat. In diesem befindet sich ein nichtmagnetischer Kunststoffdewar, der mit flüssigem Stickstoff gefüllt wird. Darin wiederum befindet sich ein Zylinder aus Vespel. Vespel ist ein Hochleistungskunststoff, der für den Dauereinsatz bei einer Temperatur von 77 Kelvin (flüssige Stickstoff Temperatur) geeignet ist. In diesen Zylinder ist das SQUID eingelassen.

Um dies alles herum ist ein μ -Metall Zylinder, der zur Abschirmung äußerer Magnetfelder dienen soll. μ -Metall ist ein weichmagnetisches Material mit hoher Permeabilität, welches deshalb sehr gut äußere Magnetfelder abschirmen kann. Dieser μ -Metall Zylinder ist mit einer runden Öffnung versehen, so dass man einen Probenstab bzw. -halter einführen kann. Der Kryostat ist in Abbildung 21 und 22 schematisch dargestellt.

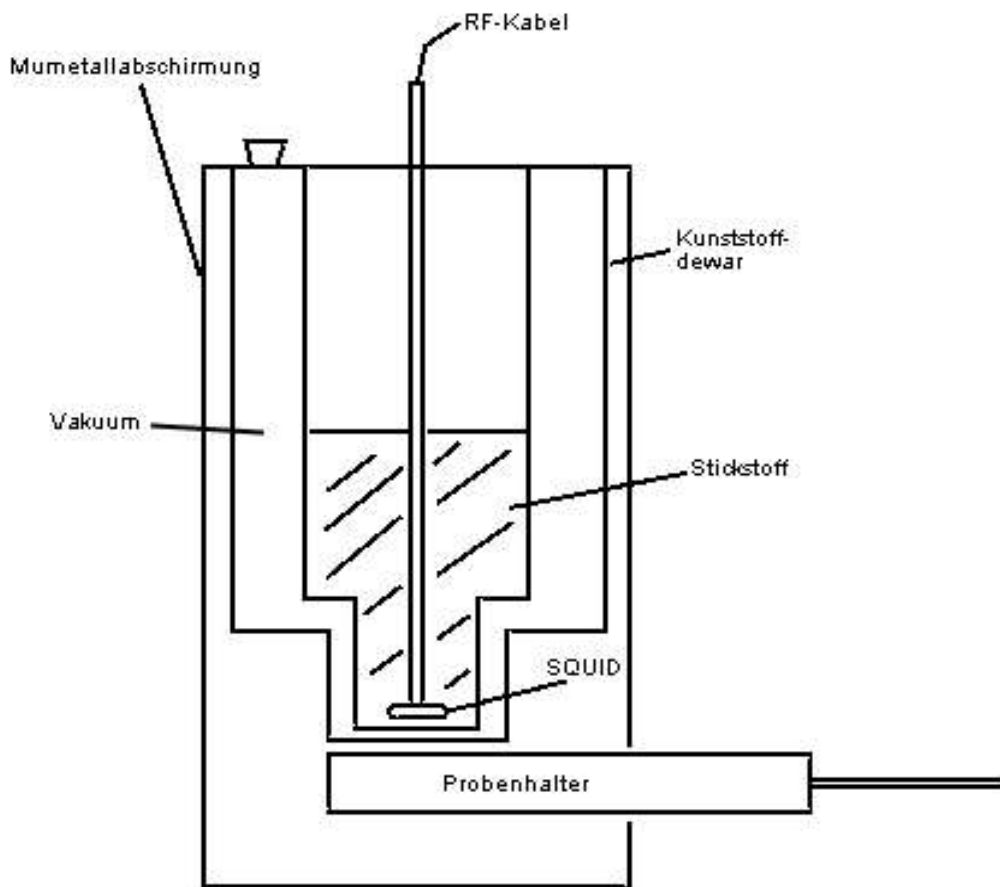


Abb.21: Querschnitt durch den Kryostat mit SQUID-Aufbau.



Abb.22: Der Kryostat in der Ansicht von außen.

3.2. RF-SQUID

Die Funktionsweise eines rf-SQUID's ist in Abschnitt 2.2.2. beschrieben. Ein rf-SQUID ist induktiv mit einem Schwingkreis gekoppelt. Die schematische Anordnung findet man in Abbildung 14. Im Kryostaten befindet sich das SQUID am Ende eines Plastikrohres, wo zwei Sensoren – ein SQUID-Magnetometer und ein –Gradiometer – eingeschlossen in einem Vespel Zylinder sitzen. Über ein abgeschirmtes RF-Kabel sind die Sensoren mit einer bei Radiofrequenz arbeitenden SQUID-Elektronik verbunden, die das SQUID-Signal in eine Gleichspannung umwandelt. Diese verhält sich proportional zum magnetischen Fluss (bzw. zur Magnetisierung) der den SQUID durchdringt. Mit Hilfe eines Oszilloskops lässt sich das Signal darstellen und danach über eine Datenerfassung im Computer verarbeiten. Dies wurde mit dem Programm LabView realisiert. Eine schematische Darstellung der elektrischen Verbindungen zum Betrieb des SQUID's sieht man in Abbildung 24. Man kann mit dem SQUID sowohl Magnetometer- als auch Gradiometermessungen durchführen. Dazu wählt man im JSQ Duo Sensor Computerprogramm die Einstellung Magnetometer bzw. Gradiometer (siehe Kapitel 4.2.)

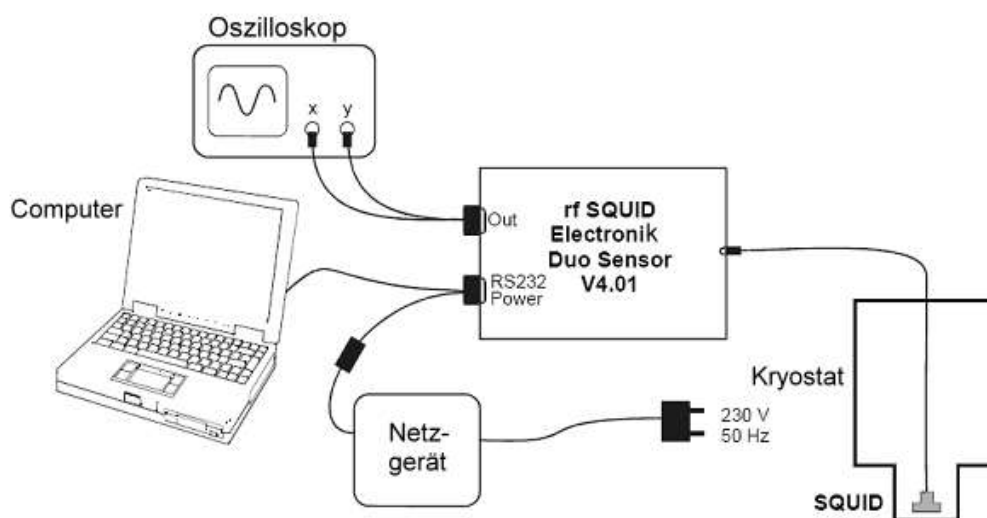


Abb.23: Darstellung der elektrischen Verbindungen zum Betrieb des SQUID [aus JSQ-Tutorial für Benutzer von rf-SQUID's der Jülicher SQUID GmbH].



Abb.24: Darstellung des Versuchsaufbaus.

3.3. Probenhalter

Der rechteckige Probenhalter ist aus Kupfer (Cu) hergestellt. Er ist innen mit Zu- und Ableitung für Flüssigstickstoff versehen. An seinem vorderen Ende befindet sich ein kleiner Teller auf den die Probe mit etwas Vakuumsfett gesetzt wird. Unter diesem Teller befindet sich eine Spule mit einer Windung zur Kalibrierung des Magnetometers. Jedoch wurde bei Messungen festgestellt, dass es sinnvoller ist, eine Kalibrierungsspule auf einen extra dem Probenwürfel angepassten Zylinder zu montieren und mit diesem die Kalibrierung durchzuführen. Der Zylinder mit der Spule kann per Stecker-Verbindung an zwei Zuleitungen angeschlossen werden. Durch Anlegen eines Stromes kann das Magnetfeld der Kalibrierungsspule zur Kalibrierung variiert werden. Auf der Unterseite befindet sich ein Platin-Widerstand (Pt 1000), welcher als Thermometer dient. Der elektrische Widerstand des Plättchens verhält sich im Temperaturbereich 77-300K proportional zur Temperatur. Man erhält also für diesen Bereich einen linearen Verlauf einer $R(T)$ -Kurve, die $R(T)$ lässt sich mit

$$R = R_0 + \alpha \cdot T \quad (3.1)$$

darstellen. Der elektrische Widerstand wird mit dem LabView Programm ausgelesen. Die Temperatur lässt sich durch

$$T = \frac{R - R_0}{\alpha} \quad (3.2)$$

in Kelvin berechnen, wobei $R_0 = -117,36 \, \Omega$ und $\alpha = 4,093 \, \Omega/K$ betragen. Weiter vorne befindet sich noch eine Spule aus Manganindraht, um den Probenhalter gegebenenfalls zu heizen.

Praktischer ist jedoch nach Abkühlung auf 77 Kelvin die Erwärmung durch strömende Luft (Pressluft). Von den einzelnen Komponenten laufen Zuleitungen zum Stecker, welcher auf dem Probenhalter angebracht ist. Über die Komponenten kommt eine thermische Abschirmung (Zylinder aus Cu), die mit drei Schraubchen an der Halterung in der Mitte des Halters festgemacht wird. Der Halter wird dann noch einmal mit einem Zylinder aus Messing umschlossen, der luftdicht mit Hilfe eines Spannringes und einem Dichtungsring am Ende des Halters verschlossen wird. An diesem Zylinder befindet sich auch der Saugstutzen für die Vakuumpumpe, die im Messingzylinder ein Vakuum von 10^{-2} mbar zur thermischen Isolation erzeugt.

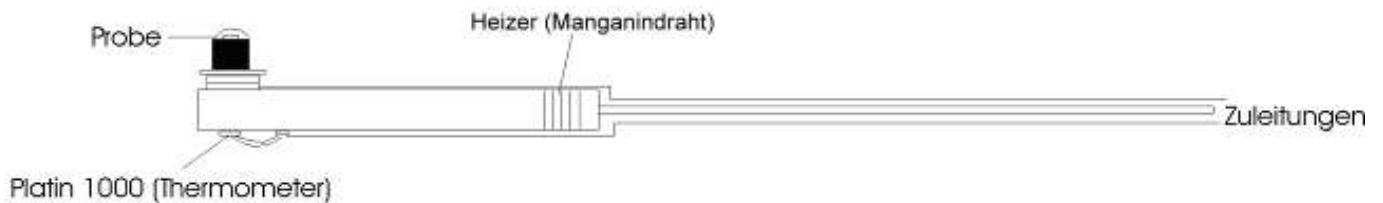


Abb.25: Schematischer Querschnitt des Probenhalters.

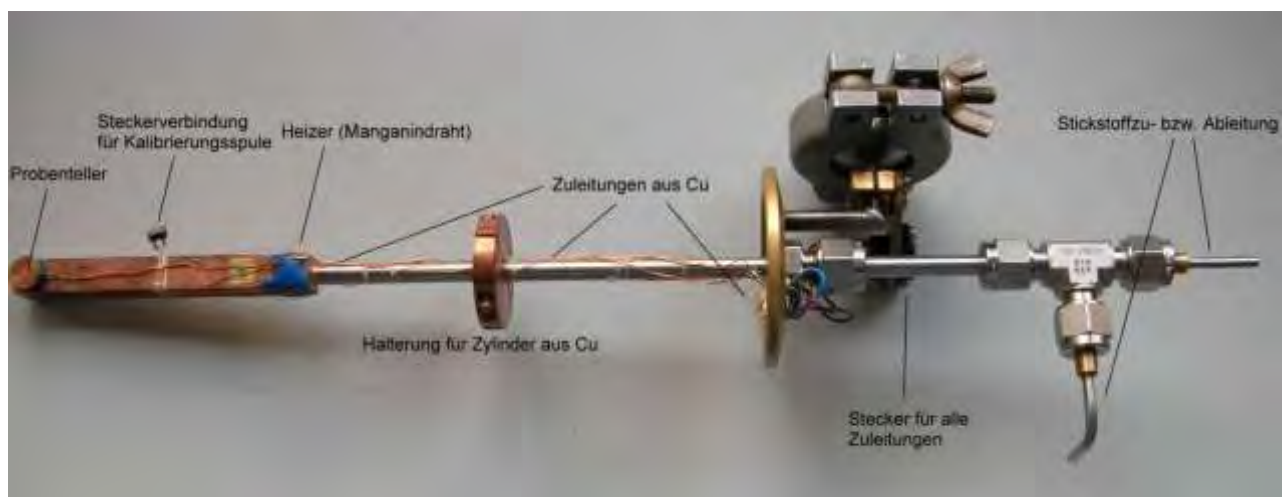


Abb.26: Innenleben des Probenhalters.

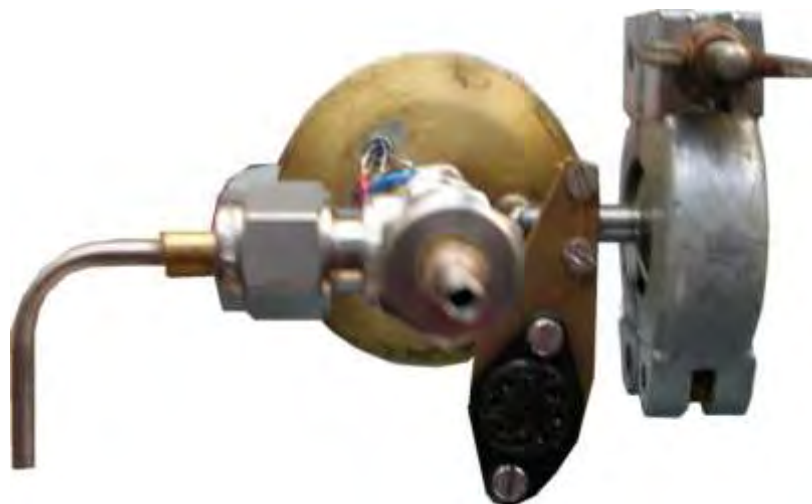


Abb.27: Aufsicht auf den Deckel des Messingzylinders.

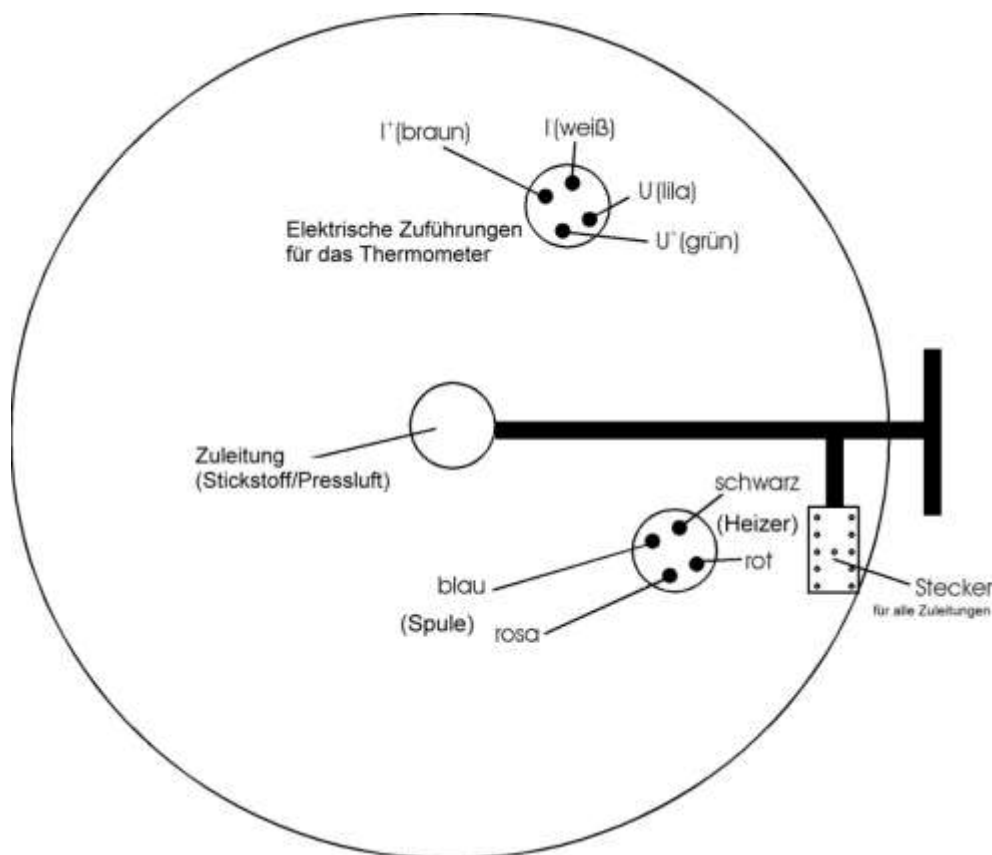


Abb.28: Schematische Aufsicht auf den Deckel des Messingzylinders.

In Abbildung 27 und 28 sieht man das Ende des Probenzylinders, wo die Zuleitungen zu einem gemeinsamen Stecker zusammenlaufen. Dieser ist mit den Kontakten für das Thermometer bzw. den Kontakten für die Spule und den Heizer durch Cu-Kabel verbunden. Außerdem befinden sich hier die Zuleitungen für den flüssigen Stickstoff zur Kühlung sowie die Zuleitung für die Pressluft zur Erwärmung des Probenhalters. Diese Zuleitungen werden durch ein T-förmiges Röhrchen voneinander getrennt. Durch zwei Hähne kann man entweder die Stickstoff- bzw. die Pressluftzufuhr an- und abstellen.

Der Probenhalter wird mit einem achtadrigen Kabel angeschlossen. Davon sind vier Adern (braun – rote Kappe – I^+ ; weiß – blaue Kappe – I^- ; grün – gelbe Kappe – U^+ ; rosa – schwarze Kappe – U^-) durch das Thermometer, zwei (braun – schwarze Kappe; weiß – gelbe Kappe) durch den Heizer und zwei (grün – grüne Kappe; Isolierung – blaue Kappe) durch die Spule belegt. Die Thermometerkabel werden mit einem Digitalmultimeter zur Widerstandsmessung entsprechend verbunden. Die anderen Kabel bleiben lose und werden nur zum jeweiligen Gebrauch mit dem dazu gehörenden Gerät verbunden.

Zur Kühlung des Probenhalters wird ein tragbarer Dewar benutzt (Abb.29), der mit flüssigem Stickstoff gefüllt wird. An ihm ist ein Überdruckventil und ein Absperrhahn sowie eine Rohrleitung (Plastik-Schlauch) als Probenhalter befestigt. Um die Kühlung des Probenhalters durch Flüssigstickstoff in Gang zu setzen, muss der Absperrhahn zuge dreht und in dem Dewar ein

Überdruck durch vorsichtiges Schütteln erzeugt werden. Daraufhin wird Stickstoff durch den Schlauch in den Probenhalter befördert. Die Hähne sind aus Teflon.

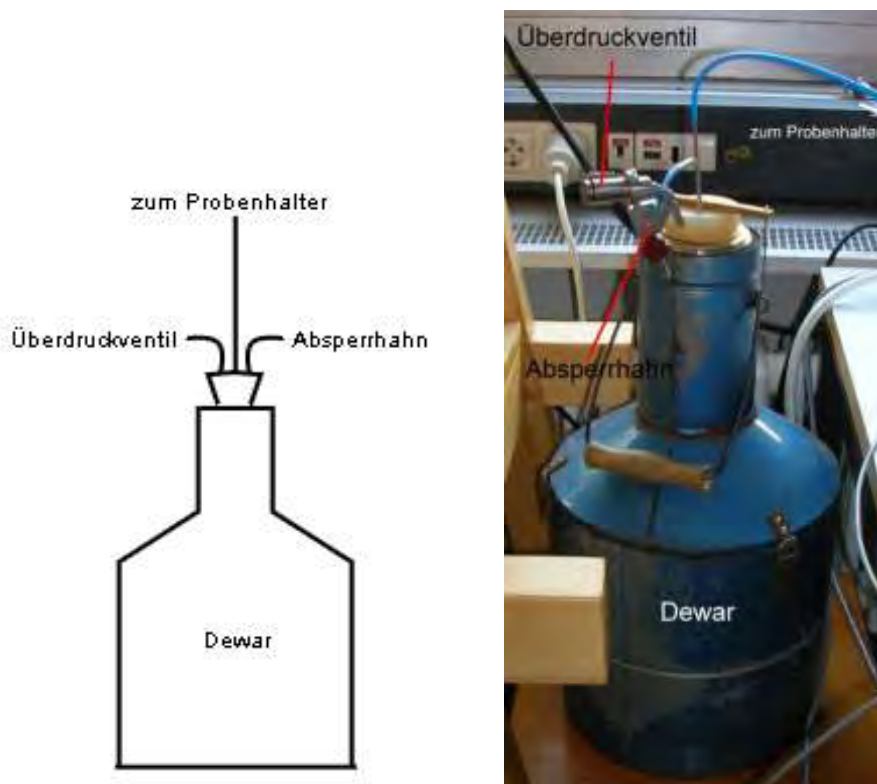


Abb.29: Links: schematischer Querschnitt des Dewar zur Probenkühlung. Rechts: Originalbild des Dewar.

Messgeräte

Als Messgeräte werden zwei HP 34401A Digitalmultimeter verwendet. Eines wird benutzt um den Widerstand des Platinplättchens zu messen, das andere ist an das Oszilloskop angeschlossen, um die SQUID-Spannung auszulesen. Die Multimeter sind mit dem Computer über serielle RS232-Schnittstellen verbunden. Der Computer liest die Daten der Geräte aus und gibt die daraus bestimmten Werte $U(T)$ auf dem Monitor wieder und speichert sie in eine Datei. Um das Feld des Elektromagneten bestimmen zu können, benötigt man noch ein Strommessgerät (Typ: Fluke). Die Daten müssen hier von Hand abgelesen und in einer Tabelle angelegt werden. Auch für die Kalibrierung der SQUID-Spannung wird dieses Messgerät benötigt, um den durch die Kalibrierungsspule geleiteten Strom zu messen.



Abb.30: Digitalmultimeter

Oszilloskop

Das Oszilloskop dient der Darstellung des zeitlich veränderlichen SQUID-Signals bei der Justage der SQUID-Parameter.



Abb.31: Oszilloskop

Elektromagnet

Der Elektromagnet wird benötigt um die Proben zu magnetisieren. Er wird über eine Stromquelle versorgt, durch die das erzeugte Magnetfeld bestimmt werden kann. Beide Spulen sind parallel geschaltet. Mit Hilfe einer Hallsonde kann folgender Zusammenhang zwischen Spulenstrom I und magnetischer Flussdichte B festgestellt werden:

$$B(I) \text{ [G]} = 0,9846 I \text{ [mA]} + 2,059 \quad (3.3)$$



Abb.32 Elektromagnet

Vakuumpumpe

Im Probenhalter muss zur thermischen Abschirmung/Isolation nach außen ein Vakuum erzeugt werden. Dies geschieht mit einer Drehschieberpumpe, die im Probenraum typischerweise einen Enddruck von 10^{-2} mbar erzeugt.



Abb.33: Vakuumpumpe

3.4. Messprogramm

Das Messprogramm wurde mit der Programm-Umgebung LabView von mir entwickelt, um die SQUID-Messdaten in Abhängigkeit der Proben temperatur zu erfassen. Das Programm liest die aufgezeichneten Messwerte per serieller Schnittstelle aus und übermittelt diese dem Computer. LabView verarbeitet diese, schreibt mit den Daten eine Datei und gibt diese gleichzeitig auf dem Bildschirm als Text und in einem Diagramm aus.

Man startet das Programm indem man auf dem Desktop das Programm „SQUID-Magnetometer“ per Doppelklick aufruft. Die Bedienungsoberfläche sieht wie in Abbildung 34 aus. In dem Schaubild wird die aktuelle Messung (U_{SQUID} über T_{Probe}) dargestellt. In den zwei „Anzeigekästchen“ auf der linken Seite des Bildschirms werden die aktuellen Werte der HP-Messgeräte ausgegeben. Im „Temperatur“-Fenster erkennt man die aktuelle Proben temperatur. Der Widerstand des Platin-Plättchens unten am Probenhalter nimmt ab, je kälter es wird. Diese Abnahme verhält sich linear. So kann das Programm die Widerstandsdaten sofort als Temperaturwerte in Kelvin ausgeben. Im Schaubild wird auf der Abszisse die Temperatur in Kelvin aufgetragen. Auf der Ordinate wird die SQUID-Spannung in V angegeben. Da sich die SQUID-Spannung proportional zur Magnetisierung verhält, erhält man eine Magnetisierungskurve. Gleichzeitig schreibt das Programm die Messdaten in eine Textdatei, die später zur Auswertung benutzt werden kann. Ihr Dateiname wird im Fenster „Dateipfad“ festgelegt. Im Kommentarfeld kann man vor der Messung noch eine Zeile Text einfügen. Hier können zum Beispiel Einträge zur Probe, B-Feld, etc. gemacht werden.

Um die Messung zu starten, drückt man in der Symbolleiste auf den „Pfeil-Button“. Mit dem „Stopp-Button“ beendet man eine aktuelle Messung.

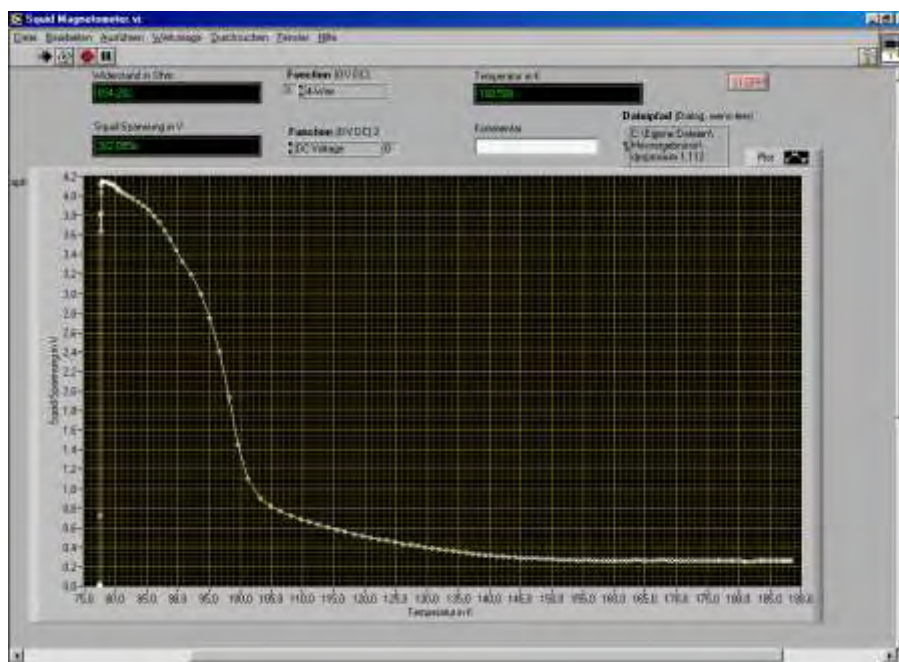


Abb.34: Monitorbild des SQUID-Messprogramms mit einer Magnetisierungskurve von Dy.

4. Durchführung des Versuchs

Mit Hilfe des SQUID-Magnetometers und der restlichen Messapparatur sollen Magnetisierungskurven von verschiedenen Materialien aufgenommen werden. Außerdem soll man eine Methode zur Messung der Magnetisierung kennen lernen.

4.1. Proben

Mit Hilfe eines SQUID's soll die Magnetisierung verschiedener Substanzen in Abhängigkeit der Temperatur aufgenommen und ausgewertet werden. Im Rahmen des Praktikums werden Messungen an Terbium und Gadolinium.

Terbium:

Terbium ist ein Selten-Erd Metall und hat 9 Elektronen in der 4f-Schale. Die 4f-Schale kann mit maximal 14 Elektronen besetzt werden. Damit ergibt sich nach den Hundschen Regeln ein Gesamtdrehimpuls von $J = 15/2$ ein Gesamtspin $S = 5/2$ und ein Bahndrehimpuls von $L = 5$. Terbium besitzt eine hexagonale Kristallstruktur. Es hat eine Curietemperatur von 219 Kelvin und wird unterhalb dieser ferromagnetisch. Zwischen den Temperaturen 219 K und 229 Kelvin ist Terbium helimagnetisch.. Die magnetischen Eigenschaften werden durch die RKKY-Wechselwirkung erklärt.

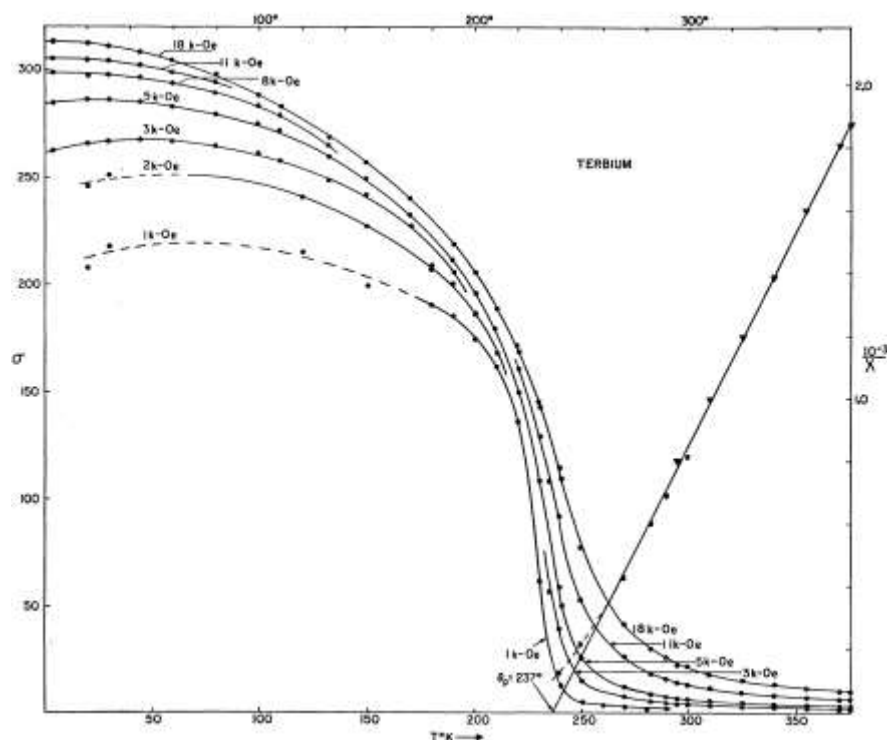


Abb.37: Magnetisierungskurven von Terbium, aus Ref. [19] Fig.2

Die Terbium Probe ist $0,5\text{cm} \cdot 0,5\text{cm} \cdot 0,01\text{cm}$ groß. Sie ist auf einem Kupferquadrat von $0,7 \cdot 0,7 \cdot 0,7\text{cm}^3$ mit Delta-Bond (Klebstoff) befestigt. So kann sie senkrecht und parallel zu den Feldlinien des Elektromagneten eingebaut werden (Abb.39).

Gadolinium:

Gd besitzt wie Tb eine hexagonale Kristallstruktur und gehört wie Terbium zu der Gruppe der Seltenen Erden. Jedoch zeichnet sich Gd gegenüber anderen Selten Erd Metallen durch eine einfache ferromagnetische Phase unterhalb seiner Curietemperatur $T_C = 292,5$ Kelvin aus. Die f-Schale von Gd ist halb gefüllt, woraus im Grundzustand nach den Hund'schen Regeln der Gesamtspin $S = 7/2$, der Bahndrehimpuls $L = 0$ und der Gesamtdrehimpuls $J = 7/2$ resultiert. Die magnetischen Eigenschaften werden wie in allen anderen SE-Metallen im wesentlichen

durch RKKY-Wechselwirkung erklärt (siehe Kapitel 2.3.4.). Von 293 Kelvin (Curie-temperatur) bis 230 Kelvin ist die Magnetisierung parallel zur c-Achse ausgerichtet. Darunter dreht sie sich sehr schnell von der c-Achse weg. Der Winkel θ zwischen Magnetisierung und c-Achse erreicht bei 200 Kelvin den maximalen Wert von circa 60 Grad. Bis circa 50 Kelvin dreht sich die Magnetisierung wieder auf etwa 30 Grad zurück um dann bis 0 K weitgehend konstant bei 30 Grad zu bleiben.

Über die Gadolinium Probe kann keine genauere Angabe gemacht werden, da sie wie schon oben erwähnt selbst per Hand aus einer Gadoliniumpille als Quader herausgeschnitten wurde. Der Quader ist ca. 0,5 cm · 0,2 cm · 0,2 cm groß. Sie wird einfach auf den Probenhalter gelegt.

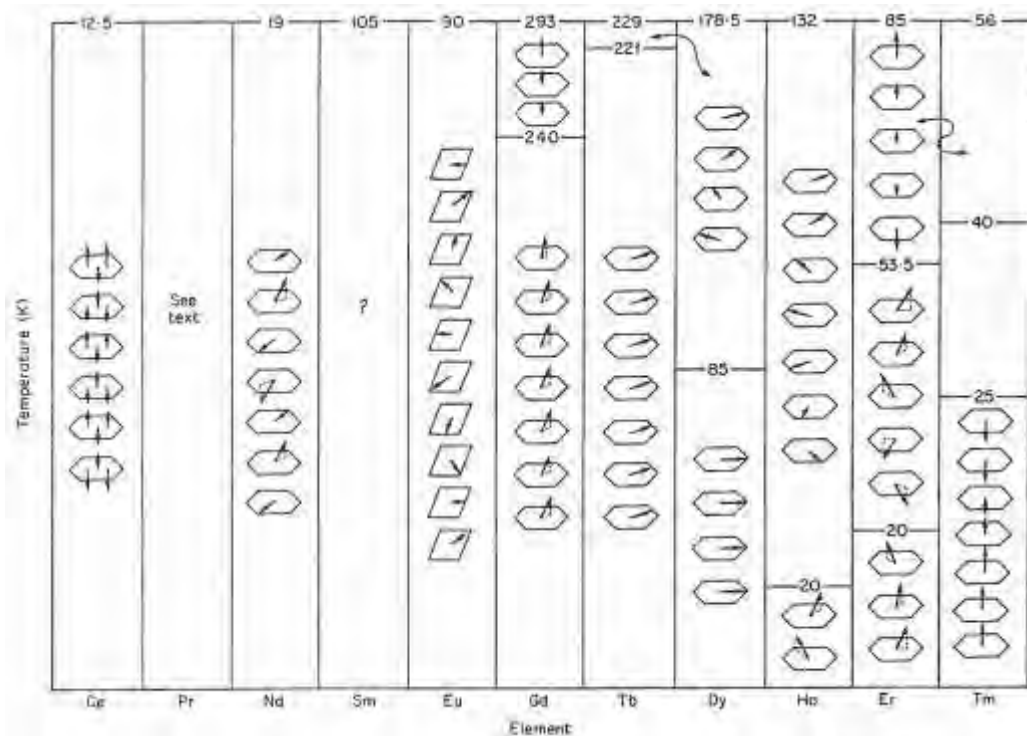
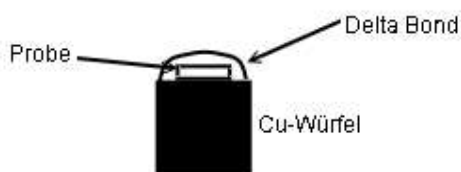


Abb.38: magnetische Ordnungen der Seltenen-Erd Metalle, aus Ref [21] Abb. 4.17

Die Proben werden in einem Elektromagnet magnetisiert und im Feld abgekühlt. Danach werden sie wieder erwärmt. Während des Erwärmvorgangs wird die Magnetisierungskurve aufgezeichnet. Dies geschieht bei unterschiedlichen äußeren Feldern. Außerdem wird Terbium senkrecht und auch parallel zu den Feldlinien gemessen.



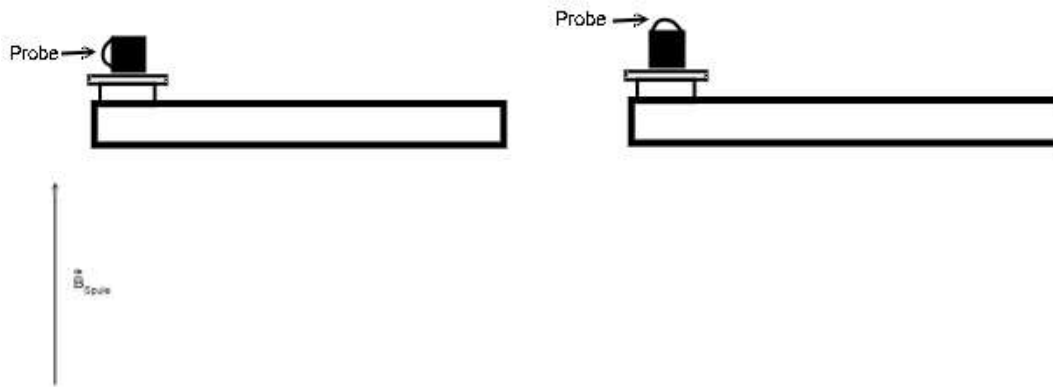


Abb.39: Oben: Querschnitt durch den Probenwürfel. Links: Probe ist so angebracht, dass das Magnetfeld parallel zur Probe gerichtet ist. Rechts: Magnetfeld ist senkrecht zur Probe gerichtet.

Nickel-Probe zur Kalibrierung:

Die Nickelprobe ($T_C = 293,4$ Kelvin) besitzt die gleichen Abmessungen wie die anderen Proben. Genauso ist Ni auch auf einem Cu-Würfel angebracht und mit Delta-Bond festgemacht. Nickel besitzt eine spezifische Sättigungsmagnetisierung von $55,09 \text{ Am}^2/\text{kg}$ bei Zimmertemperatur (298 Kelvin). Näheres in Kapitel 5.1..

Kalibrierungsspule:

Die Kalibrierungsspule ist auf einem Cu-Zylinder der Höhe 0,7 cm und einem Radius von 0,35 cm angebracht. Sie besitzt eine Windung und dient wie Nickel zur Eichung des SQUID's. Zu ihr führen zwei kupferne Leitungen die über eine Steckverbindung mit den Zuleitungen am Probenhalter verbunden werden können. Über diese lässt sich in die Spule Strom einspeisen, um so ein Magnetfeld erzeugen zu können.

4.2. Vorbereitung des Versuchs

Die Probe zur jeweiligen Messung muss auf dem Probenhalter montiert werden. Dazu werden etwas Vakuumfett zur Befestigung auf dem Probenhalter und ein Schraubenzieher zur Befestigung des Wärmeschildes (Cu-Zylinder) benötigt.

Der Dewar, in welchem sich das SQUID befindet, muss, wenn er nicht schon gefüllt ist, mit Stickstoff aufgefüllt werden. Nach ca. 15 Minuten ist das SQUID einsatzbereit. Am Computer ist das SQUID mit Hilfe des Programms „JSQ Duo Sensor Control“ einzurichten und betriebsfertig zu machen (siehe Abb. 40). Die genauen Instruktionen kann man dem „JSQ – Tutorial für Benutzer von rf-SQUID's“ der Jülicher SQUID GmbH entnehmen. Zeigt das Oszilloskop das gewünschte Testbild, ist das SQUID betriebsbereit und das Programm kann auf „measure“ gestellt werden. Nun kann das LabView Programm „SQUID-Magnetometer“ auf dem Desktop gestartet und die nötigen Einstellungen (siehe Kapitel 3.4. LabView Messprogramm) vorgenommen werden. Nun kann der Probenhalter unter das SQUID gebracht und die Messung mit dem „Pfeil-Button“ in LabView gestartet werden. Um jedoch das Streufeld einer Probe aufgrund einer vorhandenen, remanenten Magnetisierung messen zu können, muss die Probe zuerst magnetisiert werden.



Abb.40: Benutzeroberfläche des JSQ Duo Sensor, aus Ref. [22] Abb.24

Dazu setzt man die Probe in den Probenhalter ein und bringt ihn in das Magnetfeld des Elektromagneten. Man stellt vorher das Magnetfeld in Abhängigkeit der Stromstärke ein. Die Stärke des Magnetfeldes lässt sich mit Hilfe der Gleichung (3.3) berechnen.

Die Probe wird dann auf die Temperatur des flüssigen Stickstoffs ($T = 77\text{K}$) im Magnetfeld abgekühlt. Dazu schließt man den blauen Dewar (siehe Kapitel 3.3.) an und erzeugt mit Hilfe der Vakuumpumpe im Probenhalter zur thermischen Abschirmung nach außen ein Vakuum.

4.3. Messprogramm

4.3.1. Kalibrierung des SQUID's

Zu Beginn muss das SQUID kalibriert werden, was mit Hilfe der „Probenspule“ geschieht. Man soll den linearen Zusammenhang zwischen SQUID-Spannung und Magnetfeldstärke bestimmen, wozu man durch die Spule ca. 10 verschiedene Ströme schickt und zu jedem die SQUID-Spannung abliest. Durch Auftragen der Werte in ein Schaubild erhält man einen linearen Zusammenhang, den es noch auszuwerten gilt.

Außerdem soll auch noch eine Eichung mit einer Nickelprobe durchgeführt werden, welche genauso angeordnet ist wie das Terbium, da von Nickel die Werte (siehe Kapitel 4.1.) bekannt sind, kann man den Zusammenhang zwischen Magnetisierung und SQUID-Spannung mit Hilfe der Literatur bestimmen.

Mit Hilfe des Biot-Savartschen Gesetzes,

$$d\vec{B} = \frac{\mu_0 I}{4\pi r^3} d\vec{l} \times \vec{r} \quad (5.2)$$

lässt sich das Magnetfeld in einem bestimmten Abstand zur Spule berechnen. Da im vorliegenden Fall nur der Abstand in eine Richtung interessant ist vereinfacht sich das Gesetz zu

$$B(x) = \frac{\mu_0 \cdot 2\pi R^2 \cdot I}{4\pi(x^2 + R^2)^{3/2}} \quad (5.3)$$

Diese Beziehung gilt in der Nähe der Spule. Für $x \gg R$ (das SQUID befindet sich 1,4 cm oberhalb der Spule) gilt:

$$B(x) = \frac{\mu_0 \cdot R^2 \cdot I}{2x^3} \quad (5.4)$$

d.h. am Ort des SQUID's gilt:

$$B_{SQ} = \frac{\mu_0 \cdot R^2 \cdot I}{2x_{SQUID}^3} \quad (5.5)$$

$$\text{Für } x = 0 \text{ also am Ort der Spule selber: } B_0 = \frac{\mu_0 \cdot R^2 \cdot I}{2 \cdot R^3} = \frac{\mu_0 \cdot I}{2 \cdot R} \quad (5.6)$$

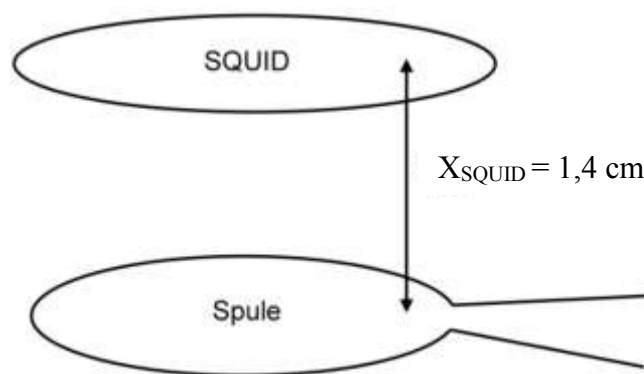


Abb.41: Ungefäher Abstand SQUID – Spule.

Die Sättigungsmagnetisierung von Nickel erhält man durch ein äußeres Feld von

$$B = \mu_0 M_S = \mu_0 \sigma / \rho = 0,617 \text{ T} = 6170 \text{ G}$$

M: Sättigungsmagnetisierung

σ_S : spezifische Sättigungsmagnetisierung von Nickel, 55,09 Am²/kg

ρ : Massendichte von Nickel, 8912 kg/m³

Zu Beachten ist, dass mit dem vorhandenen Elektromagnet, die Nickelprobe nicht bis zum Sättigungswert magnetisiert werden kann.

Damit lassen sich nun beide Kalibrierungsmethoden (Kalibrierung mit Spule und Ni-Probe) vergleichen.

4.3.2. Magnetisierungsmessungen

Nach der Kalibrierung des SQUID's werden nun die Magnetisierungsmessungen durchgeführt. Es sollen die Temperaturabhängigkeiten der remanenten Magnetisierung von Tb und Gd bestimmt werden. Dazu werden die Proben beim Abkühlen in verschiedenen Magnetfeldern des Elektromagneten magnetisiert. Außerdem soll noch eine Nullfeldmessung mit Tb getätigt werden (ohne äußeres Feld).

Aufgrund der Abhängigkeit des Flusslinienbildes von der Probenform, sollte sich für senkrecht magnetisiertes Plättchen ein kleineres SQUID-Signal ergeben. Dieser Einfluss der Probenform wird i.A. durch den sogenannten „Entmagnetisierungsfaktor“ beschrieben. Dies ist leicht mit dem Streufeld der Probe erklärbar.

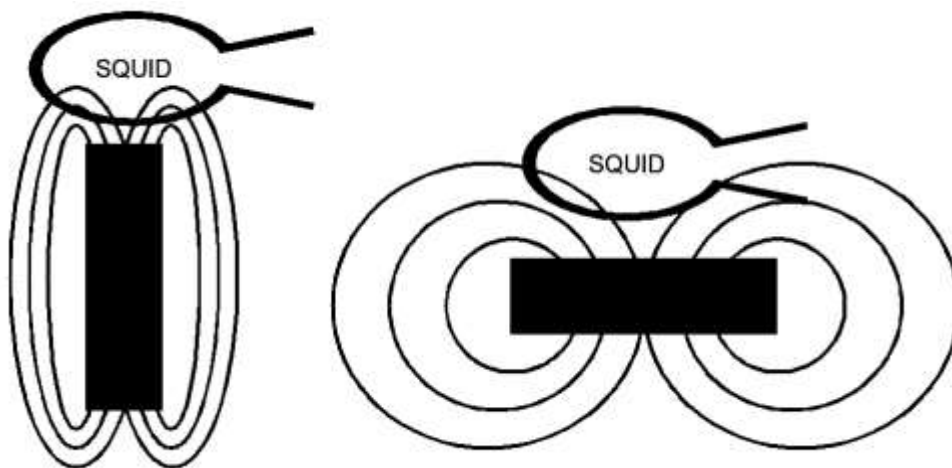


Abb.42: Magnetische Flusslinien einer magnetisierten Platte. Links: Probe parallel; Rechts: Probe senkrecht.

Literatur

- [1] Ibach und Lüth: Festkörperphysik, Springer Verlag (1995)
- [2] W. Buckel, R. Kleiner: Supraleitung, Wiley-VCH-Verlagsgesellschaft (2004)
- [3] Ch. Kittel: Einführung in die Festkörperphysik, Oldenbourg (1999)
- [4] W.Nolting: Quantentheorie des Magnetismus Teil 1, B.G. Teubner (1986)
- [5] B.D. Cullity: Introduction to Magnetic Materials, Addison-Wesley Publishing Company (1972)

- [6] A. Hubert, R. Schäfer: Magnetic Domains, Springer-Verlag (1998)
- [7] Haken und Wolf: Atom- und Quantenphysik, Springer-Verlag (2001)
- [8] Schüler Duden, Dudenverlag (1974)
- [9] G. Heber: Einführung in die Theorie des Magnetismus, Akademische Verlagsgesellschaft (1983)
- [10] L. Meyer, G.D. Schmidt: Duden Abitur Physik, PAETEC (2003)
- [11] P.A. Tipler: Physik, Spektrum Akademischer Verlag (2000)
- [12] C. Gerthsen, H.O. Kneser, H.Vogel: Physik, Springer Verlag (1977)
- [13] W. Demtröder: Experimentalphysik 2, Springer-Verlag (1995)
- [14] J.D. Jackson: Classical Electrodynamics, J.Wiley & Sons, Inc. (1962, 1975)
- [15] H.E. Nigh, S. Legvold and F.H. Spedding: Magnetization and Electrical Resistivity of Gadolinium Single Crystals, Physical Review Letters vol. 132 no. 3 (1963)
- [16] R.L. Smith, W.D. Corner, B.K. Tanner, R.G. Jordan, D.W. Jones: The magnetocrystalline anisotropy of high-quality single-crystal gd, Inst.Phys. Conf. Ser. No. 37 (1978)
- [17] M. Gajdzik: Diplomarbeit, Physikalisches Institut Universität Karlsruhe (1994)
- [18] J.F. Elliott, S. Legvold and F.H. Spedding: Some Magnetic Properties of Dy Metal, Physical Review Letters vol. 94 no. 5 (1954)
- [19] W.C. Thoburn, S. Legvold and F.H. Spedding: Magnetic Properties of Terbium Metal, Physical Review Letters vol. 112 no. 1 (1958)
- [20] D.R. Behrendt, S. Legvold and F.H. Spedding: Magnetic Properties of Dysprosium Single Crystals, Physical Review Letters vol. 109 no. 5 (1958)
- [21] K.N.R. Taylor, M.I. Darby: Physics of Rare Earth Solids, Chapman and Hall, London (1972)
- [22] JSQ-Tutorial für Benutzer von rf-SQUID's, Jülicher SQUID GmbH
- [23] H.Bitterlich: Züchtung und physikalische Eigenschaften Seltenerd-Übergangsmetall-Einkristallen, Dissertation Dresden (2000)
- [24] Bronstein, Semendjajew, Musiol, Mühlig: Taschenbuch der Mathematik, Harri Deutsch Verlag (2000)
- [25] Uni Ulm, Praktikum Energietechnik, Magnetismus, Vorbereitungsmappe

5. Aufgaben zum Versuch „Magnetisierung“

1. Kalibrierung des SQUID

Die Kalibrierung ist notwendig um die Magnetisierung der Proben zu bestimmen.

Abstand Probe (bzw. Spule) – SQUID: 1,4 cm

a) mit der Kalibrierungsspule

Schrauben Sie den Cu-Zylinder ($d = 0,7$ cm; $h = 0,7$ cm) mit der Spule auf den Probenhalter. Führen sie den Halter unter den SQUID-Kryostaten und messen sie die Signalspannung des SQUID in Abhängigkeit des Spulenstroms. Kennzeichnen sie die genaue Lage des Probenhalters. Es muss an der Stelle gemessen werden, bei welcher das SQUID das größte Signal zeigt, da sich dann der Probenhalter mit dem Probenhalter direkt unter dem SQUID befindet. Es sollen ca. 10 Messwerte von unterschiedlichem Spulenstrom genommen werden. Zum Anschluss der Spule bitte den Betreuer fragen. **Achtung: max. Spulenstrom 400 mA!**

b) mit der Nickelprobe

Das Ni-Plättchen ist 5 mm x 5 mm x 0,1 mm groß, Masse $m = 0,0202$ g. Mit Hilfe dieser Daten und aus der Literatur lässt sich die Sättigungsmagnetisierung der Probe bestimmen. Die spezifische Magnetisierung für Nickel beträgt $\sigma = 55,09$ emu/g bei 298 Kelvin. Messen Sie die Magnetisierung der Ni-Probe in beiden Orientierungen bei Raumtemperatur nach ihrer „Aufmagnetisierung“ in einem äußeren Magnetfeld.

Vergleichen Sie die Messungen mit Spule und Ni-Probe und bestimmen Sie den Kalibrierungsfaktor, um aus der SQUID-Spannung die Magnetisierung zu erhalten.

2. Magnetisierungsmessungen

Es sollen folgende Messungen beim Erwärmen der Probe durchgeführt werden:

a) mit der Terbiumprobe bei senkrechtem Einbau

- Messung mit im Nullfeld gekühlter Probe ohne Aufmagnetisierung
- Messung mit im Nullfeld gekühlter Probe mit Aufmagnetisierung bei tiefer Temperatur und 150 G
- Messung mit im Feld gekühlter Probe bei 150 G

b) mit der Terbiumprobe bei parallelem Einbau

- Messung mit im Feld gekühlter Probe bei 50 G, 100 G, 150 G

c) mit der Gadoliniumprobe

- Messung mit im Feld gekühlter Probe bei 1000 G

HINWEIS: Für die feldgeköhlten Messungen muss sich der Probehalter zur Kühlung im Elektromagneten befinden.

Aufgabenstellung für die Auswertung:

- 1) Tb: Beschreiben Sie den Verlauf der Magnetisierungskurven qualitativ und erläutern Sie charakteristische Punkte etwas detaillierter.
 - a) Bestimmen Sie die Curietemperatur aus den Ableitungen der Kurven. Die Ableitungen sollten einen Peak bei T_C zeigen. Mitteln Sie die Werte der Peaks und diskutieren Sie eventuell auftretende Abweichungen.
 - b) Zeichnen Sie die Neukurve $[M(H)]$ für Tb. Verwenden Sie dafür die Daten aus den Messungen von Tb bei parallelem Einbau von einer Temperatur, die nicht zu hoch ist. Vergessen Sie nicht den Punkt (0|0).
- 2) Gd: Beschreiben Sie den Verlauf der Magnetisierungskurven qualitativ und erläutern Sie Charakteristische Punkte etwas detaillierter.
Bestimmen Sie die Curietemperatur aus dem Verlauf der Kurve (nicht den Ableitungen).

Hinweis für die Kalibrierung:

Spule: Biot-Savart-Gesetz (SI Einheiten, $1 \text{ T} = 10^4 \text{ G}$)

$$B [\text{T}] = \mu_0 I R^2 / 2 |x^3|$$

R = Radius der Leiterschleife, 0,35 cm

I = Strom [A]

x = Abstand Leiterschleife \leftrightarrow SQUID [m]

Nickel:

$$B [\text{T}] = \mu_0 \mu / 2\pi |x^3|$$

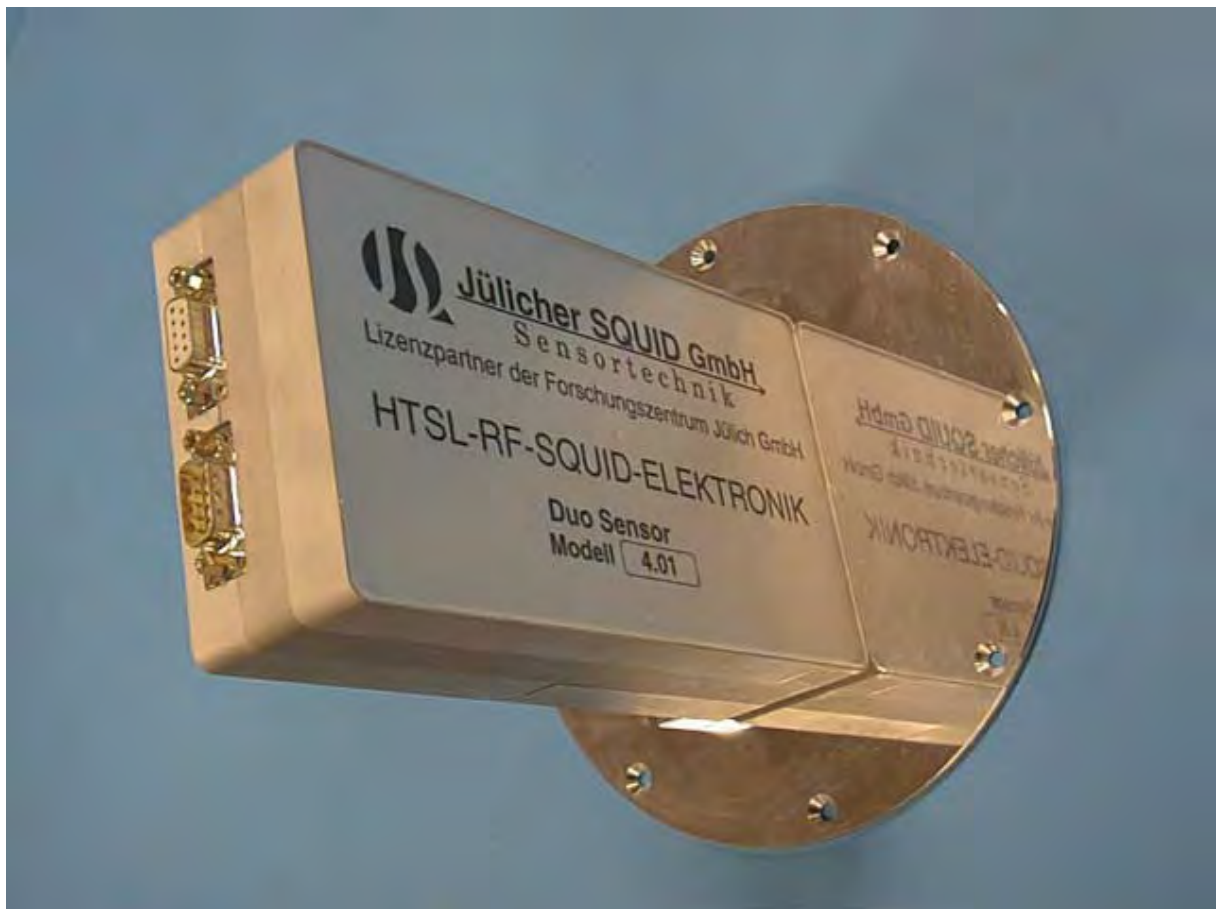
μ = magn. Moment der Probe [Am^2]

x = Abstand Probe \leftrightarrow SQUID [m]

- Spezifische Sättigungsmagnetisierung von Ni: $\sigma_s = 55,09 \text{ Am}^2/\text{kg}$
- Magnetisches Moment der Nickelprobe: $\mu = \sigma_s m$, Masse $m = 0,0202 \text{ g}$
- Induktionskonstante $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ T m/A} = 1,2566 \times 10^{-6} \text{ Vs/Am}$

Es wird ein linearer Zusammenhang angenommen für die Aufmagnetisierung von Nickel (der Elektromagnet liefert nicht genug Feld, um die Ni-Probe vollständig aufmagnetisieren zu können.)

**Das JSQ - Tutorial für Benutzer von rf- SQUIDs
("Supraleitende Hochfrequenz- SQUIDs")**



Inhalt

1. Einleitung	4
2. Grundvorstellungen zur Supraleitung	7
3. Was ist an der Hochtemperatursupraleitung besonders ?	13
4. Der Meissner- Effekt	16
5. Die Josephson – Effekte	19
6. Was ist ein SQUID ?	21
7. Wie wird ein SQUID hergestellt ?	24
8. Wie funktioniert ein rf-SQUID ?	28
9. Was ist der Unterschied zwischen einem Magnetometer und einem Gradiometer ?	34
10. Wie kann man mit SQUIDs Materialien prüfen ?	36
11. Inbetriebnahme des JSQ – rf – SQUID (Duosensor)	39
11.1. Elektrische Verbindungen	39
11.2. Starten der JSQ Duo Sensor Software auf dem PC	39
11.3. Justage des SQUID-Arbeitspunktes	40
11.3.1. Automatische Arbeitspunktjustage	40
11.3.2. Manuelle Justage der Hochfrequenz (VCO) und der Amplitude (VCA)	40
11.3.3. Manuelle Justage des Integrator-Offsets	42
12. Messungen mit dem JSQ – Duosensor	43
12.1. Schließen der Flussregelschleife	43
12.2. Einstellung der Parameter der Flussregelschleife	44
Jülicher SQUID GmbH (JSQ)	46
Produkte: zuverlässig und innovativ	46
Das JSQ-Team	46

1. Einleitung

Die Supraleitung ist faszinierend -

- Stromtransport ohne Widerstand
- weit ausgedehnte quantenmechanische Wellenfunktionen mit makroskopischer Kohärenz
- Magnetspulen, die ein eingespeistes Feld "ewig" aufrecht erhalten können und dennoch
- vollständige Magnetfeldverdrängung (aus einem Typ I - Supraleiter beim Meissner-Effekt).

In keinem Gebiet der Physik manifestiert sich die Quantenmechanik so drastisch und handgreiflich in dem makroskopischen elektrischen Verhalten von Kristallen, Schichten oder Drähten wie in der Supraleitung. Obwohl die Hochtemperatursupraleiter es nunmehr erlauben, auf den Einsatz von flüssigem Helium als Kühlmittel zu verzichten und die komplexe Quantenmechanik von Leitungselektronen bereits bei der Temperatur des flüssigen Stickstoffs studiert und sogar technisch nutzbar gemacht werden kann, ist die physikalische Theorie der Supraleitung nicht immer leicht zu vermitteln. Dennoch ist es möglich, zahlreiche Phänomene und Facetten der Supraleitung mit anschaulichen Modellvorstellungen zu erläutern. Deshalb soll Ihnen diese eher einfach gehaltene Darstellung eine nützliche erste Orientierung bieten - sozusagen als ein "Klettergerüst für Fußgänger"

Natürlich können Sie Ihren SQUID auch benutzen, ohne sein "Innenleben" zu verstehen. Aber wir haben bei unseren Kunden bemerkt, dass ein gewisses Verständnis den Umgang mit SQUIDs erleichtert, die Freude an den Messungen deutlich erhöht und zu wesentlich besseren Resultaten führt. Und das gilt in noch höherem Maße für all die SQUIDs, die im Bereich der Forschung, Lehre und Ausbildung eingesetzt werden.

Insbesondere für die **Studenten im Fortgeschrittenen- Praktikum** bietet dieses Tutorial einen verständlichen **Einstieg in die Supraleitung und die SQUIDs**, wobei parallel die bewährten Lehrbücher zur Festkörperphysik und zur Supraleitung zur Hand sein sollten.



Periodisches System der Elemente																																			
H																		He																	
Li	B	C	N	O	F	Ne													Ar																
Na	Mg																Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr		
K	Ca	Sc	Ti	V	Cr	Mn	Fe	Co	Ni	Cu	Zn	Ga	Ge	As	Se	Br	Kr	Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe
Rb	Sr	Y	Zr	Nb	Mo	Tc	Ru	Rh	Pd	Ag	Cd	In	Sn	Sb	Te	I	Xe	Ba	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu		
Cs	Ba	La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu	Hf	Ta	W	Re	Os	Ir	Pt	Au	Hg	Tl	Pb	Bi	Po	At	Rn				
Fr	Ra	Ac	Th	Pa	U	Np	Pu	Am	Cm	Bk	Cf	Es	Fm	Mn	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu	Uu		
* Fortsetzung folgt:																																			
La	Ce	Pr	Nd	Pm	Sm	Eu	Gd	Tb	Dy	Ho	Er	Tm	Yb	Lu																					

Die Zahl neben der Elementbezeichnung gibt die kritische Temperatur T_c in Kelvingraden (K) an. Einige Elemente sind nur unter hohem Druck supraleitend. Deren Sprungtemperatur ist in Klammern gestellt. Nicht nur reine Metalle zeigen Supraleitung, sondern auch eine

Vielzahl von Verbindungen und Legierungen können in den supraleitenden Zustand übergehen. Unter diesen Verbindungen befinden sich auch die Stoffe mit hohen Sprungtemperaturen (z.B. Nb_3Ge : $T_C = 23,2 \text{ K}$). 1986 wurde die Supraleitung auch bei einer Reihe von komplizierten Verbindungen entdeckt, deren Übergangstemperaturen weit höher liegen, so auch das von uns verwendete Yttrium-Barium-Kupferoxid (kurz: YBCO), $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$: $T_C = 93 \text{ K}$, sowie $\text{Bi}_2\text{Si}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$: $T_C = 95 \text{ K}$ oder $\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$: $T_C = 122 \text{ K}$. Es sind auch einige organische Verbindungen bekannt, deren Sprungtemperaturen bei 10 K bis 20 K liegen.

2. Grundvorstellungen zur Supraleitung

Die Supraleitung ist ein gemeinsamer Zustand einer großen Menge von Leitungselektronen. Weil die Elektronen halbzahligen Spin besitzen, sind sie *Fermionen* und besetzen ihre Energieniveaus entsprechend der Fermistatistik – wie es ihnen in jedem Lehrbuch der Festkörperphysik zugeschrieben wird. Aber es kommt noch ein neuer "Trick" hinzu: Durch eine schwache anziehende Wechselwirkung können die Elektronen, die nahe der Fermikante angesiedelt sind, eine Art *Paarung* vollziehen. Diese „Cooper- Paare“ bevölkern nun eine gemeinsame, weit ausgedehnte *Wellenfunktion*, also einen *gemeinsamen quantenmechanischen Zustand*. Dadurch können sie ihre Energie ein wenig absenken. Bei der konventionellen Supraleitung haben die „Cooper-Paare“ entgegengesetzten Impuls und Spin. Außerdem spielt die Wechselwirkung mit den Schwingungen der Atomrümpfe, den *Phononen*, eine wichtige Rolle bei der Bildung und Stabilisierung der Cooper-Paare. Gezeigt wurde das unter anderem mit Hilfe des *Isotopeneffektes*, denn unterschiedliche Isotope (Atommassen desselben Elementes) führen zu unterschiedlichen supraleitenden Sprungtemperaturen. Dieser *Isotopeneffekt* ist besonders prägnant bei dem Element Zinn mit den Atommassen 113 bis 123 nachgewiesen worden.

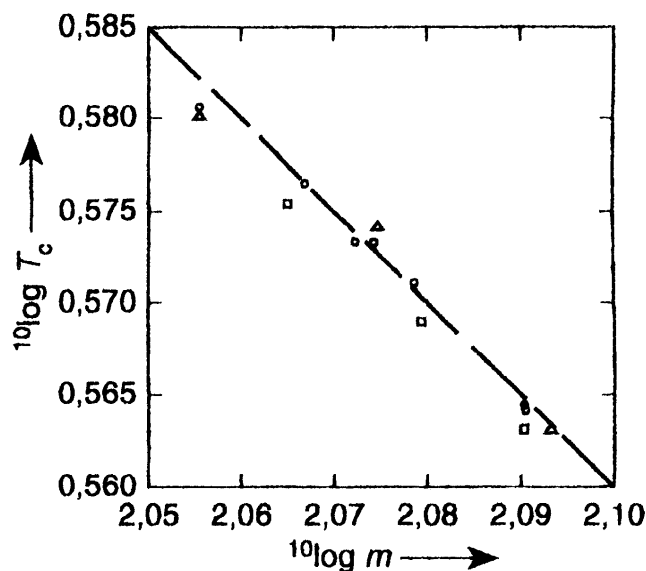


Abb. 3. Der Isotopeneffekt von Zinn.

Zumindest ist bei den „konventionellen“ Supraleitern die Stärke der Elektron-Phonon-Wechselwirkung ganz entscheidend für die Sprungtemperatur T_c . Wenn Cooperpaare in den gemeinsamen supraleitenden Zustand „kondensieren“, wird dabei die Bindungsenergie frei und ein Herauslösen eines Cooperpaares aus diesem Zustand ist nur durch Energiezufuhr

möglich. Das Wort „Kondensieren“ wird gerne gewählt, weil es an den Phasenübergang flüssig-dampfförmig und die damit verbundene „Kondensationsenergie“ erinnern soll. Die Elektronen im supraleitenden Zustand sind vom normalleitenden Zustand durch eine *Energielücke* getrennt.

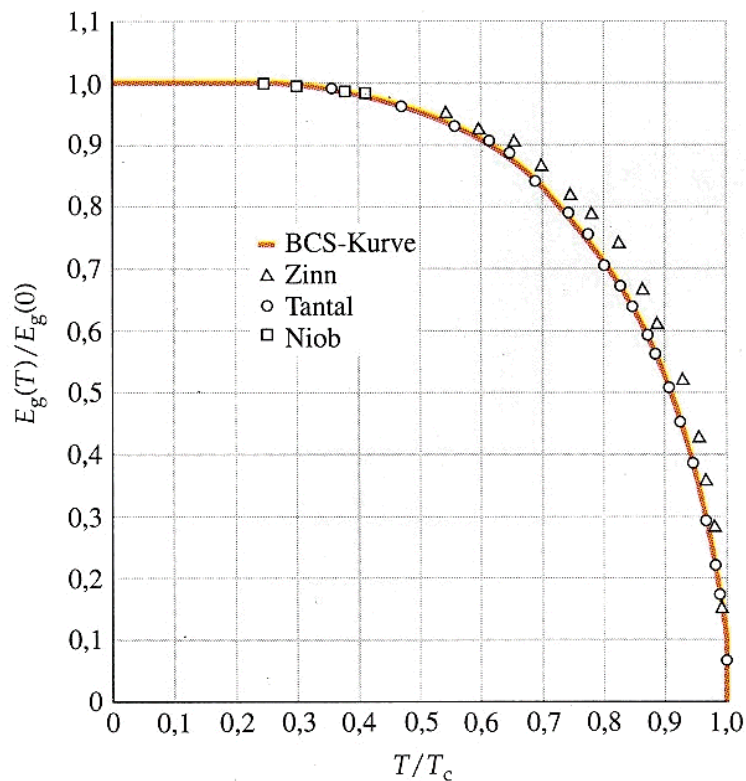


Abb. 4. Relative Energielücke als Funktion der Temperatur.

Das ist völlig analog zu den bekannten Quantenzuständen der Elektronen im Atom, wo auch jeweils energetische Stufen zwischen den stabilen Zuständen liegen. Natürlich sind es diese Energiestufen, die Stabilität der tieferliegenden Zustände bedingen. Deshalb kann es hilfreich sein, sich eine supraleitende Struktur als ein großes "Riesenmolekül" vorzustellen, in dem die leitfähigen Elektronen alle ein gemeinsames weitausgedehntes makroskopisches Orbital (*Kondensat- Wellenfunktion*) besetzen. Weil eine quantenmechanische Wellenfunktion sowohl eine Amplitude als auch eine wohldefinierte Phase besitzt, reagiert das gesamte makroskopische Ensemble kooperativ und damit extrem sensibel gegenüber allen Störungen der gemeinsamen Phasenkohärenz. Von außen „eindringende“ Magnetfelder würden die Phase der Wellenfunktion beeinflussen und werden deshalb von

dem gesamten Elektronenensemble mit Hilfe von supraleitenden Abschirmströmen „abgewehrt“.

Weil es im “Dschungel” der ca. 10^{23} Atome und Leitungselektronen hilft, wenn man wenigstens seine Koordinaten, eine Richtung und einen Kompass hat, notieren wir im folgenden ein paar wichtige Grundtatsachen als Fixpunkte:

1. Für die Supraleitung müssen frei **bewegliche Elektronen** vorhanden sein. Supraleitung tritt deshalb nur bei **Metallen** auf.
2. Typischerweise sind es gerade die Metalle mit schlechter Normal-Leitfähigkeit, - bei denen die Elektronen stark gestreut werden - die dann bei tiefen Temperaturen gute Supraleitfähigkeit zeigen. Die **Streuung der beweglichen Elektronen am Gitter der Kristallatome** ist also wichtig. Die Schwingungen der Kristallatome, die ja ein Ladungsensemble von Kern und gebundenen Rumpfelektronen darstellen, werden durch die Phononen beschrieben. Die Phononen sind immer mit Schwingungen eines elektrostatischen Potentials verknüpft. Die dynamische Wechselwirkung von Leitungselektronen mit diesen Potentialschwingungen heißt **Elektron – Phonon – Wechselwirkung** und ist für die Kopplung von Leitungselektronen zu **Cooperpaaren** entscheidend.
3. Unterhalb einer **Sprungtemperatur** T_c verschwindet der elektrische Widerstand völlig, bei Temperaturen oberhalb T_c verschwindet dagegen die Supraleitung. Alle uns bekannten Supraleiter müssen deshalb gekühlt werden. Supraleiter bei Raumtemperatur sind leider nicht bekannt, obwohl es kein rigoroses theoretisches Argument gibt, das die Supraleitung bei Raumtemperatur verbieten würde.
4. Die maximale mögliche widerstandsfreie Suprastromdichte heißt **kritische Stromdichte**. Sie ist temperaturabhängig, steigt mit fallender Temperatur und ist oft besonders hoch für Supraleiter mit hohem T_c . Die Stromtragfähigkeit einer supraleitenden Schicht oder eines supraleitenden Drahtes ist also begrenzt - *"Widerstand Null" bedeutet keinesfalls, dass "Stromdichte unendlich" möglich wird !*
5. Bei den schon lange bekannten *konventionellen* Supraleitern ist es mit Sicherheit die Elektron – Phonon - Wechselwirkung, die für die Cooper- Paarbildung verantwortlich ist. Bei manchen komplexen Supraleitern, wie etwa dem $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, sind dagegen die Details der für die Cooperpaarbildung verantwortlichen Wechselwirkungen und die Symmetrie der Cooperpaarzustände noch Gegenstand aktueller Forschung.

6. Alle Supraleiter sind mehr oder weniger empfindlich gegen Magnetfelder. Das Wechselspiel zwischen Magnetismus und Supraleitung ist ein großes Forschungsgebiet und entsprechend gäbe es dazu überwältigend viele Details zu berichten, insbesondere auch, weil

- einerseits die Herstellung von Magnetspulen und
- andererseits die Magnetfeld-Messtechnik die beiden Hauptanwendungsgebiete der Supraleitung darstellen.

Das Verhalten der **Supraleiter im Magnetfeld** ist so charakteristisch, dass man die Supraleiter entsprechend ihrer "Magnetfeldtoleranz" klassifiziert hat.

Auch dazu hier ein paar wichtige Fakten:

- bei „ausreichend schwachen“ Feldern wird ein **Magnetfeld** durch Supraströme generell vollständig aus dem Material **verdrängt und abgeschirmt** - "**kein Magnetfeld**" im Inneren des Supraleiters. Besonders aufregend ist der **Meissner-Effekt**, siehe Kapitel 4.
- bei „extrem starken“ Feldern wird die **Supraleitung zerstört** - "**keine Supraleitung**", daher "**volles Magnetfeld**" im Inneren des Materials. Oft reicht es sogar, magnetische Momente (wie Fe-Atome) in den Supraleiter einzulegen, um die Supraleitung zu unterdrücken. Ferromagnetische Metalle werden nicht supraleitend.
- im Bereich „mittlerer Felder“ schirmen manche Supraleiter den magnetischen Fluss vollständig ab: das sind die **Supraleiter „erster Art“** (englisch: "**type I** – superconductors").
- andere Supraleiter lassen den magnetischen Fluss in Form von **Flussschläuchen** eindringen: das sind die **Supraleiter „zweiter Art“**. Fast alle Supraleiter und insbesondere alle technisch wichtigen Supraleiter sind von dieser „zweiten Art“ (englisch: "**type II** – superconductors").
- Der **eingeschlossene** magnetische Fluss wird quantisiert in Einheiten des **Flussquanten Φ_0** .

Der Betrag $\Phi_0 = h/2e = 2 \times 10^{-15} \text{ Vs}$ (e = Ladung eines Elektrons) deutet auf die Beteiligung der Cooperpaare hin. In einem einfachen Bild kann man sich veranschaulichen, dass die supraleitende Wellenfunktion weit ausgedehnt ist, gleichzeitig in sich geschlossen und eindeutig sein muss. Nur bestimmte gequantelte "Drehimpulse" des Elektronenstromes sind möglich und bewirken als Kreisströme die Flussquantelung des erzeugten Magnetfeldes. (Korrekte theoretische Darstellungen betrachten das magnetische Vektorpotential zur Berechnung der Flussquantisierung).

Eine Bemerkung zu Ladungsquantisierung und Flussquantisierung:

Die elektrische Ladung ist immer quantisiert, ihre Einheit ist die Elektronen- oder Elementarladung, $e = 1.6 \times 10^{-19}$ As. Nur die Quarks in der Elementarteilchenphysik tragen Drittel-Ladungen ($e/3$). Eine magnetische Elementarladung, etwa ein magnetischer Monopol, ist dagegen nicht nachgewiesen und scheint in der Natur nicht vorzukommen. Die Quantisierung des magnetischen Flusses ist ein vollständig anderer Effekt: nur **innerhalb** einer **geschlossenen** Schleife, die von stabilen quantenmechanischen Zuständen (Wellenfunktionen von Elektronen der Cooperpaare) gebildet wird, muss der **eingeschlossene** magnetische Fluss in Einheiten von Φ_0 gequantelt werden. Die Flussquantisierung innerhalb geschlossener Ringe wird also allein vom Supraleiter bewirkt und ist keinesfalls eine primäre Eigenschaft des externen Magnetfeldes.

- „**Harte**“ **Supraleiter** frieren magnetischen Fluss fest ein. Sie stabilisieren ihre Abschirmströme um den eingeschlossenen magnetischen Fluss besonders gut. „**Weiche**“ **Supraleiter** sind dagegen kompromissbereiter. Ihre Abschirmströme sind nicht so gut verankert. Deshalb reagieren sie auf Änderungen des äußeren Magnetfeldes und lassen den magnetischen Fluss zwar nur gequantelt, aber doch recht reversibel eindringen und geben entsprechend bei Feldabnahme die Flussschläuche auch wieder reversibel frei. $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$, kurz YBCO genannt, ist ein harter Hochtemperatur-supraleiter der zweiten Art. In YBCO werden Flussfäden überwiegend fest eingefroren. Derart in YBCO eingefangener Fluss kann oft nur dadurch wieder befreit werden, dass man den Supraleiter über T_c erwärmt - dann ist natürlich Schluss mit allen Supraleitungseffekten.

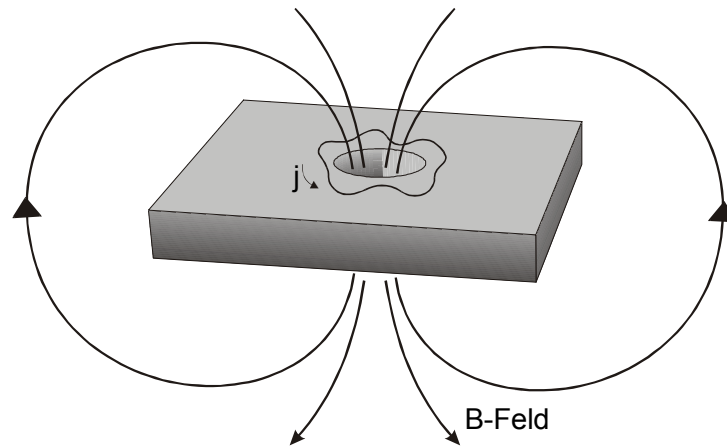


Abb. 5. Supraleitende Platte mit Loch. Der durch das Loch tretende magnetische Fluss ist quantisiert in Einheiten von Φ_0 . Dabei kann sich der Fluss aus Magnetfeldern von externen Quellen und dem Magnetfeld von supraleitenden Abschirmströmen zusammensetzen. Das Loch kann auch ein normalleitender Bereich (Materialdefekt) in der supraleitenden Schicht sein. Solange die kritische supraleitende Stromdichte nicht überschritten wird, bleibt dieser Fluss im Supraleiter gefangen ("eingefroren").

3. Was ist an der Hochtemperatursupraleitung besonders ?

Nun, zuerst einmal haben diese Supraleiter eine besonders hohe Sprungtemperatur:

- Die Verbindung $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ hat ein T_c von 93 K (Grad Kelvin, wobei gilt: der absolute Nullpunkt liegt bei 0 K, und 273 K entsprechen 0 °C). $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ kann deswegen bereits durch die Kühlung mit flüssigem Stickstoff supraleitend gemacht werden. Die Siedetemperatur von N_2 beträgt 77 K, entsprechend -196 °C. Unsere SQUIDs sind aus $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ („YBCO“ genannt) hergestellt.

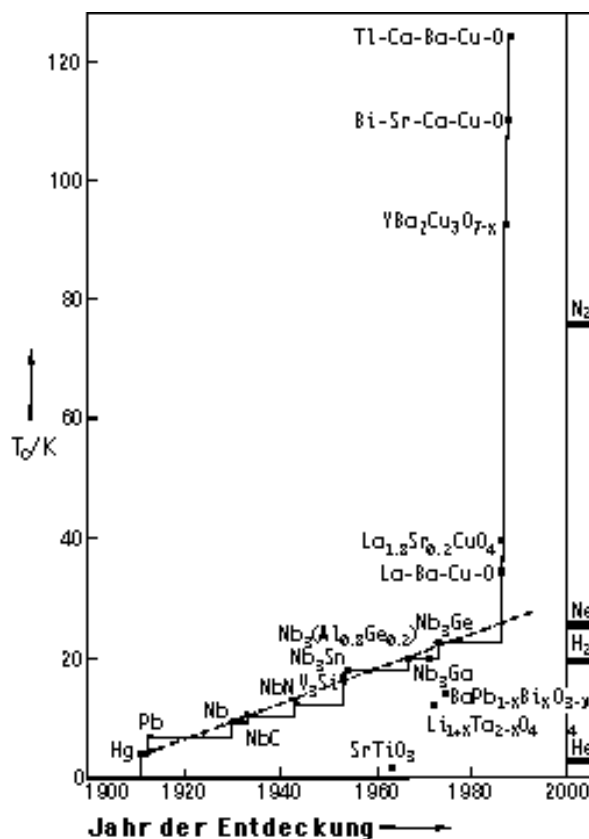


Abb. 6. Sprungtemperaturen verschiedener Supraleiter, dargestellt als zeitliche Entwicklung der höchsten, jeweils bekannten Übergangstemperaturen T_c . Zusätzlich sind am rechten Rand die Siedetemperaturen verschiedener Kühlflüssigkeiten angegeben.

- Die Verbindung $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ hat eine recht komplizierte Struktur, die in ihrem Aufbau an oxidische Keramiken mit Perowskitstruktur erinnert. Man nennt $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ deshalb „perowskitartig“. Die Perowskite enthalten ein Gerüst von geordneten Metall – Sauerstoffbindungen und sind mechanisch sehr hart und spröde. Aus diesem Grund kann man aus $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ auch keine flexiblen Drähte herstellen. Außerdem ist $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ sehr schwer mechanisch zu bearbeiten. Das ist sehr schade, denn man

kann technische Spulen eigentlich nur aus Drähten herstellen - ein böses Handicap für YBCO im Vergleich zu Nb und NbTi, den Standard- Drahtmaterialien. Allerdings müssen Nb ($T_c = 9,5 \text{ K}$) und NbTi ($T_c = 7.5 - 9.5 \text{ K}$) mit flüssigem Helium ($T = 4,2 \text{ K}$) gekühlt werden.

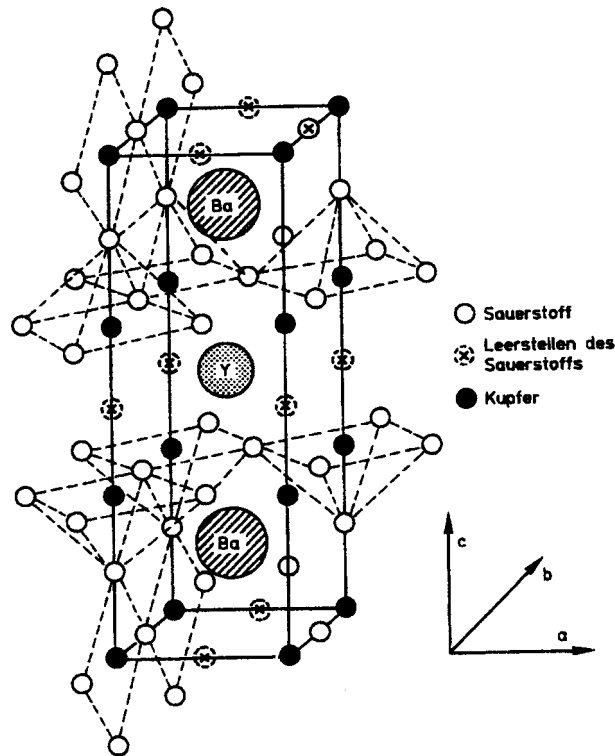


Abb. 7. Perowskitstruktur des Kristallgitters von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$.

- Die Supraleitung von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ ist abhängig von einer wohlgeordneten Kristallstruktur – wenn man nur die Komponenten Y, Ba, Cu und Sauerstoff zusammenbringt und miteinander reagieren lässt, so reicht das nicht. Das Endprodukt muss ein möglichst fehlerfreier *Einkristall* werden, um optimale Supraleitung zu zeigen. Das Ziehen eines $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ - Einkristalls ist überaus kompliziert und entsprechend kostspielig. Glücklicherweise benötigen SQUIDS keine Volumenkristalle, sondern können aus *dünnen Schichten* hergestellt werden. Bei der Herstellung der $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ -SQUIDS benutzt man deshalb *dünne einkristalline „epitaktische“ Schichten*.
- Supraleitendes $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ wird am besten mit Hilfe der Dünnschichttechnik hergestellt. Es sind besonders die gepulste Laserdeposition (PLD) und die Sputterverfahren zu nennen. Im Falle unserer SQUIDS wird eine $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ -Schicht von ca. 200 nm Stärke auf einem einkristallinen Substrat von LaAlO_3 bei etwa 800°C aufgewachsen.

- Obwohl YBCO sehr hart und spröde ist, kann man die 200 nm dünne YBCO -Schicht auf dem LaAlO_3 – Substrat gut mit Hilfe lithographisch definierter Lackmasken und nasschemischer Ätzprozesse strukturieren. Auf diese Weise werden unsere YBCO – SQUIDs hergestellt.
- Leider ist YBCO sehr empfindlich gegen Wasser. Deshalb sind unsere YBCO -SQUIDs gut geschützt und gekapselt, denn Kondenswasser an der Oberfläche korrodiert die 0,2 μm dünnen Filme sehr schnell und zerstört damit die SQUIDs.

4. Der Meissner- Effekt

Die Entdeckung des Meissner- Effektes war eine sehr große Überraschung. Jedem Physiker ist klar, dass ein perfekter widerstandsloser Leiter ein extern angelegtes Magnetfeld nicht eindringen lässt, weil er nach der Lenz'schen Regel Wirbelströme anwirft, die der Erregung entgegenwirken (So erklärt man auch den Diamagnetismus der Atome). Nun zu der erstaunlichen Beobachtung:

- Wenn man oberhalb T_c ein Magnetfeld an ein supraleitendes Material anlegt, so durchdringt das Feld den bei diesen Temperaturen noch normalleitenden Supraleiter. Wenn man nun das Material in dem Magnetfeld belässt und abkühlt, so wirft der Supraleiter bei T_c „spontane“ **Abschirmströme** an, die dann das Magnetfeld kompensieren und es aus dem Inneren des Supraleiters verdrängen. Das ist der „**Meissner- Effekt** “. Man könnte denken: "Der Supraleiter wehrt sich gegen das Feld und ergreift aktiv Gegenmaßnahmen..." "

In Abb. 8a ist ein supraleitendes Material im normalleitenden Zustand dargestellt, dessen Temperatur noch oberhalb der Sprungtemperatur T_c liegt, wobei ein äußeres Magnetfeld der Größe $B_{ext} < B_c$ anliegt. Die Feldlinien können den Supraleiter problemlos durchdringen.

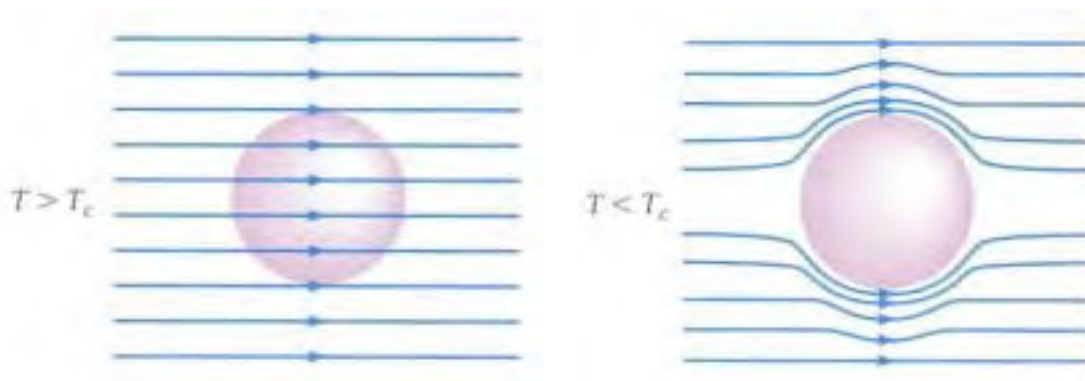


Abb. 8. (a) normalleitender Zustand eines Supraleiters, $B_{ext} > B_c$.

(b) Supraleitender Zustand mit $B_{ext} < B_c$.

Senkt man die Temperatur unter die Sprungtemperatur T_c , so geht das Material in den supraleitenden Zustand über, und es entsteht der im Abb. 8b dargestellte Feldlinienverlauf. Die physikalische Ursache für diesen Effekt ist in dem starken Einfluss des Vektorpotentials eines Magnetfeldes auf die Phase der supraleitenden Wellenfunktion zu suchen. Es ist nicht möglich, ein beliebiges Magnetfeld innerhalb der Kondensat- Wellenfunktion zu tolerieren. Eine Ausnahme jedoch ist möglich:

- Wenn der magnetische Fluss so quantisiert ist, dass die supraleitende Wellenfunktion genau um 2π in ihrer Phase moduliert wird, dann kann weiterhin eine geschlossene supraleitende Wegstrecke um den magnetischen Fluss herum verlaufen, ohne die Stabilität des supraleitenden Zustandes zu verringern. Das wurde bereits in Abb. 5 dargestellt.

Wir fassen die "Fixpunkte" bezüglich der Magnetfelder noch einmal zusammen:

- Supraleiter wollen primär das Magnetfeld aus ihrem Inneren verdrängen.
- Wenn die Geometrie die vollständige Verdrängung nicht zulässt, weil die Abschirmströme zu groß würden, oder weil normalleitende Einschlüsse oder gar Löcher im Supraleiter vorhanden sind, dann wirft der Supraleiter Ströme an, die dazu führen, dass das Feld aus dem Material möglichst weitgehend verdrängt wird und dass der in den Löchern eingeschlossene Fluss quantisiert wird.
- Wenn es gar nicht anders geht, lässt der Supraleiter den Fluss auch in sein Inneres eindringen und toleriert eventuell sogar ein Flussfadengitter aus quantisiertem Fluss in seinem Inneren. Dort, wo die Flussfäden verlaufen, ist das supraleitende Material lokal normalleitend. Andererseits bieten sich Defekte, Löcher, normalleitende Ausscheidungen, Materialfehler und Schwachstellen an, um den Fluss dorthin zu verdrängen. Durch diesen Prozess wird die Gesamtenergie minimiert und die Supraleitung möglichst wenig beeinträchtigt. Dieses Verhalten ist besonders charakteristisch für Supraleiter „zweiter Art“. Wenn sich Flusslinien an den Defekten gut verankern können, sind die Supraleiter für hohe Magnetfeldanwendungen geeignet. Man nennt diese Supraleiter dann harte Supraleiter (Wichtig für Magnetspulen).

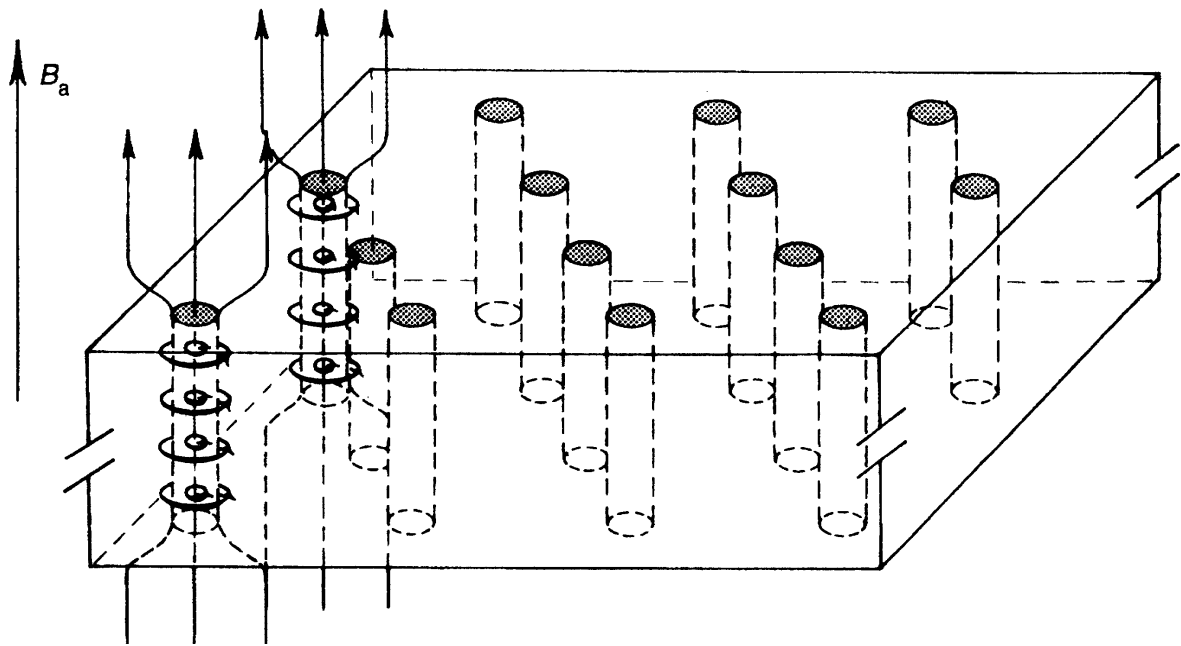


Abb. 9. Flussfadengitter in einem Typ II - Supraleiter.

- Supraleiter „erster Art“ sind relativ selten. Sie bestehen aus reinen Elementen, haben ein niedriges T_c und eine relativ große Kohärenzlänge, so dass die Bildung von Flussfadengittern nicht möglich ist.
- Supraleitende Legierungen und auch die Hoch- T_c - Supraleiter sind „zweiter Art“. Unser YBCO ist so ein Supraleiter, der sehr leicht Flussfäden einfriert. Beim Betrieb eines SQUID kann es geschehen, dass eine Menge Flussfäden eingefroren werden, weil vorübergehend ein zu hohes Magnetfeld wirksam war. Eingefrorene Flussfäden hängen danach an den Haftstellen fest und werden nicht wieder frei gegeben. Das führt zu einem hohen Rauschpegel am SQUID. Dann hilft nur eines: den SQUID über T_c aufwärmen und den Fluss wieder in die Freiheit entlassen... (Dieser Prozess impliziert natürlich, dass das hohe magnetische Störfeld zuerst abgeschaltet oder abgeschirmt wird)

5. Die Josephson – Effekte

Die Josephson – Effekte sind eine weitere Konsequenz der makroskopischen Quantenzustände, die den supraleitenden Zustand beschreiben (Wir erinnern uns, dass die Flussquantisierung, der Meissner- Effekt und insgesamt das Verhalten der Supraleiter im Magnetfeld durch die ausgedehnte „makroskopische“ quantenmechanische Wellenfunktion regiert wurde). Die Josephson effekte scheinen sehr ungewöhnlich und unanschaulich zu sein. Aus der Warte der Quantentheorie dagegen sind sie völlig einleuchtend. Sie bilden ein wunderbares Beispiel dafür, dass die Supraleitung ein makroskopischer Quantenzustand ist, der durch die Quantentheorie richtig beschrieben wird.

- Wenn zwei Supraleiter nur durch eine sehr dünne isolierende Barriere oder durch eine Schwachstelle (punktuell) verbunden sind, so verhalten sie sich wie zwei gekoppelte schwingungsfähige Systeme, die Cooperpaare austauschen können. Diese Cooper-Paare bewirken den **Josephson-Gleichstrom**. Die Richtung und Stärke des Cooperpaarstromes hängt direkt von der relativen Phasendifferenz der supraleitenden Wellenfunktionen ψ auf beiden Seiten der Schwachstelle ab - { In der Quantenmechanik ist besonders der Gradient der Phase von ψ für den Strom verantwortlich. Der Strom wird nämlich durch $j = ie\hbar/4\pi m(\psi^*\text{grad}\psi - \psi\text{grad}\psi^*)$ beschrieben} - . Weil die Phase und das von einer Wellenfunktion umschlossene Magnetfeld so eng verknüpft sind, kann der Josephson – Tunnelstrom sehr empfindlich durch ein externes Feld beeinflusst werden.

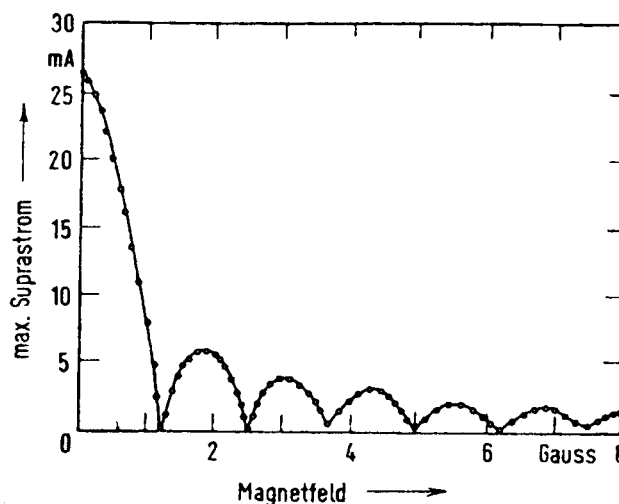


Abb. 10. Modulation des Josephson - Gleichstromes durch ein externes Magnetfeld.

- Für das Verständnis der Funktion eines SQUIDs muss man die Josephson – Effekte nicht unbedingt heranziehen. Wir können uns im folgenden darauf beschränken,

ausschließlich mit der Kohärenz der makroskopischen Wellenfunktion und der Quantisierung des eingeschlossenen Flusses zu argumentieren.

- Zusätzlich tritt neben dem Josephson – Gleichstrom noch ein hochfrequenter Wechselstrom der Frequenz ν auf, wenn über dem Kontakt eine Spannung U angelegt wird.

Für diesen **Josephson - Wechselstrom** gilt: $h \nu = 2 e U$ (e : Elektronenladung).

Auch hier deutet die charakteristische Ladung $2e$ auf die Existenz der Cooperpaare hin.

Die emittierte Frequenz ist sehr hoch: 1 mV Spannungsdifferenz entspricht 484 GHz.

Inzwischen wird bei den staatlichen Bewahrern der fundamentalen Größen (Normalen) wie der Physikalisch- Technischen Bundesanstalt das Volt mit Hilfe von synchronisierten Josephsonkontakten und einer Frequenzbestimmung realisiert, so dass das Spannungsnormale nicht mehr auf eine elektrochemische Zelle, sondern auf eine hochpräzise Frequenzmessung zurückgeführt werden kann.

6. Was ist ein SQUID ?

Squid ist das englische Wort für Tintenfisch, aber unser SQUID ist kein Tintenfisch, sondern ein Superconducting QUantum Interference Device, hergestellt zum Beispiel aus YBCO. Jedes SQUID besteht aus einer makroskopischen geschlossenen supraleitenden Schleife mit einer Schwachstelle, dem „weak link“. Im supraleitenden Zustand ist jedweder Fluss innerhalb der Schleife eingefangen – und wird vom Supraleiter zusätzlich durch einen Suprastrom auf ein ganzzahliges Fluxoid Φ_0 auf- oder abgerundet:

$$\Phi_{\text{innen, gesamt}} = n \Phi_0 = \Phi_{\text{extern}} + L i_{\text{supra}} \quad (1)$$

Dabei ist L die Induktivität des Ringes. Bei einer typischen effektiven Ringfläche von $0,2 \text{ mm}^2$ braucht es einen Strom von $13 \text{ }\mu\text{A}$, um einen Fluss der Stärke Φ_0 zu erzeugen – oder anders: Ändert sich das externe Magnetfeld nur um etwa 1 nT , so muss bereits ein Abschirmstrom von $1,3 \text{ }\mu\text{A}$ fließen ($\text{nT} = \text{Nanotesla}$, das Erdmagnetfeld beträgt etwa $1 \text{ Gauß} = 100 \text{ }\mu\text{T} = 100\,000 \text{ nT}$).

Es ist nützlich, sich daran zu erinnern, dass nach der Bohr- Sommerfeld'schen Quantentheorie die Orbitale des Wasserstoffatoms durch genau dieselbe Flussquantisierung beschrieben werden – nur ist für Φ_0 der Wert $2e$ durch $1e$ zu ersetzen. Allerdings ist die wirksame Querschnittsfläche eines Einzelatoms sehr klein, so dass der entsprechende Diamagnetismus nicht signifikant ist. Aber das riesige supraleitende Orbital reagiert extrem sensibel auf externe Magnetfelder. Ein paar Zahlen sind hilfreich: Das Erdmagnetfeld beträgt etwa $1 \text{ Gauß} = 10^{-4} \text{ Vs/m}^2$ (Tesla). Das Flussquantum Φ_0 hat einen Wert von $2 \cdot 10^{-15} \text{ Vs} = 2 \cdot 10^{-7} \text{ Gauss}\cdot\text{cm}^2$. Damit erzeugt das Erdfeld über einer Fläche von $2 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^2 = 20 \text{ }\mu\text{m}^2$ einen Magnetfluss, der einem Flussquantum entspricht. Wir werden sehen, dass unsere SQUIDs bei einer effektiven Querschnittsfläche von $0,2 \text{ mm}^2$ magnetische Signale bis in den Bereich 10^{-11} Tesla (10^{-7} Gauß) nachweisen können.

Ändert sich Φ_{extern} , so wird der Supraleiter durch eine Änderung von i_{supra} diese Änderung vollständig kompensieren. Der Supraleiter möchte den Gesamtfluss konstant halten, aber nun kommt aber die eingebaute Schwachstelle ins Spiel. Ein typisches weak link hat eine Querschnittsfläche von $0,2 \times 3 \text{ }\mu\text{m}^2$, so dass ein Strom von 1 mA bereits zu einer Stromdichte von $1,7 \times 10^5 \text{ A/cm}^2$ führt.

Allerdings ist es bei unseren YBCO- SQUIDs nicht der durch die lithographische Strukturierung erzeugte Brückenquerschnitt, sondern es sind die vier Korngrenzen an den Stufen innerhalb der Brücke, die als begrenzende weak links wirken, weil sie einen maximalen Suprastrom i_c von ca. 10 μA tragen können.

Unsere YBCO- SQUIDs sind so hergestellt, dass der maximale Strom durch die Korngrenze soweit begrenzt wird, dass nur 1 Flussquant abgeschirmt werden kann. Ist die externe Flussänderung größer als ein Flussquant, bricht die Supraleitung am weak link wegen Überschreitung der kritischen Stromdichte lokal zusammen und ein Flussquant kann an dieser Stelle in den supraleitenden Ring eindringen (oder ihn verlassen, wenn das externe Feld geringer wurde). Dieser Übergang erfolgt blitzschnell, ist aber mit deutlicher Energiedissipation verbunden, weil die Brücke resistiv wird und der Suprastrom i_c völlig zur Erzeugung Joule'scher Wärme verbraucht wird.

Wir halten damit fest:

Ein SQUID besteht aus einer supraleitenden Schleife mit einer Schwachstelle, der junction. Die junction hat eine begrenzte Stromtragfähigkeit und kann bei zu großen externen Flussänderungen kurzzeitig resistiv werden. Der Suprastrom wird dabei unterbrochen, Wärme wird erzeugt. Dieser dissipative Prozess kann in einem Resonanzschwingkreis extrem empfindlich nachgewiesen werden, wie im weiteren erläutert wird.



Abb. 11. dc-SQUID (links) mit zwei Schwachstellen und zwei Kontaktpads für die Leitungen zum Messgerät (galvanische Kopplung). rf- SQUID (rechts) mit nur einer Schwachstelle, ohne galvanische Kopplung: ein rf-SQUID wird induktiv ausgelesen.

Hier noch der Vollständigkeit halber ein technisches Detail: Wenn man den Zusammenbruch der Supraleitung mit einer Gleichstrommethode (engl.: "dc") nachweisen will, muss der Ring **zwei** Schwachstellen und zwei elektrische Kontaktpunkte besitzen. Der supraleitende Sensor (der Ring) wird dann mit zwei Kabeln direkt am Messgerät angeschlossen. So wird ein dc-SQUID hergestellt und eingesetzt. Der Wechselstrom-SQUID ("rf-SQUID") benötigt dagegen nur **eine** Schwachstelle und ist ausschließlich induktiv gekoppelt. Für alle SQUIDs gilt, dass die junctions sehr empfindlich sind und durch einen Strompuls (statische Entladung) zerstört werden können (Das ist ähnlich wie bei hochempfindlichen

Feldeffekttransistoren, wo das Isolationsoxid leicht "durchschossen" wird). Konstruktionsbedingt können verkapselte rf - SQUIDs nicht durch statische Entladungen erreicht werden und sind deshalb viel robuster als dc - SQUIDs. Die JSQ-Sensoren sind ausschließlich rf-SQUIDs.

7. Wie wird ein SQUID hergestellt ?

1.Schritt: In ein einkristallines LaAlO_3 - Scheibchen der Orientierung (100) von $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$ wird ein Graben eingetätzt. Dieser Prozess erfolgt mit Hilfe einer lithographischen Maske und mit Ionenstrahlätzen. Der Graben wird später eine Schwachstelle in der supraleitenden Schicht bewirken. Die Lithographie (Belacken, Belichten, Entwickeln, Ionenstrahlätzen, Entfernen der Maske) erfolgt im Reinraum.

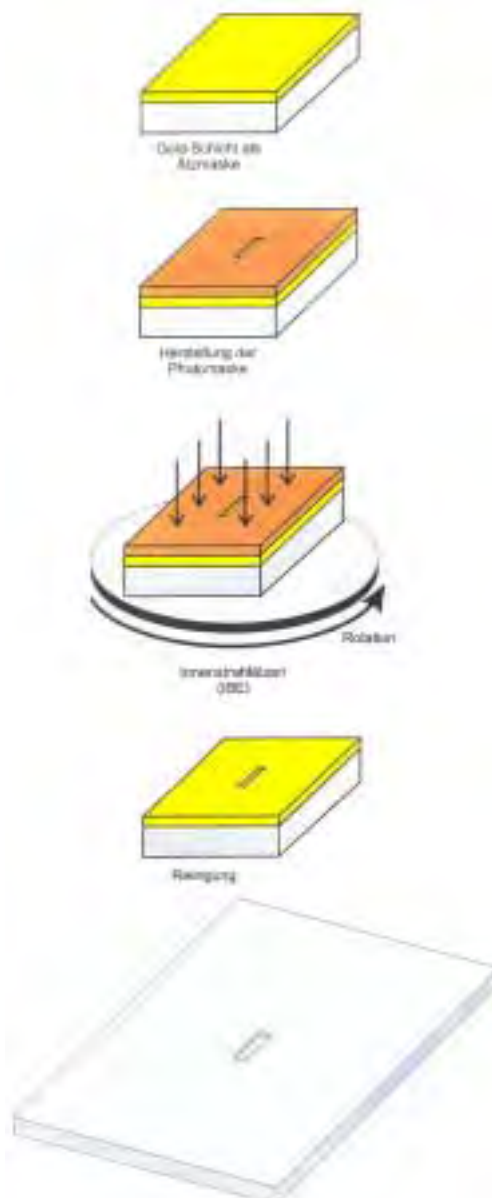


Abb. 12. Die lithographische Strukturierung.

2.Schritt: Auf dem vorbereiteten LaAlO_3 - Substrat wird eine epitaktische Schicht von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ aufgewachsen. Unsere rf - SQUIDS werden mit Hilfe der Laserdeposition hergestellt, siehe Abb. 13. Das Material wird von einem polykristallinen stöchiometrischen $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ -Sinterblock mit Hilfe hochenergetischer Laserpulse abgetragen und schlägt sich auf einem geheizten Substrat nieder. Dort wächst es als einkristalliner Film auf. Wichtig ist auch, dass der Sauerstoffanteil O_{7-x} möglichst hoch wird. Deshalb werden die Schichten abschließend bei der Wachstumstemperatur durch Fluten der Epitaxiekammer mit Sauerstoff vollständig durchoxidiert. Die Stöchiometrie liegt dann nahe bei O_7 . Das eingesetzte Substrat ist ein einkristallines Oxidmaterial: LaAlO_3 in (100)- Orientierung. Es werden rechteckige Scheibchen von $10 \times 10 \times 1 \text{ mm}^3$ Größe verwandt, die aus einem großen LaAlO_3 Kristall herausgeschnitten wurden. LaAlO_3 ist ein Isolator, hat die passenden Gitterkonstanten für die Epitaxie von $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ und hat günstige Hochfrequenzeigenschaften.

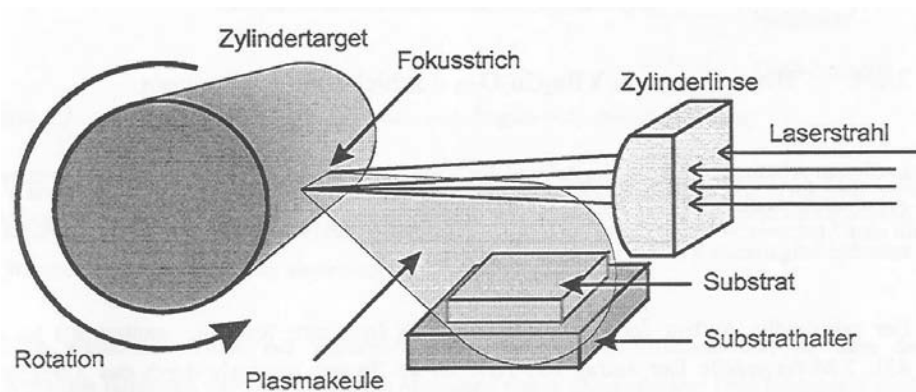


Abb. 13. Schematische Darstellung der Epitaxie von YBCO mit Hilfe der PLD. Der Laser trägt das Material ab, YBCO wächst wohlgeordnet auf dem geheizten Substrat auf.

Alle Störungen in der Schichtstruktur des $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ stellen deutliche Schwachstellen der Supraleitung dar. Bei $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ sind insbesondere bereits Korngrenzen im Kristallgefüge solche Schwachstellen. Für unsere $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ - SQUIDS werden wohldefinierte Korngrenzen dadurch erzeugt, dass man in das LaAlO_3 - Substrat bereits vor der Deposition des YBCO einen winzigen Graben von $6 \mu\text{m}$ Breite und $0,25 \mu\text{m}$ Tiefe einätzt. Obwohl nach der Deposition eine vollständig zusammenhängende YBCO - Schicht diesen Graben überquert, ist die maximale Stromdichte durch die Knicke in der YBCO -Schicht an den Grabenkanten deutlich herabgesetzt. Bei einem betriebsfertigen SQUID wird die „YBCO - Strasse“, die wie eine Furt den Graben durchquert, zusätzlich durch einen Ätzprozess verschmälert. Sie ist dann nur noch $3 \mu\text{m}$ breit. Die Schicht ist epitaktisch wohlgeordnet, 200

nm dick und an der Stelle des vorbereiteten Grabens wegen der kristallographischen Korngrenzen bereits in ihrer Stromtragfähigkeit kontrolliert geschwächt.

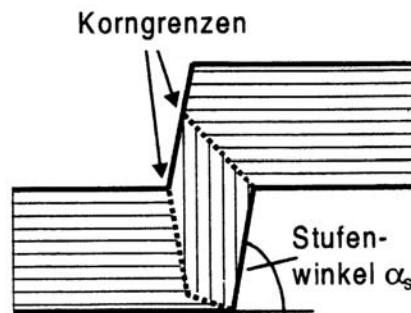


Abb. 14. Korngrenze in einer epitaktischen Schicht an der Grabenstufe. An der Korngrenze ist die supraleitende Stromtragfähigkeit geschwächt.

3. Schritt: Der SQUID wird strukturiert. Wieder wird belackt, belichtet, entwickelt, dann chemisch geätzt. Nach Entfernen der Maske ist der SQUID fertig:



Abb. 15. Foto eines JSQ-rf-SQUID aus YBCO.

4. Schritt: Zur elektrischen Ansteuerung ist noch ein induktiv gekoppelter Schwingkreis nötig. Dieser kann mit einer kleinen Spule oder aber mit einem Substratresonator realisiert werden. Der Substratresonator wirkt dabei zusätzlich auch als Fokussierelement für den externen magnetischen Fluss.

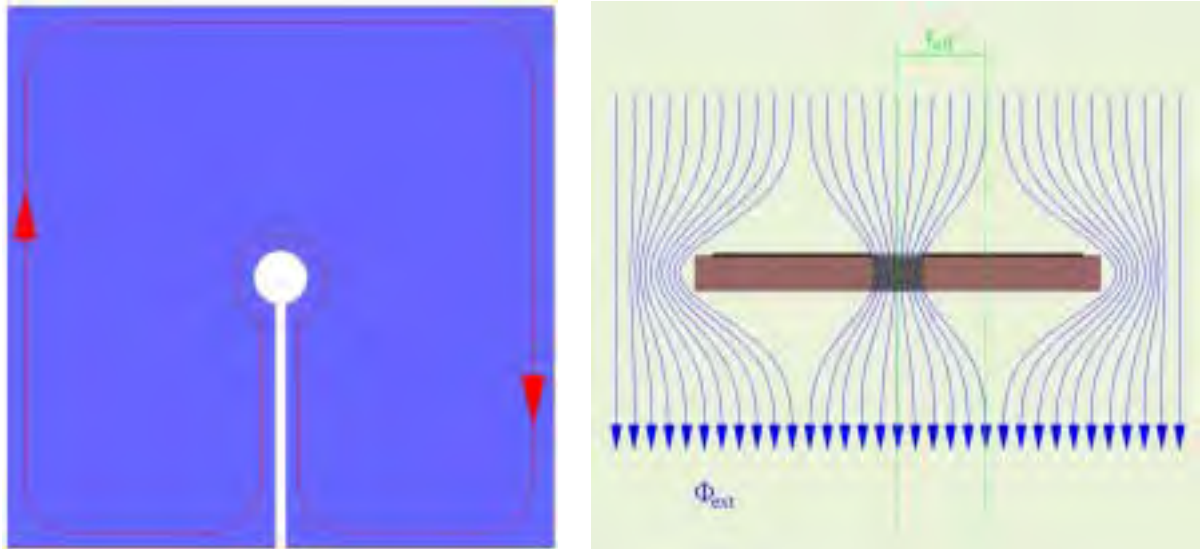


Abb. 16. Abbildung eines Substratresonators. In diesem Resonator erzeugt die Hochfrequenz ein Strom- Schwingungsmuster, das analog zu einer Schwingkreis-Spule ein Magnetfeld in den SQUID einkoppelt. Zusätzlich wirkt der Substratresonator flussfokussierend.

8. Wie funktioniert ein rf-SQUID ?

Ein rf-SQUID wird mit einem hochfrequenten Wechselfeld betrieben. Die Frequenz liegt dabei im Bereich von einigen 100 MHz bis 1 GHz.

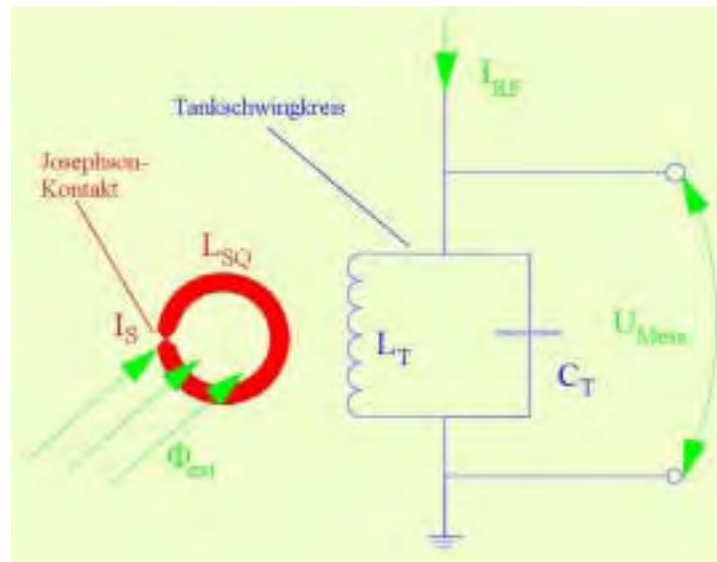


Abb. 17. Elektrische Ansteuerung eines rf-SQUID

Der sogenannte Tank - Schwingkreis (in Abb. 17 blau dargestellt) ist induktiv mit der einwindigen SQUID- Schleife gekoppelt. Man kann deshalb über die externe Leitung sowohl statische wie auch Wechselfelder in die SQUID- Schleife einkoppeln. Die Messung der Schwingkreis- Amplitude U ist dabei eine wesentliche Größe, die die externe Elektronik zur Bestimmung des Messsignals ausnutzt.

Als erstes muss die Flussquantisierung im SQUID- Ring betrachtet werden:

Die Flussquantisierungsbedingung fordert in einem supraleitenden Ring eine ganzzahlige Anzahl von Flussquanten. Ein eventueller Fehlbetrag zu dem Fluss, der vom externen Magnetfeld stammt, wird instantan durch einen Suprastrom I_S im Ring ausgeglichen. Der Suprastrom I_S muss natürlich durch die Schwachstelle des SQUID fließen.

Der Schwingkreis wird nun über einen Wechselstrom mit der Amplitude I_{rf} und seiner Resonanzfrequenz (100 MHz - 1 GHz) angeregt. Im SQUID wird über die Koppelinduktivität M_G des Schwingkreises ein magnetischer Wechselfluss der Größe:

$$\Phi_{rf} = M_G \cdot Q \cdot I_{rf} \cdot \sin(\omega_0 \cdot t) \quad (2)$$

erzeugt, der sich dem externen Fluss überlagert. Dabei ist Q die Güte des Gesamtsystems und der Strom in der Spule ist um Q gegenüber dem Einspeisestrom I_{rf} überhöht:

$$Q = \frac{R_T}{\omega_0 \cdot L_T} \quad (3)$$

M_G , die sogenannte Gegeninduktivität des Schwingkreises, kann man durch

$$M_G = k \cdot \sqrt{L_{SQ} \cdot L_T} \quad (4)$$

darstellen. Sie hängt direkt von der Geometrie des SQUID-Lochs, der Spule und der relativen Positionierung ab. k ist eine Koppelkonstante, L_{SQ} bzw. L_T sind die Induktivitäten des SQUID bzw. die des Tankschwingkreises, R_T ist der elektrische Widerstand des Tankschwingkreises und ω_0 dessen Resonanzfrequenz.

Wird die Amplitude der Schwingkreisspannung aufgenommen (vom Erregersignal I_{rf} durch Demodulation getrennt), so erhält man das Messsignal ΔU_{Mess} .

Es soll nun der Messprozess bei Einsatz eines rf-SQUIDs veranschaulicht werden. Der SQUID wird bei der Herstellung so dimensioniert, dass er ungefähr ein Flussquant Φ_0 im Ring kompensieren kann, bevor sein kritischer Strom I_c erreicht ist.

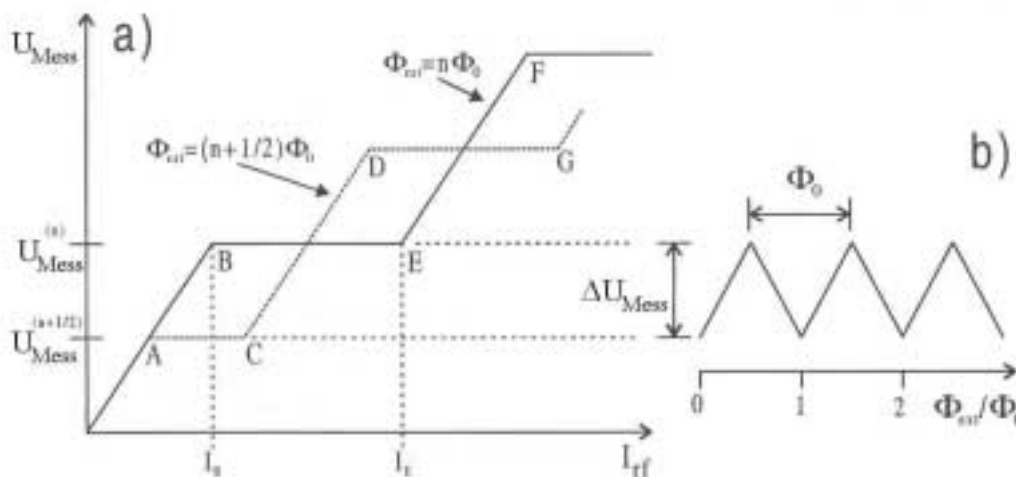


Abb. 18. (a) Abhängigkeit der über den Tankschwingkreis abfallenden Spannung \hat{U}_{Mess} vom Pumpstrom I_{rf} für die Quantenzustände $\Phi_{ext} = n\Phi_0$ und $\Phi_{ext} = (n+1/2)\Phi_0$.
(b) Fluss zu Spannungs-Transferfunktion eines rf-SQUID.

Wir betrachten zunächst den Fall $\Phi_{ext} = n\Phi_0$. Dabei befinden sich, durch das externe Feld bedingt, n Flussquanten im supraleitendem Ring. Wenn zusätzlich ein Wechselfeld im

Tankkreis erregt wird, muss der SQUID nur dieses Wechselfeld abschirmen (kompensieren). Solange der Suprastrom I_s , der durch den Wechselfluss Φ_{rf} induziert wird, den kritischen Strom I_c nicht überschreitet, steigt die Spannungsamplitude U_{mess} an der Koppelspule linear mit dem Pumpstrom I_{rf} an (Abb. 18), weil der Tankschwingkreis durch den vollständig supraleitenden SQUID nicht bedämpft wird. Wird im SQUID der kritische Strom I_c und damit der maximale Fluss Φ_c erreicht (Punkt B in Abb. 18), erreicht auch die Spannungsamplitude im Tankkreis ein Limit:

$$U_c = \frac{\omega_0 \cdot L_T}{M} \cdot \Phi_c . \quad (5)$$

Ab dieser Schwelle findet im SQUID ein Flussquantensprung vom Zustand n in den Zustand $(n + 1)$ oder $(n - 1)$ statt. Dieser Prozess ist mit Dissipation verknüpft, weil der Supraleiter lokal normalleitend wird. Dabei wird dem Tankschwingkreis erheblich Energie entzogen: der Energieentzug ΔE beträgt in etwa $\Delta E = I_c \times \Phi_0$. In einem richtig dimensionierten Spulenaufbau ist ΔE auch vergleichbar der im Tankschwingkreis gespeicherten Energie. Das führt dazu, dass die Amplitude im Tankschwingkreis sofort drastisch absinkt. Anschließend muss die Energie vom externen Oszillator über mehrere Perioden hin nachgeliefert werden, bis sich schließlich die Spannung wieder auf U_c erholt hat. Die mittlere Maximalenergie im Tankkreis und damit die gemittelte Amplitude U_{mess} wird durch die scharfe Einsatzschwelle des Dissipationsprozesses im SQUID effektiv begrenzt und steigt für einen weiten Bereich von I_{rf} nicht weiter an. Erhöht man innerhalb dieses Bereiches den Pumpstrom I_{rf} , steigt nur die Häufigkeit der Flussquantensprünge und damit der mittlere Energieentzug aus dem Tankschwingkreis weiter an. Mit anderen Worten: die energiedissipierenden hysteretischen Flusssprünge folgen immer schneller aufeinander. **Dabei bleibt die mittlere, am Tankschwingkreis abfallende Spannung U_{mess} konstant, und es bildet sich das Plateau (B-E) aus.** Die Obergrenze für diesen Prozess ist erreicht, wenn der Pumpstrom so stark ist, dass mit *jeder* Hochfrequenzperiode ein Flussquantensprung induziert wird. Das ist bei einem Pumpstrom von I_E der Fall. Steigert man den Strom I_{rf} nochmals weiter, so bleibt dieser Zustand hoher konstanter Dissipation (1 ΔE pro Periode) erhalten, ist aber vorerst gesättigt. Jetzt kann die Tankkreisamplitude linear weiter ansteigen, bis schließlich sogar zwei Flussquanten zur Dissipation beitragen (E-F). Am Punkt F bildet sich analog das nächste Plateau aus. **Soweit die Betrachtung für den Fall $\Phi_{ext} = n\Phi_0$**

Nun betrachten wir den Fall $\Phi_{\text{ext}} = (n + \frac{1}{2})\Phi_0$:

In diesem Fall ist ein **maximaler Abschirmstrom** zur Einhaltung der Flussquantisierungsbedingung notwendig. Da in diesem Fall im SQUID bereits ein Abschirmstrom I_S für die Flussdifferenz $\Delta\Phi = \Phi_{\text{ext}} - \Phi_i = \frac{\Phi_0}{2}$ auftreten muss, wird im Josephson-Kontakt der kritische Strom I_C bereits bei niedrigerem Pumpstrom erreicht. Deswegen bildet sich schon bei $\Phi_{\text{ext}} = \left(n + \frac{1}{2}\right) \cdot \Phi_0$ ein Plateau aus. **Der kritische Strom wird früher überschritten** und für die am Tankschwingkreis abfallende Spannung gilt:

$$\hat{U}_{\text{Mess}}^{(n+\frac{1}{2})} = \frac{\omega_0 \cdot L_T}{M} \cdot \left(\Phi_C - \frac{1}{2} \cdot \Phi_0 \right). \quad (6)$$

Der weitere Verlauf ist analog zum Fall $\Phi_{\text{ext}} = n \cdot \Phi_0$.

Damit haben wir für die beiden Extremfälle des Abschirmstromes den Verlauf der Tankkreisamplitude betrachtet. Alle anderen Werte des externen Flusses bedingen Abschirmströme, die zwischen diesen Extrema liegen. Diese Beobachtung ist von hoher Bedeutung:

Für eine zweckmäßig auf einen Wert knapp oberhalb I_B eingestellte Erregungsstromstärke I_{rf} bewegt sich die am Tankschwingkreis abgreifbare mittlere Spannungsamplitude zwischen $U_{\text{mess}}^{(n)}$ und $U_{\text{mess}}^{(n+1/2)}$. Dabei hängt der Wert von U_B vom externen Fluss Φ_{ext} ab.

Dieser Zusammenhang beschreibt die direkte Sensorcharakteristik des SQUID. Die zugehörige Fluss-zu-Spannungs – Transfer – Funktion ist in Abb. 18b dargestellt. Obwohl die Form der Transferfunktion von den elektrotechnischen Details des Sensors und der rf-Anordnung abhängt, **ist sie in jedem Falle exakt periodisch in Φ_0 .**

Bei den meisten JSQ- rf- SQUIDs wird der Tankkreis mit einer Frequenz von ca. 1 GHz betrieben. Wenn die externen, zu messenden Magnetfelder deutlich langsamer variieren, was in der Praxis fast immer der Fall ist, können wir deren Verhalten als quasi-statisch betrachten. Die oben genannten Argumente sind gültig.

Hält man also für den Messmodus den Pumpstrom konstant auf einem optimierten Wert nahe I_B und steigt der externe Fluss an, so hat man ein Signal zwischen den Extrempunkten

$\Phi_{ext} = n \cdot \Phi_0$ und $\Phi_{ext} = \left(n + \frac{1}{2}\right) \cdot \Phi_0$, entsprechend einer maximalen Flussänderung von Φ_0

/2. Die Spannungsamplitude ΔU_{Mess} ergibt sich zu:

$$\Delta U_{Mess} = \hat{U}_{Mess}^{(n)} - \hat{U}_{Mess}^{\left(n+\frac{1}{2}\right)} = \frac{\omega_0 \cdot L_T \cdot \Phi_0}{2 \cdot M_G}. \quad (7)$$

Um mit einem SQUID kleinste Flussänderungen messen zu können, sollte die Spannungsamplitude ΔU_{Mess} möglichst groß sein. Diese wird maximal, wenn der SQUID im Bereich des ersten Plateaus betrieben wird, also zwischen den Punkten B und C in Abb. 18.

Der Transferkoeffizient $\frac{\partial \hat{U}_{Mess}}{\partial \Phi_{ext}}$ ist die Steigung der Transferfunktion und

charakterisiert den SQUID als Fluss-zu-Spannungswandler:

$$\frac{\partial \hat{U}_{Mess}}{\partial \Phi_{ext}} = \frac{\Delta U_{Mess}}{\frac{\Phi_0}{2}} = \frac{\omega_0 \cdot L_T}{M} = \frac{\omega_0}{k} \cdot \sqrt{\frac{L_T}{L_{SQ}}}. \quad (8)$$

Man könnte vermuten, dass durch starke Reduzierung der Koppelkonstanten k zwischen SQUID und Tankschwingkreis die Spannungsamplitude ΔU_{Mess} beliebig erhöht werden könnte. Um jedoch eine Maximalspannung zu erreichen, muss die Koppelbedingung:

$$k^2 \cdot Q \geq 1 \quad (9)$$

erfüllt sein. Um letztendlich eine große Signalamplitude mit optimalem Signal-Rausch-Verhältnis erreichen zu können, muss die Güte Q des Tankschwingkreises erhöht werden. Weiterhin ist der Transferkoeffizient direkt mit dem Spannungsrauschen S_U und dem Flussrauschen S_Φ verknüpft:

$$S_\Phi = \frac{S_U}{\frac{\partial \hat{U}_{Mess}}{\partial \Phi_{ext}}}. \quad (10)$$

Damit wird deutlich, dass eine große Signalamplitude bzw. ein großer Transferkoeffizient zu einem niedrigem Flussrauschen führen.

Weil wir nun am Ziel sind, was den Betrieb des eigentlichen SQUID- Sensor betrifft, fassen wir unsere Erkenntnisse noch einmal kurz zusammen:

1. Die SQUID- Schleife wird über eine Koppelspule und den externen Oszillator mit der Frequenz von 1 GHz "getestet", indem dissipative (hysteretische) Flusssprünge erzeugt werden.
2. Die dabei am Tankschwingkreis messbare Amplitude hängt vom externen Magnetfeld ab: Die maximale Amplitude wird beobachtet, wenn bedingt durch das externe Magnetfeld ganzzahlige Flussquanten im Ring vorliegen, weil dann kein kompensierender Ringstrom in der SQUID- Schleife fließen muss. Die minimale Amplitude ergibt sich, wenn der Ringstrom im SQUID einen Maximalwert hat, weil $\frac{1}{2}$ Flussquant kompensiert werden muss. Mehr als ein halbes Flussquant muss niemals kompensiert werden, um auf einen ganzzahligen Wert zu kommen.
3. Der SQUID arbeitet damit als "Fluss - zu - Spannungs - Konverter", wobei seine Kennlinie streng periodisch in Φ / Φ_0 ist. Die Form dieser Kennlinie hängt vom elektrotechnischen Design ab. Sie sollte möglichst steil und rauscharm sein.

Mit einem derartigen Aufbau können wir den SQUID einsetzen, um Magnetfeldänderungen von maximal $\frac{1}{2} \Phi_0$ zu verfolgen. Wegen der Periodizität der Kennlinie ergeben stärkere Feldänderungen bereits mehrdeutige Spannungssignale. Bei einer effektiven Sensorfläche von $0,2 \text{ mm}^2$ entspricht einem Fluss von $\frac{1}{2} \Phi_0$ eine Feldänderung von 5×10^{-5} Gauß oder 5×10^{-9} Tesla. Dieser Messbereich ist für realistische Anwendungen viel zu eng. Man möchte Feldänderungen messen können, die 4 - 6 Größenordnungen stärker sind, ohne dabei die Nachweisgenauigkeit des SQUIDs wesentlich zu verschlechtern.

Aus diesem Grund werden externe Feldänderungen mit Hilfe einer Spule kompensiert, der SQUID selbst arbeitet dann nur noch als Nulldetektor. Zweckmäßigerweise sucht man sich die steilste Stelle in der Fluss-zu- Spannungs- Kennlinie und kompensiert externe Feldänderungen mit Hilfe einer elektronischen Gegenkopplung. Die Stärke des Gegenkopplungs- Gleichstromes ist direkt proportional zur externen Feldänderung. Entscheidend für die Signalauflösung ist nur noch die Empfindlichkeit des SQUID- Sensors, also die Steigung der Fluss-zu- Spannungs- Kennlinie. Die Linearität der Messung ergibt sich automatisch, wenn der Gegenkopplungs- Gleichstrom mit hoher Genauigkeit gemessen wird. Es bietet sich an, den Gegenkopplungs- Gleichstrom ebenfalls in die Tankschwingkreisspule einzuspeisen.

9. Was ist der Unterschied zwischen einem Magnetometer und einem Gradiometer ?

SQUIDs werden eingesetzt, um schwache Signale naher magnetischer Quellen mit hoher Empfindlichkeit zu messen. Dabei müssen gleichzeitig magnetische Störsignale entfernter Störquellen unterdrückt werden. Diese werden beispielsweise durch Hochspannungsleitungen, Felder vorbeifahrender Fahrzeuge oder durch Bewegung des Sensors im magnetischen Erdfeld verursacht. Die Felder können am Messort näherungsweise als homogen angenommen werden, weil ihre Quellen weit vom Sensor entfernt sind. Die Störsignale sind i. A. am Ort des Sensors mehrere Größenordnungen stärker als das Messsignal.

Ein Gradiometer misst die Stärke des anliegenden Magnetfeldes an zwei benachbarten Orten und bildet die Differenz beider Werte. Ein Messort liegt nah an der zu messenden Quelle, der andere ist weiter davon entfernt. Den Abstand beider Messpunkte voneinander bezeichnet man als Basislänge. Das Messsignal des Gradiometers lautet also:

$$\Delta B = B_{(d)} - B_{(d+b)} \quad (11)$$

mit dem Messabstand d und der Basislänge b .

Umgebungsfelder, die in großer Entfernung erzeugt werden, sind am Messort hinreichend homogen und werden durch die Subtraktion beider Messwerte wirkungsvoll unterdrückt. Das zu messende Feld einer Quelle in geringer Entfernung wird dagegen nur am nahegelegenen Messort gut detektiert.

Das Prinzip der Unterdrückung entfernt erzeugter Umgebungsfelder beruht darauf, daß Magnetfelder lokalisierter Quellen mit wachsendem Abstand r stark abfallen. Für das von einem magnetischen Dipol erzeugte Feld gilt:

$$\underline{B}_{(r)} = \frac{\mu_0}{4\pi} \left[\frac{3(\underline{M} r)r}{r^5} - \frac{\underline{M}}{r^3} \right] \propto \frac{\underline{M}}{r^3} \quad (12)$$

Dabei bezeichnet $\mu_0 = 4\pi 10^{-7}$ Vs/Am die magnetische Feldkonstante und \underline{M} das magnetische Moment des Dipols.

Ein Gradiometer n -ter Ordnung misst den Gradienten n -ter Ordnung des Magnetfeldes. Der Gradient 1. Ordnung fällt mit M/r^4 ab, der Gradient 2. Ordnung mit M/r^5 . Eine nahe Quelle eines zu messenden Magnetfeldes erzeugt einen deutlich höheren Feldgradienten am Ort des Sensors als die weiter entfernte Quelle des Störfeldes. Der Grund dafür ist, dass selbst

ein starkes Magnetfeld, das in hinreichend großer Entfernung erzeugt wird, am Messort als annähernd homogen betrachtet werden kann, wobei schwache, nahe ihrer Quelle zu messende Magnetfelder am Messort einen großen Feldgradienten besitzen.

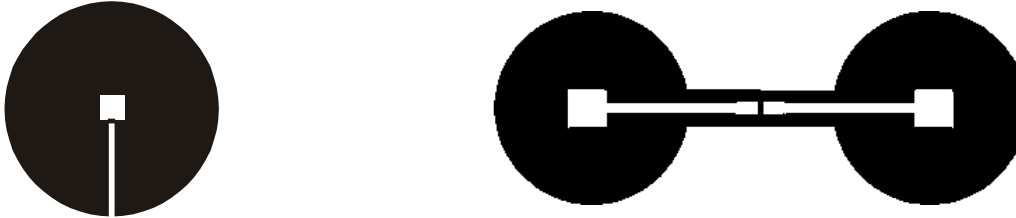


Abb. 19. Links: Layout des SQUID-Magnetometer von JSQ. Rechts: Layout des SQUID-Planar-Gradiometers von JSQ.

10. Wie kann man mit SQUIDs Materialien prüfen ?

Elektromagnetische zerstörungsfreie Werkstoffprüfung basiert auf der Messung lokaler Anomalien im elektromagnetischen Streufeld des zu testenden Objektes. Aufgrund der Abweichung der Materialeigenschaften der Fehlstelle vom umgebenden Basismaterial kann man Risse, Korrosion, Einschlüsse von Fremdmaterial oder andere Materialschäden detektieren. Man unterscheidet je nach Typ der elektromagnetischen Anregung zweierlei Messmethoden: die Gleichfeldtechnik und die Wechselfeldtechnik.

Zerstörungsfreie Werkstoffprüfung unter Verwendung von Tieftemperatur-Supraleiter-SQUID wurde bereits in den frühen 1980-er-Jahren demonstriert. In der Folge wurden Test- und Anregungs-Methoden sowie Techniken der Datenauswertung, Visualisierung und Interpretation entwickelt, die sich auch als sehr nützlich für die Verbesserung der Werkstoffprüfung mit konventionellen Magnetfeldsensoren, z.B. auf Basis von Induktionsspulen, erwiesen. Obwohl die Kühlung des Sensors mit flüssigem Stickstoff oder die Verwendung eines Maschinenkühlers mit geringen elektromagnetischen Störungen noch ein ökonomisches und psychologisches Akzeptanz-Hemmnis ist, so ist diese Hemmschwelle im Falle des flüssigen Stickstoffs doch erheblich geringer als im Falle des flüssigen Heliums. Dennoch sollten SQUIDs aufgrund der unvermeidlich höheren Kosten- und Handhabungs-Nachteile nur dann verwendet werden, sofern andere Sensoren die benötigten Leistungen nicht erbringen können.

Im allgemeinen ist das Ziel des zerstörungsfreien Prüfens, quantitative Informationen über die Lage, Größe und Tiefe der Fehlstelle zu erhalten, im Idealfall in Form einer tomografischen Abbildung. Aus den Maxwellgleichungen für elektromagnetische Wellenausbreitung lässt sich die einfache Faustregel ableiten, dass die erreichbare räumliche Auflösung vergleichbar zum Abstand zwischen Mess-Sensor und Quelle der elektromagnetischen Anomalie ist. Oft ist das begrenzende Element einer Methode der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung jedoch nicht durch den Sensor gegeben, sondern durch die Fähigkeit der Unterscheidung zwischen Fehlersignalen und den i.a. viel größeren Signalen aufgrund der Struktur des zu testenden Objektes. Die meisten Prüfobjekte sind eben keine homogenen Quader, sondern kompliziert geformte Strukturteile.

Eine vielversprechende Anwendung von HTSL-SQUID-Magnetometern ist die Inspektion von Massen-Verbrauchsgütern auf unerwünschte metallische oder magnetische Verunreinigungs-Partikel in den Produkten. In der Lebensmittel und Pharma-Industrie ist es gängige Praxis, die Rohmaterialien im Rahmen der Wareneingangskontrolle und die fertigen

Produkte im Rahmen der Ausgangskontrolle durch einen Metalldetektor zu führen. Auf diese Weise lassen sich Waren, die durch Metallspäne (z.B. aufgrund von Abrieb einer Maschine) kontaminiert sind, aussortieren. Konventionelle Detektoren arbeiten als Durchlauf-Induktionsspulen auf Basis von Hochfrequenz-Wirbelstrom. Die Empfindlichkeit einer derartigen Wechselfeldtechnik ist i.a. durch die elektrische Leitfähigkeit der zu inspizierenden Produkte limitiert. Es ist beinahe unmöglich, auf diese Weise Partikel in Produkten zu finden, die sich in einer elektrisch gut leitenden Verpackung befinden. Aluminiumbedampfte Produktverpackungen sind allerdings sowohl in der Lebensmittel- als auch in der Pharmabranche sehr häufig anzutreffen. Ein alternativer Ansatz besteht in der Anwendung einer magnetischen Streufeldtechnik, indem die remanente Magnetisierung von Verunreinigungen mittels hochempfindlicher Magnetometer-Sensoren bestimmt wird. Aufgrund ihres Empfindlichkeitsvorteils sind SQUID natürlich prädestiniert für eine derartige Anwendung, vorausgesetzt es gelingt, sie zuverlässig in der elektromagnetisch stark gestörten industriellen Störumgebung zu betreiben.

Unmagnetische metallische Materialien werden in allgemeinen mit einer Wechselfeld-Technik geprüft. Die Verwendung von Wechselfeldern hat zwei erhebliche Vorteile gegenüber einer Gleichfeldmethode: erstens kann die Ankopplung der Anregung an das Bauteil induktiv erfolgen, was den Einsatz unpraktischer elektrischer Kontakte erübrigt. Zweitens kann eine schmalbandige Lock-In-Auslese verwendet werden, die einerseits eine Rauschunterdrückung mit sich bringt und außerdem durch Auswertung der beiden orthogonalen Phasenanteile Informationen über die Energiedissipation liefert. In elektrisch gut leitenden Materialien erfordert die Detektion tiefliegender Defekte die Verwendung sehr niedriger Anregungsfrequenzen. Da die Empfindlichkeit von Induktionsspulen proportional zur Frequenz steigt, bringen SQUIDS bei den zur Detektion tiefer Fehlstellen erforderlichen niedrigen Frequenzen erhebliche Empfindlichkeitsvorteile.

Die Standardeindringtiefe einer elektromagnetischen Welle der Frequenz f , die sogenannte Skin-Tiefe

$$\delta_0 = \frac{1}{\sqrt{\pi \sigma \mu f}} \quad (13)$$

begrenzt die Tiefe, in der ein Materialfehler gefunden werden kann. Im Falle einer ebenen Welle in einem Medium der elektrischen Leitfähigkeit σ und der Permeabilität μ bezeichnet δ_0 die Materialtiefe, in der die Amplitude auf $1/e$ gefallen und die Phase um π rotiert ist.

Somit enthält die Phasendrehung des Antwortsignals Informationen über die Tiefe einer Fehlstelle. Zur Maximierung der Fehlersignale bei minimalen Struktursignalen gilt es, den Anregungs-Induktors, die Anregungs-Frequenz, die Auslese-Sensorposition und -Phase sowie alle geometrischen Details zu optimieren (vgl. Abb. 19).

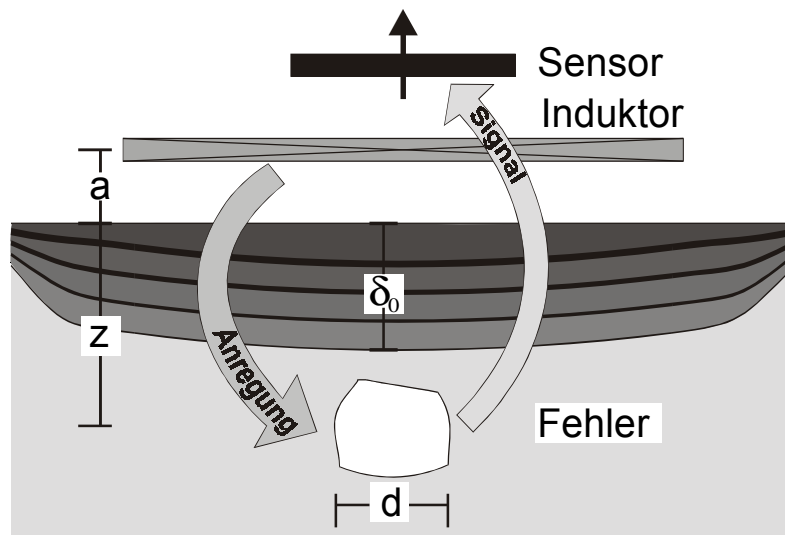


Abb. 20. Prinzipielle Anordnung bei der Wirbelstromprüfung.

11. Inbetriebnahme des JSQ – rf – SQUID (Duosensor)

11.1. Elektrische Verbindungen

Die elektrischen Verbindungen sollten gemäß Abb. 21 hergestellt werden. Der Netzstecker sollte erst nach vollständiger Verdrahtung und Kontrolle eingesteckt werden.

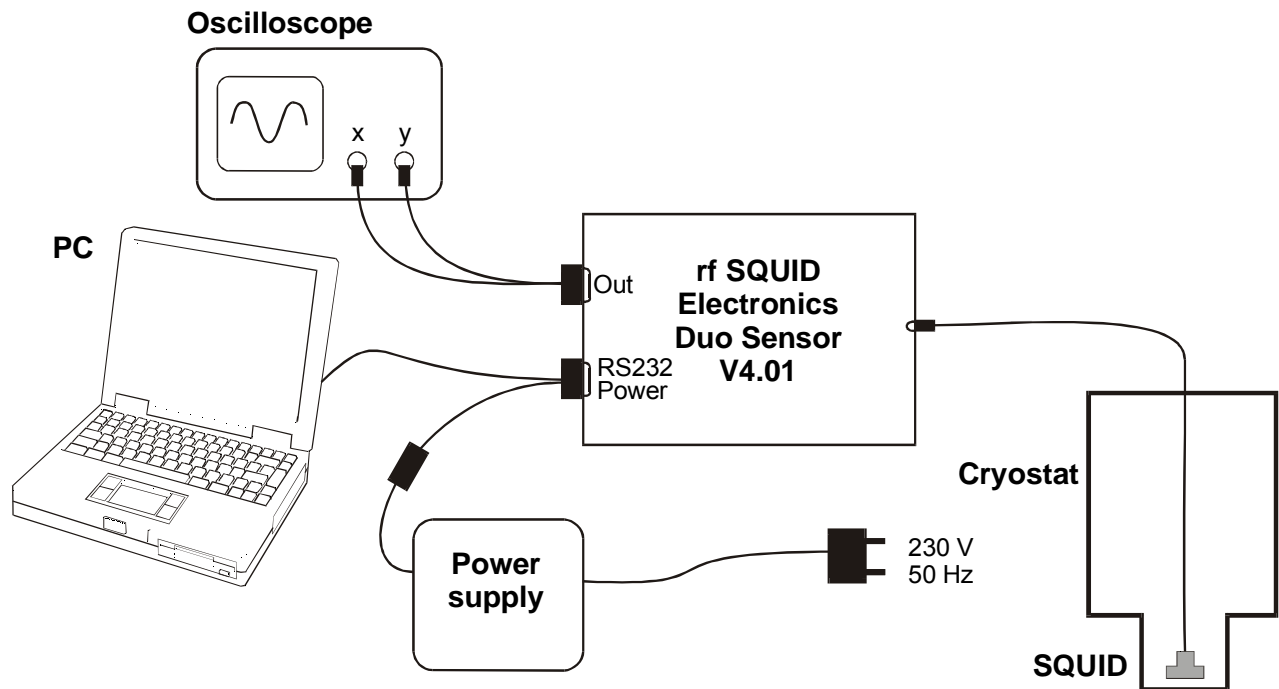


Abb. 21. Skizze der elektrischen Verbindungen zum Betrieb des SQUID.

11.2. Starten der JSQ Duo Sensor Software auf dem PC

Nach dem Start der Anwendung "DuoSensor.exe" auf dem angeschlossenen PC werden die Daten der Arbeitspunkte des Magnetometer- und des Gradiometer-SQUIDs aus dem nichtflüchtigen Speicher des Tiger-Controllers über die RS232-Verbindung in den PC eingelesen. Im Falle erfolgreichen Datentransfers erscheinen die gelesenen Werte wenige Sekunden nach dem Programmstart im Justagefenster auf dem PC und die Schieberegler für VCA, VCO und Offset sowie die Parameter der Flussregelschleife werden entsprechend gesetzt.

Sollte dies nicht der Fall sein, so sollten alle Kabelverbindungen geprüft werden und verifiziert werden, dass die Stromversorgung mit der JSQ SQUID Elektronik verbunden ist.

11.3. Justage des SQUID-Arbeitspunktes

Im Auslieferungszustand sind die Regler der JSQ SQUID Elektronik V4.01 mit Tiger Controller auf die Arbeitspunkte des SQUID-Magnetometers and –Gradiometers voreingestellt. Nach Start der Software oder nach Drücken des “Load”-Knopfes werden die Parameter aus dem nichtflüchtigen Speicher des Tiger-Controllers gelesen. Geringe Nachjustage kann erforderlich sein, um eine optimale Performance zu erreichen, oder um geringe Variationen der Temperatur der Elektronik zu kompensieren.

11.3.1. Automatische Arbeitspunktjustage

Der Tiger-Controller unterstützt zwei Varianten der automatischen Arbeitspunktjustage der beiden Sensoren SQUID-Magnetometer bzw. SQUID-Gradiometer: Schnelle Feinjustage (“Fast Adjust”) und vollständige Justage (“Adjust”). Bei “Fast Adjust” wird nur ein kleiner Parameterbereich um die aktuellen VCA- und VCO-Einstellungen herum durchsucht. In den meisten Fällen genügt “Fast Adjust” zur Arbeitspunktjustage. Die Funktion “Adjust” durchsucht ein sehr viel größeres Parameter-Intervall.

- Schalte das Oszilloskop in den x-y-Modus und den vertikalen (y-) Kanal auf “DC coupling”.
- Wähle den gewünschten SQUID-Sensor: drücke “Magneto” oder “Gradio”.
- Drücke „Fast Adjust“.
- Überprüfe die Transferfunktion, die auf dem Oszilloskop erscheint. Im Falle des Gradiometers sollte sie ähnlich wie das in Abb. 23 gezeigte Oszillogramm aussehen.

Falls keine modulierte SQUID-Transferfunktion sichtbar ist oder falls die Software meldet, dass kein Arbeitspunkt gefunden wurde, wähle die “Adjust”-Funktion.

- Überprüfe, ob die auf dem Oszilloskop sichtbare Transferfunktion genau symmetrisch zur 0 V-Linie verläuft. Falls nicht, muss der OFFset-Schieberegler manuell nachjustiert werden (s.u.).

Aufgrund der begrenzten Auflösung des AD-Wandlers im Tiger-Controller (10 bit) kann es sein, dass der OFFset von der “Fast Adjust”- oder “Adjust”-Funktion nicht hinreichend genau bestimmt wurde.

11.3.2. Manuelle Justage der Hochfrequenz (VCO) und der Amplitude (VCA)

Der VCO (voltage controlled oscillator) – Schieberegler wird verwendet, um die Frequenz des Oszillators derart anzupassen, dass sie der Resonanzfrequenz des induktiv an den SQUID gekoppelten Schwingkreises entspricht. Der VCA (voltage controlled attenuator) –

Schieberegler kontrolliert die Amplitude I_{rf} des Hochfrequenz-Bias-Stroms, der an den Tankschwingkreis angelegt wird.

- Schalte das Oszilloskop in den x-y-Modus und den vertikalen (y-) Kanal auf "AC coupling".
- Wähle den gewünschten SQUID-Sensor: drücke "Magneto" oder "Gradio".
- Schalte die Elektronik in den "Test"-Modus (geöffnete Flussregelschleife).
- Stelle den VCA-Schieberegler auf einen Wert von ungefähr 1000.
- Variiere den VCO-Schieberegler, bis auf dem Oszilloskop ein moduliertes Signal sichtbar wird. Wenn dies der Fall ist, justiere den VCO-Regler auf maximalen Signalhub (maximales peak-peak-Signal). Falls mehrere Maxima auftreten, wähle das Maximum mit der größten Amplitude.
- Justiere den VCA-Regler auf maximales peak-peak-Signal.
- Überprüfe die Transferfunktion, die auf dem Oszilloskop erscheint. Im Falle des Gradiometers sollte sie ähnlich wie das in Abb. 23 gezeigte Oszillogramm aussehen.

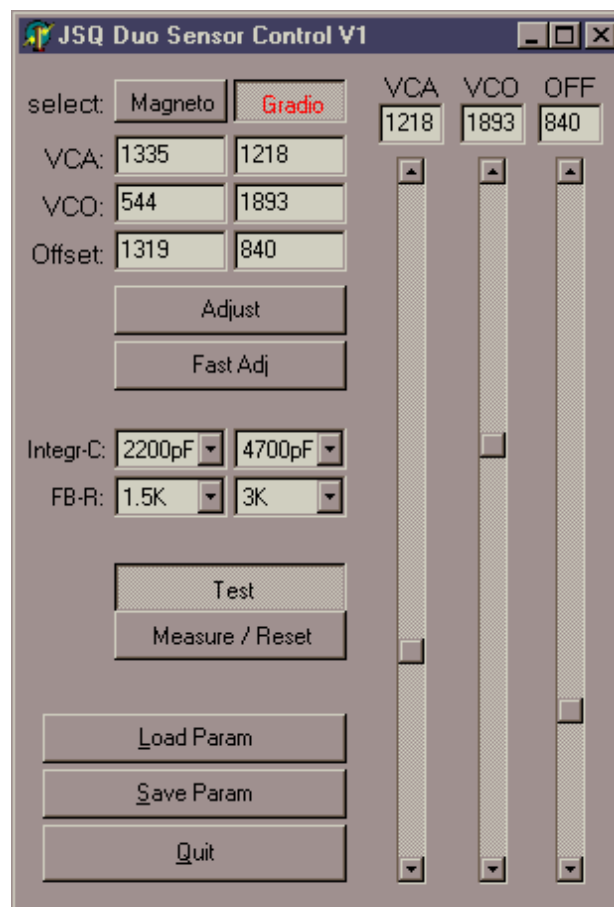


Abb. 22. Fenster der JSQ Duo Sensor Software im Gradiometer-Justage-Modus (Test), d.h. bei geöffneter Flussregelschleife (open loop mode).

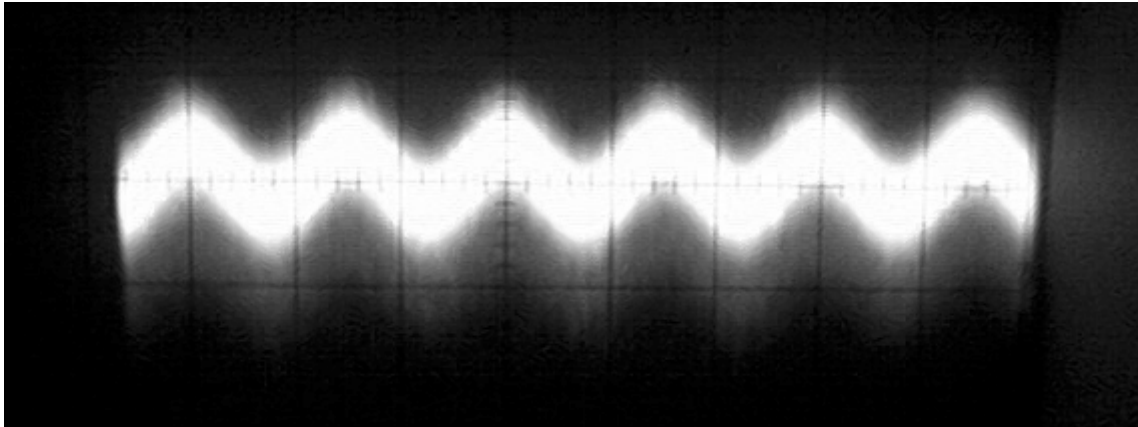


Abb. 23. Typisches Oszillogramm des Gradiometer Test-Signals. Die Gradienten der Umgebungs-Störfelder bei 50 Hz und Harmonischen sind gewöhnlich klein genug, so dass man ein stehendes Bild erhält. Aufgrund der größeren Induktivität des Gradiometer-SQUID ist die peak-peak Amplitude der Transferfunktion des Gradiometers deutlich kleiner als die des Magnetometer-SQUID.

11.3.3. Manuelle Justage des Integrator-Offsets

- Oszilloskop: Überprüfe die Nullposition des y-Kanals. Schalte den y-Kanal auf "DC coupling".
- Wähle den gewünschten SQUID-Sensor: drücke "Magneto" oder "Gradio".
- Schalte die Elektronik in den "Test"-Modus (geöffnete Flussregelschleife).
- Mit Hilfe des OFF-Schiebereglers, justiere den Gleichspannungs-Offset (mittleren Level) des SQUID-Signals derart, dass das SQUID-Signal exakt symmetrisch zum 0 V-Level verläuft. Die genaue Justage des Offset ist sehr wichtig für den späteren stabilen Betrieb des SQUID in der Flussregelschleife.

Falls der Offset zu hoch oder zu niedrig justiert ist, kann es passieren, dass im Falle einer geschlossenen Flussregelschleife das SQUID-Signal zu den Begrenzungen des Rückkoppelbereiches driftet, also entweder zu +10 V oder zu -10 V hin läuft und dort bleibt. Durch Feinjustage des OFFset-Schiebereglers ist es möglich, das Signal bei geschlossener Flussregelschleife genau im Mittelbereich in der Nähe von 0 V zu halten. Falls das Signal an der +10 V oder -10 V – Begrenzung bleibt, sollte der "Reset"-Knopf gedrückt werden und der Offset nachgeregelt werden.

12. Messungen mit dem JSQ – Duosensor

12.1. Schließen der Flussregelschleife

- Schalte das Oszilloskop in den Zeitablenkungsmodus, so dass der y-Kanal als Funktion der Zeit angezeigt wird. Schalte den y-Kanal auf “DC coupling”. Setze die y-Ablenkung derart, dass Spannungen bis zu ± 10 V angezeigt werden können.
- Wähle den gewünschten SQUID-Sensor: drücke “Magneto” oder “Gradio”.
- Schalte in den “Measure/Reset“-Modus (Flussregelschleife geschlossen).

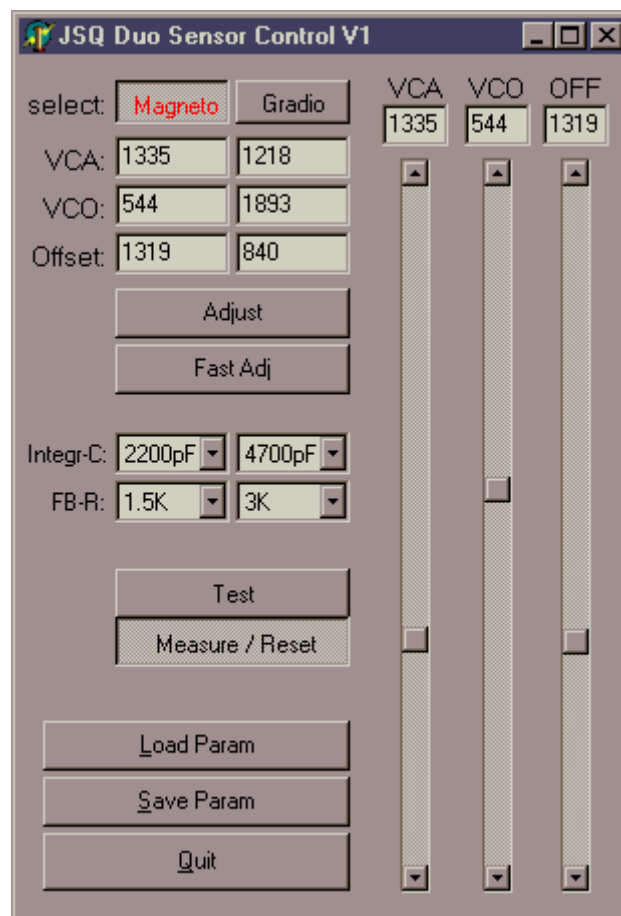


Abb. 24. Fenster der JSQ Duo Sensor Software im Magnetometer-Modus, bei geschlossener Flussregelschleife (flux-locked loop mode).

Im dem Falle, dass kein stabiles Flussregelsignal vorliegt, insbesondere falls das Signal zu den Begrenzungen bei +10 V oder –10 V läuft und dort bleibt, sollte man “Measure/Reset” nochmals drücken. Die genaue Justage des Offset ist von großer Wichtigkeit, um ein stabiles gelocktes Signal zu erhalten, insbesondere im Falle des Gradiometers mit seiner

kleineren Transferfunktion. Eventuell ist es nötig, den OFFset manuell nachzjustieren, wie oben beschrieben.

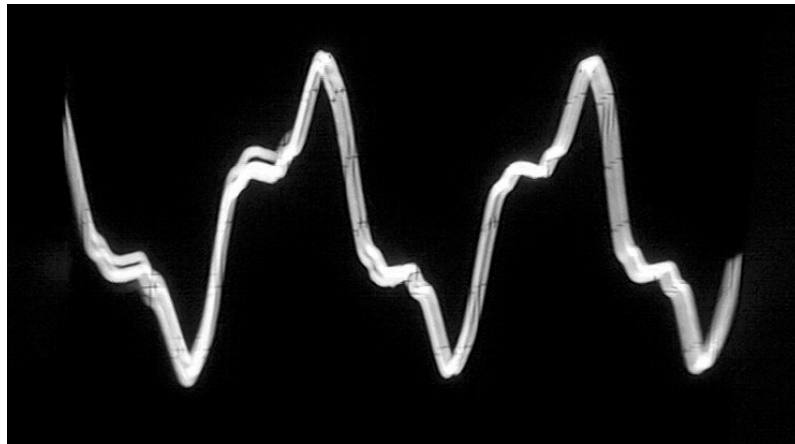


Abb. 25. Typisches Oszillogramm des Magnetometer-Signals bei geschlossener Flussregelschleife (flux-locked loop). Im allgemeinen wird das Signal von 50 Hz-Störsignalen der Umgebung dominiert. Wenn man das Oszilloskop auf „line trigger“ schaltet, so erhält man beinahe ein stehendes Bild.

12.2. Einstellung der Parameter der Flussregelschleife

Unter dem “Fast Adjust”-Knopf finden sich die Einstellelemente für die Parameter der Flussregelschleife. Man kann den Wert der Integrator-Kapazität und den Wert des Rückkoppelwiderstandes unabhängig für jeden der beiden Sensoren Magnetometer und Gradiometer einstellen. Kurz gesagt, beeinflusst die Integratorkapazität die Geschwindigkeit der Rückkoppelschleife, der Rückkoppelwiderstand den Dynamikbereich. Eine größere Kapazität führt zu einer geringeren Rückkoppelgeschwindigkeit und damit zu einer kleineren Folgegeschwindigkeit (slew rate) und geringeren Bandbreite der Regelschleife. Der Rückkoppelwiderstand bestimmt, wie sich die Rückkoppelspannung (± 10 V) in den Strom durch die Spule am SQUID übersetzt. Ein kleinerer Rückkoppelwiderstand liefert einen kleineren Spannungs-zu-Fluss-Koeffizient und damit eine größere Zahl von Flussquanten, die gemessen werden können, mit anderen Worten einen größeren Dynamikbereich des Sensors. Der “Gain”-Faktor bestimmt die innere Schleifenverstärkung. Abb. 26 zeigt typische gemessene Transferfunktionen für verschiedene Werte des Rückkoppelwiderstandes der Flussregelschleife.

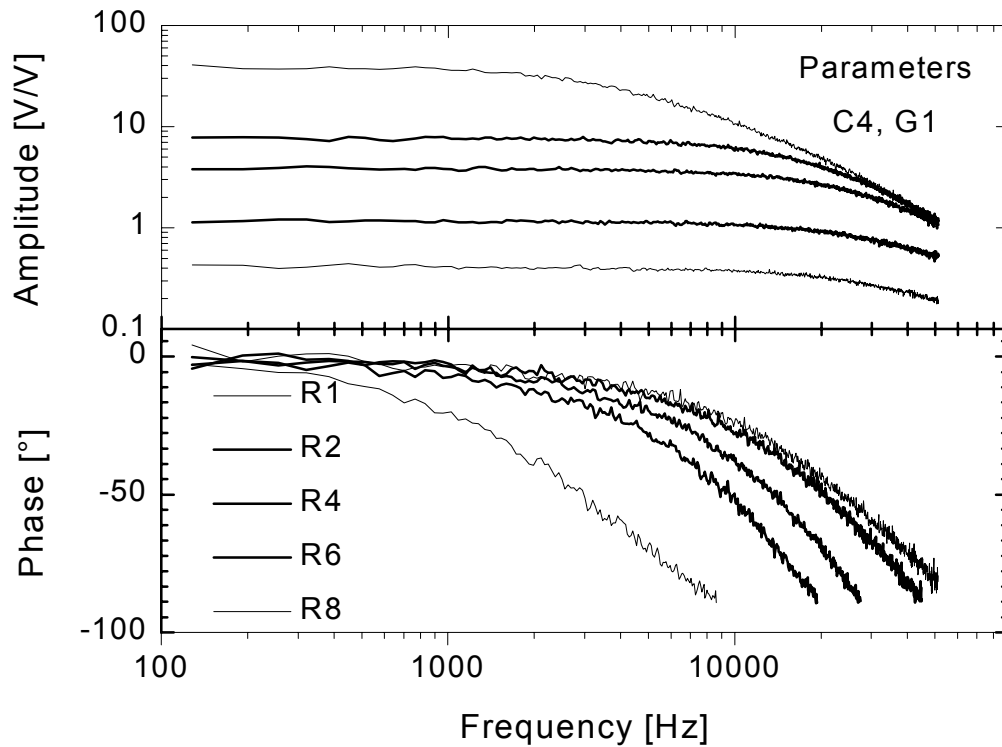


Abb. 26. Typische Transferfunktion eines SQUID bei verschiedenen Einstellungen des Rückkoppel-Widerstandes.

Intuitiv würde man eine möglichst kleine Kapazität und einen möglichst kleinen Widerstand wählen, um maximale slew-rate, Bandbreite und Dynamikbereich zu erzielen. Allerdings ist die Flussregelschleife um so stabiler, je größer die Integrator-Kapazität und je größer der Rückkoppelwiderstand sind. Daher sollten die Kapazität und der Widerstand nur jeweils so klein gewählt werden, wie die jeweilige Anwendung es erfordert. Man sollte versuchen, einen Kompromiss zwischen Performance und Stabilität zu erreichen. Die Einstellungen im Auslieferungszustand sind 2200 pF und 1.5 k Ω im Falle des Magnetometer und 4700 pF und 3 k Ω im Falle des Gradiometers. Diese Einstellungen berücksichtigen die deutlich kleinere Transferfunktion-Amplitude des Gradiometers, die höhere Kapazitäts- und Widerstandswerte für stabilen Betrieb erfordert.

Jülicher SQUID GmbH (JSQ)

Die JSQ GmbH wurde 1997 von Angestellten des Forschungszentrums Jülich gegründet. Die Firma bildete sich aus der SQUID-Arbeitsgruppe mit ihrer langjährigen Erfahrung in der SQUID-Entwicklung und –Anwendung im Rahmen industrieller Verbundprojekte mit Förderung des Bundesforschungsministerium. Die weltweit unübertroffene Erfahrung des Teams, dem der SQUID-Experte Prof. Dr. Yi Zhang angehört, und die direkte Verbindung zum Lizenzgeber Forschungszentrum Jülich sind der Schlüssel zum Erfolg der Jülicher SQUID GmbH.

Produkte: zuverlässig und innovativ

Die JSQ GmbH produziert und vertreibt HTS SQUIDs und zugehörige Auslese-Elektronik in Lizenz des Forschungszentrums Jülich. Diese enge Verbindung zwischen Entwicklung und Produktion gewährleistet, dass den Kunden stets die neuesten Entwicklungen zugänglich gemacht werden können. Die Produkte sind günstig und von ausgezeichneter, garantierter Qualität. Sie werden sorgsam geprüft und gestatten eine zuverlässige Nutzung.

JSQ GmbH bietet ihren Kunden eine gesicherte Basis kommerzieller Versorgung mit HTS SQUID-Sensoren. Die JSQ GmbH gewährleistet die Produktion von HTS SQUID Systemen und Komponenten für Kunden aus Wissenschaft und Industrie.

Das JSQ-Team

Management:	Willi Zander, Simin Krause, Chris Buchal
Design:	Yi Zhang
Lithographie:	Marko Banzet
Dünnschicht-Technologie:	Jürgen Schubert
Elektronik & Computing:	Ralph Otto, Norbert Wolters, Dieter Lomparski
Systeme:	Jochen Krause
Vertrieb:	Manfred Plum

Magnetic Properties of Terbium Metal*

W. C. THOBURN,[†] S. LEGVOLD, AND F. H. SPEDDING

Institute for Atomic Research and Department of Physics, Iowa State College, Ames, Iowa

(Received June 2, 1958)

Results of magnetic measurements on metallic terbium over the temperature range from 4° to 375°K and in fields ranging from 50 oersteds to 18 000 oersteds are reported. The metal is found to have a paramagnetic Curie point of 237°K. Tests with fields of from 50 to 800 oe indicate an order-to-disorder transition at approximately 230°K which is evidently a Néel point. It appears that terbium has a weakly bound antiferromagnetic ordering for temperatures between 218° and 230°K, this ordering being gradually changed to ferromagnetic in fields exceeding 200 oe. Below 218°K the metal is ferromagnetic. The magneton numbers obtained from the paramagnetic susceptibility measurements and from the extrapolated ferromagnetic saturation moment are in good agreement with values calculated for the free ion.

I. INTRODUCTION

TERBIUM, atomic number 65, is one of the rare-earth elements and has eight electrons in the 4f shell. The magnetic properties of this element have been measured previously by Klemm and Bommer.¹ They reported that their sample obeyed the Curie-Weiss law $\chi_{at} = 10.1/(T-205)$ and that the room-temperature atomic susceptibility was 115×10^{-3} . Spedding *et al.*² have reported results of magnetic measurements on a pure sample and indicate that terbium is ferromagnetic below 230°K. Leipfinger³ has examined the metal at very low temperatures and found that the magnetic moment is nearly independent of temperature for the range below 80°K and for fields less than 3 kilo-oersteds.

Specific-heat studies by Jennings *et al.*⁴ reveal two anomalies in the heat-capacity curve of terbium, plotted as a function of temperature. These are a "bump" at about 221°K and a sharp peak at 227.7°K. The sharp peak is not far from the Néel point found in the magnetic moment determinations on a pure sample reported in this paper.

The terbium was prepared in a manner described previously.^{5,6} Chemical analysis for carbon and nitrogen, and spectrographic examination for metallic impurities gave the following results and estimates in ppm: carbon 438, nitrogen 170, Ce, Pr, Nd, Er, Tm less than 5000, Sm less than 3000, Dy, Ta less than 2000, Gd less than 1000, Ca less than 250, Sc less than 200, La, Eu, Tb, Y, Mg, Cu, Fe, Si less than 50.

As indicated, the spectrographic estimates are only upper limits. Spectrographic standards for quantitatively determining impurities at low concentrations in

these elements are not yet available. It is quite probable that the total ferromagnetic impurity did not exceed 0.1%.

II. METHOD OF MEASUREMENT

The experimental procedure is basically the same as that described by Elliott *et al.*⁷ The apparatus was improved by the addition of a current control for the field magnet, by regrounding the pole pieces to provide a more uniform field gradient and by providing a centering device for the sample. The last consisted of a mechanism which caused slow transverse oscillations of the sample holder in the field during weighing and was used whenever significant lateral forces made it necessary to overcome the effects of friction.

Two sample sizes were used. The ferromagnetic range was covered with a sample 1 mm square \times 10 mm long. For paramagnetic and low-field measurements a larger cylindrical sample, 2.4 mm in diameter by 10.6 mm long was used.

III. RESULTS

The values of the magnetic moment σ expressed in ergs per oe per g are shown as a function of the effective field in Fig. 1 and as a function of temperature for various fields ranging from 1 to 18 koe in Fig. 2. At the right in Fig. 2 is shown the plot of $1/\chi$ vs T for the paramagnetic region, χ being the mass susceptibility. From the intercept and the slope of this line, the paramagnetic Curie temperature θ_p and the intrinsic magnetic moment μ_A in Bohr magnetons per atom were determined.

By plotting the values of σ at temperatures below 60°K against $1/H$ and extrapolating to $1/H=0$, the limiting values of $\sigma_{\infty, T}$ for various temperatures were obtained. These values of $\sigma_{\infty, T}$ were plotted against $T^{1/2}$ and extrapolated to $T^{1/2}=0$ to obtain $\sigma_{\infty, 0}$ the saturation moment per gram. Thence the ferromagnetic moment per atom, m_A , in Bohr magnetons, was computed.

The results of these deductions from the data are as follows: $\theta_p = 237 \pm 2^\circ\text{K}$, $\mu_A = 9.7$, $\sigma_{\infty, 0} = 322.4 \pm 2$ cgs units, $m_A = 9.25$.

⁷ Elliott, Legvold, and Spedding, *Phys. Rev.* **91**, 28 (1953).

* Contribution No. 639. Work was performed in the Ames Laboratory of the U. S. Atomic Energy Commission.

[†] Now at Forman Christian College, Lahore, Pakistan.

¹ W. Klemm and H. Bommer, *Z. anorg. u. allgem. Chem.* **231**, 138 (1937).

² Spedding, Legvold, Daane, and Jennings, in *Progress in Low Temperature Physics*, edited by C. J. Gorter (North-Holland Publishing Company, Amsterdam, 1957), Vol. II, p. 368.

³ Hugo Leipfinger, *Z. Physik* **150**, 415 (1958).

⁴ Jennings, Stanton, and Spedding, *J. Chem. Phys.* **27**, 909 (1957).

⁵ F. H. Spedding *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.* **69**, 2812 (1947).

⁶ F. H. Spedding and A. H. Daane, *J. Am. Chem. Soc.* **74**, 2783 (1952).

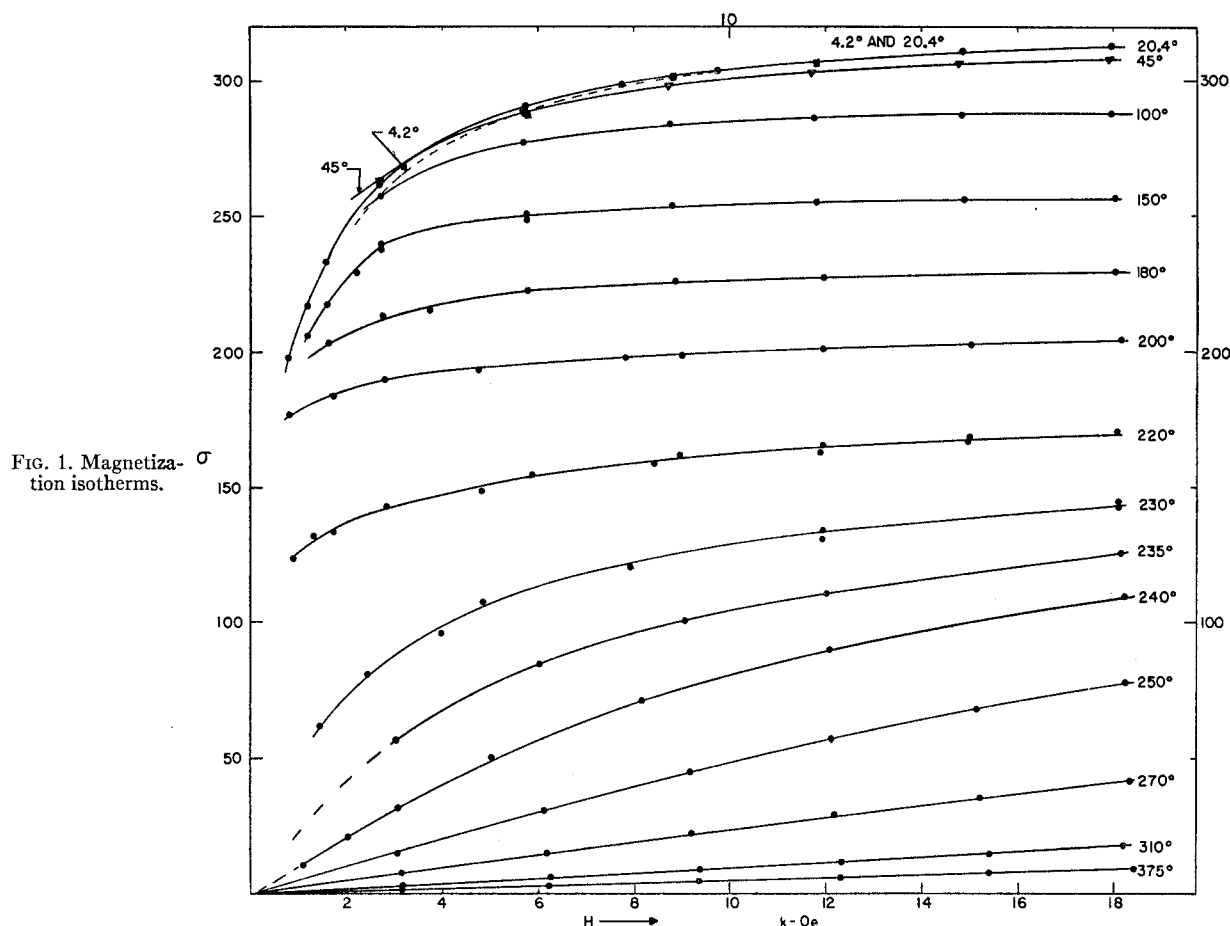


FIG. 1. Magnetization isotherms.

The theoretical values of the atomic moments were obtained from the relations $\mu_A = gJ(J+1)$ and $m_A = gJ$, where $g = \frac{3}{2}$ and $J = 6$ for terbium. These yielded values of $\mu_A = 9.72$ and $m_A = 9.0$. The experimental value of μ_A agrees very well with theory, but it must be remembered that the figure is uncertain by at least 1%, as indicated by the uncertainty of θ_p obtained from the same graph. The saturation moment $\sigma_{\infty,0}$ seems to be relatively more accurately known.

In view of the two anomalies present in the specific-heat curve³ the larger sample of terbium was examined under weaker fields ranging from 50 to 800 oe in the region between 215° and 236°K. The results are shown in Fig. 3. As expected with a material as susceptible as terbium, the large demagnetization corrections applied to the data taken at the lowest fields tended to reduce the precision of the results, as did also the small forces observed. Nevertheless, the presence of an antiferromagnetic region ranging from roughly 218°K to the Néel point in the neighborhood of 230°K is clear enough. The curves indicate that the antiferromagnetic ordering is progressively overpowered by fields above 200 oe. The ferromagnetic-to-antiferromagnetic transition point is only estimated. Further observations will be required

to determine more accurately the limits of this region of easily disturbed antiferromagnetism.

IV. DISCUSSION

Somewhat in agreement with the finding of Leipfinger,³ the present study shows little temperature dependence of the magnetization in the range below 80°K and for fields under 3 koe. However, the initial susceptibility as estimated from our results for this temperature region would be at least six times his value.

It is to be noted that in the case of both dysprosium and holmium² there is a minor peak in the heat-capacity curve corresponding to the magnetic order-order transition at the Curie point and a much greater peak at a higher temperature, corresponding to the magnetic order-disorder transition at the Néel point. These two transitions are not resolved with strong magnetic fields in the case of terbium. In the case of dysprosium, the element of next higher atomic number, the field required to overpower antiferromagnetic ordering is of the order of 11 koe. With holmium, the fields used hitherto are not sufficient to cause the disappearance of antiferromagnetism.

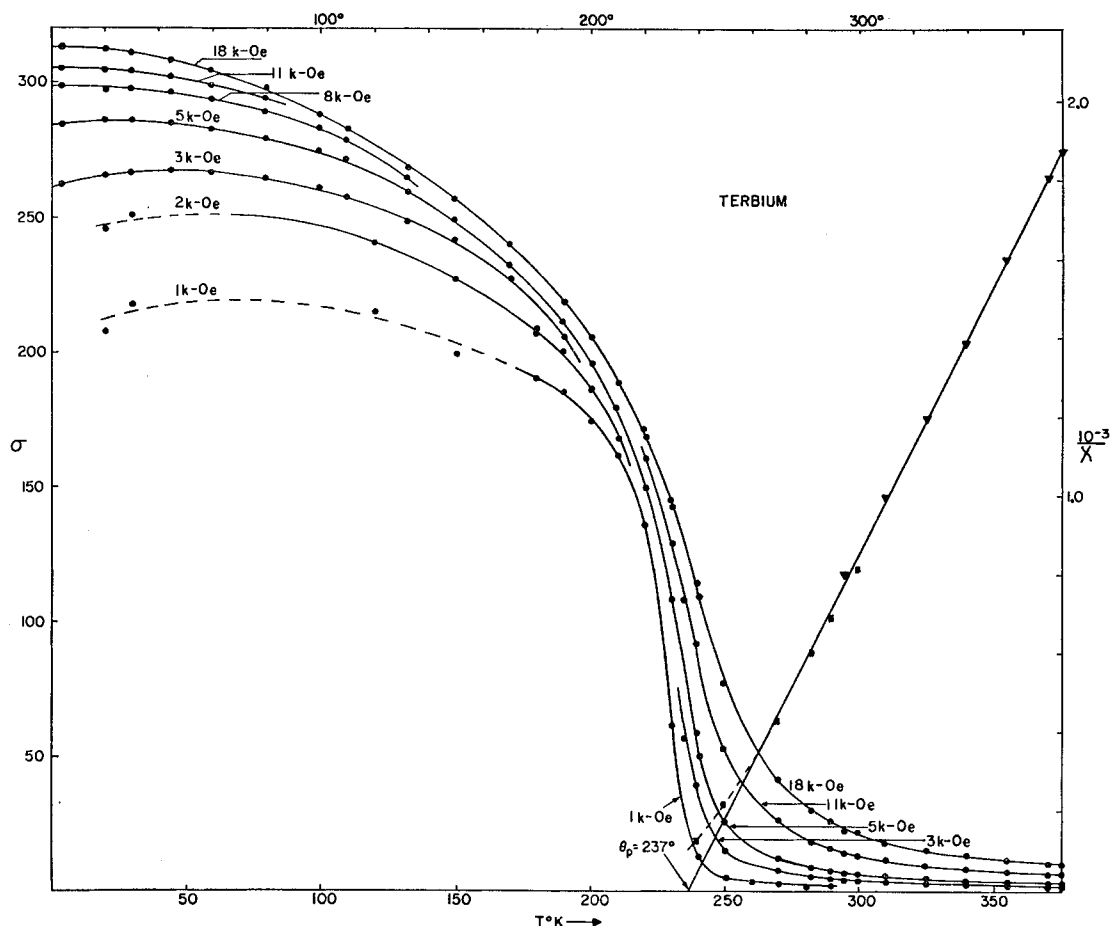
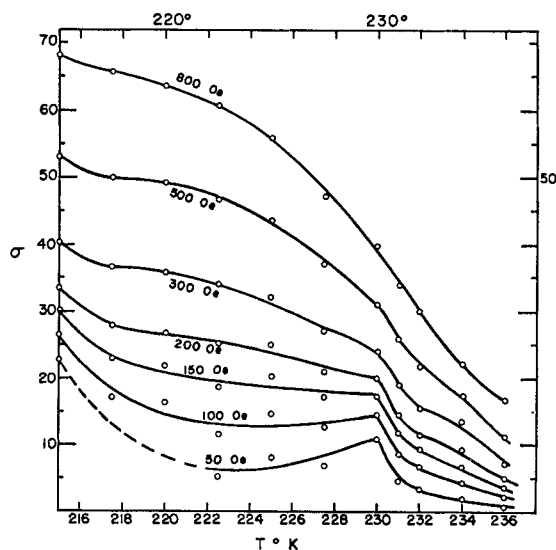
FIG. 2. Isofield curves $1/\chi$ -vs- T plot.

FIG. 3. Low-field curves between 218° and 236°K.

Further collateral evidence for the restricted anti-ferromagnetic region of terbium should be mentioned:

(a) Tests made by Jennings,⁸ using a mutual inductance method in which the maximum applied field was not more than a few oe, indicate a magnetic susceptibility peak for terbium in the neighborhood of 228°K.

(b) Resistivity studies on a sample of pure terbium by Colvin⁹ indicate two anomalies in the resistivity-vs-temperature curve at temperatures of approximately 219° and 230°. The anomaly at 219°, however, is not observable if the sample is subjected to a field of a few hundred oe.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors wish to thank the staff of the Ames Laboratory for the provision of the terbium and its examination for purity, and B. L. Rhodes for his work with the preliminary observations.

⁸ L. D. Jennings, Iowa State College (private communication).

⁹ C. B. Colvin, Iowa State College (private communication).

The inner product (I.P.) between two Bloch function ($\mathbf{k}=\mathbf{k}'$) is

$$\begin{aligned} \text{I.P.} &\propto \sum_{\mathbf{b}} C_{\mathbf{n}\mathbf{b}} C_{\mathbf{m}\mathbf{b}}^* \\ &\propto \sum_{\mathbf{b}} \frac{\tilde{v}(-\mathbf{k}-\mathbf{b})\tilde{v}(\mathbf{k}+\mathbf{b})}{[(\mathbf{k}+\mathbf{b})^2-\mathcal{E}_{\mathbf{n}}][(\mathbf{k}+\mathbf{b})^2-\mathcal{E}_{\mathbf{m}}]} \\ &\quad \times \sum_{jj'} \exp[-i\mathbf{b}\cdot(\boldsymbol{\tau}_{1j}-\boldsymbol{\tau}_{1j'})] D_j D_{j'}^*. \quad (\text{A2}) \end{aligned}$$

Again decomposing into partial fractions, we obtain

$$\text{I.P.} \propto \frac{1}{(\mathcal{E}_{\mathbf{m}}-\mathcal{E}_{\mathbf{n}})} \sum_{jj'} D_j D_{j'}^* \{\Phi_{jj'}(\mathcal{E}_{\mathbf{m}}) - \Phi_{jj'}(\mathcal{E}_{\mathbf{n}})\},$$

which clearly vanishes, since the D_j are components of an eigenvector of the Φ matrix.

Magnetization and Electrical Resistivity of Gadolinium Single Crystals*

H. E. NIGH, S. LEGVOLD, AND F. H. SPEDDING

Institute for Atomic Research and Department of Physics, Iowa State University, Ames, Iowa

(Received 25 June 1963)

The magnetic moment of single-crystal Gd has been measured in fields from 0 to 18 kOe along the $\langle 0001 \rangle$, $\langle 10\bar{1}0 \rangle$, and $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ directions at temperatures from 1.4 to 900°K. Small anisotropy was observed below the Curie temperature and the easy direction of magnetization was found to be a function of temperature. The absolute saturation magnetic moment was found to be 7.55 Bohr magnetons/atom. The saturation magnetization was observed to follow the $T^{3/2}$ law from 200 to 50°K with a deviation from this law observed below 50°K. A ferromagnetic Curie temperature of 293.2°K is reported. The effective Bohr magneton number in the paramagnetic region is 7.98 and the paramagnetic Curie temperature is 317°K. Electrical resistivity measurements were made from 4.2 to 380°K on the b -axis and c -axis crystals. For the b axis, the resistivity changes slope at 293.2°K. The c axis exhibits a small maximum at 292°K and a shallow minimum at 340°K.

INTRODUCTION

GADOLINIUM was the fourth ferromagnetic element to be discovered.¹ Trombe² and Elliott *et al.*³ found a Curie temperature of 289°K and an absolute saturation magnetization of 7.12 Bohr magnetons/atom. Henry⁴ found a saturation magnetization of 7.05 Bohr magnetons/atom at 1.3°K and 60 000G. Gaskell and Motz⁵ report magnetic moments at 80 000G which are about 15% higher than those for infinite fields as extrapolated by Elliott *et al.*

Arajs and Colvin⁶ reported a paramagnetic Curie temperature of 310°K and an effective Bohr magneton number of 8.07. They observed a small anomaly, which could be enhanced by small additions of Mo and Ta, at about 750°K.

Belov *et al.*⁷ found a peak in the magnetic moment

at 210°K in magnetic fields of less than 1.12 Oe from measurements on a toroidal sample. The isofields below 112 Oe also showed anomalous behavior at low temperatures. In addition, they reported small kinks in the magnetization curves above 210°K. Their conclusion was that a spiral spin structure exists in Gd between 210 and 290°K.

More recently, the magnetocrystalline anisotropy of Gd has been measured by Graham⁸ and by Corner *et al.*⁹ They both found that above 240 to 245°K the c axis is the easy direction of magnetization. Graham reports an easy cone of magnetization between 225 and 245°K, and below about 165°K. Between 165 and 225°K he found that the easy direction of magnetization is in the basal plane. Corner *et al.* report an easy cone of magnetization from 240 to 37.5°K, the lowest temperature used. Corner found that the easy direction reaches a maximum angle of 70° with respect to the c axis at 220°K. In addition, Graham observed that low field magnetization curves were in qualitative agreement with those calculated from the anisotropy constants.

The temperature dependence of the lattice parameters of single crystal Gd has been measured recently by Darnell.¹⁰ He reports a Curie temperature of 298°K.

* Contribution No. 1322. Work was performed in the Ames Laboratory of the U. S. Atomic Energy Commission.

¹ G. Urbain, P. Weiss, and F. Trombe, *Compt. Rend.* **200**, 2132 (1935).

² F. Trombe, *Ann. Phys. (N. Y.)* **7**, 383 (1937).

³ J. F. Elliott, S. Legvold, and F. H. Spedding, *Phys. Rev.* **91**, 28 (1953).

⁴ W. E. Henry, *J. Appl. Phys.* **29**, 524 (1958).

⁵ C. S. Gaskell and H. Motz, in *High Magnetic Fields* (Technology Press, Cambridge, Massachusetts, 1962; and John Wiley & Sons, Inc., New York, 1962), p. 561ff.

⁶ S. Arajs and R. V. Colvin, *J. Appl. Phys.* **32**, 336S (1961).

⁷ K. P. Belov, R. Z. Levitin, S. A. Nikitin, and A. V. Ped'ko, *Zh. Eksperim. i Teor. Fiz.* **4**, 1562 (1961) [translation: *Soviet Phys.—JETP* **13**, 1096 (1961)]; K. P. Belov and A. V. Ped'ko, *ibid.* **42**, 87 (1961) [translation: *ibid.* **15**, 62 (1962)].

⁸ C. D. Graham, Jr., *J. Phys. Soc. Japan* **17**, 1310 (1962); C. D. Graham, Jr., *J. Appl. Phys.* **34**, 1341 (1963).

⁹ W. D. Corner, W. C. Roe, and K. N. R. Taylor, *Proc. Phys. Soc. (London)* **80**, 927 (1962).

¹⁰ F. J. Darnell, *Phys. Rev.* **130**, 1825 (1963).

The heat capacity of Gd has been measured over the temperature range 15 to 355°K by Griffel, *et al.*¹¹ They observed a peak in the heat capacity at 291.8°K.

Measurements of the electrical resistivity by Colvin *et al.*¹² revealed a sharp change in slope between 291 and 292°K.

EXPERIMENTAL PROCEDURE

The single crystals were produced by annealing arc melted buttons using a technique previously described.¹³ Three samples were cut from the bulk crystals in the form of rectangular parallelepipeds and were shaped with the long dimension parallel to the $\langle 0001 \rangle$ direction

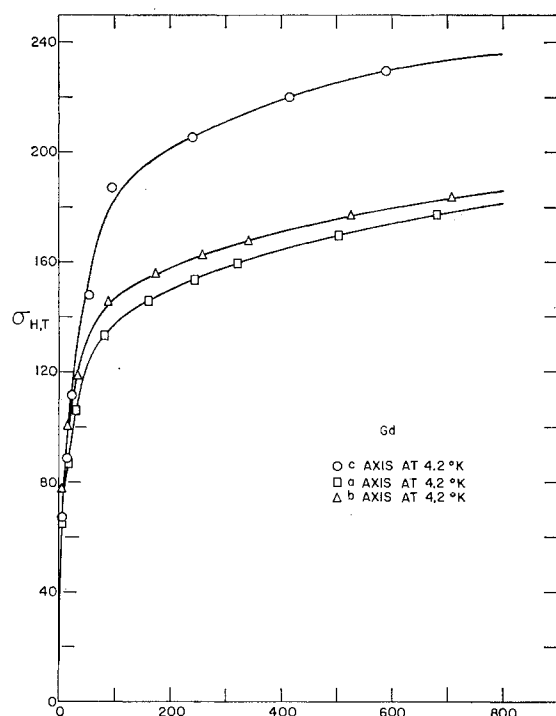


FIG. 1. Magnetic moment per gram versus internal magnetic field for the a -, b -, and c -axis crystals.

(c axis), $\langle 11\bar{2}0 \rangle$ direction (a axis), and $\langle 10\bar{1}0 \rangle$ direction (b axis), respectively. The electrical resistivity was measured on samples 1 mm \times 1 mm \times 18 mm and these samples were then cut down to 1 mm \times 1 mm \times 10 mm for magnetic measurements from 1.3 to 300°K. The samples used for susceptibility measurements from 300 to 900°K were 2 mm \times 2 mm \times 10 mm. Spectrographic and vacuum fusion analyses revealed the following impurities in ppm: Ca < 50; Mg < 200; Fe < 100; Ta < 1000; Y < 100; Tb < 100; Eu < 10; Sm < 200; Al,

¹¹ M. Griffel, R. E. Skochdopole, and F. H. Spedding, Phys. Rev. **93**, 657 (1954).

¹² R. V. Colvin, S. Legvold, and F. H. Spedding, Phys. Rev. **120**, 741 (1960).

¹³ H. E. Nigh, J. Appl. Phys. **34**, 3323 (1963).

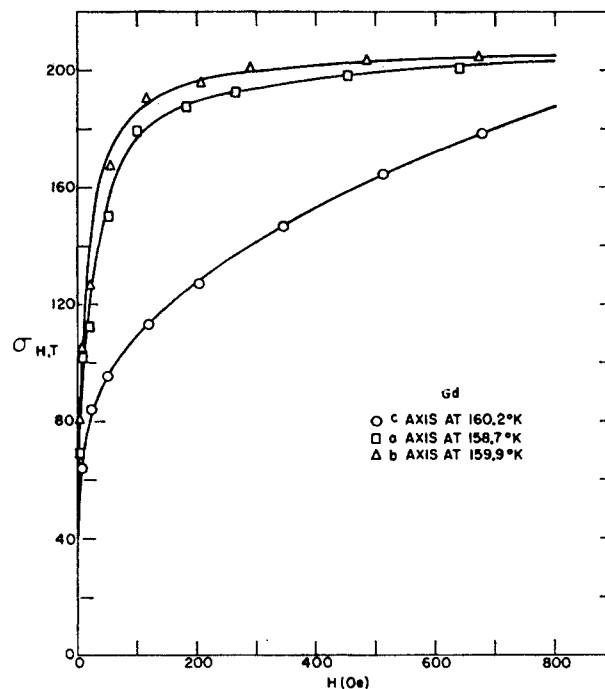


FIG. 2. Magnetic moment per gram versus internal magnetic field for the a -, b -, and c -axis crystals.

Cu, Ni, Si, W present as trace impurities; $O_2 \approx 950$; $H_2 \approx 5$; $N_2 \approx 120$.

The experimental procedure for the magnetic measurements from 1.4 to 350°K was the same as that described by Strandburg *et al.*¹⁴ A standpipe furnace was constructed to replace the cryostat in the range

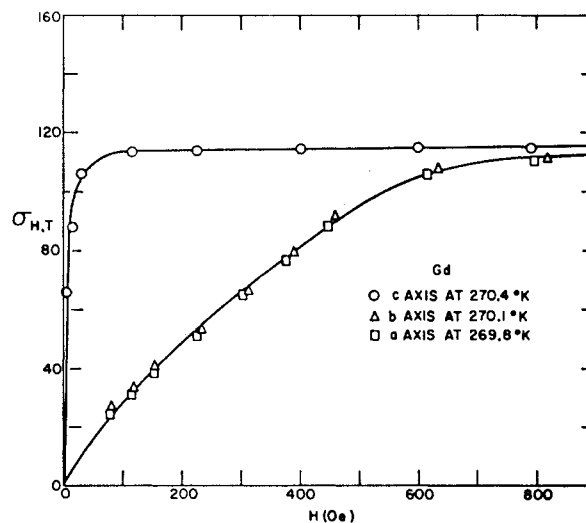


FIG. 3. Magnetic moment per gram versus internal magnetic field for the a -, b -, c -axis crystals.

¹⁴ D. L. Strandburg, S. Legvold, and F. H. Spedding, Phys. Rev. **127**, 2046 (1962).

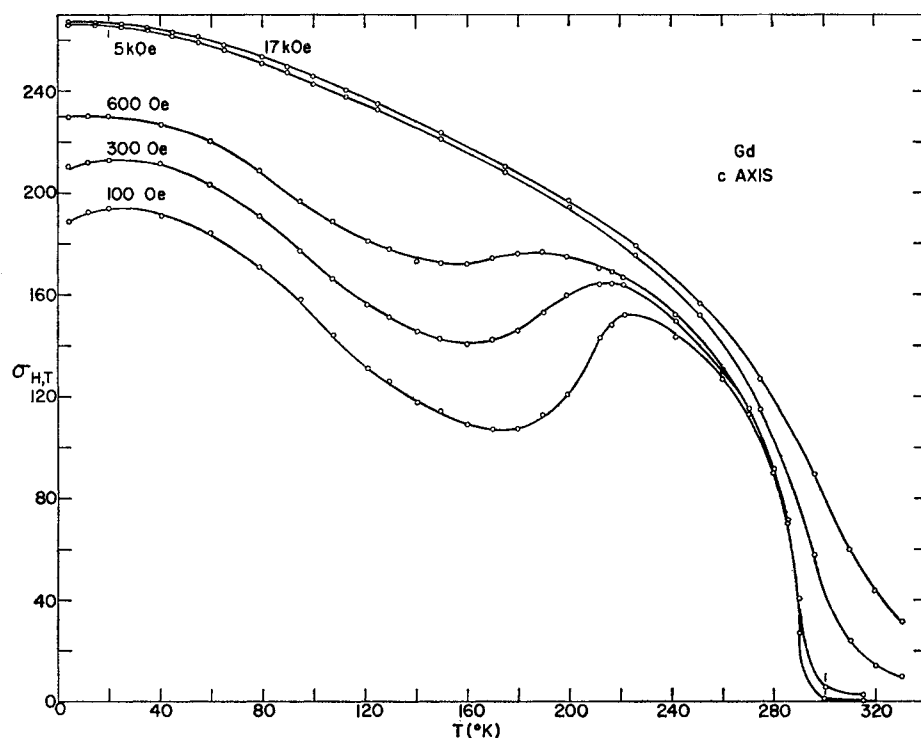


FIG. 4. Magnetic moment per gram versus temperature for the c -axis crystal. Internal magnetic fields are indicated.

300 to 900°K. Temperatures were measured in the 300 to 900°K range with a calibrated chromel-alumel thermocouple. Absolute temperature values were determined to $\pm 2^\circ\text{K}$ in the 300 to 900°K range, while the temperature variation during each series of measurements of the susceptibility at 12, 15, and 18 kOe was controlled to 0.1°K . The magnetic-field gradient was calibrated in fields from 0 to 6 kOe with Permalloy 78. High-purity iron with an assumed saturation magnetic moment of 217.75 cgs units/g at 293°K was used to calibrate the gradient in fields from 4 to 18 kOe.

Standard four probe electrical resistivity measurements were made on the c -axis and b -axis crystals from 4.2 to 380°K. The apparatus used for these measurements has been described by Colvin *et al.*¹²

EXPERIMENTAL RESULTS

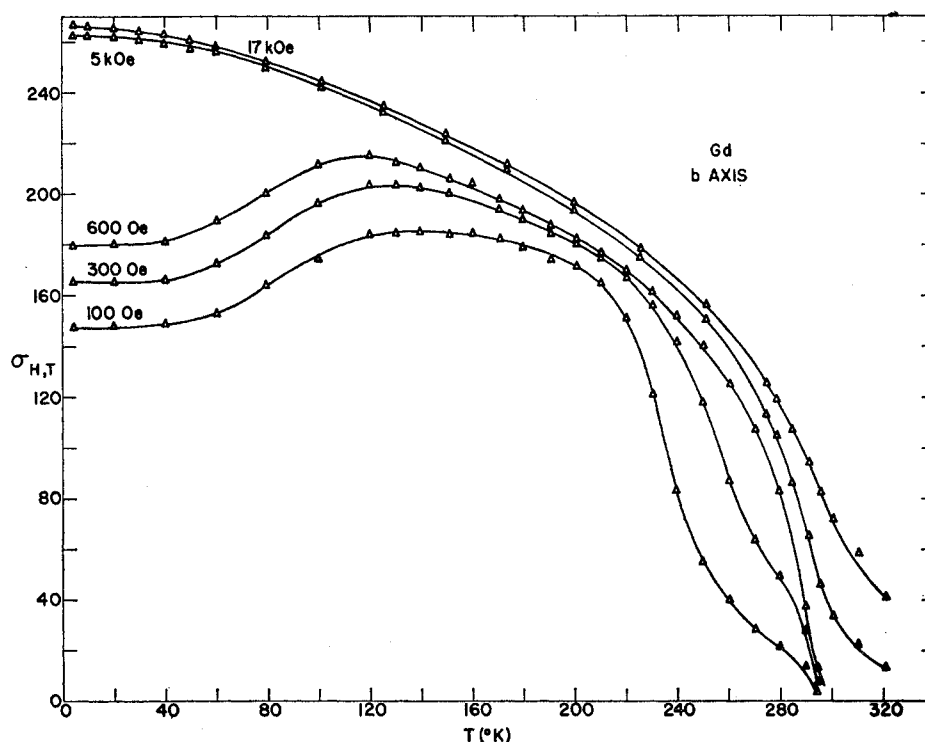
Representative low-field isotherms are exhibited in Figs. 1–3. Isofield curves, constructed from isotherms, are shown in Figs. 4 and 5. The low-field data ($H < 1000$ Oe) are somewhat qualitative due to the uncertainty in the demagnetizing field and also due to the uncertainty in the calibration of the magnetic field gradient at these low magnetic fields. The low-field data are reliable to $\pm 4\%$. The isothermal data indicate (unfortunately, within experimental error) an apparent small basal plane anisotropy in low magnetic fields from 4.2 to about 240°K. Isofield data for the a axis are not shown since these data exhibit the same temperature dependence as that shown in Fig. 5 for the b axis.

Figures 1–3 show how the variation of the easy direction of magnetization with temperature affects the magnetization in the symmetry directions. At 4.2°K, the magnetization vector is about 30° from the c axis; at 160°K, the magnetization vector is very close to the basal plane; while at 270°K, the magnetization vector is parallel to the c direction.^{8,9} The c -axis isofield curves of Fig. 4 show a peak at 220°K and a broad minima at 160–180°K at low fields. The b -axis isofield curves of Fig. 5 show a peak at 120°K for low fields. The high-field data shown in Figs. 4 and 5 were also constructed from isotherms and exhibit nearly normal Weiss behavior.

In Fig. 6 the reduced spontaneous magnetization for the b axis is plotted as a function of T/θ , where θ is the Curie temperature. A comparison is made to the theoretical curves for $J = \frac{7}{2}$ and $J = \infty$ in the Weiss theory of ferromagnetism. The spontaneous magnetization data were determined by linear extrapolation of the isotherms to $H = 0$ for temperatures from 4.2 to 225°K. Above 225°K the spontaneous magnetization was determined by plotting σ^2 versus H/σ and extrapolating from the high-field region to $H = 0$.

In Fig. 7 are shown representative plots of the magnetic moment per gram as a function of $1/H$ for the c - and a -axis crystals. The saturation moments, $\sigma_{\infty, T}$, were obtained by extrapolating these curves to infinite fields. In Fig. 8 the saturation moments are plotted versus $T^{3/2}$ for temperatures from 4.2 to 250°K, and versus T^2 for temperatures from 4.2 to 80°K. The

FIG. 5. Magnetic moment per gram versus temperature for the *b*-axis crystal. Internal magnetic fields are indicated.



experimental data fit the $T^{3/2}$ law to $\pm 0.1\%$ from 50 to about 200°K. The data deviate from $T^{3/2}$ behavior below 50°K and, as shown in Fig. 8, fit the T^2 law rather well; although a log-log plot of the low-temperature data indicated the behavior as $T^{2.2 \pm 0.1}$. There is a small anisotropy in the saturation moment as can be seen in Figs. 7 and 8, however the data for the *a* axis are nearly coincident with those for the *c* axis below

50°K. For the *c* axis, the absolute saturation moment, $\sigma_{\infty,0} = 268.4 \pm 0.5$ cgs units/g which is equivalent to 7.55 ± 0.02 Bohr magnetons/atom. The absolute saturation

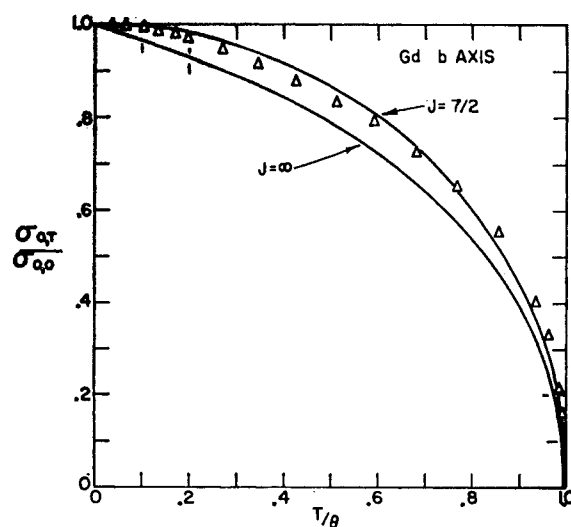


FIG. 6. The reduced spontaneous magnetization curve for the *b*-axis crystal. The solid lines are for $J = \frac{7}{2}$ and $J = \infty$, from the Weiss quantum theory of ferromagnetism.

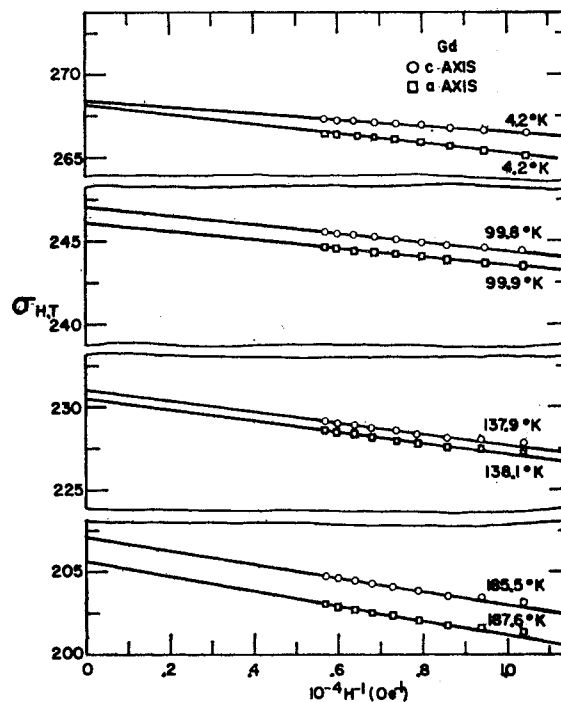


FIG. 7. Magnetic moment extrapolations to infinite field for the *c*- and *a*-axis crystals.

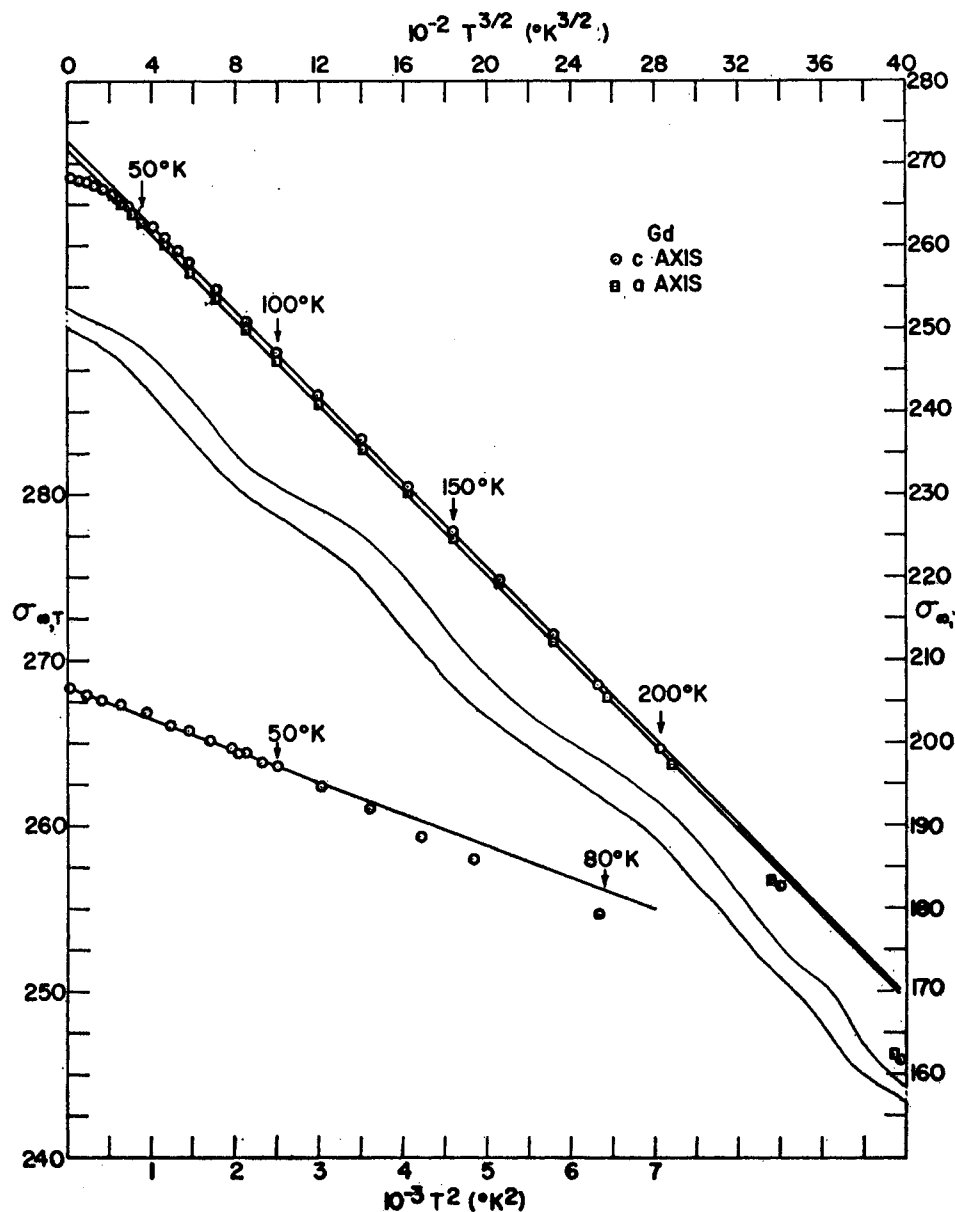


FIG. 8. The saturation magnetic moment as a function of T^2 and $T^{3/2}$.

tion moment for the a axis is $\sigma_{\infty,0} = 268.2 \pm 0.5$ cgs units/g. The saturation values are taken from a T^2 plot and are to be compared with the theoretical saturation moment of $gJ = 7.0$ Bohr magnetons for the $^8S_{7/2}$ state for the ion, which does not include conduction electron effects.

Figure 9 is a plot of the reciprocal of the magnetic susceptibility, $1/\chi$, as a function of temperature. Curie-Weiss behavior was observed from 400 to 900°K. No anisotropy was observed in the paramagnetic region. The experimentally determined paramagnetic Curie temperature is $317 \pm 3^\circ\text{K}$ and the effective Bohr magneton number is 7.98 ± 0.05 , in good agreement with the theoretical value of $\mu_{\text{eff}} = g[J(J+1)]^{1/2} = 7.94$.

The electrical resistivities (residual subtracted) of the b - and c -axis crystals are displayed in Fig. 10 as a function of temperature. The inserts show the behavior in the vicinity of the Curie point. The change in slope for the b -axis curve occurs at $293.2 \pm 0.2^\circ\text{K}$. The c -axis curve shows a rounded maximum at about 292°K and a shallow minimum at about 340°K . No thermal hysteresis was observed in the vicinity of the Curie point.

DISCUSSION

Magnetic anisotropy was observed in Gd below the Curie temperature. The low-field studies confirm that the easy direction of magnetization is a function of

temperature and are in qualitative agreement with the torque measurements.^{8,9}

The experimentally determined absolute saturation moment of $7.55\mu_B$ is in excess of the theoretical moment by $0.55\mu_B$. Liu¹⁵ has suggested that polarization of the conduction electrons may be responsible for the excess moment. It is not believed that the departure from $T^{3/2}$ behavior at low temperatures could arise from an energy gap.¹⁶ On the other hand, it is conceivable that some mechanism associated with the conduction electrons could give rise to such an effect.

The observed $T^{3/2}$ dependence of the saturation magnetization has been explained by Goodings¹⁷ as due to a complicated cancellation of higher order effects.

The ferromagnetic Curie temperature was determined from a σ^2 versus H/σ plot and was found to be $293.2 \pm 0.4^\circ\text{K}$. This temperature is in good agreement with the change in slope at $293.2 \pm 0.2^\circ\text{K}$ observed for the *b*-axis resistivity curve.

No anomalous behavior was observed in the susceptibility at 750°K , as reported by Araj and Colvin.⁶

The behavior of the *c*-axis resistivity above the Curie temperature may be due to short-range order which persists up to at least 340°K . This conclusion is supported by the departure of the susceptibility from Curie-Weiss behavior below 400°K as shown in Fig. 9. In addition, the torque measurements of Graham⁸ show an apparent anisotropy, which is strongly field-dependent, above the Curie temperature. Bozorth and

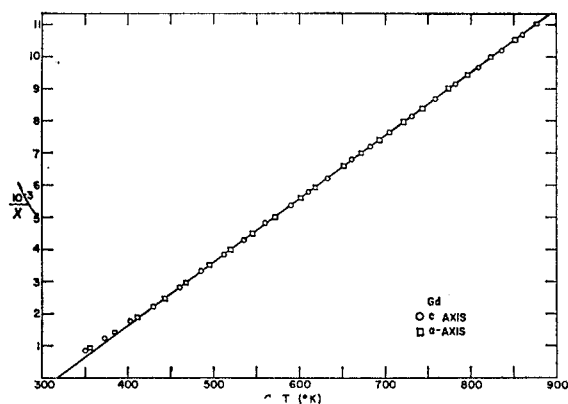


FIG. 9. Inverse paramagnetic susceptibilities of the *c*- and *a*-axis crystals as a function of temperature.

¹⁵ S. H. Liu, Phys. Rev. **123**, 470 (1961).

¹⁶ K. Niira, Phys. Rev. **117**, 129 (1960).

¹⁷ D. A. Goodings, Phys. Rev. **127**, 1532 (1962).

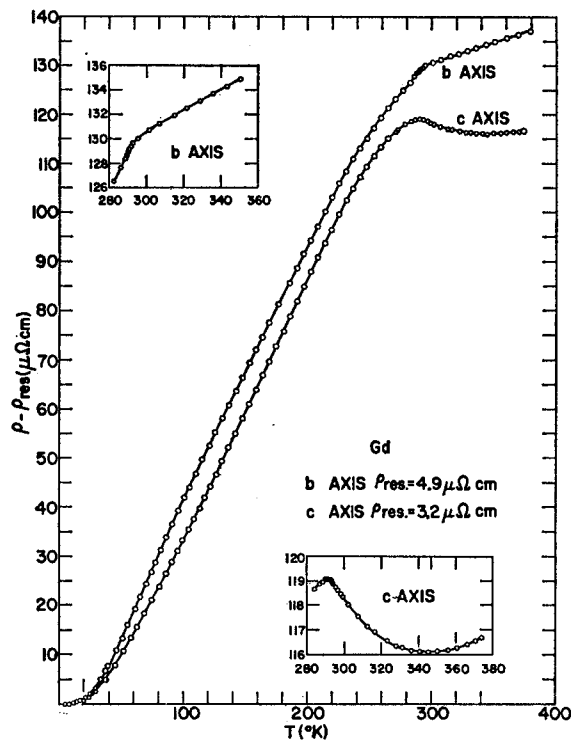


FIG. 10. Electrical resistivity, residual subtracted, versus temperature for the *c*- and *b*-axis crystals. The inserts are enlargements of the data near the Curie point.

Wakiyama¹⁸ observed anomalous behavior in the forced magnetostriction near the Curie temperature.

It was found that a good fit to the experimental data on polycrystalline Gd of Colvin *et al.* was achieved by the use of the relationship $\rho_{\text{poly}} = \frac{1}{3}(2\rho_b + \rho_c)$, where ρ_b is the *b*-axis resistivity, ρ_c is the *c*-axis resistivity, and ρ_{poly} is the calculated polycrystalline resistivity. Alstad *et al.*¹⁹ have verified this relationship for yttrium.

ACKNOWLEDGMENTS

The authors wish to thank C. Habermann and P. Palmer for preparing the gadolinium metal. S. Araj of the U. S. Steel Corporation kindly provided the high-purity iron used for calibration of the magnetic-field gradient.

¹⁸ R. M. Bozorth and T. Wakiyama, J. Appl. Phys. **34**, 1351 (1963).

¹⁹ J. K. Alstad, R. V. Colvin, and S. Legvold, Phys. Rev. **123**, 418 (1961).