

Fakultät für Physik und Astronomie
Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

MASTERARBEIT

im Studiengang Physik

vorgelegt von

Fabian Kaap

aus Neuwied am Rhein

2020

**Untersuchung des Einflusses von Kernspins und in
Niob gespeichertem Wasserstoff auf das
niederfrequente magnetische Flussrauschen in
supraleitenden Quanteninterferenzdetektoren**

Die Masterarbeit wurde von Fabian Kaap
ausgeführt am
Kirchhoff-Institut für Physik
unter der Betreuung von
Herr Priv.-Doz. Sebastian Kempf

Niederfrequentes magnetisches Flussrauschen beeinflusst die Eigenschaften von Josephson-Kontakt-basierten Bauelementen der supraleitenden Elektronik. Seine Herkunft ist trotz intensiver Bemühungen auf experimenteller und theoretischer Seite bislang nicht vollständig verstanden. Aktuell werden unter anderem Kernspins sowie auf der Oberfläche adsorbiert er bzw. im Vollmaterial absorbiert er Wasserstoff als mögliche Ursachen diskutiert. Um erstes zu untersuchen, wurde das niederfrequente Rauschen von SQUIDs, deren SQUID-Schleife aus Aluminium oder Niob besteht, miteinander verglichen. Hierfür wurde unter anderem das niederfrequente Flussrauschen von zwölf dc-SQUID-Arrays sowie zwei einfachen Magnetometer-SQUIDs mit SQUID-Schleifen aus Aluminium gemessen. Die Ergebnisse liefern erste Hinweise dafür, dass auf Aluminium basierende SQUIDs ein niedrigeres magnetisches Flussrauschen als baugleiche Niob basierte SQUIDs aufweisen und deuten so tatsächlich auf den Einfluss von Kernspins auf das niederfrequente magnetische Flussrauschen hin. Für die Untersuchung von Wasserstoff als potentielle Quelle von niederfrequentem magnetischen Flussrauschen wurde eine Methode entwickelt, die es ermöglicht, mit Hilfe einer Tankstruktur Strukturen aus Niob gezielt mit Wasserstoff beladen zu können. In der Folge wurden SQUIDs hergestellt, deren SQUID-Schleife nach der Fertigstellung gezielt mit Wasserstoff beladen werden konnte. Das niederfrequente magnetische Flussrauschen von drei solcher SQUIDs wurde sowohl vor als auch nach der Beladung der SQUID-Schleife mit Wasserstoff untersucht. Die Ergebnisse liefern erste Hinweise dafür, dass in Niob gespeicherter Wasserstoff tatsächlich zu erhöhtem niederfrequentem magnetischen Flussrauschen führt.

Investigation of the influence of nuclear spins and hydrogen in niobium on the low frequency magnetic flux noise in superconducting quantum interference devices

Low frequency flux noise influences the characteristics of Josephson-junction-based elements in superconducting electronics. Despite an immense effort on the experimental and theoretical side its origin is not completely understood. Currently, nuclear spins as well as hydrogen adsorbed on the surface and absorbed in the bulk, are discussed as possible sources of this noise. To investigate the former, the low frequency noise of SQUIDs, whose SQUID-loops are made of aluminium or niobium, were compared. Therefore, the low frequency noise of twelve dc-SQUID-arrays and two simple SQUID-magnetometers with SQUID-loops made of aluminium was measured. The results are a first indicator that SQUIDs based on aluminium show a lower magnetic flux noise than structurally identical SQUIDs based on niobium and indicate an influence of the nuclear spin on the low frequency magnetic flux noise. To investigate hydrogen as a potential origin of low frequency magnetic flux noise, a method was invented, which enables a controlled storage of hydrogen in a niobium structure using a tank structure. Subsequently, SQUIDs were produced, whose SQUID-loops could be charged with hydrogen post fabrication. The low frequency magnetic flux noise of three of such SQUIDs was measured before and after the hydrogen loading of the SQUID-loop. The results indicate, that hydrogen stored in niobium results indeed in an increase of low frequency flux noise.

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	1
2 Theorie	5
2.1 Josephson-Tunnelkontakte	5
2.2 dc-SQUIDs	8
2.3 Magnetisches Flussrauschen von SQUIDs	11
3 Experimentelle Methoden	19
3.1 Betrieb von dc-SQUIDs	19
3.1.1 Einstufiger dc-SQUID-Betrieb	19
3.1.2 Zweistufiger dc-SQUID-Aufbau	21
3.1.3 Kreuzkorrelationsaufbau	23
3.2 Messaufbau	25
3.3 Datenverarbeitung	28
3.4 Herstellung von SQUIDs	30
4 dc-SQUIDs mit SQUID-Washer aus Aluminium	33
4.1 Design und Herstellung	33
4.1.1 Einfache Washer-SQUIDs	34
4.1.2 N-SQUID-Serienarrays	35
4.2 Experimentelle Ergebnisse	37
4.2.1 SQUID-Arrays mit Aluminium-Washer	37

4.2.2	Einfache Washer-SQUIDs mit Al-Washer	42
5	Wasserstoff in Niob	45
5.1	Prozess zur gezielten Beladung von Niobstrukturen mit Wasserstoff .	45
5.2	Charakterisierung von mit Wasserstoff beladenen SQUIDs	50
5.3	Gezielte Einstellung der Wasserstoffbeladung von Niobstrukturen . .	52
5.4	dc-SQUIDs mit Tankstruktur zur gezielten Beladung mit Wasserstoff	54
5.5	Experimentelle Ergebnisse	56
6	Zusammenfassung	67
7	Anhang	71
	Literaturverzeichnis	73

1. Einleitung

Niederfrequentes $1/f$ -Rauschen tritt in vielen Bereichen der Natur und unseres Alltags auf. So besitzen beispielsweise die zeitliche Entwicklung der Geschwindigkeit von Meeresströmungen in einigen hundert Metern Tiefe als auch der Verkehrsfluss innerhalb eines Staus auf einer Autobahn eine $1/f$ -Frequenzabhängigkeit [Taf74, Mus76]. Auch Prozesse im menschlichen Körper zeigen eine derartige Frequenzabhängigkeit. Misst man etwa den Herzschlag einer ruhenden Person über einen längeren Zeitraum, so weist das Leistungsspektrum der Herzfrequenz ein $1/f$ -artiges Verhalten auf [Mus82].

Im Bereich der supraleitenden Elektronik beeinflusst $1/f$ -artiges niederfrequentes Rauschen sowohl die Eigenschaften von supraleitenden Qubits als auch die Leistungsfähigkeit von supraleitende Quanteninterferenzdetektoren (SQUIDs). So beeinflusst niederfrequentes Rauschen etwa die Kohärenzzeit von supraleitenden Qubits [Ber09] und erschwert so die Realisierung eines Quantencomputers auf der Basis von supraleitenden Qubits oder degradiert die Energiesensitivität von SQUIDS [Dru11], mit welchen sehr präzise Messungen von magnetischen Flussänderungen erreicht werden können und die daher beispielsweise zum Auslesen von metallischen magnetischen Kalorimetern [Kem18] genutzt werden.

Bekannte Quellen für niederfrequentes magnetisches Flussrauschen in dc-SQUIDS sind beispielsweise Fluktuationen von äußeren Hintergrundfeldern, die die SQUID-Schleife durchsetzen [Cla04] oder der kritischen Ströme der Josephson-Tunnelkontakte [Rog83, Wak86], welche eine essentielle Komponente eines SQUIDS darstellen. Der Einfluss dieser Rauschquellen lässt sich jedoch durch geeignete experimentelle Randbedingungen, etwa durch die Verwendung supraleitender Abschirmungen, oder durch eine Optimierung der Herstellungsprozesse für die Tunnelkontakte minimieren. Neben diesen wohlverstandenen Rauschbeiträgen tritt bei flusssensitiven Josephson-Kontakt basierten Bauelementen jedoch ein weiterer niederfrequenter Rauschanteil auf, der auch knapp 40 Jahre nach seiner ersten Beobachtung [Koc83, Wel87] die Wissenschaftler noch immer vor große Rätsel stellt. Es konnte mittlerweile experimentell gezeigt werden, dass ein Anteil dieses Rauschbeitrags durch wechselwirkende magnetische Momente, die auf der Oberfläche des Bauteils sitzen, verursacht wird. So wurde etwa experimentell gezeigt, dass auf der Oberfläche von supraleitenden Resonatoren adsorbierter Wasserstoff einen niederfrequenten Anteil zum Frequenzrauschen beisteuert [dG18]. Auch viele theoretische Arbeiten deuten darauf hin, dass Wasserstoff sowohl auf der Oberfläche adsorbiert als auch im Material absorbiert einen solchen

Rauschbeitrag mit sich bringen kann [Hol13, Wan18]. Darüber hinaus weisen einige theoretische Modelle auf durch Hyperfeinwechselwirkungen zwischen Kernspins und Elektronspins auf der Oberfläche erzeugtes niederfrequentes Rauschen hin [Wu12]. In diesem Fall müsste der beobachtete Rauschbeitrag von der Wahl des Materials abhängen. Ein schwacher Hinweis auf eine solche Materialabhängigkeit ist in [Kem16] zu finden.

Vor diesem Hintergrund wurden im Rahmen dieser Arbeit zwei verschiedene Aspekte bezüglich des niederfrequenten magnetischen Flussrauschen ins Josephson-Kontakt basierten Bauelementen, konkret dc-SQUIDs, untersucht. So wurde der Einfluss von in Niob gespeichertem Wasserstoff auf das niederfrequente magnetische Flussrauschen analysiert, um zu sehen, ob nicht nur an der Oberfläche adsorbiertes sondern auch im Vollmaterial absorbiertes Wasserstoff einen Beitrag zu niederfrequenten Flussrauschen liefert. Darüber hinaus wurde das niederfrequente Flussrauschen von aus Aluminium bzw. Niob gefertigten SQUIDS gemessen und miteinander verglichen, um die in [Kem16] angedeutete Materialabhängigkeit zu untersuchen bzw. zu untermauern. Da Aluminium mit $I = 5/2$ einen kleineren Kernspin als Niob mit $I = 9/2$ besitzt, eignen sich diese Messungen auch, um eine Aussage über das oben genannte theoretische Modell hinsichtlich der Rolle von Hyperfein-Wechselwirkungen [Wu12] treffen zu können.

In Kapitel 2 werden die für diese Arbeit relevanten theoretischen Grundlagen zusammengefasst. Hierzu gehört eine Diskussion der grundlegenden Eigenschaften von Josephson-Tunnelkontakte sowie der Funktionsweise von dc-SQUIDS. Darüber hinaus wird das in dc-SQUIDs auftretende magnetische Flussrauschen beschrieben, wobei besonderer Augenmerk auf den niederfrequenten Anteil gelegt wird.

In Kapitel 3 wird zunächst auf die Technik zur Linearisierung des Ausgangssignals eines dc-SQUIDs sowie verschiedene experimentelle Methoden zum Messen des magnetischen Flussrauschen eines dc-SQUIDs eingegangen. Dabei werden insbesondere parasitäre Rauschbeiträge diskutiert, auf die die gemessenen Rauschspektren korrigiert wurden. Im Anschluss wird der experimentelle Messaufbau beschrieben, mit welchem die in dieser Arbeit präsentierten Ergebnisse aufgenommen wurden. Des Weiteren wird der Standardprozess zur Herstellung von Niob-SQUIDS präsentiert.

In Kapitel 4 werden die im Rahmen dieser Arbeit durchgeföhrten Messungen hinsichtlich der Materialabhängigkeit des niederfrequenten magnetischen Flussrauschen diskutiert. Hierfür werden zunächst die Entwurfszeichnungen der dc-SQUIDS erläutert, mit denen SQUIDs mit SQUID-Schleifen aus Aluminium bzw. Niob hergestellt wurden. Im Anschluss erfolgt die Diskussion der Messergebnisse hinsichtlich des niederfrequenten magnetischen Flussrauschen dieser SQUIDS

sowie ein Vergleich des auftretenden Rauschbeitrags für beide Materialien.

In Kapitel 5 wird eine im Rahmen dieser Arbeit entwickelte Methode zur kontrollierten Beladung von Mikrostrukturen aus Niob mit Wasserstoff erläutert. Das Funktionsprinzip dieser Methode wird anhand von Messungen charakteristischer Größen von mäanderförmigen Teststrukturen aus Niob validiert. In diesem Zusammenhang wird insbesondere gezeigt, dass mit Hilfe einer Tankstruktur Niob gezielt quantitativ mit Wasserstoff beladen werden kann. Im Anschluss werden die Entwurfszeichnungen von dc-SQUIDs präsentiert, welche mit Hilfe eines solchen Tanks beladen werden können. Zum Abschluss wird der Einfluss von Wasserstoff auf die wichtigen Kenngrößen und auf das niederfrequente magnetische Flussrauschen dieser SQUIDs untersucht sowie erste Untersuchungen hinsichtlich des niederfrequenten magnetischen Flussrauschens nominell mit Wasserstoff beladener SQUIDs diskutiert.

In Kapitel 6 erfolgt schließlich eine Zusammenfassung der Ergebnisse und es wird ein Ausblick auf an diese Arbeit anschließende Aktivitäten gegeben.

2. Theorie

Im diesem Kapitel werden der Aufbau und die Funktionsweise von Josephson-Tunnelkontakte und mit Gleichstrom betriebenen supraleitenden Quanteninterferenzdetektoren (dc-SQUIDs) diskutiert. Dabei wird zunächst auf Josephson Tunnelkontakte und deren Beschreibung im Rahmen des RCSJ-Modell eingegangen. Darauf aufbauend wird eine Beschreibung eines dc-SQUIDs gegeben, die die Diskussion der im Rahmen dieser Arbeit zur Interpretation der Ergebnisse benötigten Kenngrößen beinhaltet. Das Kapitel endet mit einer Übersicht über die verschiedene Rauschbeiträge, die für dc-SQUIDs relevant sind.

2.1 Josephson-Tunnelkontakte

Josephson-Tunnelkontakte bestehen aus zwei supraleitenden Elektroden, welche durch eine sehr dünne isolierende Barriere getrennt sind. Ist die Tunnelbarriere hinreichend dünn, sodass die makroskopischen Wellenfunktionen Ψ_1 und Ψ_2 , die den Zustand der beiden supraleitenden Elektroden beschreiben, innerhalb der Barriere überlappen, so kommt es zu einer Kopplung, die durch die Kopplungskonstante κ beschrieben werden kann. Berücksichtigt man diese Kopplung, so erhält man ein System zweier miteinander gekoppelter Schrödinger-Gleichungen für die Wellenfunktionen Ψ_1 und Ψ_2 , deren Lösung zu den sogenannten Josephson-Gleichungen führt [Jos62]. Nach der ersten Josephson-Gleichung ist der durch den Josephson-Kontakt fließende Suprastrom durch den Ausdruck

$$I_s = I_c \sin(\varphi) \quad (2.1)$$

gegeben, wobei der kritische Strom I_c von der Stärke der Kopplung, der Größe des Tunnelkontakte und den verwendeten supraleitenden Materialien abhängt. Die eichinvariante Phasendifferenz φ ist durch

$$\varphi = \phi_2 - \phi_1 - \frac{2\pi}{\Phi_0} \int_1^2 \mathbf{A} d\mathbf{l} \quad (2.2)$$

gegeben, wobei ϕ_1 und ϕ_2 die Phasen der Wellenfunktionen Ψ_1 und Ψ_2 , \mathbf{A} das magnetische Vektorpotential in der Barriere und $\Phi_0 = 2,068 \cdot 10^{-15}$ Wb das magnetische Flussquantum bezeichnen. Die zweite Josephson-Gleichung besagt, dass die über dem Kontakt abfallende Spannung U proportional zu der zeitlichen Änderung der Phasendifferenz gemäß

$$\dot{\varphi} = \frac{2\pi}{\Phi_0} U \quad (2.3)$$

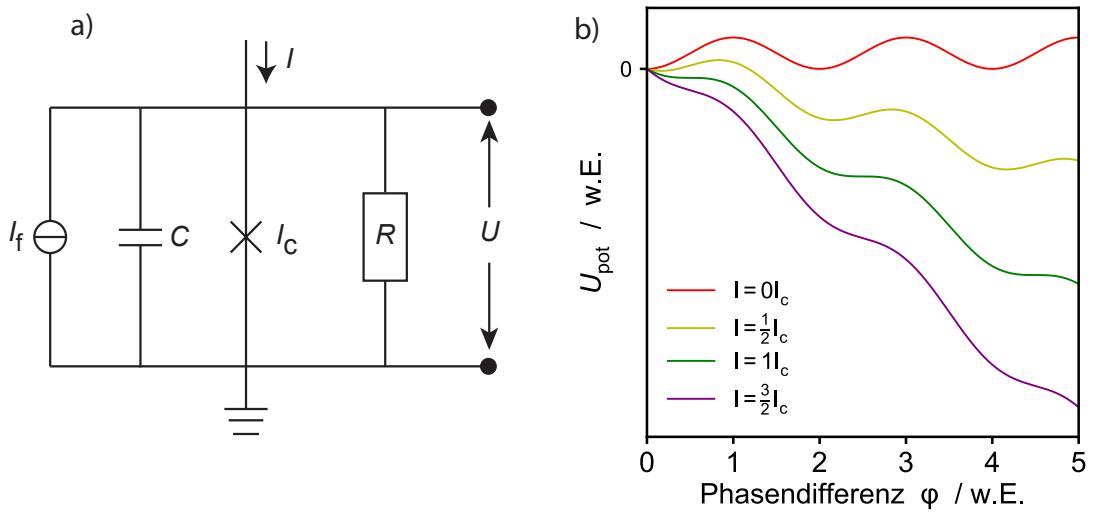


Abb. 2.1: a) Schematische Darstellung eines Josephson-Tunnelkontakte nach dem RCSJ-Modell. b) Das Potential U_{pot} als Funktion der Phasendifferenz φ für verschiedene Werte des extern in den Kontakt eingeprägten Stromes I .

ist. Wird mit Hilfe einer externen Stromquelle ein Strom I durch einen Josephson-Kontakt getrieben und die über dem Kontakt abfallende Spannung mit Hilfe eines sensitiven Spannungsmessgeräts gemessen, so kann der Strom I allein durch Cooper-Paare getragen werden, sofern der Strom kleiner als der kritische Strom ist, das heißt $I < I_c$. Es stellt sich gemäß der ersten Josephson-Gleichung eine konstante Phasendifferenz ein und es fällt daher keine Spannung über dem Tunnelkontakt ab. In diesem Fall spricht man vom Josephson-Gleichstrom-Effekt. Übersteigt der eingeprägte Strom $I > I_c$ jedoch den kritischen Strom, so muss zusätzlich zum Suprastrom noch ein Quasiteilchenstrom fließen, welcher mit einem Spannungsabfall über dem Tunnelkontakt einhergeht. Der Spannungsabfall sorgt nach Gleichung 2.3 für eine Phasenänderung $\dot{\varphi}$ und es kommt nach Gleichung 2.1 zu einem oszillierenden Suprastrom, weshalb man von dem Josephson-Wechselstrom-Effekt spricht.

Das Verhalten realer Josephson-Tunnelkontakte kann durch das RCSJ-Modell¹ [McC68, Ste68] vereinfacht beschrieben werden. Dieses basiert auf der Annahme, dass ein realer Tunnelkontakt durch eine Parallelschaltung aus einem idealen Tunnelkontakt mit kritischem Strom I_c , einer Kapazität C , einem ohmschen Widerstand R und einer thermischen Rauschquelle I_f beschrieben werden kann (siehe Abbildung 2.1 a)). Mit Hilfe der Kirchhoffsschen Knotenregel und Gleichung 2.3

¹ Abkürzung aus dem Englischen für „Resistively- and Capacitively-Shunted Junction Model“

lässt sich das Verhalten eines Tunnelkontakte auf die Bewegungsgleichung

$$\frac{\Phi_0}{2\pi}C\ddot{\varphi} + \frac{\Phi_0}{2\pi R}\dot{\varphi} + \frac{d}{d\varphi}U_{\text{pot}} = 0 \quad (2.4)$$

eines hypothetischen Phasenteilchens mit Masse $M = (\Phi_0/2\pi)^2 C$, das sich unter dem Einfluss einer Reibungskraft, die durch den Reibungskoeffizienten $\eta = (\Phi_0/2\pi)^2/R$ charakterisiert ist, in dem Potential

$$U_{\text{pot}} = \frac{\Phi_0 I_c}{2\pi} \left(1 - \cos \varphi - \frac{I}{I_c} \varphi \right) \quad (2.5)$$

bewegt, zurückführen. Das Phasenteilchen bleibt für Ströme $I < I_c$ in einem der lokalen Minima gefangen und oszilliert dort mit der Plasmafrequenz $\omega_p = \sqrt{2\pi I_c/\Phi_0 C}$. Der zeitliche Mittelwert $\langle \varphi \rangle$ der Phase ist jedoch konstant, so dass die über dem Kontakt abfallende Spannung gemäß der zweiten Josephson-Gleichung verschwindet. Für $I > I_c$ rollt das Phasenteilchen das Potential herunter und es tritt eine Phasenänderung auf. Gemäß der zweiten Josephson-Gleichung führt dies zu einem Spannungsabfall über dem Kontakt. Das Rückkehrverhalten eines Josephson-Kontakt vom Spannungszustand in den spannungsfreien Zustand bei einer Verringerung des extern eingeprägten Betriebsstroms I wird maßgeblich durch den Stewart-McCumber-Parameter

$$\beta_C = \frac{2\pi}{\Phi_0} I_c C R^2 \quad (2.6)$$

bestimmt [McC68]. Für $\beta_C \ll 1$ ist die Masse M des Phasenteilchens klein und der Reibungskoeffizient η ist groß und man spricht von einem überdämpften Tunnelkontakt. Ist $\beta_C \gg 1$, so ist die Masse M groß und der Reibungskoeffizient η klein und man spricht von einem unterdämpften Tunnelkontakt. In Abbildung 2.2 a) ist die Strom-Spannungs-Kennlinie eines im institutseigenen Reinraum produzierten unterdämpften Tunnelkontakte zu sehen. Dabei wurde ein Strom I in den Kontakt eingeprägt und die über dem Kontakt abfallende Spannung U aufgezeichnet. Erhöht man den eingeprägten Strom durch den Tunnelkontakt von $I = 0$ auf einen Wert $I < I_c$, so fällt zunächst keine Spannung über dem Tunnelkontakt ab. Übersteigt der Strom den kritischen Strom, das heißt $I > I_c$, so kann er nicht allein durch einen Suprastrom getragen werden und es müssen Cooper-Paare aufgebrochen werden. Die minimale Spannung, welche mit dem Aufbrechen von Cooper-Paaren zusammenhängt, ist $V_g = (\Delta_1 + \Delta_2)/e$, welche durch die Energielücken Δ_1 und Δ_2 der supraleitenden Elektroden gegeben ist. Da in Supraleitern die Zustandsdichte bei der Energielücke divergiert und somit viele Quasiteilenzustände existieren, kommt es innerhalb der Strom-Spannungs-Kennlinie bei V_g zu einem steilen Anstieg des durch den Kontakt fließenden Stroms. Da die Zustandsdichte eines Supraleiters bei hoher Energien $E = eU > eV_g$ der eines Normalleiters entspricht, kommt es zu Ohmschen Bereichen an den Rändern

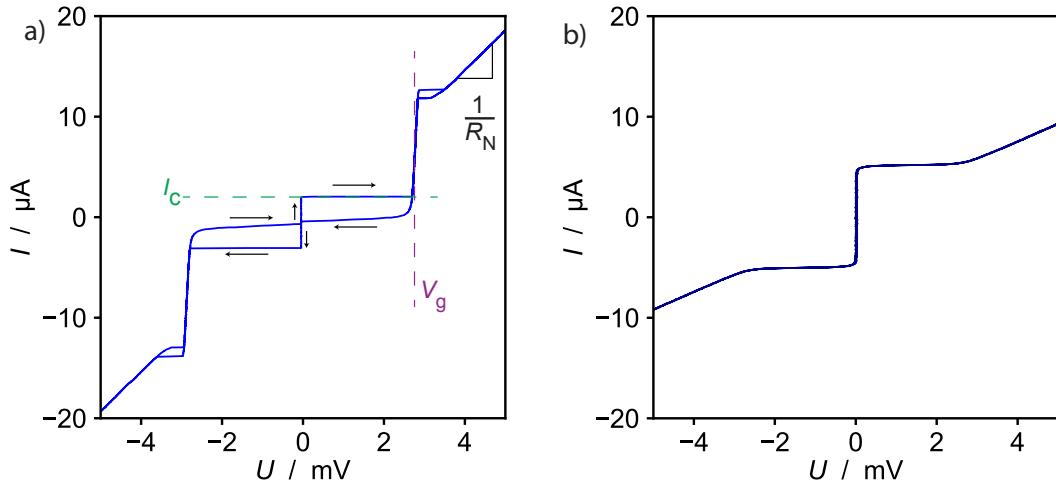


Abb. 2.2: a) Experimentell bestimmte Strom-Spannungs-Kennlinie eines im institutseigenen Reinraum hergestellten Nb-AlO_x-Nb-Josephson-Tunnelkontakte mit $\beta_c \gg 1$. Die Pfeile markieren die Durchlaufrichtung der Kennlinie. Zusätzlich sind einige charakteristische Kenngrößen eingezeichnet. b) Experimentelle Strom-Spannungs-Kennlinie eines Tunnelkontakte mit $\beta_c \ll 1$.

der Kennlinie. Wird der Strom ausgehend vom Ohmschen Bereich verringert, so stellt sich der supraleitende Zustand eines unterdämpften Tunnelkontakte nicht sofort bei Erreichen des kritischen Stroms I_c ein, da das in diesem Fall schwere Phasenteilchen erst bei einem Wert I_r , der nach [Lik86] durch den Ausdruck

$$I_r = \frac{4}{\pi R} \sqrt{\frac{\Phi_0 I_c}{2\pi C}} = \frac{4I_c}{\pi \sqrt{\beta_c}} \quad (2.7)$$

gegeben ist, durch die schwache Reibung in einem der Minima gefangen werden kann. In Abbildung 2.2 b) ist die Strom-Spannungs-Kennlinie eines stark gedämpften Tunnelkontakte zu sehen. Dabei ist keine Hysterese zu erkennen und die Kennlinie ist eindeutig, da das Phasenteilchen leicht ist und so direkt im Minimum gefangen wird. Da qualitativ hochwertige Josephson-Kontakte in der Regel unterdämpft sind, wird bei der Herstellung von dc-SQUIDs ein Shunt-Widerstand parallel zum Kontakt geschaltet, um ein hysteretisches Verhalten zu vermeiden [Cla04].

2.2 dc-SQUIDs

Ein dc-SQUID besteht aus einer supraleitenden Leiterschleife, welche durch zwei Josephson-Tunnelkontakte unterbrochen wird. In Abbildung 2.3 ist die schema-

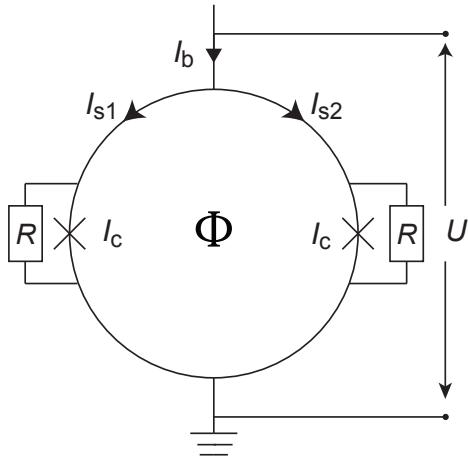


Abb. 2.3: Schematische Darstellung eines dc-SQUIDS das aus einer supraleitenden Schleife, welche durch zwei Josephson-Tunnelkontakte unterbrochen wird, besteht. Parallel zu den Tunnelkontakten sind shunt-Widerstände geschaltet.

tische Zeichnung eines solchen dc-SQUIDs dargestellt. Die beiden Josephson-Kontakte haben jeweils den kritischen Strom I_c und sind mit einem Shunt-Widerstand mit dem elektrischen Widerstand R versehen, um ein hysteretisches Verhalten zu unterdrücken (siehe Abschnitt 2.1). Das SQUID wird durch den Betriebsstrom I_b durchflossen und die über dem Kontakt abfallende Spannung wird als U bezeichnet. Im spannungsfreien Zustand ist der durch das gesamte SQUID fließende Strom gemäß Kirchhoffs Knotenregel durch den Ausdruck

$$I_s = I_c \sin(\varphi_1) + I_c \sin(\varphi_2) = 2I_c \cos\left(\frac{\varphi_1 - \varphi_2}{2}\right) \sin\left(\frac{\varphi_1 + \varphi_2}{2}\right) , \quad (2.8)$$

gegeben. Da es sich bei einem SQUID um eine supraleitende Schleife handelt, tritt zudem Fluss-Quantisierung [Lon50] auf, sodass sich für die Phasendifferenz der Ausdruck

$$\varphi_2 - \varphi_1 = \frac{2\pi}{\Phi_0} \Phi_{\text{tot}} \quad (2.9)$$

ableiten lässt. Hierbei bezeichnet Φ_{tot} den magnetischen Fluss, der die SQUID-Schleife durchdringt. Dieser setzt sich aus dem durch ein äußeres Magnetfeld verursachten Fluss Φ_{ext} sowie durch einen intrinsischen Flussbeitrag zusammen, der durch im SQUID fließende Kreisströme verursacht wird. Da der externe Fluss Φ_{ext} nicht quantisiert ist, fließt im SQUID ein zirkularer Strom $I_{\text{circ}} = (I_{s1} - I_{s2})/2$, sodass innerhalb der SQUID-Schleife die Flussquantisierung gilt. Der gesamte Fluss lässt sich mit der Schleifeninduktivität L des SQUIDs durch den Ausdruck

$$\Phi_{\text{tot}} = \Phi_{\text{ext}} + LI_{\text{circ}} \quad (2.10)$$

darstellen und lässt sich mit der Gleichung 2.8 zum Ausdruck

$$\Phi_{\text{tot}} = \Phi_{\text{ext}} - \beta_L \Phi_0 \sin\left(\pi \frac{\Phi_{\text{tot}}}{\Phi_0}\right) \cos\left(\varphi_1 + \pi \frac{\Phi_{\text{tot}}}{\Phi_0}\right) , \quad (2.11)$$

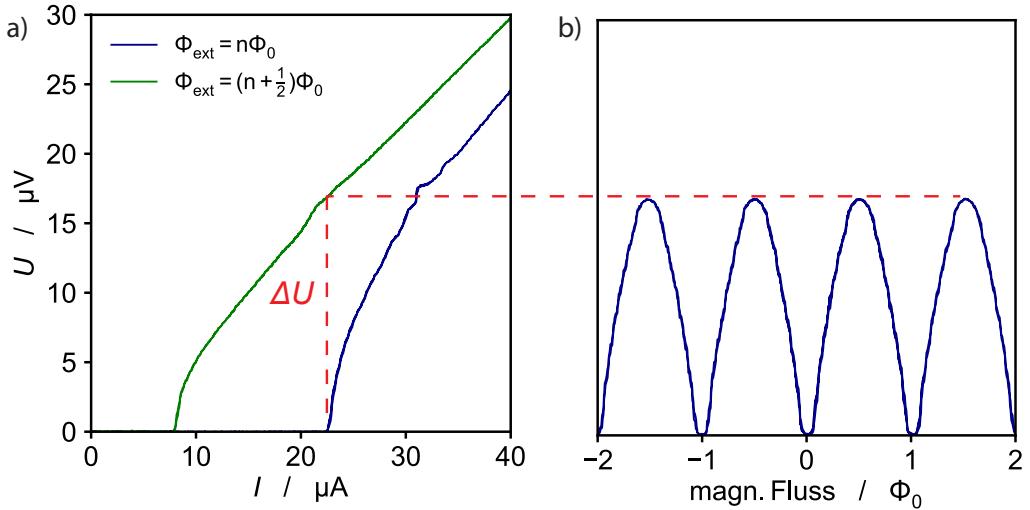


Abb. 2.4: a) Strom-Spannungs-Kennlinie für ganzzahlige $\Phi_{ext} = n\Phi_0$ und halbzahligre externe Flüsse $\Phi_{ext} = (n + 1/2)\Phi_0$ im SQUID. b) Fluss-Spannungs-Kennlinie des SQUIDs. Die gestrichelte Linie markiert dabei den Arbeitspunkt I_b mit dem zugehörigen Spannungshub ΔU .

zusammenfassen, wobei $\beta_L = 2LI_c/\Phi_0$ den sogenannten Abschirmparameter darstellt. Dieser gibt das Verhältnis des durch den maximal möglichen Abschirmstrom I_c induzierten Flusses $\Phi_{circ} = LI_c$ und dem zugehörigen Fluss $\Phi_0/2$ an. Ist der durch ein SQUID mit $\beta_L \ll 1$ und $\beta_C \ll 1$ fließende Strom größer als I_c , so kann die zeitlich gemittelte über dem SQUID abfallende Spannung im Rahmen der RCSJ-Modells durch

$$\langle U(t) \rangle = I_c R_N \sqrt{\left(\frac{I}{2I_c}\right)^2 - \cos^2\left(\frac{\pi\Phi_{ext}}{\Phi_0}\right)} \quad (2.12)$$

analytisch beschrieben werden, wobei R_N der Widerstand eines Josephson-Kontakts im Ohmschen Bereich der Strom-Spannungs-Kennlinie ist. Es folgt, dass die gemittelte Spannung für den Strom $I = 2I_c$ maximal wird und periodisch mit dem externen Fluss Φ_{ext} ist. Numerische Berechnungen [Tes77] haben gezeigt, dass für einen optimalen Betrieb eines dc-SQUIDS die Parameter der Tunnelkontakte und die SQUID-Induktivität so gewählt werden sollten, dass $\beta_L \approx 1$ und $\beta_C \approx 1$ betragen. In Abbildung 2.4 a) ist die Strom-Spannungs-Kennlinie eines solchen SQUIDS für ganzzahlige $\Phi_{ext} = n\Phi_0$ und halbzahligre Flüsse $\Phi_{ext} = (n + 1/2)\Phi_0$ dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die Spannungsdifferenz ΔU der beiden Kurven bei dem doppelten kritischen Strom $I = 2I_c$ maximal ist. Hält man den Betriebsstrom konstant und variiert den äußeren Fluss Φ_{ext} , so erhält man die in Abbildung 2.4 b) gezeigte periodische Fluss-Spannungs-Kennlinie. In diesem

Strombetrieb beschreibt der Fluss-zu-Spannungs-Koeffizient

$$V_\Phi = \left| \left(\frac{\partial V}{\partial \Phi_{\text{ext}}} \right)_{I_b=\text{const}} \right| \quad (2.13)$$

wie sich die Spannung über dem SQUID an einem gewählten Arbeitspunkt mit einem externen Fluss ändert. Analog lässt sich das SQUID mit einer konstanten Spannung betreiben und eine Flussänderung sorgt für eine Stromänderung durch das SQUID. Der Fluss-zu-Strom-Koeffizient

$$I_\Phi = \left| \left(\frac{\partial I}{\partial \Phi_{\text{ext}}} \right)_{U_b=\text{const}} \right| \quad (2.14)$$

gibt an, wie sich der Strom bei einer Änderung des Fluxes verhält. Diese Koeffizienten sind für ein optimales SQUID bei einem Fluss-Offset $\Phi_b = (2n + 1)/4 \Phi_0$ maximal. Zudem lässt sich der dynamische Widerstand

$$R_{\text{dyn}} = \left| \left(\frac{\partial V}{\partial I} \right)_{\Phi_{\text{ext}}=\text{const}} \right| \quad (2.15)$$

definieren, welcher die Strom-Spannungs-Anhängigkeit bei konstantem externen Fluss angibt.

2.3 Magnetisches Flussrauschen von SQUIDs

Wird mit einem Experiment eine physikalische Größe mit dem gegebenen Wert a_0 gemessen, so entspricht das zeitliche Signal $a(t)$ nicht diesem Wert, sondern schwankt statistisch unabhängig um den Mittelwert $\langle a(t) \rangle = a_0$. Diese Phänomene wird als Rauschen bezeichnet und sorgt beispielsweise dafür, dass man nicht beliebig kleine Signal messen kann, da diese ab einer gewissen Größe im Rauschen des experimentellen Aufbaus untergehen. Der quadratischen Mittelwert des zeitlichen Signals $\langle a^2(t) \rangle$ nimmt mit stärkerem Rauschen zu. Die Standardabweichung $\sigma = \sqrt{\langle a^2(t) \rangle - \langle a(t) \rangle} > 0$ nimmt dadurch einen endlichen Wert an, welcher mit stärkerem Rauschen zunimmt. Diese Größe liefert zwar ein Maß für die Stärke des Rauschens, jedoch beschreibt sie nicht die spektrale Zusammensetzung des Rauschens. Die zeitliche Autokorrelationsfunktion

$$k(\tau) = \lim_{T \rightarrow \infty} \int_{-T}^T a(t)a(t + \tau)dt \quad , \quad (2.16)$$

gibt die Korrelation des Signals mit sich selbst zu einem früheren Zeitpunkt an, wobei τ die zeitliche Verschiebung beschreibt. Die Fouriertransformierte der Autokorrelationsfunktion gibt nach dem Khintchine-Wiener-Theorem [Khi86, Wie30]

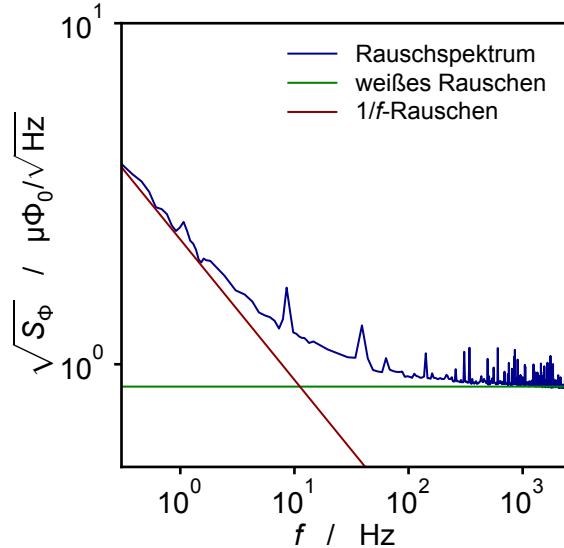


Abb. 2.5: Die gemessene spektrale Leistungsdichte des Flussrauschen $\sqrt{S_\Phi(f)}$ eines dc-SQUIDS (blau). Der weiße Rauschanteil $\sqrt{S_{\Phi,w}}$ (grün) und der $1/f$ -artige Anteil $\sqrt{S_{\Phi,1/f}}$ (rot) wurden dabei durch eine numerische Anpassung der Gleichung 2.18 an das gemessene Spektrum bestimmt.

die spektrale Leistungsdichte

$$S(\omega) = \int_{-\infty}^{+\infty} k(\tau) \exp(-i\omega\tau) d\tau \quad (2.17)$$

des gemessenen Signals $a(t)$ an.

Abbildung 2.5 zeigt die typische spektrale Leistungsdichte $\sqrt{S_\Phi(f)}$ des magnetischen Flussrauschen eines dc-SQUIDS. Wie man in der Abbildung erkennen kann, setzt es sich aus einem frequenzabhängigen Teil $\sqrt{S_{\Phi,1/f}(f)}$ sowie einem frequenzunabhängigen Teil $\sqrt{S_{\Phi,w}}$ zusammen und kann durch den folgenden Ausdruck beschrieben werden:

$$\sqrt{S_\Phi(f)} = \left[S_{\Phi,w} + \frac{S_{\Phi,1/f}(1 \text{ Hz})}{f^\alpha} \right]^{\frac{1}{2}}. \quad (2.18)$$

Der frequenzabhängige Teil $\sqrt{S_{\Phi,1/f}(f)}$ lässt sich hierbei durch die Amplitude $S_{\Phi,1/f}(1 \text{ Hz})$ des $1/f$ -artigen Rauschens bei 1 Hz sowie den Rauschexponenten α beschreiben, der wie in [Kem16] gezeigt Werte zwischen 0,3 und 1,5 annimmt. Um das Rauschen eines SQUIDS induktivitätsunabhängig zu untersuchen, wird die Energiesensitivität $\epsilon_\Phi(f) = S_\Phi(f)/2L$ eingeführt. Diese gibt die minimale magnetische Energie pro Bandbreite an, welche vom SQUID detektiert werden kann.

Der weiße Rauschanteil in SQUIDS ist auf die thermischen Fluktuationen in den verschalteten Shunt-Widerständen der Josephson-Kontakte zurückzuführen. Die spektrale Leistungsdichte des Widersstandsrauschen ist dabei durch den Ausdruck

$$S_I = \frac{4k_B T}{R} \quad (2.19)$$

gegeben, welcher linear mit der Temperatur T und reziprok mit dem Widerstand R zusammenhängt [Nyg28, Joh28]. Das Stromrauschen der beiden Shunt-Widerstände kann nun in Phase mit $S_{I,\text{in}} = 4k_B T / (R/2)$ oder außer Phase und somit kreisförmig im SQUID mit $S_{I,\text{out}} = 4k_B T / 2R$ sein. Dadurch ist das gesamte Spannungsrauschen über dem SQUID durch den Ausdruck

$$S_V = S_{I,\text{in}} R_d^2 + S_{I,\text{out}} L^2 V_\Phi^2 \quad (2.20)$$

gegeben, wobei R_d den dynamische Widerstand des SQUIDs am gewählten Arbeitspunkt beschreibt. Numerische Berechnungen [Tes77, Bru82, Cla96] haben gezeigt, dass das gesamte Spannungsrauschen der über dem SQUID abfallenden Spannung (2.20) bei optimal gewählten R_d und L durch

$$S_V = 16k_B T R \quad (2.21)$$

gegeben ist, welches sich mit $S_\Phi = S_V / V_\Phi^2$ in Flussrauschen übertragen lässt.

Bevor mögliche Quellen für das niederfrequente Rauschen genannt werden, wird zunächst auf das temperaturabhängige Verhalten des niederfrequenten Rauschens eingegangen. Trägt man wie in Abbildung 2.6 a) illustriert die spektrale Leistungsdichte des niederfrequenten Flussrauschens eines SQUIDs für verschiedene Temperaturen über die Frequenz auf, so schneiden sich diese bei einer bestimmte Pivotier-Frequenz f_c an einem Wert von $\sqrt{S_{1/f}(f_c)}$ [Ant13b], und weisen dabei unterschiedliche Werte für den Rauschexponenten auf. Dabei nimmt das Rauschen für Frequenzen $f < f_c$ für höhere Temperaturen ab, während es für Frequenzen $f > f_c$ mit höherer Temperatur ansteigt. Analog lässt sich die Pivotierfrequenz f_c bestimmen, indem man wie in Abbildung 2.6 b) die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1\text{Hz})$ bei 1 Hz eines SQUIDs gegen den Rauschexponenten α einfach-logarithmisch aufträgt. Durch Anpassung der Gleichung

$$\epsilon_{1/f}(f) = \epsilon_{1/f}(f_c) \cdot \left(\frac{f_c}{f} \right)^\alpha \quad (2.22)$$

erhält man sowohl die Pivotierfrequenz f_c als auch die für alle Temperaturen gleiche Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(f_c)$ bei dieser Frequenz und es ergibt sich im einfach-logarithmischen Diagramm eine Gerade. Anhand der Gleichung 2.22 ist zu erkennen, dass je höher die Pivotierfrequenz f_c ist, desto steiler ist die durch die numerische Anpassung erhaltene Gerade im einfach-logarithmischen $\epsilon - \alpha$ -Diagramm.

Experimentell wurde gezeigt, dass sich das niederfrequente magnetische Flussrauschen von 10^{-2} Hz bis 10^9 Hz erstreckt und dabei $1/f$ -artiges Verhalten aufweist [Sli12]. Die Quellen des niederfrequenten Rauschens sind jedoch nicht vollständig verstanden und weiterhin ein wichtiges Forschungsfeld. Fluktuationen von Magnetfeldern, welche möglicherweise einen $1/f$ -artigen Rauschanteil haben, könnten eine mögliche Ursache sein. Diese werden durch die Induktivität des SQUIDs

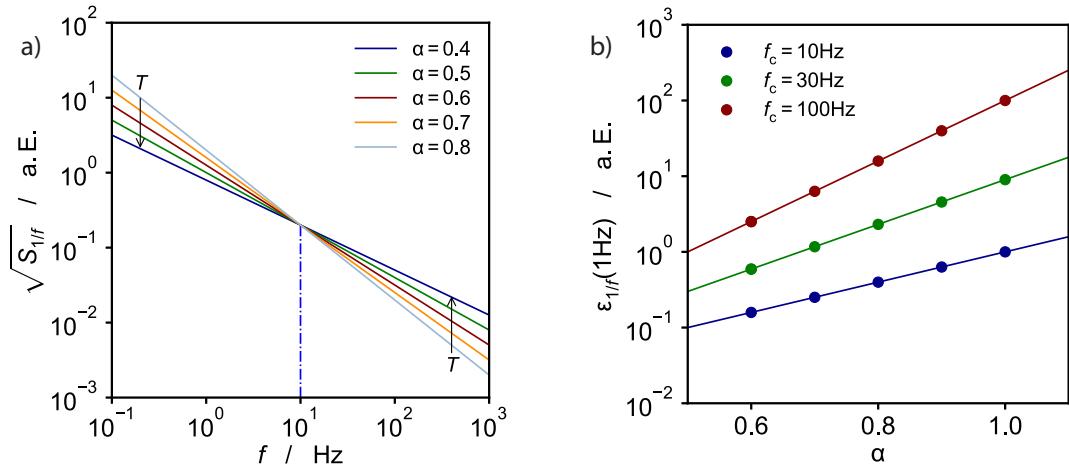


Abb. 2.6: a) Beispielhafte spektrale Leistungsdichten $\sqrt{S_{1/f}}$ für verschiedene Werte für α , welche sich bei einer Pivotierfrequenz $f_c = 10 \text{ Hz}$ schneiden. Die Pfeile markieren das Verhalten für steigende Temperaturen. b) Die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1, \text{Hz})$ bei 1 Hz über dem Rauschexponenten α für verschiedene Pivotierfrequenzen liefert im einfach-logarithmischen Diagramm einen linearen Zusammenhang, wobei die Werte von $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ für steigende Temperaturen abfallen.

aufgenommen und könnten so für $1/f$ -Rauschen des SQUIDs sorgen. Um die Magnetfeldfluktuationen in der Umgebung des SQUIDs zu minimieren, können Abschirmungen wie supraleitende Schilde verwendet werden (siehe Abschnitt 3.2). Zusätzlich kann das SQUID gradiometrisch aufgebaut sein und so können je nach Art des Gradiometers weder räumlich konstante Magnetfelder noch Magnetfelder mit linearem Gradient Ströme im SQUID induzieren bzw. kompensieren sich auftretende Ströme im SQUID. Trotz solch aufwendiger Maßnahmen zur Unterdrückung des Einflusses von Magnetfeldfluktuationen wird in SQUIDs immernoch ein $1/f$ -artiges Rauschen gemessen, sodass man Magnetfeldfluktuationen nicht als Hauptquelle für niederfrequentes Flussrauschen sehen kann.

Es wurde gezeigt, dass die Anwesenheit von Zwei-Niveau-Systemen (ZNS) zu $1/f$ -artigem Rauschen führen kann [Mac54]. Ein Zwei-Niveau-System kann wie in Abbildung 2.7(a) gezeigt genau zwei Zustände annehmen, wobei beliebige Sprünge zwischen den Zuständen auftreten können. Die zugehörige spektrale Leistungsdichte ist durch den Ausdruck

$$S_{\text{ZNS}}(f, \tau) = \frac{1}{4\pi} \frac{2/\tau}{(2\pi f)^2 + (2/\tau)^2} \quad (2.23)$$

gegeben und ist in Abbildung 2.7(b) aufgetragen. Hierbei schreibt τ die mittlere Zeit zwischen zwei Zustandswechseln. Diese spektrale Leistungsdichte weist für Frequenzen $f \ll 1/\tau$ einen konstanten Wert von $S_{\text{ZNS}} = \tau/8\pi$ auf und fällt für

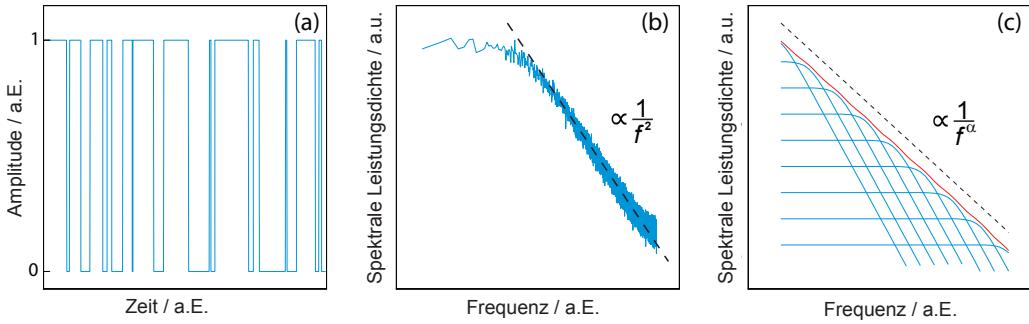


Abb. 2.7: (a): Das ZNS springt zwischen den beiden Zuständen. (b): Spektrale Leistungsdichte eines ZNS. (c): Summe vieler einzelner ZNS (blau) führen zu bekanntem $1/f$ -artigem gesamten Rauschen (rot)[Ant13a]

Frequenzen $f \gg 1/\tau$ mit $1/f^2$ ab. Nimmt man an, dass es sich bei den Übergängen um thermische Anregung handelt und dass sich die gesamte spektrale Leistungsdichte als Summe dieser stochastisch unabhängigen Zwei-Niveau-Systeme ergibt, so ist $S_{1/f} \propto 1/f^\alpha$ (siehe Abbildung 2.7(c)).

Mögliche Fluktuationen der kritischen Ströme der Josephson-Tunnelkontakte in einem SQUID bilden ein solches System und führen demnach zu $1/f$ -artigem Rauschen. Dabei können Leitungselektronen kurzzeitig an Defektstellen in der Tunnelbarriere gefangen werden und so kann die lokale Leitfähigkeit sprunghaft variieren. Dieser Effekt steigt linear mit der Temperatur an. Da experimentelle Beobachtungen ([Ant13b] und siehe Abbildung 2.6) jedoch zeigten, dass das niederfrequente Flussrauschen mit steigender Temperatur abnimmt, können Fluktuationen der kritischen Ströme als Hauptquelle für niederfrequentes Flussrauschen in dc-SQUIDs ausgeschlossen werden. Zudem können Fluktuationen des kritischen Stroms durch Optimierung des Herstellungsprozesses der Tunnelkontakte minimiert werden. Auch die Bewegung von Flussschläuchen innerhalb eines Supraleiters zweiter Art kann ein Zwei-Niveau-System darstellen [Fer94]. Ist ein Flussschlauch an einer Defektstelle angeheftet und springt thermisch angeregt an eine benachbarte Defektstelle, so tritt $1/f$ -Rauschen auf. Da es sich um einen thermischen Effekt handelt, spielt die Bewegung von Flussschläuchen vor allem im Hochtemperatur-Supraleitern eine Rolle. Für SQUIDS aus Niob, welche unter 4,2 K betrieben werden, ist diese Art von Zwei-Niveau-System von kleinerer Relevanz. Zudem können Flussschläuche erst ab einem kritischen Magnetfeld eine supraleitende Bahn durchdringen, sodass bei guter Abschirmung vor externen Feldern und unter einer Obergrenze für die Breite der supraleitenden Strukturen keine Flussschläuche auftreten [Sta04].

Um das bei Temperaturen im mK-Bereich auftretende niederfrequente magnetische Flussrauschen zu erklären, müssen weiter bisher noch nicht komplett ver-

standene Prozesse beitragen. Es wurden theoretische Modelle präsentiert, welche ungesättigte Bindungen auf der Grenzfläche von amorphen Halbleitern und Oxidschichten, wie sie bei den üblich verwendeten Si/SiO_x-Substraten auftreten, als Ursache für Rauschen aufführen [deS07]. Spinflips dieser paramagnetischen ungesättigten Bindungen sorgen so für Fluktuationen des lokalen Magnetfeldes und können demnach niederfrequentes Flussrauschen verursachen. Experimente haben gezeigt, dass Spinfluktuationen auf der Oberfläche ein möglicher Verursacher von niederfrequentem Flussrauschen sind [Koc07, Sen08]. Wasserstoff könnte eine dieser Quellen darstellen. Es wurde experimentell gezeigt, dass NbN-Resonatoren einen Rauschbeitrag zeigen, welcher durch Wasserstoff auf der Oberfläche hervorgerufen wird. Durch Erhitzen dieser Resonatoren konnte der Wasserstoff auf der Oberfläche entfernt und der zugehörige Rauschbeitrag deutlich reduziert werden [dG18]. Aufgrund neuer theoretischer Berechnungen wird angenommen, dass sowohl auf Al₂O₃ adsorbierter Wasserstoff als auch in Al₂O₃ absorberter Wasserstoff 1/f-artiges Rauschen erzeugen [Hol13, Wan18]. Des Weiteren wurde berechnet, dass auf der Oberfläche adsorbierter Wasserstoff dazu führen kann, dass Moleküle wie O₂ leichter auf der Oberfläche adsorbieren. Zusammen mit den experimentellen Erkenntnissen darüber, dass Moleküle wie O₂, die auf der Oberfläche adsorbiert sind, zu niederfrequentem Rauschen in Qubits führen können [Wan15, Kum16], könnte Wasserstoff ebenfalls zu einem erhöhten 1/f-artigen Rauschen führen. Dies regt dazu an in weiteren Experimenten das Niob der von uns hergestellten SQUIDs mit Wasserstoff zu beladen und so den Einfluss von Wasserstoff auf das niederfrequente magnetische Flussrauschen von SQUIDs weiter experimentell zu untersuchen. Auch Kernspins, welche ähnlich wie Oberflächenspins fluktuierten können, könnten eine Quelle für 1/f-artiges Rauschen sein. Nach theoretischen Berechnungen tragen diese Kernspinfluktuationen jedoch nur 5 % zum Gesamtrauschen bei und würden erst bei optimierter Oberflächenbearbeitung zur Verhinderung von Rauschen durch Oberflächenspins signifikant werden [LaF15]. Laut theoretischer Modelle können Kernspins auch dafür sorgen, dass Oberflächenspins mit diesen durch Hyperfein-Relaxation wechselwirken können [Wu12] und so für einen niederfrequenten Rauschbeitrag sorgen. Demnach spielt sowohl die Dichte von Kernen, welche einen Kernspin besitzen, als auch der Wert des Kernspins eine Rolle. Das resultierende Rauschen bei Zink bzw. Blei, deren einzige Isotope mit Kernspin nur eine natürliche Häufigkeit von 4 bzw. 22 % aufweisen, sollte im Gegensatz zu Niob um einen Faktor von 25 bzw. 5 reduziert sein. Ein eindeutiger experimenteller Beweis für den Einfluss von Kernspins auf das niederfrequente Flussrauschen liegt aber noch nicht vor. Jedoch wurden in [Kem16] die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ und die dazugehörigen Rauschexponenten α für eine Vielzahl verschiedener SQUIDs zusammengetragen. In Abbildung 2.8 a) sind diese Werte von SQUIDs (Dreiecke, Diamanten) und Qubits (Vierecke) für Temperaturen unter 1 K aufgetragen. Dabei ist zu er-

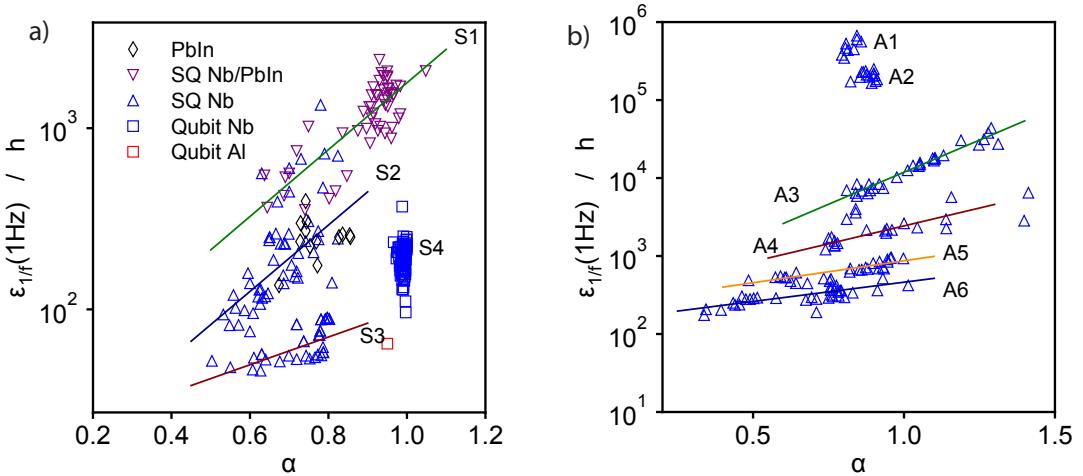


Abb. 2.8: Die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}$ ist über dem Rauschexponenten α aufgetragen. Jeder Messpunkt stellt den Messwert eines SQUIDs bei einer festen Temperatur unter 1K dar. a) Daten von einfachen dc-SQUIDS (Dreiecke) oder Fluss- oder Phasen-Qubits (Quadrate), hergestellt aus Nb (blau), PbIn (schwarz), 50%Nb and 50% PbIn (lila). b) Daten von SQUID-Arrays mit N Zellen hergestellt aus Nb. Alle Daten wurden aus [Kem16] entnommen.

kennen, dass SQUIDs aus Niob (blaue Dreiecke), aus 50 % Nb und 50 % PbIn (lila Dreiecke) und aus PbIn (schwarz Diamanten) sich teilweise deutlich voneinander unterscheiden. Diese Materialabhängigkeit ist bislang noch unerklärt. Auch scheinen Qubits aus Aluminium (rotes Quadrat) niedrigeres Rauschen aufzuweisen als Qubits aus Niob (blaue Quadrate) und SQUIDs aus Niob. Daten für SQUIDs aus Aluminium liegen noch nicht vor. Es wurden daher im Rahmen dieser Arbeit SQUIDs mit Washern aus Aluminium hergestellt, um die Materialabhängigkeit weiter zu untersuchen. Zudem sollte der Kernspin von Aluminium von $I = 5/2$ nach den genannten theoretischen Berechnungen für ein niedrigeres Rauschen in Aluminium-SQUIDs führen als es in SQUIDs aus Niob ($I = 9/2$) auftritt.

Eine weitere interessante Beobachtung die aus den in [Kem16] präsentierten Daten hervorgeht, ist, dass sich die vermessenen SQUIDs zu mehreren Gruppen im $\epsilon - \alpha$ -Diagramm zusammenfassen lassen. Dabei zeichnen sich diese Gruppen dadurch aus, dass sie nach Gleichung 2.22 eine bestimmte Pivotierfrequenz f_c und Amplitude der Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(f_c)$ aufweisen. In Abbildung 2.8 b) sind zusätzlich noch Daten von SQUID-Arrays aus Niob mit N Zellen aufgetragen. Die Gruppen zeigen dabei unterschiedliche Amplituden der Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1\text{Hz})$ und die an die Daten angepassten Geraden weisen auf unterschiedliche Pivotierfrequenzen hin. Es zeigt sich, dass nicht nur das Material, aus welchem

das SQUID hergestellt ist, von Relevanz ist, sondern auch wie das SQUID hergestellt wurde und welchem Design es unterliegt. Ziel dieser Arbeit ist es, diese Diagramme mit neuen Daten von SQUIDs mit Washern aus Aluminium bzw. mit Washern, welche mit Wasserstoff beladen sind, zu ergänzen.

3. Experimentelle Methoden

3.1 Betrieb von dc-SQUIDs

3.1.1 Einstufiger dc-SQUID-Betrieb

Wie in Abbildung 2.4 dargestellt, besitzt ein dc-SQUID eine periodische Fluss-Spannungs-Kennlinie und der Fluss-zu-Spannungs-Transferkoeffizient V_Φ wird für $\Phi = (2n + 1)/4 \cdot \Phi_0$ maximal. Aufgrund der Periodizität der SQUID-Kennlinie und der damit verbundenen Nicht-Linearität ist das Ausgangssignal eines SQUIDs ohne weitere Vorkehrungen nicht linear mit dem Eingangssignal verknüpft. Um nun für externe Flusssignale ein lineares Ausgangssignal zu erhalten, wird eine Flussrückkopplungstechnik [Dru05] verwendet, deren schematischer Aufbau in Abbildung 3.1 zu sehen ist. Dabei werden der Betriebsstrom I_b durch das SQUID und der Strom I_{Φ_x} durch eine an das SQUID induktiv gekoppelte Rückkoppelspule so eingestellt, dass der oben beschriebene optimale Arbeitspunkt erreicht wird. Die Betriebsspannung U_b am Eingang des nachfolgenden Verstärkers wird dann so eingestellt, dass sie der Spannung über dem SQUID am Arbeitspunkt entspricht. Ohne Eingangssignal $\Delta\Phi$ ist die Differenz der Spannungen an den beiden Eingängen des Verstärkers somit null. Kommt es nun zu einer Flussänderung $\Delta\Phi$ im SQUID, so ändert sich die Spannung über dem SQUID und es tritt eine Spannungsdifferenz auf, welche um den Faktor A verstärkt wird. Die integrierte Ausgangsspannung U des Vorverstärkers wird über einen Widerstand R_{fx} in einen Strom umgewandelt, der durch eine Rückkoppelspule mit der Gegeninduktivität M_{fx} zwischen SQUID und Spule fließt und auf diese Weise den magnetischen Fluss $\Phi = M_{fx}U/R_{fx}$ in das SQUID einkoppelt. Die ursprüngliche Flussänderung wird folglich kompensiert. Misst man die Spannung U , welche über dem Rückkoppelwiderstand abfällt, kann man mit der Beziehung

$$\Delta\Phi = -U \frac{M_{fx}}{R_{fx}} \quad (3.1)$$

das initiale Flusssignal im SQUID bestimmen. In Rahmen dieser Arbeit wurden SQUID-Elektroniken des Typs XXF-1 der Firma Magnicon GmbH verwendet [Dru06]. Misst man mit diesem Aufbau das scheinbare Flussrauschen eines SQUIDs, so treten neben dem intrinsischen Rauschen des SQUIDs noch zusätzliche Rauschbeiträge der Schaltung auf. Sowohl der Raumtemperatur-Verstärker als auch die Stromquelle für den Rückkoppelstrom I_{Φ_x} liefern zusätzliche Rauschbeiträge. Für die gemessene spektrale Leistungsdichte des scheinbaren magneti-

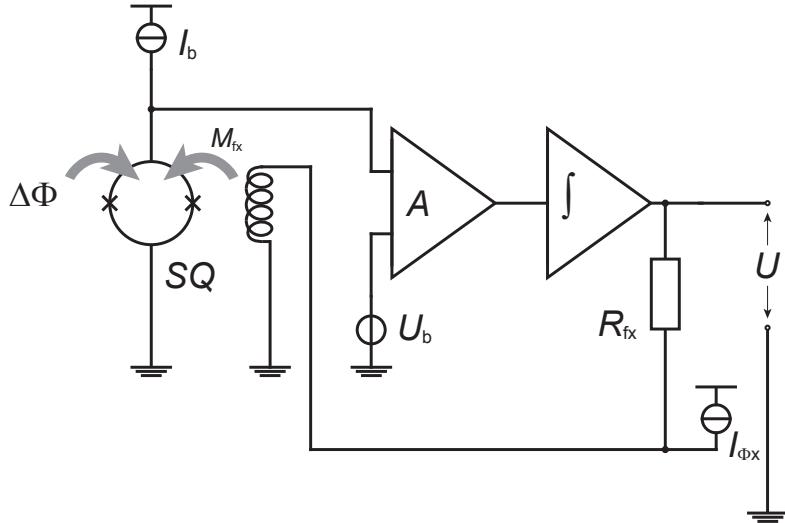


Abb. 3.1: Schematische Darstellung eines einstufig betriebenen SQUIDS. Mithilfe der Flussrückkopplungstechnik kann das SQUID-Signal linearisiert werden.

schen Flussrauschen S_Φ gilt:

$$S_\Phi = S_{\Phi,\text{SQ}} + \frac{S_{V,\text{el}}}{V_\Phi^2} + \frac{S_{I,\text{el}}}{I_\Phi^2} + S_{I,\Phi_x} M_{fx}^2 . \quad (3.2)$$

Hierbei beschreiben $S_{V,\text{el}}$ und $S_{I,\text{el}}$ das Spannungs- bzw. Stromrauschen der SQUID-Elektronik, deren Werte in [Dru06] gegeben sind und S_{I,Φ_x} das Stromrauschen der Stromquelle I_{Φ_x} . Nach [Dru06] weist die SQUID-Elektronik bei einer Frequenz von 1 Hz ein Spannungsrauschen von $\sqrt{S_{V,\text{el}}}(1 \text{ Hz}) \approx 0,5 \text{nV}/\sqrt{\text{Hz}}$ und ein Stromrauschen von $\sqrt{S_{I,\text{el}}}(1 \text{ Hz}) \approx 15 \text{pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ auf. Für ein einzelnes dc-SQUID mit typischen Transferkoeffizienten von $V_\Phi \approx 50 \mu\text{V}/\Phi_0$ und $I_\Phi \approx 20 \mu\text{A}/\Phi_0$ berechnet sich demnach ein durch die SQUID-Elektronik verursachtes scheinbares Flussrauschen von $\sqrt{S_{\Phi,\text{el}}}(1 \text{ Hz}) \approx 10 \mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$. Da dieser Wert deutlich größer ist als das intrinsische Rauschen eines SQUIDS, welches typischerweise bei 1 Hz zwischen $(1 - 5) \mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ liegt, ist der einstufige Aufbau für die Rauschmessung eines einzelnen SQUIDS ungeeignet und man muss auf die in den folgenden Abschnitten 3.1.2 und 3.1.3 erklärten Aufbauten zurückgreifen. Führt man eine analoge Abschätzung für SQUID-Arrays durch, welche Transferkoeffizienten von $V_\Phi \approx 1000 \mu\text{V}/\Phi_0$ und $I_\Phi \approx 10 \mu\text{A}/\Phi_0$ aufweisen, ergibt sich ein scheinbares Flussrauschen von $\sqrt{S_{\Phi,\text{el}}}(1 \text{ Hz}) \approx 1.5 \mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$. Man ist demnach in der Lage, dass scheinbare Flussrauschen der Elektronik von einem gemessenen Rauschspektrum zu subtrahieren. Diese Korrektur wurde bei allen im Rahmen dieser Arbeit vermessenen SQUID-Arrays durchgeführt.

Um eine Abschätzung für das durch das Stromrauschen über die Rückkoppelspule in das SQUID induzierte scheinbare Flussrauschen zu treffen, wurde zunächst das Stromrauschen experimentell bestimmt. Dazu wurden für elf Stromquellen von zwei verschiedene SQUID-Elektroniken das Stromrauschen durch

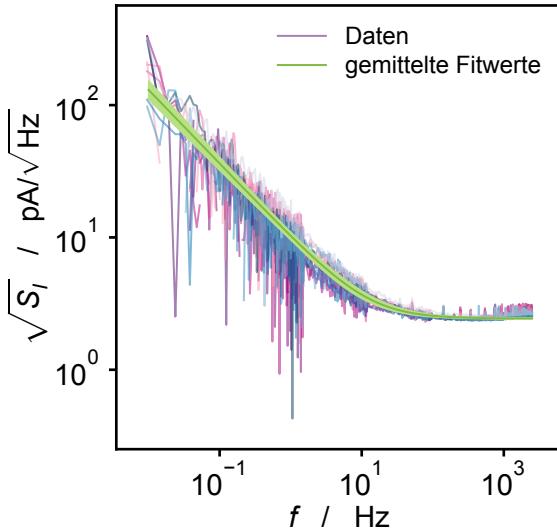


Abb. 3.2: Gemessene Rauschspektren der Stromquellen der SQUID-Elektronik und das mit dem zur Korrektur bestimmten Fitwerten erzeugte Spektrum (grün).

zwei Verstärker des Typs INA116 separat gemessen. Durch eine kreuzkorrelierte Auswertung (siehe Abschnitt 3.1.3) der Messungen konnten die Rauschspektren aller Stromquellen bestimmt werden, welche keine Rauschanteile der Verstärkerkanäle mehr beinhalten. Diese sind in Abbildung 3.2 zu sehen. An jedes dieser Rauschspektren wurde eine numerische Anpassung der Gleichung 2.18 durchgeführt. Die aus den numerischen Anpassungen erhaltenen Parameter wurden gemittelt, sodass man ein Musterrauschspektrum mit einem weißen Stromrauschen von $\sqrt{S_{I,w}} = (2,44 \pm 0,06)$ pA/ $\sqrt{\text{Hz}}$, einem $1/f$ -artigen Stromrauschen von $\sqrt{S_{I,1/f}(1\text{Hz})} = (10,0 \pm 2,2)$ pA/ $\sqrt{\text{Hz}}$ und einem Rauschexponenten von $\alpha = 1,12 \pm 0,11$ erhält, welches in Abbildung 3.2 mit den dem bestimmten Fehlerbereich aufgetragenen ist. Mit diesen Werten lässt sich nun das scheinbare Flussrauschen $\sqrt{S_{\Phi,\text{ind}}}(1\text{Hz}) = \sqrt{S_{I,\Phi_x}}(1\text{Hz}) \cdot M_{fx}$, welches durch das Rauschen der Stromquellen induziert wird, bei 1 Hz abschätzen. Für eine Einkoppelsensitivität von $M_{fx}^{-1} = 30\mu\text{A}/\Phi_0$ ergibt sich ein scheinbares Flussrauschen von $\sqrt{S_{\Phi,\text{ind}}}(1\text{Hz}) \approx 0,33\mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ bei 1 Hz. Dieser Wert ist gegenüber dem typischen intrinsischen Rauschen eines SQUIDs zu vernachlässigen. Für kleinere Werte der Einkoppelsensitivitäten M^{-1} und SQUIDS, welche sehr niedriges intrinsisches Rauschen aufweisen, ist das scheinbare Flussrauschen jedoch nicht zu vernachlässigen und das gemessene Spektrum muss korrigiert werden.

3.1.2 Zweistufiger dc-SQUID-Aufbau

Um den Einfluss der Rauschbeiträge der Elektronik zu reduzieren, kann der in Abbildung 3.3 schematisch dargestellte Aufbau verwendet werden. Dazu wird parallel zum untersuchten SQUID ein Gain-Widerstand R_G geschaltet, dessen Wert deutlich kleiner als der dynamische Widerstand des SQUIDs am Arbeitspunkt

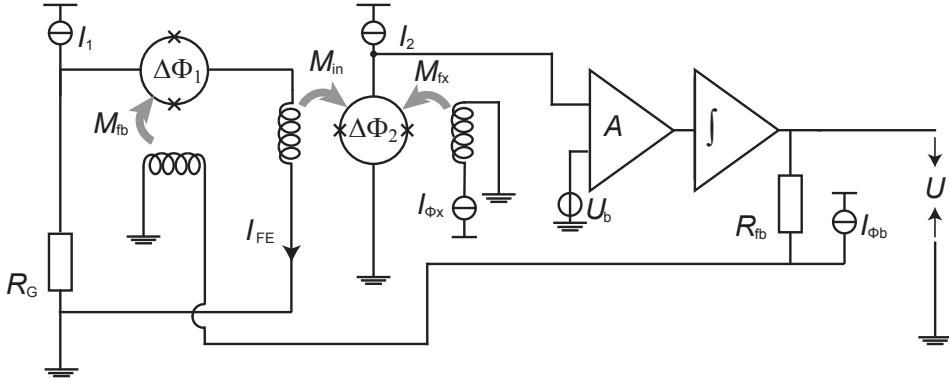


Abb. 3.3: Schematische Darstellung eines zweistufigen dc-SQUID-Aufbaus. Das Ausgangssignal des ersten SQUIDs wird durch ein zweites SQUID verstärkt.

ist. Prägt man nun einen Strom I_1 ein, so fließt näherungsweise der gesamte Strom durch den Gain-Widerstand und über dem SQUID stellt sich eine konstante Spannung ein. In diesem Spannungsbetrieb [Dru05] des SQUIDs sorgt eine Flussänderung $\Delta\Phi$ im SQUID für einen Strom I_{FE} , welcher durch eine Spule mit der Gegeninduktivität M_{in} in ein zweites SQUID einkoppelt, welches sich im Strombetrieb mit dem Betriebsstrom I_2 befindet. Dieses Verstärker-SQUID ist in der Regel ein SQUID-Array, das eine Serienschaltung aus N einzelnen dc-SQUID-Zellen darstellt und somit einen N -fachen größeren Spannungshub und einen größeren Fluss-zu-Spannungskoeffizient V_Φ aufweist. Mit der Spannungsquelle U_b und der Stromquelle $I_{\Phi x}$ kann der optimale Arbeitspunkt des Verstärker-SQUIDS gewählt werden. Analog zum einstufigen Aufbau wird die durch eine Flussänderung $\Delta\Phi_2$ induzierte Spannungsdifferenz über dem Verstärker-SQUID um den Faktor A verstärkt, integriert und durch einen Rückkoppelwiderstand R_{fb} und eine Rückkoppelspule in das erste SQUID zurückgekoppelt. Die initiale Flussänderung $\Delta\Phi$ wird somit kompensiert. Die Fluss-zu-Fluss-Verstärkung

$$G_\Phi = \frac{\partial\Phi_2}{\partial\Phi_1} = \frac{M_{in}}{R_G + R_{dyn,SQ1}} V_{\Phi,SQ1} \approx \frac{M_{in}}{R_{dyn,SQ1}} V_{\Phi,SQ1} \quad (3.3)$$

gibt dabei das Verhältnis zwischen einer minimalen Flussänderung $\partial\Phi_1$ im ersten SQUID und der hervorgerufenen Flussänderung $\partial\Phi_2$ im Verstärker-SQUID an. Dabei ist $R_{dyn,SQ1}$ der dynamische Widerstand am Arbeitspunkt und $V_{\Phi,SQ1}$ der Fluss-zu-Spannungs-Koeffizient des ersten SQUIDs. Die spektrale Leistungsdichte des gemessenen scheinbaren magnetischen Flussrauschens

$$\begin{aligned} S_\Phi &= S_{\Phi,SQ1} + \frac{4k_B T R_G}{G_\Phi^2 (R_G + R_{dyn})^2} M_{in}^2 + S_{I,\Phi b} M_{fb}^2 \\ &+ \frac{S_{\Phi,SQ2}}{G_\Phi^2} + \frac{S_{I,el}}{G_\Phi^2 I_{\Phi,SQ2}^2} + \frac{S_{V,el}}{G_\Phi^2 V_{\Phi,SQ2}^2} + \frac{S_{I,\Phi x} M_{fx}^2}{G_\Phi^2} \end{aligned} \quad (3.4)$$

setzt sich dabei zum einen aus den intrinsischen Rauschbeiträgen $S_{\Phi,\text{SQ1}}$ und $S_{\Phi,\text{SQ2}}$ der beiden SQUIDS und von parasitären Rauschbeiträgen, welche durch die Beschaltung des Aufbaus und der verwendeten SQUID-Elektronik sowie deren Stromquellen stammen. Diese enthalten das durch das Stromrauschen des parallel zum ersten SQUID geschalteten Gain-Widerstands im zweiten SQUID induzierte Flussrauschen, als auch die bereits in Abschnitt 3.1.1 genannten Rauschbeiträge der SQUID-Elektronik sowie die Rauschbeiträge, welche durch das Rauschen der Stromquellen in die SQUIDS induziert werden. Die Rauschbeiträge der Verstärker-Stufe, zu denen das intrinsische Rauschen des Verstärker-SQUIDS sowie die durch die SQUID-Elektronik und die Stromquelle zur Einstellung des Arbeitspunktes gehörigen, werden mit typischen Werten der Fluss-zu-Fluss-Verstärkung von $G_\Phi \approx 3$ zusätzlich reduziert. Für den Einfluss der Stromquelle $I_{\Phi,\text{b}}$ lassen sich die selben Abschätzungen wie in Abschnitt 3.1.1 vornehmen. Mit typischen Werten für den Gain-Widerstand von $R_G = 300 \text{ m}\Omega$, dem dynamischen Widerstand des ersten SQUIDS von $R_{\text{dyn}} = 2 \Omega$ und der Einkoppelsensitivität $M_{\text{in}}^{-1} = 10 \mu\text{A}/\Phi_0$ lässt sich das vom Stromrauschen des Gain-Widerstands verursachte scheinbare Flussrauschen mit $\sqrt{S_{\Phi,G}} = 0,15 \mu\text{A}/\sqrt{\text{Hz}}$ abschätzen. Dabei wurde eine Temperatur von $T = 700 \text{ mK}$ angenommen, da diese die höchste Temperatur darstellt, bei welcher in dieser Arbeit Messungen des niederfrequenten Flussrausches vorgenommen wurden. Der Wert von $\sqrt{S_{\Phi,G}} = 0,15 \mu\Phi_0/\sqrt{\text{Hz}}$ liegt eine Größenordnung unter dem typischen Flussrauschen eines SQUIDS bei 1Hz und wird somit in den in dieser Arbeit präsentierten Ergebnissen vernachlässigt.

3.1.3 Kreuzkorrelationsaufbau

Um den Beitrag des Rauschens der SQUID-Elektronik, wie er sowohl bei einer einstufigen als auch einer zweistufigen Messung auftritt, und der Verstärker-SQUIDS zu eliminieren bzw. um mehrere Größenordnungen zu unterdrücken, kann eine Kreuzkorrelationsmessung durchgeführt werden. Bevor auf die experimentelle Realisierung der in dieser Arbeit vorgenommenen Kreuzkorrelationsmessung eingegangen wird, wird zunächst eine kurze Einführung in die grundlegende Theorie der Kreuzkorrelation präsentiert [Rub10]. Wird ein Signal unabhängig von zwei unterschiedlichen Auslesekanälen gemessen, deren Messsignale durch $x(t)$ und $y(t)$ gegeben sind, so enthalten beide Messsignale das Signal $s(t)$, welches bestimmt werden soll, und jeweils das vom jeweiligen Kanal stammende Signal $a(t)$ und $b(t)$. Es gilt demnach:

$$x(t) = s(t) + a(t) \quad \text{und} \tag{3.5}$$

$$y(t) = s(t) + b(t) \quad , \tag{3.6}$$

wobei die Signale $s(t)$, $a(t)$ und $b(t)$ statistisch unabhängig voneinander sind. Mit diesen Signalen ist die spektrale Leistungsdichte des kreuzkorrelierten Spektrums

nach dem Khintchine-Wiener-Theorem [Khi86, Wie30] durch

$$\langle S_{xy}(f) \rangle_m = \frac{1}{\Delta t} \langle Y(f) X(f)^* \rangle_m \quad (3.7)$$

gegeben, wobei $X(f)$ und $Y(f)$ die Fouriertransformationen der gemessenen Signale und Δt die Gesamtdauer der Messung darstellt. Der Erwartungswert des kreuzkorrelierten Spektrums ist

$$\begin{aligned} \mathbb{E}\{S_{xy}\} &= \frac{1}{\Delta t} \mathbb{E}\{YX^*\} \\ &= \frac{1}{\Delta t} \mathbb{E}\{(S + B) \cdot (S + A)^*\} \\ &= \frac{1}{\Delta t} (\mathbb{E}\{SS^*\} + \mathbb{E}\{SA^*\} + \mathbb{E}\{BS^*\} + \mathbb{E}\{BA^*\}) \\ &= S_{ss} . \end{aligned} \quad (3.8)$$

Da die Beiträge A , B und S statistisch unabhängig voneinander sind, verschwinden die Kreuzbeiträge $\mathbb{E}\{SA^*\} = \mathbb{E}\{BS^*\} = \mathbb{E}\{BA^*\} = 0$, sodass das resultierende Spektrum S_{ss} keine Beiträge der Signale der Auslesekanäle beinhaltet.

Abbildung 3.4 zeigt eine schematische Darstellung des im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Aufbaus einer Kreuzkorrelationsmessung. Dabei ist das zu untersuchende SQUID wie im zweistufigen Aufbau parallel zu einem Widerstand $R_G \ll R_{\text{dyn}}$ geschaltet, welcher deutlich kleiner ist als der dynamische Widerstand des SQUIDs, und befindet sich demnach im Spannungsbetrieb. Der Strom $I_{\Phi b}$ koppelt über die Gegeninduktivität M_{fb} einen Fluss in das SQUID ein, wodurch ein Arbeitspunkt gewählt werden kann. Kommt es nun zu einer Flussänderung im SQUID, so ändert sich der Strom, der durch das SQUID fließt, und über zwei Einkoppelpulsen mit Einkoppelinduktivitäten $M_{in,1}$ und $M_{in,2}$ wird ein Fluss in zwei unabhängige Verstärker-SQUIDS induziert, wobei wieder SQUID-Arrays zum Einsatz kommen. Diese beiden SQUID-Arrays sollten dabei so identisch wie möglich sein. Die von einem der Kanäle gemessene spektrale Leistungsdichte S_x ist gegeben durch

$$\begin{aligned} S_x &= S_{\Phi,\text{SQUID}} \left(\frac{\partial I}{\partial \Phi} \right)^2 M_{in}^2 + \frac{4k_B T R_G}{(R_G + R_{\text{dyn}})^2} M_{in}^2 + S_{I,\Phi b} M_{fb}^2 \left(\frac{\partial I}{\partial \Phi} \right)^2 M_{in}^2 \\ &\quad + S_{\Phi,\text{SQ2}} + \frac{S_{V,\text{el}}}{V_{\Phi,\text{SQ2}}^2} + \frac{S_{I,\text{el}}}{I_{\Phi,\text{SQ2}}^2} + S_{I,\Phi x} M_{fx}^2 . \end{aligned} \quad (3.9)$$

Der Faktor $(\partial I / \partial \Phi)$ ist dabei der Fluss-zu-Strom-Koeffizient des ersten SQUIDS. Dabei liefern der Gain-Widerstand, die SQUID-Elektronik und die Stromquellen die selben parasitäre Rauschbeiträge wie in vorherigen Abschnitt 3.1.2. Die erste Zeile der Gleichung 3.9 wird dabei von beiden Auslesekanälen gemessen und

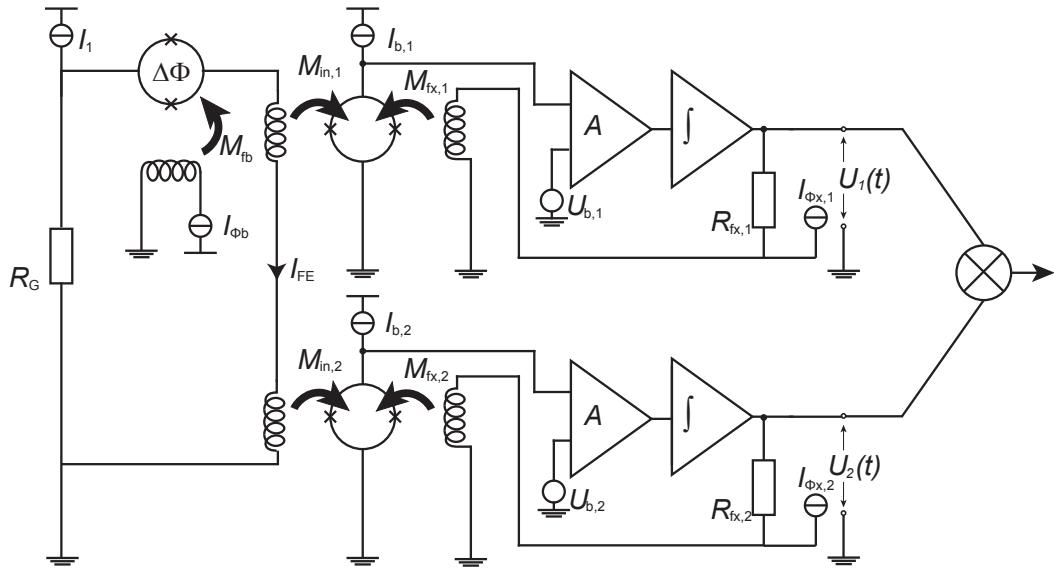


Abb. 3.4: Schematischer Aufbau einer kreuzkorrelierten Messung. Das Rauschen des untersuchten SQUIDS wird dabei unabhängig von zwei Array-SQUIDS verstärkt. Die unkorrelierten Rauschbeiträge der Arrays und der SQUID-Elektroniken können durch eine Kreuzkorrelation eliminiert werden.

spiegelt im mathematischen Bild der Kreuzkorrelation das Signal $s(t)$ wider, während sich die zweite Zeile der Gleichung 3.9 für beide Kanäle unterscheidet und so die Signale $a(t)$ bzw. $b(t)$ widerspiegeln. Bildet man nun die Kreuzkorrelation der mit den zwei Kanälen gemessenen Spektren, so erhält man die spektrale Leistungsdichte

$$S_{xy} = S_{\Phi, \text{SQUID}} \left(\frac{\partial I}{\partial \Phi} \right)^2 M_{\text{in}}^2 + \frac{4k_B T R_G}{(R_G + R_{\text{dyn}})^2} M_{\text{in}}^2 + S_{I, \Phi b} M_{\text{fb}}^2 \left(\frac{\partial I}{\partial \Phi} \right)^2 M_{\text{in}}^2 . \quad (3.10)$$

Der Einfluss des durch die Stromquelle $I_{\Phi b}$ und den Gain-Widerstand verursachten scheinbaren Flussrauschen ist dabei analog zur Diskussion des zweistufigen Aufbaus (siehe Abschnitt 3.1.2).

3.2 Messaufbau

Die untersuchten Mikrochips, auf denen sich die SQUIDS befanden, wurden mit dem Spulenlack GE Varnish auf den in Abbildung 3.5 und 3.6 gezeigten Leiterplatten aufgeklebt. Dabei wurden für einstufige Messungen die in Abbildung 3.5 schematisch dargestellte Platine verwendet. Die Mikrochips wurden dabei auf die sich am Ende eines 45 mm langen und 5,8 mm breiten Fingers der Platine

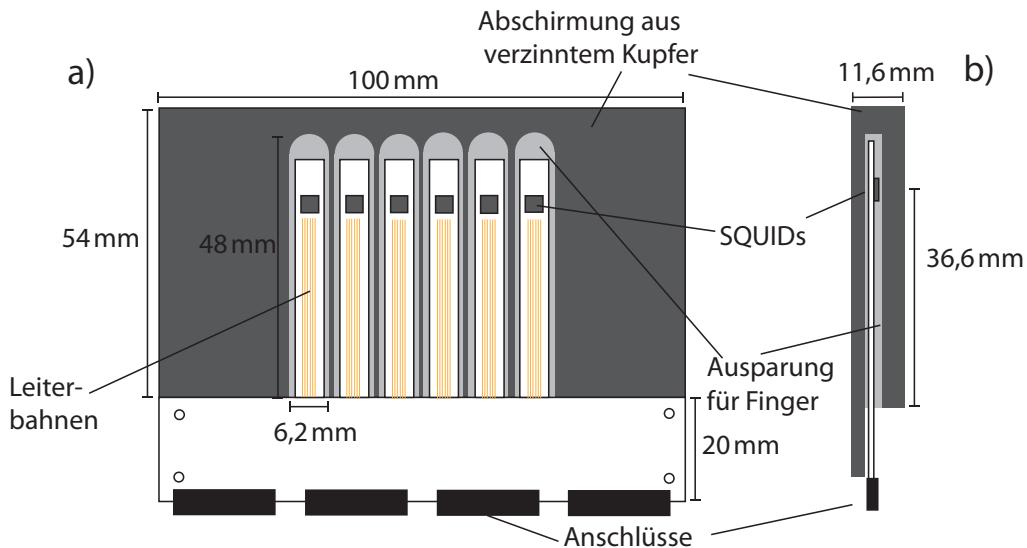


Abb. 3.5: a) Die schematische Draufsicht und b) die Seitenansicht der bei einstufigen Messungen verwendete Platine. Als supraleitende Schirmung diente ein verzinnter kupferner Experimenthalter.

befindlichen Stelle geklebt. Um die SQUIDs vor Fluktuationen von externen Magnetfeldern zu schirmen, befanden sich die Finger der Platine in einen verzinnten Experimenthalter aus Kupfer, der für jeden der Finger eine 3 mm hohe Aussparung besitzt. Dieser Experimenthalter besteht aus zwei einzelnen Blöcken, welche durch ein Diffusionschweißverfahren mit Indium verbunden wurden. Durch das verzinnte Kupfer fungiert dieser Halter zum einen als supraleitende Abschirmung und sorgt zum anderen für einen guten thermischen Kontakt mit der Experimentierplattform. Der Kontakt der Leiterbahnen der Platine mit den SQUIDs auf dem Mikrochip wurde durch Aluminium-Bonddrähte hergestellt. Am unteren Ende der Platine befinden sich vier 30-Pin-Steckersockel als Anschlüsse für die im Kryostaten befindlichen Kabel.

In Abbildung 3.6 ist die für die Kreuzkorrelationsmessungen verwendete Platine schematisch dargestellt. Am Ende der drei Finger wurden die Mikrochips mit den zu untersuchenden SQUIDs aufgeklebt. Des Weiteren wurde jeweils auf jeden Finger ein Chips geklebt, auf welchem neben zwei Array-SQUIDs zur Verstärkung ein Gain-Widerstand war, sodass der in Abschnitt 3.1.3 schematisch präsentierte Aufbau zu realisieren war. Jeder Finger der Platine befand sich während der Messung in einer 112 mm langen und 15 mm breiten Röhren aus Niob, welche aus Vollmaterial hergestellt wurde und ein Sackloch der Länge 102 mm und der Breite 6,2 mm aufwies. Diese Röhren fungieren als supraleitende Abschirmung und sorgten somit für die Unterdrückung von externen Magnetfeldfluktuationen. Fixiert

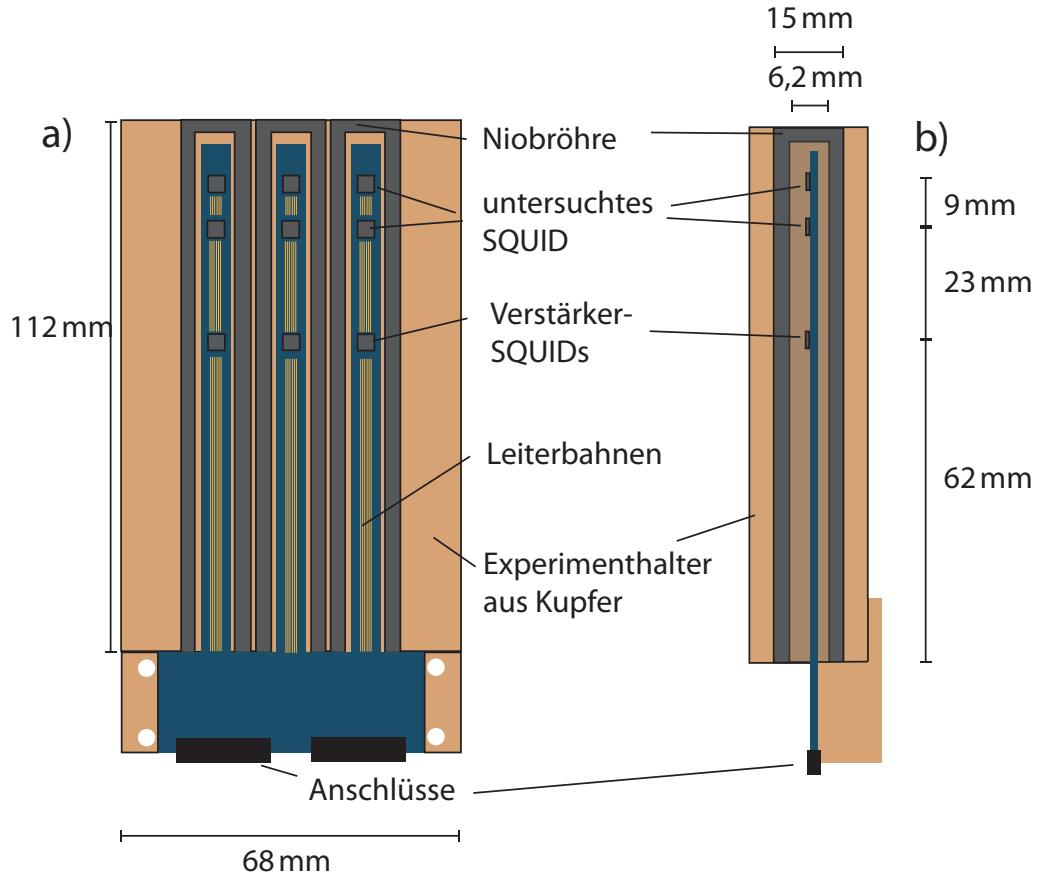


Abb. 3.6: a) Die schematische Draufsicht und b) die Seitenansicht der Kreuzkorrelationsmessungen verwendete Platine. Die Finger, auf denen sich sowohl das zu untersuchende als auch die Verstärker-SQUIDs befinden, wurden zur Abschirmung in Röhren aus Niob geschoben. Diese sind in einem Experimenthalter aus Kupfer untergebracht.

wurde die Leiterplatine an einem Experimenthalter aus Kupfer, welcher direkt auf der Experimentierplattform angebracht wurde und so eine gute thermische Ankopplung an diese gewährleistet. Angeschlossen wurde diese Platine über zwei der 30-Pin-Steckersockel.

Das niederfrequente Flussrauschen wurde bei Temperaturen von 10 mK bis 740 mK untersucht. Dazu wurde ein $^3\text{H}/^4\text{H}$ -Verdünnungskryostat BF-LD250 der Firma BlueFors¹ verwendet, welcher von einer zweistufigen Pulsröhrenkühlung vorgekühlt wurde. Deren Funktionsweisen sind in [Ens05, Pob96] erklärt. Die Temperatur der Experimentierplattform, an welcher die Experimente angebracht waren, wurde mithilfe eines Heizwiderstandes auf die gewünschte Temperatur erhöht und

¹BlueFors Cryogenics Oy, Arinatie, 00370 Helsinki, Finnland

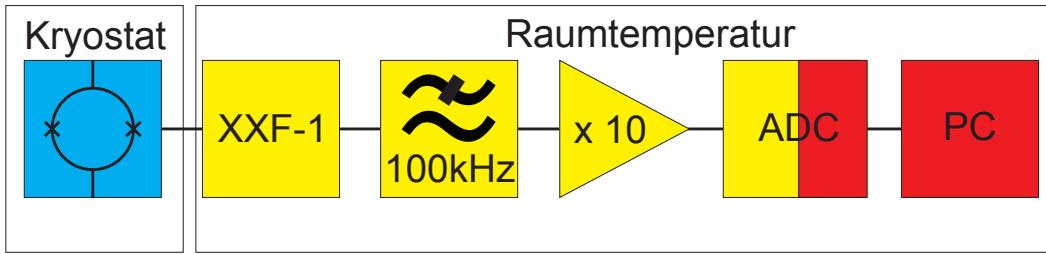


Abb. 3.7: Schematische Darstellung des Signalverarbeitungskette. Die SQUIDs werden mit der Elektronik XXF-1 ausgelesen. Das analoge Signal (gelb) wird zunächst mit einem 100 kHz Tiefpass gefiltert und dann um einen Faktor 10 verstärkt. Anschließend wird es mit dem Analog-Digital-Wandlers USB-6361 in ein digitales Signal (rot) umgewandelt und kann abgespeichert werden.

mithilfe eines PID-Reglers auf dieser Temperatur stabilisiert.

In Abbildung 3.7 ist die Signalkette der Datenaufzeichnung schematisch dargestellt. Die SQUIDs wurden mithilfe der XXF-1-Elektronik der Firma Magnicon² angesteuert und ausgelesen [Dru06]. Um bei der späteren Digitalisierung des Signals den Alias-Effekt [Sha49] zu verhindern, welcher aufgrund einer endlichen Abtastfrequenz $f_s = 500\text{kHz}$ des Signals auftreten würde, durchlief das analoge Ausgangssignal der SQUID-Elektronik zunächst einen Tiefpassfilter mit einer Abschneidefrequenz von 100 kHz. Daraufhin wurde das Signal mithilfe eines batteriebetriebenen Verstärkers um den Faktor 10 verstärkt, bevor es mithilfe des Analog-Digital-Wandlers USB-6361 der Firma National Instruments³ in ein digitales Signal umgewandelt und anschließend abgespeichert wurde. Es ließen sich mit dem verwendeten Aufbau zwei Signale gleichzeitig abspeichern, was eine Voraussetzung für eine kreuzkorrelierte Messung ist.

3.3 Datenverarbeitung

Im folgenden Abschnitt wird gezeigt, wie aus den gemessenen Zeitsignalen die finalen Spektren bestimmt werden. In Abbildung 3.8 a) sind die dafür essentiellen Schritte in einem Flussdiagramm vereinfacht aufgezeigt. Das gemessene Zeitsignal wird zunächst in N gleichlange Zeitintervalle zerschnitten, welche einzeln fouriertransformiert werden und einen Überlapp von 50 % aufweisen [Wel67]. Die dadurch erhaltenen N Spektren werden im Anschluss gemittelt. Dieser Vorgang wird für verschiedene Werte von N wiederholt, sodass für jeden Frequenzbereich die maximale Anzahl an Mittelungen durchgeführt werden kann, bevor die

²Magnicon GmbH, Barkhausenweg 11, 22339 Hamburg

³National Instruments Germany GmbH, Ganghoferstraße 70b 80339 München

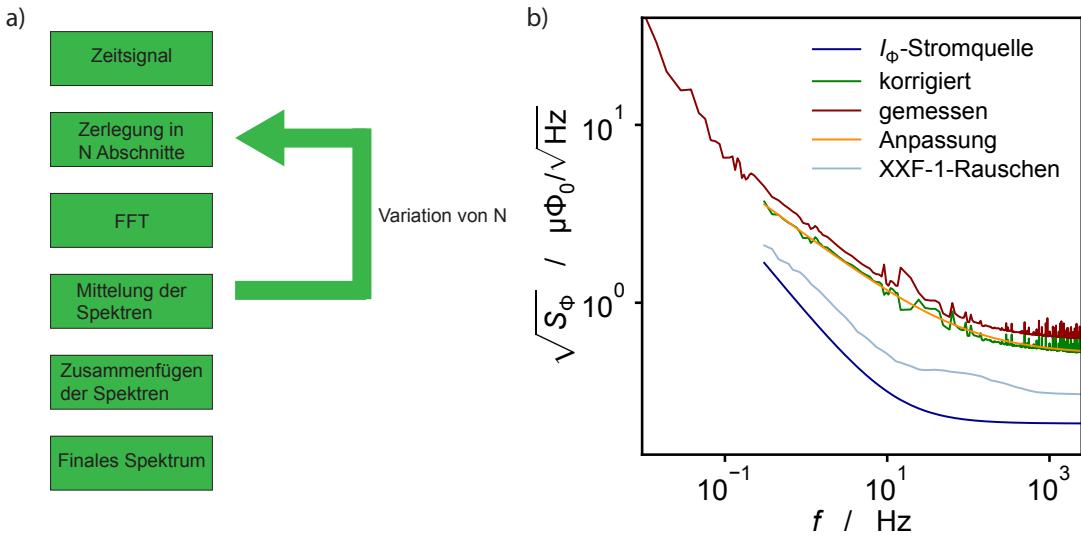


Abb. 3.8: a) Flussdiagramm zur Bestimmung des gemessenen Rauschspektrums. Das Zeitsignal wird in N -Abschnitte zerlegt, ehe alle Abschnitte fouriertransformiert und zu einem Spektrum zusammenfügt werden. Die gemittelten Spektren werden zum Schluss zum finalen Spektrum zusammengefügt. b) Exemplarische sektrale Leistungsdichte des gemessenen Rauschens eines einstufig vermessenen SQUID-Arrays ist in rot gezeigt. Von dieser werden die durch die XXF-1-Elektronik (grau) und die I_Φ -Stromquelle (blau) verursachten Rauschbeiträge abgezogen, sodass an das korrigierte Spektrum (grün) die Gleichung 2.18 numerische angepasst werden kann (gelb).

daraus resultierenden Spektren zu einem finalen Spektrum zusammengefügt werden. Bei den im Rahmen dieser Arbeit vorgenommenen Messung zur Bestimmung des niederfrequenten Flussrauschen wurden Zeitsignale der Länge $t = 30$ min mit einer Abtastrate von $f_s = 500\text{kHz}$ und einem Dezimierungs-Faktor von $r = 100$ aufgenommen. Durch die Dezimierung wird nur jeder hundertste der gemessenen Datenpunkt aufgenommen, sodass die generierte Datenmenge um diesen Faktor reduziert wird. Die minimale Frequenz, welche aufgelöst werden kann, ist durch $f_{\min} = 1/t \approx 0,5\text{ mHz}$ und die maximale Frequenz ist durch $f_{\max} = f_s/2r = 2,5\text{ kHz}$ gegeben.

In Abbildung 3.8 b) ist ein auf diese Weise gemessenes Spektrum für ein einstufig vermessenes SQUID-Array in rot aufgetragen. Um aus diesem Spektrum das intrinsische Rauschspektrum des SQUID-Arrays zu erhalten, muss, wie in Abschnitt 3.1.1 gezeigt, auf die Rauschbeiträge der XXF-1-Elektronik und der Stromquelle korrigiert werden. Durch Bestimmung der Transfer-Koeffizienten I_Φ und V_Φ und der Einkoppelsensitivität M_{in}^{-1} lässt sich das durch die XXF-1-Elektronik (grau) und das durch das Stromquellenrauschen (blau) verursachte scheinbare Flussrauschen bestimmen. An das auf diese Rauschbeiträge korrigierte Spektrum (grün)

kann nun die Gleichung 2.18 numerisch angepasst (gelb) und daraus die Werte $\sqrt{S_{1/f}}(1 \text{ Hz})$, $\sqrt{S_w}$ und α bestimmt werden. Die in den folgenden Kapiteln gezeigten Ergebnisse wurden allesamt durch eine solche Datenanalyse bestimmt.

3.4 Herstellung von SQUIDs

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten SQUIDs wurden im institutseigenen Reinraum unter Verwendung von Methoden der Dünnschichttechnik und Fotolithographie hergestellt. Im folgenden Abschnitt wird der Standardprozess für die Herstellung von SQUIDs präsentiert, da zum einen Ergebnisse von SQUIDs, welche mit diesem hergestellt wurden, als Referenz dienen, zum anderen unterscheiden sich die Herstellung der untersuchten Aluminium-SQUIDs und der mit Wasserstoff beladenen SQUIDs nur um einen zusätzlichen Prozessschritt von diesem Standardprozess. Auf diese zusätzlichen Prozessschritte wird in den dazugehörigen Kapiteln 4 und 5 eingegangen. Zu Beginn des Prozesses wird eine Drei-Schicht-Struktur aus Nb/Al-AlO_x/Nb zur Herstellung der Josephson-Tunnelkontakte auf einem thermisch oxidierten Si-Substrat abgeschieden [Kem13]. Hiermit wird mithilfe einer UHV-Sputteranlage eine 250 nm dicke Niob- und eine 20 nm Aluminiumschicht auf dem Substrat deponiert. Um die auf dem Substrat deponierte Barriere der Josephson-Tunnelkontakte zu erzeugen, wird diese Zwei-Schicht-Struktur in eine Sauerstoffatmosphäre gebracht. Die kritische Stromdichte j_c der resultierenden Josephson-Kontakte folgt dabei dem empirischen Ausdruck $j_c \propto (p_{\text{ox}} t_{\text{ox}})^{-0,54}$ [Kem13] und fällt demnach mit höherem Druck der Sauerstoffatmosphäre p_{ox} und längerer Verweildauer t_{ox} in dieser ab. Schließlich wird die Dreischichtstruktur durch eine zusätzliche 125 nm Nb-Schicht komplettiert (vgl. Abbildung 3.9 a). Durch UV-Fotolithografie mit einem Positivlack wird die obere Elektrode der Tunnelkontakte strukturiert und durch ICP-RIE⁴-Trockenätzen in einer SF₆-Atmosphäre geätzt (vgl. Abbildung 3.9 b)). Das unter dem Nb liegende Aluminium dient dabei als Ätzstopp. Das freiliegende Aluminium wird durch einen nasschemischen Ätzschritt entfernt (vgl. Abbildung 3.9 c)), welcher in Abschnitt 5.1 näher erklärt wird. Die Strukturierung und das Ätzen der unteren Niob-Schicht erfolgt analog zur obere Elektrode (vgl. Abbildung 3.9 d)). Im Anschluss daran werden zwei separate SiO_x-Lagen zur Isolierung der Drei-Schicht-Struktur und den noch folgenden Lagen werden auf den Wafer gesputtert. Um die Kontaktierung zu gewährleisten, befindet sich auf der Deckelelektrode der Tunnelkontakte ein mit Negativlack strukturierter Stempel, welcher nach der Deposition entfernt wird (vgl. Abbildung 3.9 e)). Des Weiteren werden die Shunt-Widerstände der Tunnelkontakte mit Negativlack strukturiert und in

⁴englisch für: inductively coupled plasma reactive ion etching

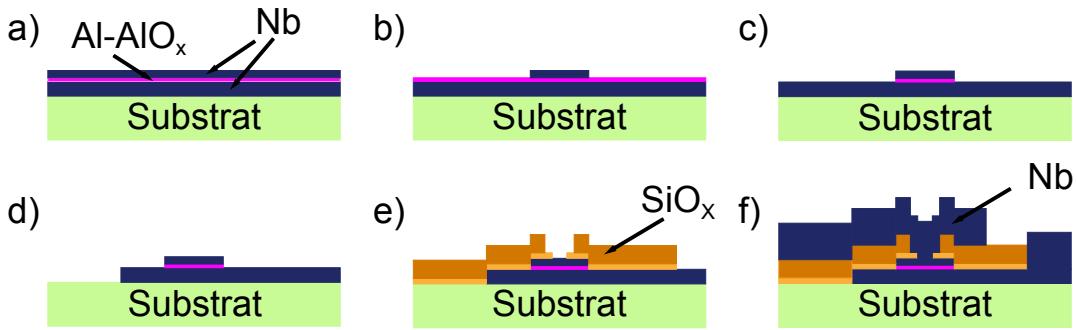


Abb. 3.9: Schematische Darstellung des zur Herstellung der SQUIDs verwendeten Fabrikationsprozesses. a) Nach der Deposition der Nb/Al-AlO_x/Nb-Drei-Schicht-Struktur, b) nach der Strukturierung der Deckelelekrode der Tunnelkontakte durch einen Trockenätzprozess mit SF₆ c) nach dem Nassätzen der Aluminium-Schicht mit einer alkalischen oder sauren Lösung, d) nach der Strukturierung der Basiselekrode der Tunnelkontakte durch einen Trockenätzprozess mit SF₆, e) Nach der Deposition der isolierenden SiO_x-Lagen, f) nach der Strukturierung einer finalen Nb-Schicht.

der UHV-Sputteranlage werden 260 nm AuPd aufgetragen. Durch einen Lift-off wird der Lack und das darauf befindliche AuPd entfernt. Sowohl vor als auch nach der AuPd-Deposition wird eine wenige Nanometer dicke Nb-Schicht aufgetragen, wobei die untere Lage als Haftvermittler dient und die obere Lage das AuPd vor Schaden während des folgenden Ionenkanonen-Prozess schützt. Durch den finalen Lift-off-Prozess mit Negativlack werden die fehlenden Strukturen der SQUIDs durch Sputtern von 600 nm Nb komplettiert (vgl. Abbildung 3.9 f).

4. dc-SQUIDs mit SQUID-Washer aus Aluminium

Bereits in [Kem16] wurde gezeigt, dass sich die Rauschniveaus von Aluminium-Qubits und die von Niob-Qubits und Niob-SQUIDs unterscheiden und Aluminium zu niedrigerem Rauschen des supraleitenden Quantenbauelements führt. Wie in Abschnitt 2.3 bereits erläutert, könnte ein möglicher Grund dafür der Einfluss des Kernspins sein. Da Aluminium einen Kernspin von $I = 5/2$ besitzt, sollte dies im Vergleich zu Niob mit $I = 9/2$ zu niedrigerem Rauschen führen. Da in [Kem16] jedoch nur Qubits aus Aluminium zum Vergleich herangezogen wurden, wurden SQUIDs hergestellt, deren SQUID-Washer aus Aluminium bzw. Niob gefertigt sind. Durch die Baugleichheit dieser SQUIDs lassen sich somit eindeutigere Aussagen über die Materialabhängigkeit des niederfrequenten Flussrauschen treffen. Des Weiteren ist aus [Kem16] bekannt, dass sich das Rauschen von einfachen dc-SQUIDs und dc-SQUID-Arrays unterscheidet, sodass im Rahmen dieser Arbeit SQUID-Arrays mit Aluminium-Washern untersucht und mit SQUID-Arrays mit Niob-Washern verglichen wurden. In diesem Kapitel wird dabei zuerst das Design und die Herstellung der untersuchten SQUIDs diskutiert, bevor die Ergebnisse der an den Aluminium-SQUIDs durchgeführten Experimenten vorgestellt werden.

4.1 Design und Herstellung

Um die Materialabhängigkeit eindeutig untersuchen zu können, müssen SQUIDs aus verschiedenen Materialien hergestellt werden, welche möglichst baugleich sind. Um jedoch SQUIDs und damit auch Josephson-Kontakte aus einem einzigen Material herzustellen, müsste für jedes Material eine unterschiedliche Realisierung der Josephson-Kontakte verwendet werden. Neben der Komplexität und des Zeitaufwands für diese Herausforderung kann zudem kein einheitliches Verhalten der Josephson-Kontakte sichergestellt werden. So könnten die kritischen Ströme der Tunnelkontakte unterschiedlich fluktuieren und so eine eindeutige Aussage über die Materialabhängigkeit erschweren. Aus diesem Grund wurden SQUIDs entwickelt, welche stets auf die in dieser Arbeitsgruppe etablierten Nb-Al-AlO_x-Nb-Kontakten zurückgreift. Da davon ausgegangen wird, dass das niederfrequente Flussrauschen primär durch den Washer des SQUIDs verursacht wird, müssen nur diese Washer aus unterschiedlichem Material hergestellt werden. Dies wurde durch einen universellen Basisaufbau eines SQUIDs realisiert, welcher aus den Nb/Al-AlO_x/Nb-Tunnelkontakten, aus deren Shunt-Widerständen und den nö-

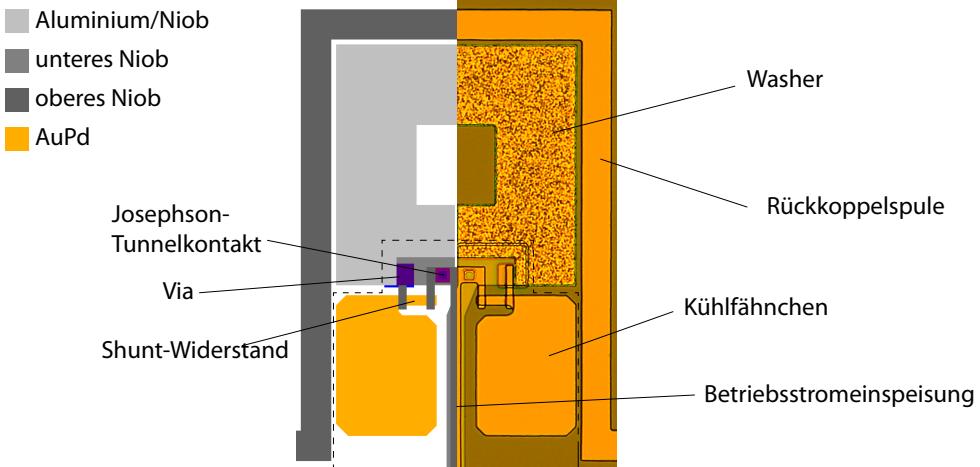


Abb. 4.1: Entwurfzeichnung (linke Hälfte) und lichtmikroskopische Aufnahme (rechte Hälfte) des im Rahmen dieser Arbeit verwendeten SQUID-Designs zur Untersuchung des niederfrequenten magnetischen Flussrauschen von dc-SQUIDs mit einem Washer aus Aluminium oder Niob.

tigen stromführenden Leitungen besteht. Diese SQUID-Basis (siehe Abbildung 4.1 gestrichelter Bereich) wird nach dem in Abschnitt 3.4 präsentierten Prozess hergestellt. Zusätzlich zu diesem Basisaufbau kann nun eine weitere Materiallage aufgebracht werden, welche den SQUID-Washer strukturiert. Dabei ist dieser Washer über eine Aussparung in der isolierenden SiO_x -Schicht, welche als Via bezeichnet wird, mit dem darunterliegenden Basisaufbau verbunden und komplettiert das SQUID. Im Rahmen dieser Arbeit wurden SQUIDs mit Washern aus Aluminium und Niob verglichen. Dabei wurden diese Washers durch einen Lift-Off-Prozess von je 600 nm des jeweiligen Materials hergestellt. Zusätzlich wurden auch SQUIDs hergestellt, deren Washer sich bereits in der unteren Nioblage der SQUID-Basis befinden, um einen möglichen Einfluss der Vias auf das niederfrequente Flussrauschen bestimmen zu können.

4.1.1 Einfache Washer-SQUIDs

Abbildung 4.1 zeigt das Design der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten einfachen Washer-SQUIDs, bei denen der SQUID-Washer aus entweder Aluminium oder aus Niob gefertigt werden kann. Der Washer besitzt eine simulierte Induktivität von $L = 87 \text{ pH}$ und die Rückkoppelpspule hat eine simulierte Rückkoppelsensitivität von $M^{-1} = 40,5 \mu\text{A}/\Phi_0$. Die Josephson-Tunnelkontakte haben eine Fläche von $A = (6\mu\text{m})^2$ und sind zur Vermeidung von hysteretischem Verhalten mit AuPd-Shunt-Widerständen parallel geschaltet, welche eine Länge von $10 \mu\text{m}$ und eine Breite von $5 \mu\text{m}$ besitzen. Mit dem spezifischen Flächenwiderstand $R_{\square} = 1,28 \Omega/\square$ ergibt sich für den Shunt-Widerstand der Wert $R = 2,5 \Omega$. An die

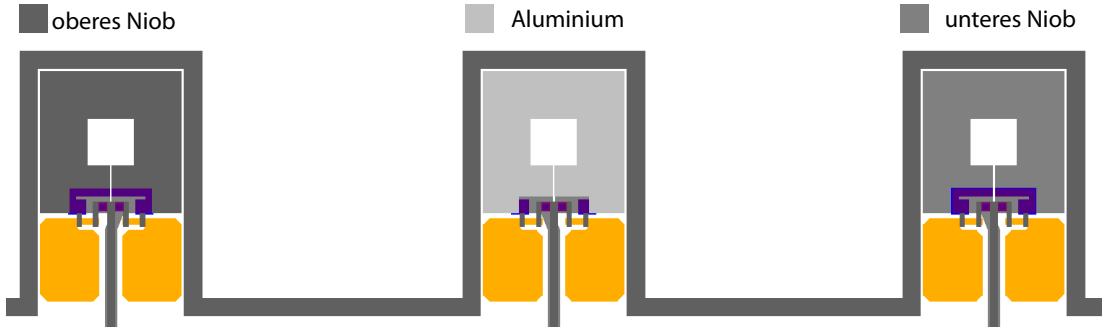


Abb. 4.2: Entwurfzeichnung der auf einem Chip nebeneinander gelegenen einfachen Washer-SQUIDs mit unterschiedlichem Washer-Material zur eindeutigen Untersuchung der Materialabhängigkeit des niederfrequenten magnetischen Flussrauschen. Der gestrichelte Bereich entspricht der SQUID-Basis.

Shunt-Widerstände sind zur Wärmeableitung Kühlfähnchen angebracht, welche als Wärmebad für die im Shunt-Widerstand dissipierte Leistung agieren. Berücksichtigt man, dass die Zielwerte der kritischen Stromdichte $j_c = 0,3 \mu\text{A}/\mu\text{m}^2$ und die Kapazität pro Fläche $c = 27 \text{ fF}/\mu\text{m}^2$ betragen, sind die Abschirmparameter durch $\beta_c = 0,20$ und $\beta_L = 0,91$ gegeben. Dies stellt sicher, dass kein hysteretisches Verhalten auftritt. Wie in Abbildung 4.2 zu sehen, befinden sich auf dem Chip rechts und links neben dem Washer-SQUID aus Aluminium jeweils ein SQUID, welches einen Washer aus der unteren bzw. oberen Nioblage des Wafer besitzt (siehe Abschnitt 4.1). Treten Unterschiede im niederfrequenten Rauschen auf, so können diese auf das Washer-Material zurückgeführt werden.

4.1.2 N-SQUID-Serienarrays

Ein N -SQUID-Serienarray besteht aus N identischen dc-SQUIDs, welche in Reihe geschaltet sind. Unter der Annahme, dass alle SQUID-Zellen am gleichen Arbeitspunkt betrieben werden und dass der externe magnetische Fluss gleichsam in alle SQUID-Zellen eingekoppelt wird, summieren sich die Spannungen der einzelnen dc-SQUID-Zellen auf und der Spannungshub und damit der Fluss-zu-Spannungs-Koeffizient V_Φ wird um den Faktor N erhöht. Da das scheinbare magnetische Flussrauschen, welches von der SQUID-Elektronik verursacht wird, dadurch deutlich reduziert wird, kann das gemessene Rauschspektrum auf den von der Elektronik verursachten Rauschbeitrag korrigiert werden und dementsprechend ein einstufiger SQUID-Aufbau für die Rauschuntersuchung verwendet werden (siehe Abschnitt 3.1.1).

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten SQUID-Arrays mit Aluminium-Washern sind in Abbildung 4.3 zu sehen. Sie besitzen 16 dc-SQUID-Zellen, deren Washer

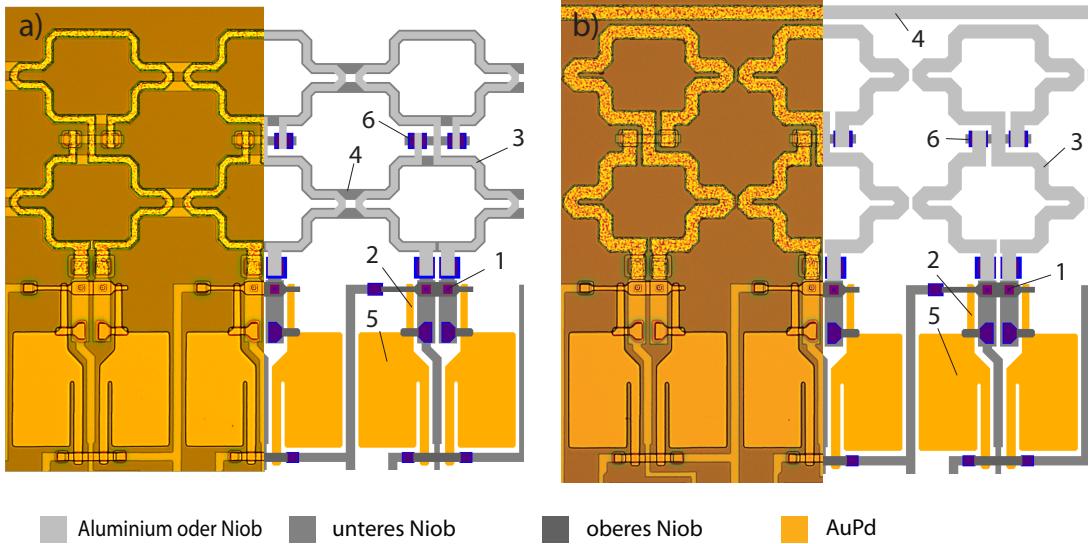


Abb. 4.3: Ausschnitt eines N -SQUID-Serienarrays, bei dem in a) die Rückkoppelpulpe unterhalb des SQUID-Washers liegt bzw. bei dem in b) die Rückkoppelpulpe oberhalb des SQUID-Washers verläuft. In beiden Fällen ist links eine lichtmikroskopische Aufnahme und rechts ein Ausschnitt der Entwurfzeichnung gezeigt. Die Zahlen in den Entwurfzeichnungen geben die Lage der 1) Josephson-Tunnelkontakte, 2) shunt-Widerstände, 3) Washer, 4) Rückkoppelpulpen, 5) Kühlähnchen, 6) Vias wieder.

serielle Gradiometer 1. Ordnung darstellen, sodass Fluktuationen räumlich homogener Felder keinen Beitrag zum gemessenen Rauschspektrum verursachen. Insgesamt wurden zwei verschiedene SQUID-Array-Entwürfe verwendet, die sich in der Technik zur Rückkopplung des Flusses unterscheiden. Bei den Arrays in Abbildung 4.3 a) ist die im folgenden als starke Rückkopplung bezeichnete Technik verwendet worden, bei welcher die Rückkoppelpulpe aus Niob unterhalb des Aluminium-Washers liegt und so für eine starke Kopplung der Spule an den Washer sorgt. Bei dem in Abbildung 4.3 b) gezeigten Entwurf kommt die im folgenden als schwache Rückkopplung bezeichnete Technik zum Einsatz, bei welcher die Rückkoppelpulpe aus Aluminium in einem Abstand von $3\ \mu\text{m}$ neben dem oberen Ende des Washers gelegen ist. Die Kopplung ist in diesem Fall deutlich schwächer als bei den Arrays mit direkter Kopplung. Der Grund für die Verwendung der beiden Techniken liegt daran, dass bei der direkten Rückkopplung ein zusätzlicher Rauschbeitrag durch die direkt unter dem Washer durch nur $250\ \text{nm}$ SiO_x getrennt liegende Spule vorhanden sein könnte. Ein solcher Rauschbeitrag sollte bei der indirekten Kopplung nicht vorliegen, da die Rückkoppelpulpe $4\ \mu\text{m}$ von dem SQUID-Washer entfernt liegt. Die Josephson-Tunnelkontakte der beiden untersuchten Arrays haben eine Fläche von $A = (4\ \mu\text{m})^2$, eine Zielwert der kritischen Stromdichte von $j_c = 0,3\ \mu\text{A}/\mu\text{m}^2$ und deren Shunt-Widerstände ha-

ben einen Wert von $R = 6,4\Omega$. Die simulierten Induktivitäten der Washer und die Rückkoppelsensitivität sowie die berechneten Parameter β_L und β_c sind in Tabelle 4.1 aufgeführt.

Rückkopplung	L/pH	$M_{\text{fx}}^{-1} / (\mu\text{A}/\Phi_0)$	β_L	β_c
indirekt	242	161,0	1,12	0,26
direkt	285	10,3	1,31	0,26

Tab. 4.1: Simulierte Induktivität L des Washers und Rückkoppelsensitivität M_{fx}^{-1} sowie die berechneten Parameter β_L und β_c der beiden Arrays.

Die simulierten Werte von $\beta_c < 1$ stellen sicher, dass die Josephson-Kontakte sich nicht hysteresisch verhalten.

4.2 Experimentelle Ergebnisse

Im folgenden Kapitel werden die Ergebnisse der niederfrequenten Messungen des magnetischen Flussrauschens der SQUIDs mit Al-Washern von Wafer HDSQ4b präsentiert. Alle Messungen wurden im $^3\text{He}/^4\text{He}$ -Verdünnungskryostaten mit den in Abschnitt 3.2 gezeigten experimentellen Aufbauten durchgeführt. Zuerst werden die Ergebnisse für die N -SQUID-Arrays präsentiert, welche alle einstufig charakterisiert wurden. Im Anschluss werden die Ergebnisse der mit Hilfe des Kreuzkorrelationsaufbaus charakterisierten Washer-SQUIDs gezeigt.

4.2.1 SQUID-Arrays mit Aluminium-Washer

Zu Beginn der Charakterisierung wurden die Strom-Spannungs-Kennlinien der SQUID-Arrays mit Al-Washer für ganzzahlige Flüsse $\Phi = n\Phi_0$ und halbzahlig Flüsse $\Phi = (n + 1/2)\Phi_0$ aufgenommen, um die Funktionsfähigkeit der SQUIDs zu untersuchen. Die bei einer Temperatur von $T = 100\text{ mK}$ aufgenommenen Strom-Spannungs-Kennlinien von zwei beispielhaften herausgegriffenen SQUID-Arrays bei 100 mK mit direkter bzw. indirekter Kopplung sind in Abbildung 4.4 a) und c) zu erkennen. Des Weiteren sind in Abbildungen 4.4 b) und d) die dazugehörigen Fluss-Spannungs-Kennlinien aufgetragen, wobei der Betriebstrom I_b so gewählt wurde, dass der Spannungshub ΔU maximal ist. Aus den Fluss-Spannungs-Kennlinien wurden die Rückkoppelsensitivitäten M_{fx}^{-1} bestimmt. Für das gezeigte SQUID-Array mit indirekt gekoppelter Rückkoppelspule ergab sich ein Wert von $M_{\text{fx}}^{-1} = 172\text{ }\mu\text{A}/\Phi_0$, für das gezeigte SQUID-Arrays mit direkt gekoppelter Rückkoppelspule $M_{\text{fx}}^{-1} = 9,8\text{ }\mu\text{A}/\Phi_0$. Beide Werte stimmen gut mit den simulierten Werten überein. Zudem lassen sich anhand der Strom-Spannungs-Kennlinien der

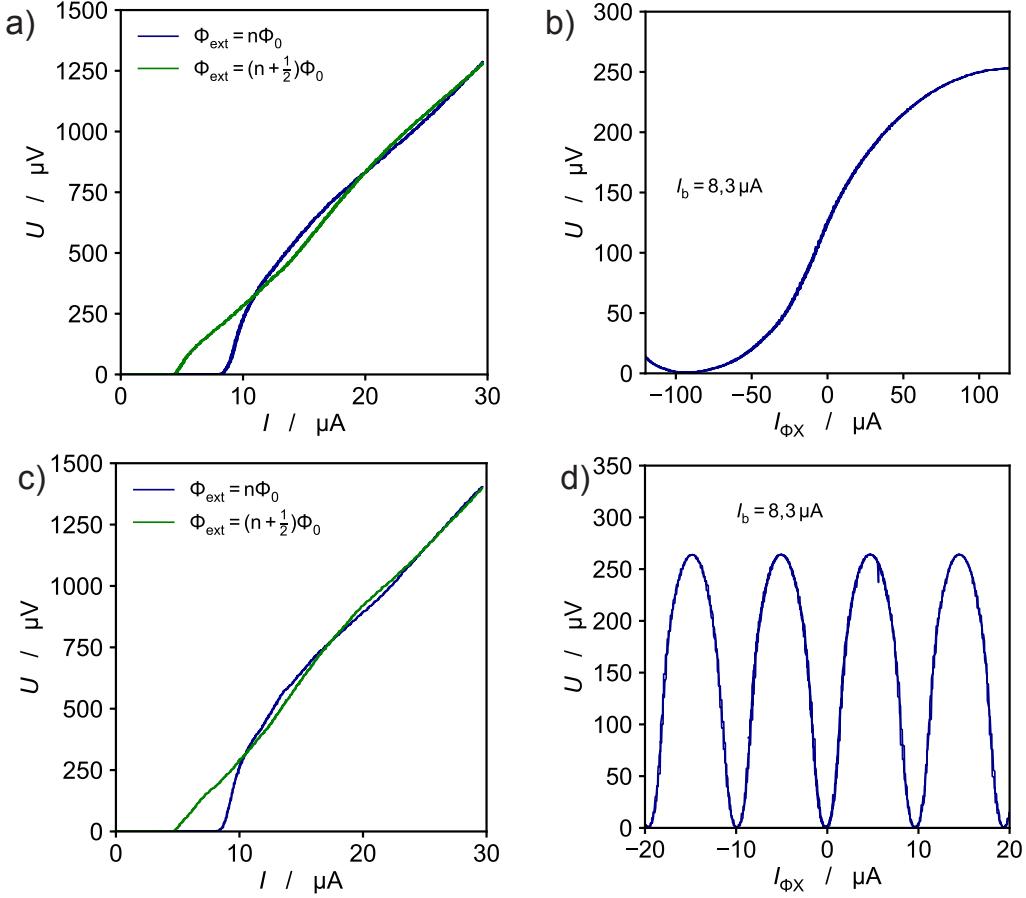


Abb. 4.4: Strom-Spannungs-Kennlinie eines N -SQUID-Serienarrays mit Al-Washer und a) indirekt und c) direkt gekoppelter Rückkoppelpulse sowie b) und d) die dazugehörigen Fluss-Spannungs-Kennlinien. Bei der in c) gezeigten Fluss-Spannungs-Kennlinie ist nur ein Ausschnitt zu erkennen, da aufgrund der schwachen Kopplung mit $M_{\text{in}}^{-1} = 172 \mu\text{A}/\Phi_0$ nicht möglich war, mehrere Flussquanten Φ_0 in die SQUID-Schleife zu induzieren. Alle Kennlinien wurden bei 100 mK aufgenommen.

maximale Betriebsstrom $I_{b,\text{max}}$ bestimmen. Dieser ist durch den maximalen Strom gegeben, bei welchem im Fall von ganzzahligen Flüssen $\Phi = n\Phi_0$ in der SQUID-Schleife noch keine Spannung über dem SQUID abfällt. Der gemessene Wert von $I_{b,\text{max}} = 8.3 \mu\text{A}$ liegt dabei leicht unter dem durch die Größe der Josephson-Kontakte zu erwartenden Wert von $I_{b,\text{max}} = 2j_c \cdot (4 \mu\text{m})^2 = 9.6 \mu\text{A}$, wobei eine kritische Stromdichte von $j_c = 0.3 \mu\text{A}/\mu\text{m}^2$ angenommen wurde.

Es wurden Rauschspektren von insgesamt zwölf SQUID-Arrays mit Al-Washern im Temperaturbereich zwischen 10 mK und 740 mK aufgenommen. Alle gemessenen Spektren wurden mit der in Abschnitt 3.3 beschriebenen Methode ausgewertet, um die Amplitude des niederfrequenten magnetischen Flussrauschen $\sqrt{S_{1/f}}(1 \text{ Hz})$ bei 1 Hz und den Rauschexponenten α zu erhalten. Um eine mög-

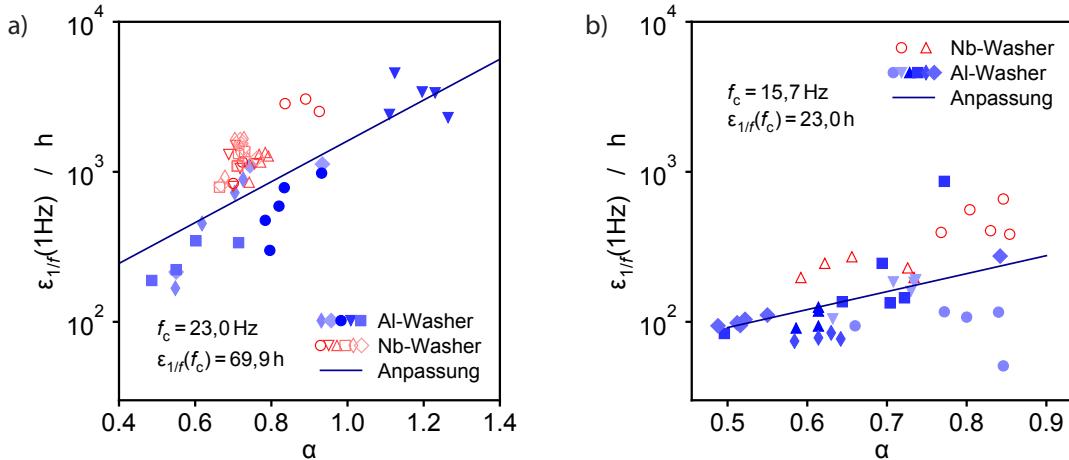


Abb. 4.5: a) Die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ aufgetragen über dem Rauschexponenten α für die vermessenen SQUID-Arrays mit direkt gekoppelten Rückkoppelpulen mit Washern aus Aluminium und Niob. Der Wert der Rückkoppelsensitivität M_{in}^{-1} der SQUID-Arrays mit Al-Washer beträgt dabei $M_{\text{fx}}^{-1} \approx 9,8 \mu\text{A}/\Phi_0$, die der SQUID-Arrays mit Nb-Washern $M_{\text{fx}}^{-1} \approx 11,7 \mu\text{A}/\Phi_0$. Aus der Anpassung der Gleichung 2.22 an die Messdaten der Arrays mit Al-Washer wurde eine Pivotierfrequenz von $f_c = (23 \pm 12) \text{ Hz}$ bestimmt. b) Die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ aufgetragen über dem Rauschexponenten α für die vermessenen SQUID-Arrays mit indirekt gekoppelten Rückkoppelpulen mit Washern aus Aluminium und Niob. Der Wert der Rückkoppelsensitivität M_{fx}^{-1} der Al-SQUID-Arrays beträgt dabei $M_{\text{fx}}^{-1} \approx 170 \mu\text{A}/\Phi_0$, die der Nb-SQUID-Arrays $M_{\text{fx}}^{-1} \approx 32,8 \mu\text{A}/\Phi_0$. Es wurde eine Pivotierfrequenz von $f_c = (15 \pm 26) \text{ Hz}$ bestimmt. Die unterschiedlichen Symbole stellen die Messdaten bei verschiedenen Temperaturen der unterschiedlichen SQUID-Arrays dar, deren genauen Werte der Rückkoppelsensitivitäten in Tabelle 7.1 und 7.2 angegeben sind.

liche Materialabhängigkeit zu erkennen, wurden zudem SQUID-Arrays aus Niob mit unterschiedlichen Rückkoppelsensitivitäten M_{fx}^{-1} analysiert, welche jedoch nicht baugleich zu den untersuchten SQUID-Arrays mit Al-Washer sind. Die Arrays mit direkt gekoppelter Rückkoppelpule und Al-Washer wurden dabei mit Niob-Arrays des Wafers HDSQ14w1 verglichen, welche eine Rückkoppelsensitivität von $M_{\text{fx}}^{-1} \approx 11,7 \mu\text{A}/\Phi_0$ besitzen. Diese SQUID-Arrays haben ebenso wie die SQUID-Arrays mit Al-Washer eine Rückkoppelpule mit direkter Kopplung und so einen guten Vergleichswert liefern. In Abbildung 4.5 a) ist die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ über den Rauschexponenten α für jeweils 5 Arrays mit Al-Washer (blau) und mit Nb-Washer (rot) bei verschiedenen Temperaturen aufgetragen. Es ist zu erkennen, dass die SQUID-Arrays mit Al-Washer bei einem bestimmten Wert des Rauschexponenten α niedrigere Werte für $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ aufweisen als die SQUID-Arrays mit Nb-Washer. Zusätzlich wurde in Abbildung 4.5 a) an die

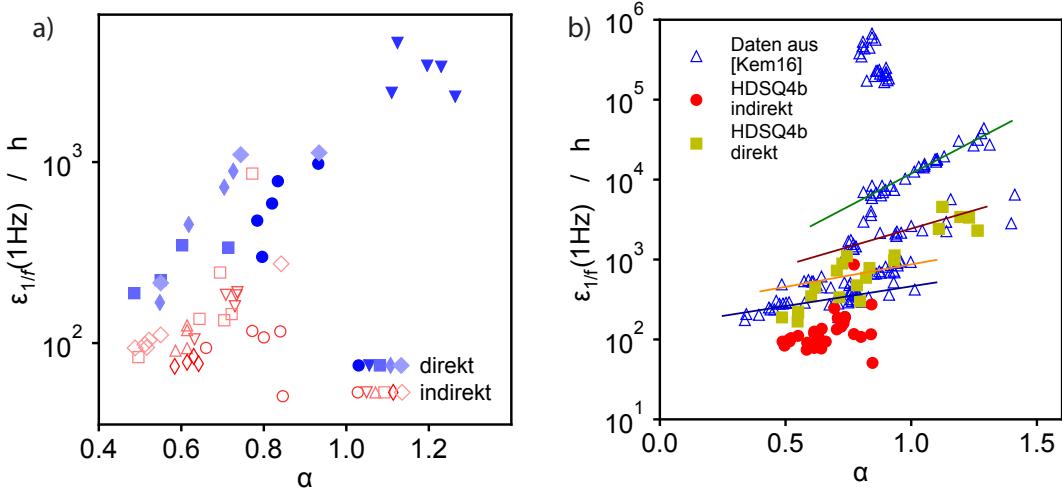


Abb. 4.6: a) Die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ aufgetragen über dem Rauschexponenten α für die verschiedenen im Rahmen dieser Arbeit charakterisierten SQUID-Arrays mit Al-Washer mit indirekter und direkter Kopplung der Rückkoppelpulse. Die SQUID-Arrays mit direkter Kopplung haben eine Rückkoppelsensitivität von $M_{\text{fx}}^{-1} \approx 9,8 \mu\text{A}/\Phi_0$, die mit direkter von $M_{\text{fx}}^{-1} \approx 170 \mu\text{A}/\Phi_0$. Dabei stellt jedes Symbol die Messwerte eines SQUID-Arrays bei verschiedenen Temperaturen dar. Die Rückkoppelsensitivitäten sind in Tabelle 7.3 angegeben. b) Die in a) gezeigten Messdaten im Vergleich zu den in [Kem16] zusammengefassten Daten für SQUID-Arrays mit Nb-Washer.

Messwerte der SQUID-Arrays mit Al-Washer die Gleichung 2.22 angepasst. Es ergibt sich eine Pivotierfrequenz von $f_c = (23 \pm 12) \text{ Hz}$. Dabei liegen die Werte des Rauschexponenten α und der Amplitude der Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ bei $\alpha = 0,5 - 1,2$ und $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz}) = (200 - 3500) \text{ h}$. Bei den SQUID-Arrays mit Nb-Washer liegen diese Werte bei $\alpha = 0,6 - 0,9$ und $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz}) = (800 - 3000) \text{ h}$.

Um das Rauschen der SQUID-Arrays mit indirekt gekoppelter Rückkoppelpulse und Al-Washer einzuordnen, wurden zusätzlich zwei SQUID-Arrays mit Nb-Washer gemessen, welche vom Wafer HDSQ4b stammten und mit $M_{\text{fx}}^{-1} \approx 33 \mu\text{A}/\Phi_0$ eine schwache Rückkoppelsensitivität aufweisen. Mögliche Unterschiede der Eigenschaften der Tunnelkontakte und der unterschiedlichen Materialschichten konnten so minimiert werden. In Abbildung 4.5 b) sind die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ über den Rauschexponenten α aufgetragen. Aus der Anpassung von Gleichung 2.22 ergibt sich für die SQUID-Arrays mit Al-Washer eine Pivotierfrequenz von $f_c = (15 \pm 26) \text{ Hz}$. Die Werte der SQUID-Arrays mit Al-Washer von $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz}) = (70 - 200) \text{ h}$ sind dabei kleiner als die der SQUID-Arrays mit Nb-Washer mit $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz}) = (200 - 800) \text{ h}$. Dies deckt sich mit den Beobachtungen für die SQUID-Arrays mit direkt gekoppelter Rückkoppelpulse.

In Abbildung 4.6 a) wurde zusätzlich die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ der SQUID-Arrays mit Al-Washern und beiden Spulentypen über dem Rauschexponenten α aufgetragen. Dabei ist zu erkennen, dass die Arrays mit indirekter Kopplung niedrigere Werte für $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ aufweisen als jene mit direkter Kopplung, wobei der Rauschexponent α für beide im Bereich von $\alpha = 0,5 - 0,9$ liegt. Lediglich ein SQUID-Array mit direkt gekoppelter Rückkoppelspule liegt bei $\alpha \approx 1,2$. Die Ursache hierfür ist unbekannt. Zusätzlich sind die Messdaten der SQUID-Arrays mit Al-Washer in Abbildung 4.6 b) mit den in [Kem16] zusammengefassten Daten aufgetragen. Dabei zeigt sich, dass die SQUID-Arrays mit Al-Washer und indirekt gekoppelter Rückkoppelspule die bislang niedrigsten Amplituden der Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ aufweisen. Die Messwerte der SQUID-Arrays mit Al-Washer und direkt gekoppelter Rückkoppelspule liegen im Bereich der unteren beiden Gruppen der in [Kem16] gezeigten Arrays aus Niob.

Der Vergleich des niederfrequenten magnetischen Flussrauschen der im Rahmen dieser Arbeit charakterisierten SQUID-Arrays mit Al-Washer mit dem Flussrauschen von sowohl den charakterisierten SQUID-Arrays mit Nb-Washer als auch von den in [Kem16] gezeigten Daten ist ein starkes Indiz, dass das Washer-Material einen Einfluss auf das niederfrequente magnetische Flussrauschen hat. Da bei allen im Rahmen dieser Arbeit charakterisierten SQUIDs auf mögliche parasitäre Rauschbeiträge korrigiert wurde (siehe Abschnitt 3.3), wird diese Aussage weiter unterstützt. Wie in [Wu12, LaF15] vorhergesagt ist, könnte das niedrigere Rauschen der SQUID-Arrays mit Al-Washer an dem Kernspin liegen, welche bei Aluminium mit $I = 5/2$ kleiner ist als bei Niob mit $I = 9/2$. Um den Einfluss des Washer-Materials auf das niederfrequente magnetische Flussrauschen weiter zu untersuchen, sollten in Zukunft SQUID-Arrays mit Washern aus unterschiedlichen Materialien mit der in Abschnitt 4.1 gezeigten Technik hergestellt werden, um diese mit den im Rahmen dieser Arbeit charakterisierten SQUID-Arrays und den in [Kem16] zusammengetragenen Daten zu vergleichen. Zudem hat sich bei dem Vergleich zwischen den SQUID-Arrays mit Al-Washer mit direkt und indirekt gekoppelter Rückkoppelspule gezeigt, dass das Rauschen der SQUIDs mit indirekter Kopplung niedriger ausfällt. Da auf alle parasitären Rauschbeiträge korrigiert wurde, könnte eine mögliche Erklärung das Niob der direkt gekoppelten Rückkoppelspule sein. Diese liegt von einer nur 325 nm dicken SiO_x getrennt unter dem Al-Washer. Das Niob könnte zusätzliche Rauschbeiträge liefern und so dafür sorgen, dass das Flussrauschen im Vergleich zu den SQUIDs mit indirekt gekoppelter Rückkoppelspule höher ausfällt. Es ist demnach von Interesse, den Einfluss von Strukturen aus unterschiedlichen Materialien in der Umgebung des SQUID-Washers weiter zu untersuchen.

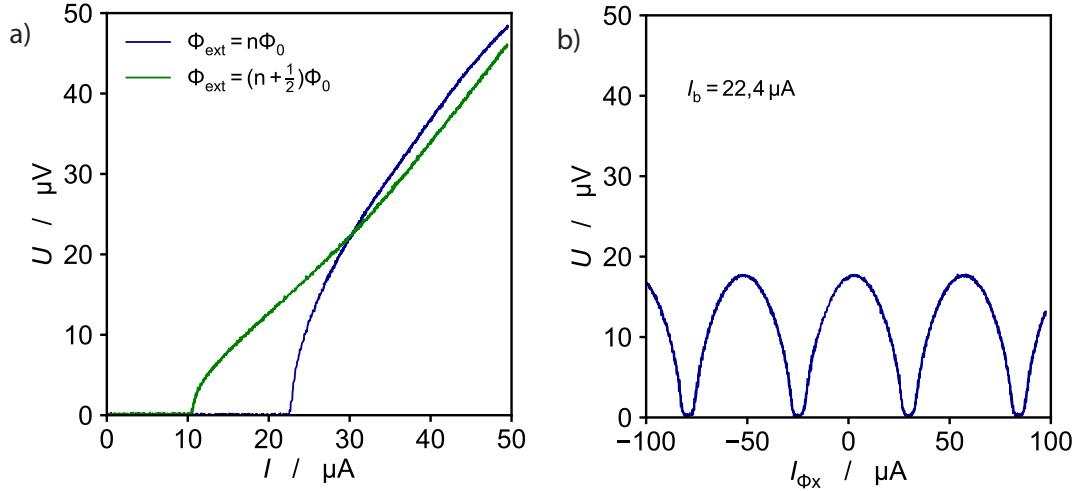


Abb. 4.7: a) Strom-Spannungs-Kennlinie des SQUIDs HDSQ4bw1 3A15 SQ2 für ganzzahlige $\Phi_{\text{ext}} = n\Phi_0$ und halbzählig externe Flüsse $\Phi_{\text{ext}} = (n + 1/2)\Phi_0$. b) Die Fluss-Spannungs-Kennlinie des SQUIDs bei $T = 10 \text{ mK}$ und einem Betriebsstrom von $I_b = 22,4 \mu\text{A}$. Der aufgetragene Strom I_{Φ_x} ist dabei proportional zum induzierten Fluss.

4.2.2 Einfache Washer-SQUIDs mit Al-Washer

Für zwei Washer-SQUIDs, bei denen der Washer aus Aluminium gefertigt wurde, wurden für Temperaturen zwischen 10 mK und 700 mK Strom-Spannung- und Fluss-Spannungs-Kennlinien aufgenommen. In Abbildung 4.7 sind beispielhaft die Strom-Spannungs-Kennlinie und die Fluss-Spannungs-Kennlinie des SQUIDs mit Al-Washer des Chips HDSQ4bw1 3A15 bei einer Temperatur von 10 mK dargestellt. Aus der Strom-Spannungs-Kennlinie lässt sich der maximale Betriebsstrom $I_{b,\max}$ und hieraus der kritische Strom $I_c = 11,2 \mu\text{A}$ der Josephson-Kontakte bestimmen. Diese stimmen mit dem erwarteten Wert von $I_c = j_c \cdot (6 \mu\text{m})^2 = 10,8 \mu\text{A}$ überein, wobei eine kritische Stromdichte von $j_c = 0,3 \mu\text{A}/\mu\text{m}^2$ angenommen wird.

Um das niederfrequente magnetische Flussrauschen der einfachen Washer-SQUIDs mit Al-Washer zu untersuchen, wurde die spektrale Leistungsdichte $\sqrt{S_\Phi}$ mithilfe eines Kreuzkorrelationsaufbaus, wie er in Abschnitt 3.1.3 beschrieben ist, für Temperaturen zwischen 20 mK und 720 mK bestimmt. Dabei wurden die SQUIDs mit Al-Washer und SQUIDs mit Nb-Washer desselben Chips mit den selben Verstärker-Arrays vermessen, um mögliche messbedingte Unterschiede zu vermeiden. Auch der Strom I_1 durch die Parallelschaltung aus Gain-Widerstand R_g und dem SQUID wurde bei den Messungen auf einen Wert von 30 μA fixiert. Aus den gemessenen Spektren wurden die spektrale Leistungsdichte $\sqrt{S_{1/f}(1 \text{ Hz})}$ bei 1 Hz und der Rauschexponent α durch eine numerische Anpassung der Glei-

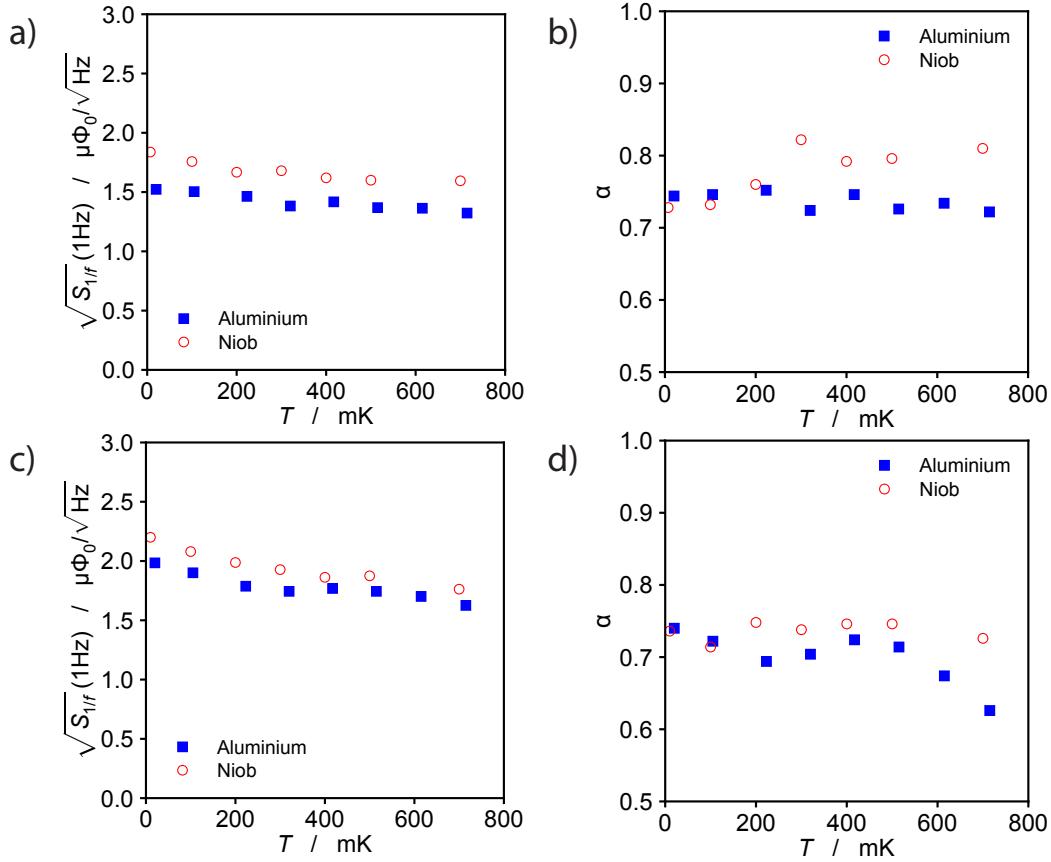


Abb. 4.8: In a) und c) ist die spektrale Leistungsdichte $\sqrt{S_{1/f}}(1 \text{ Hz})$ bei 1 Hz und in b) und d) der Rauschexponent α der Niob-SQUIDs (rot) und Aluminium-SQUIDs (blau) für Temperaturen von 20 mK bis 720 mK für den Chip 3C6 und für den Chip 3A15 aufgetragen.

chung 2.18 an die Messdaten bestimmt. Diese Werte sind in Abbildung 4.8 für die untersuchten SQUIDs der Chips 3C6 und 3A15 als Funktion der Temperatur aufgetragen. Die Ergebnisse der SQUIDs mit einem Niob-Washer sind dabei rot markiert, während jene mit Aluminium-Washern blau markiert sind. Es ist zu erkennen, dass für jedes der vier SQUIDs die spektrale Leistungsdichte $\sqrt{S_{1/f}}(1 \text{ Hz})$ mit steigender Temperatur leicht abfällt und der Exponent α kein systematisches Verhalten aufzeigt. Beim Vergleich der SQUIDs mit Al-Washer und Nb-Washer fällt ferner auf, dass für beide Chips die SQUIDs mit Al-Washer ein leicht niedrigere spektrale Leistungsdichte $\sqrt{S_{1/f}}(1 \text{ Hz})$ aufzeigen, während der Exponent α erst für Temperaturen über 400 mK signifikant kleiner wird.

In Abbildung 4.9 ist die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ in Abhängigkeit des Rauschexponenten α für die untersuchten Washer-SQUIDs mit Daten aus [Kem16] verglichen. Dabei markieren die roten Diamanten die SQUIDs mit Al-Washer, die orangen Dreiecke die SQUIDs mit Nb-Washer, die blauen Dreiecke und Quadrate

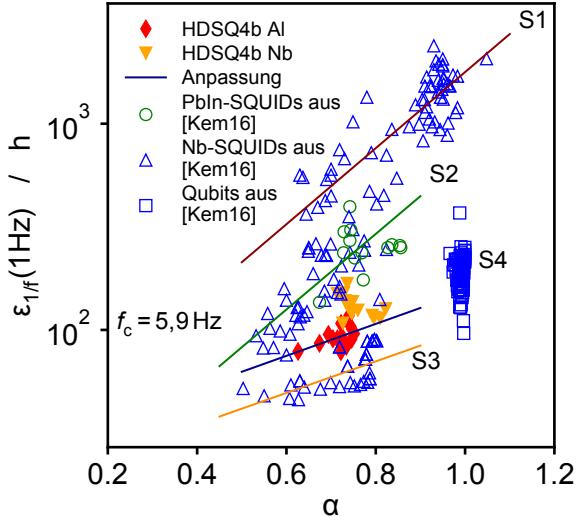


Abb. 4.9: Die Amplitude der Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1\text{ Hz})$ für die untersuchten SQUIDs mit Aluminium und Niob-Washer des Wafers HDSQ4b, sowie die in [Kem16] zusammengefassten Daten für Temperaturen unter 1 K gegen den Rauschexponenten α . Zusätzlich wurde durch Anpassung der Gleichung 2.22 an die SQUIDs mit Al-Washer eine Pivotierfrequenz von $f_c = (5,9 \pm 5,5)$ Hz bestimmt.

die SQUIDs bzw. Qubits aus Nb aus [Kem16] und die grünen Kreise die PbIn-SQUIDs aus [Kem16]. Des Weiteren wurde an die SQUIDs mit Al-Washer die Gleichung 2.22 angepasst, was eine Pivotierfrequenz von $f_c = (5,9 \pm 5,5)$ Hz liefert. Die Energiesensitivität und der Rauschexponent der untersuchten SQUIDs mit Washern aus Aluminium und Niob liegen dabei zwischen den Gruppen S2 und S3. Zusätzlich zu den leicht höheren Werten für $\epsilon_{1/f}(1\text{ Hz})$ liegen die SQUIDs mit Nb-Washer auch bei leicht höheren Werten für α als die SQUIDs mit Al-Washer. Es zeigt sich zudem, dass auch die PbIn-SQUIDs in einem bestimmten Bereich im $\epsilon - \alpha$ -Diagramm liegen. Dies zeigt, dass es eine erkennbare Materialabhängigkeit des niederfrequenten magnetischen Flussrauschen geben könnte, dessen genau Ursache noch unbekannt ist. Auch hier könnten analog zu der Diskussion der Ergebnisse der SQUID-Arrays Kernspins ein Grund für diese Materialabhängigkeit sein, weshalb die Untersuchung von SQUIDs mit Washern aus unterschiedlichen Materialien hergestellt werden sollten. Beispielsweise könnten die Washer aus Zink hergestellt werden. Da das häufigste Isotop von Zink keinen Kernspin besitzt, sollten mögliche Rauschbeiträge aufgrund von Kernspins reduziert sein.

5. Wasserstoff in Niob

Eines der Ziele dieser Arbeit war die Untersuchung des Einflusses von in Niob eingeschlossenem Wasserstoff auf das niederfrequente magnetische Flussrauschen von SQUIDs. Hierzu wurde eine Technik entwickelt, mit der man gezielt Niob-Strukturen mit Wasserstoff beladen kann. Diese Methode wird im Verlauf des Kapitels diskutiert. Im Anschluss werden die auf dieser Beladungsmethode basierende Entwurfzeichnungen von SQUIDs diskutiert, die auf Grundlage der entwickelten Methode mit Wasserstoff beladen werden können, und erste Rauschmessungen mit auf dieser Weise hergestellten SQUIDs präsentiert.

5.1 Prozess zur gezielten Beladung von Niobstrukturen mit Wasserstoff

Wasserstoff ist das kleinste aller Atome, besitzt eine sehr geringe Aktivierungsenergie in Metallen (0,106 eV in Niob) und kann demnach sehr leicht in diese diffundieren [Fuk85]. Dabei kann die Wasserstoffkonzentration in Niob bis zu $c_H = n_H/n_{Nb} \approx 50\%$ betragen [Tol11], wobei n_H und n_{Nb} die Anzahldichten von Wasserstoff- beziehungsweise Niob-Atomen sind. Es ist bekannt, dass dünne Oxidschichten eine Diffusionsbarriere für in Niob eingeschlossenen Wasserstoff darstellt [Sun17]. Da sich auf allen Niobstrukturen, welche Sauerstoff ausgesetzt sind, eine solche Oxidschicht bildet, ist eine direkte Beladung in Luft, welche natürlicherweise 5 ppm H₂ enthält, nicht möglich. Aus diesem Grund muss mit einer speziellen Methode während des Herstellungsprozesses für eine Beladung einer Niobstruktur gesorgt werden.

Im folgenden werden zwei Ätzprozesse einer Al/Nb-Zweischichtstruktur diskutiert, bei welchem einer für eine Wasserstoffbeladung sorgt, während der andere eine solche verhindert. Es wurde bereits in [Ant03] gezeigt, dass es bei der Herstellung von Niobstrukturen durch Verwendung wässriger Lösungen zu einer Wasserstoffbeladung des Niobs kommen kann. Der in Abschnitt 3.4 gezeigte Herstellungsprozess zur Erzeugung der Josephson-Tunnelkontakte beinhaltet einen Schritt, bei welchem das Aluminium der Dreischichtstruktur auf der unteren Nioblage weggeätzt wird. Die Ausgangsposition der in dieser Arbeit untersuchten Niobstrukturen ist demnach immer eine Zweischichtstruktur einer dünnen Lage Aluminium, die *in situ* auf einer im Vergleich hierzu dicken Lage Niob abgeschieden wurde (siehe Abbildung 5.1 a)). Der in der Arbeitsgruppe verwendete Standardprozess zum Ätzen von Aluminium basiert auf einer sauren Ätzlösung,

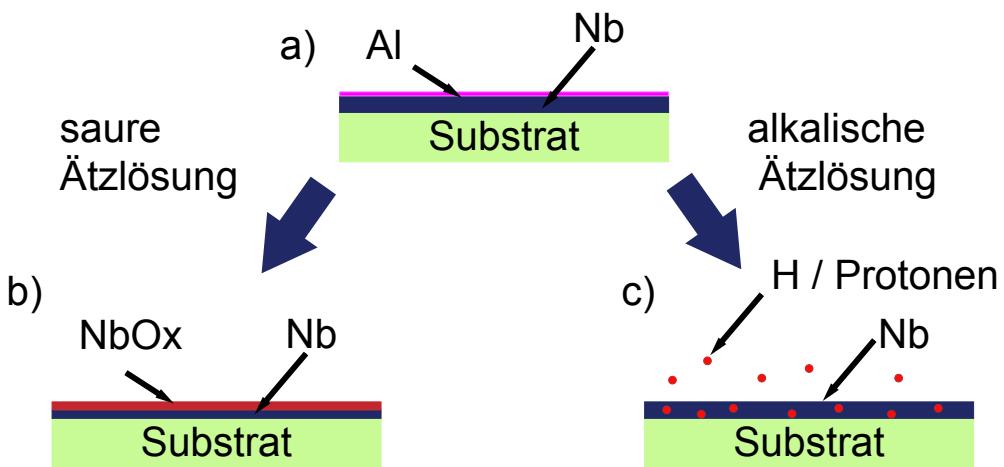


Abb. 5.1: a) Nb/Al-Zweischichtstruktur als Ausgangspunkt für die gezielte Beladung bzw Nicht-Beladung von Niobstrukturen mit Wasserstoff. b) Die beim Ätzen mit der sauren Lösung entstanden NbO_x-Schicht verhindert eine Beladung . c) Nachdem die Aluminium-Schicht mit der alkalischen Lösung geätzt wurde, kann Wasserstoff in das Niob diffundieren.

die aus 8 Teilen H₃PO₄, 1/2 Teil HNO₃, 1/2 Teil CH₃COOH und 1 Teil H₂O zusammengesetzt ist. Der eigentliche Ätzprozess basiert darauf, dass die in der Lösung enthaltene Salpetersäure metallisches Aluminium zu Aluminiumoxid oxidiert, dass dann von der enthaltenen Phosphorsäure geätzt wird. Um die Ätzrate einzustellen und um eine Benetzung des Substrats sowie eine Pufferung der Salpetersäure zu ermöglichen, sind Wasser und Essigsäure in der Lösung enthalten. Ist die gesamte Aluminiumschicht geätzt, so sorgt die Salpetersäure für die Oxidation der darunterliegenden Niobschicht (siehe Abbildung 5.1 b)). Die sich hierbei bildende Nioboxidschicht kann nicht von der Phosphorsäure geätzt werden, sodass der Ätzprozess zum Erliegen kommt. Sowohl die in der wässrigen Lösung enthaltenen Wasserstoffverbindungen als auch Protonen können nicht durch die sich bildende Oxidschicht diffundieren und die Niobschicht ist als unbeladen anzunehmen.

Um nun für eine Beladung mit Wasserstoff zu sorgen, kann die Aluminium-Schicht mit einer alkalischen Lösung geätzt werden. Dafür wird der Fotolack-Entwickler AZ351B der Firma Merck Performance Materials GmbH verwendet. Dieser Entwickler basiert auf gepufferter Natronlauge (NaOH), die Aluminium ätzt, und wird in einem Verhältnis 1:4 mit Wasser verdünnt. Nachdem die Al-Schicht der Zweischichtstruktur geätzt ist, entsteht, im Gegensatz zum Ätzen mit der sauren Lösung, jedoch keine Nioboxidschicht, sodass Wasserstoff, welcher bereits in der Lösung vorhanden ist oder durch Dissoziation von Wasserstoffverbindungen an

der Oberfläche entsteht, in das Niob diffundieren kann (siehe Abbildung 5.1 c)). Nimmt man die Struktur nach dem Ätzen aus der alkalischen Lösung, so bildet sich an der Luft eine dünne Oxidschicht, welche den beim Ätzen in das Niob diffundierten Wasserstoff einschließt.

Um zu verifizieren, dass mit diesen beiden Methoden gezielt Niobstrukturen mit Wasserstoff beladen werden können, wurden mäanderartige Teststrukturen hergestellt und untersucht. Diese Strukturen basieren auf einer Zweischichtstruktur aus 20,5 nm Aluminium und 250 nm Niob sowie einem Lift-Off-Prozess mit Positivlack bei einer Breite von 2,5 μm und 5 μm . Der Wafer wurde in vier gleiche Teile gebrochen und das auf dem Niob liegende Aluminium für jedes der vier Teile auf eine unterschiedliche Weise geätzt (siehe Abbildung 5.2). Dies stellt sicher, dass mögliche herstellungsbedingten Abweichungen, wie sie bei der Untersuchung vier verschiedener Wafer auftreten würden, gering gehalten werden. Die Strukturen auf dem ersten Teil wurde alleine mit der sauren Lösung geätzt. Man erwartet daher für diesen Teil keine Beladung der Teststrukturen mit Wasserstoff. Der zweite Teil wurde nur mit alkalischer Lösung geätzt und es sollte zu einer Beladung der Strukturen mit Wasserstoff kommen. Auf dem dritten Teil wurde zunächst eine Lage Fotolack aufgebracht, welche schachbrettmusterartig jeden zweiten Chip des Quadranten abdeckte, bevor die frei liegenden Chips mit der säurebasierten Lösung geätzt wurden. Im Anschluss wurde der Fotolack im Vergleich zum vorherigen Schritt invertiert aufgetragen, ehe mit alkalischer Lösung geätzt wurde und so die Hälfte der Chips nominell beladen wurden. Beim vierten Teil wurde analog zum dritten verfahren, nur wurde erst mit alkalischer und danach mit säurebasierter Lösung geätzt. Damit sollte untersucht werden, ob die Reihenfolge des Ätzschrittes eine Rolle spielt und ob der Fotolack den Chip vor dem jeweiligen Ätzschritt schützt.

Um zu verifizieren, ob eine Beladung der Niob-Strukturen eingetreten ist, wurde der Raumtemperaturwiderstand $R_{300\text{K}}$ gemessen, welcher durch die Beladung mit Wasserstoff ansteigen sollte [Wat80]. Dabei dienen die Wasserstoffatome als Störstelle, an welcher Leitungselektronen streuen können [Isa80]. Zudem führt Wasserstoff in Niob zur Vergrößerung des Gitters und damit zu einer Änderung der Resistivität [Ale78]. Die Stromtragfähigkeit I_{cr} wird durch die Beladung mit Wasserstoff gesenkt, da die Vergrößerung des Gitters zu einer Verringerung der Kopplung zwischen Phononen und Elektronen sorgt. Ebenfalls wird die Supraleitung durch die Verringerung der Zustandsdichte an der Fermienergie E_F abgeschwächt [Gup84].

Der Widerstand $R_{300\text{K}}$ bei Raumtemperatur wurde mit einer einfachen Zwei-Draht-Messung bestimmt, da Widerstandswerte im k Ω -Bereich zu erwarten waren. Die Stromtragfähigkeit I_{cr} der mäanderförmigen Teststrukturen wurde in ei-

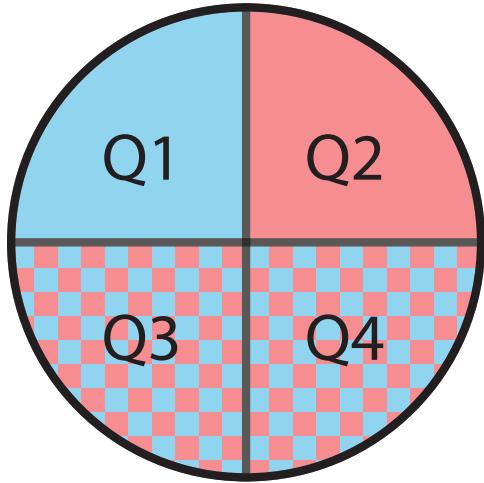


Abb. 5.2: Schematische Skizze des Wafers mit mäanderartigen Teststrukturen, der zur Untersuchung des Beladungsprozesses verwendet wurde. Die Aluminium-Schicht auf dem Quadranten Q1 wurde mit säurebasiert Lösung (blau), die auf Q2 mit alkalischer Lösung (rot) geätzt. Beim Quadrant Q3 und Quadrant Q4 wurde schachbrettmusterartig die Aluminium-Schicht jedes zweiten Chips mit säurebasiert Lösung geätzt, wobei Q3 zuerst mit säurebasiert Lösung und Q4 zuerst mit alkalischer Lösung geätzt wurde.

ner Helium-Transportkanne bei 4,2 K bestimmt. Um dies zu realisieren, wird ein Strom in die Strukturen gespeist und gleichzeitig der deren Widerstand gemessen werden, um unterscheiden zu können, ob der supraleitende oder normaleitende Zustand vorliegt. Dazu wurde der Abtaststrom einer Vier-Draht-Messung so lange erhöht, bis ein von Null verschiedener Widerstand zu verzeichnen und somit der normaleitenden Zustand erreicht war. Die Breiten der Strukturen waren mit $2,5 \mu\text{m}$ und $5 \mu\text{m}$ vergleichsweise schmal gewählt, sodass die Stromtragfähigkeit nicht mehrere hundert mA betrug. Zu hohe Stromstärken würden die Kabel des Dipsticks beschädigen, an welchem die Testchips angebracht waren und in die Helium-Transportkanne geführt wurden.

In Abbildung 5.3 a) und b) sind die Mittelwerte der gemessenen Werte von $R_{300\text{K}}$ sowie deren Fehler für die $5 \mu\text{m}$ und die $2,5 \mu\text{m}$ breiten mäanderförmigen Teststrukturen aufgetragen. Dabei wurde sowohl für die nominell beladenen als auch für nominell unbeladenen Strukturen eine numerische Anpassung mittels einer Konstanten durchgeführt. In beiden Diagrammen ist zu erkennen, dass die nominell beladenen mäanderförmigen Teststrukturen um etwa 30 % höhere Widerstände aufweisen als die unbeladenen, was der Erwartung entspricht. Des Weiteren unterscheiden sich weder die beladenen Teststrukturen der Quadranten Q2, Q3 und Q4, noch die unbeladenen der Quadranten Q1, Q3, Q4. Hieraus kann geschlossen werden, dass die Reihenfolge der Ätzschritte keine Rolle spielt. Eine äquivalente Untersuchung wurde auch für die Stromtragfähigkeit durchgeführt. Dabei wurden in Abbildung 5.3 c) und d) die gemittelte Stromtragfähigkeit I_{cr} und deren Fehler aus den gemessenen Werten aufgetragen. Dabei ist zu erkennen, dass, wie erwartet, die Stromtragfähigkeit I_{cr} für die nominell beladenen mäanderartigen Teststrukturen kleiner ist. Jedoch treten bei der Betrachtung der Stromtrag-

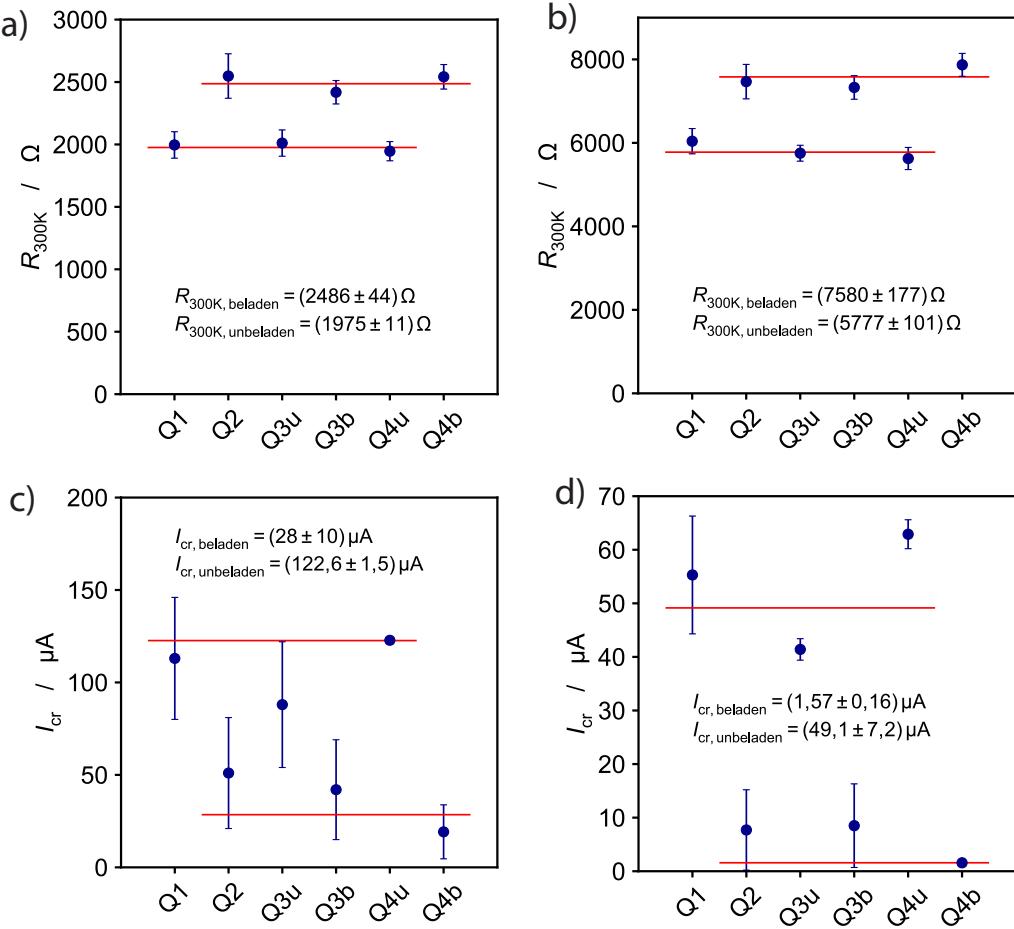


Abb. 5.3: Darstellung der gemittelten Widerstände bei Raumtemperatur R_{300K} der mäanderförmigen Teststrukturen mit der Breite von a) $5 \mu\text{m}$ und von b) $2,5 \mu\text{m}$ sowie der gemittelten Stromtragfähigkeit I_{cr} der Teststrukturen mit der Breite von c) $5 \mu\text{m}$ und von d) $2,5 \mu\text{m}$. Die roten Geraden sind eine numerische Anpassung an die nominal beladenen Teststrukturen (Q2, Q3b, Q4b) oder an die unbeladenen Teststrukturen (Q1, Q3u, Q4u).

fähigkeit größere Abweichungen als bei der Untersuchung der Widerstände bei Raumtemperatur auf. Die Abweichungen könnten damit erklärt werden, dass die Stromtragfähigkeit durch die schmalste Stelle der Teststrukturen bestimmt wird. Der Widerstand bei Raumtemperatur wird jedoch durch einzelne produktionsbedingt dünneren Stellen der Struktur weniger beeinflusst als die Stromtragfähigkeit. Auch kann es an Kanten der Struktur zu lokal höheren Strömen und somit zu frühzeitigem Eintritt in den normalleitenden Zustand kommen.

5.2 Charakterisierung von mit Wasserstoff beladenen SQUIDs

Um den Einfluss von in Niob gespeichertem Wasserstoff auf das niederfrequente magnetische Flussrauschen von dc-SQUIDs zu untersuchen, wurde ein Wafer mit der internen Bezeichnung HDSQH2bw1 hergestellt, der bis auf einen im folgenden näher beschriebenen zusätzlichen Fabrikationsschritt mit dem in Abschnitt 3.4 diskutierten Prozess hergestellt wurde. Um für eine gute Vergleichbarkeit zu sorgen, befanden sich auf den Chips dieser 2 bzw. 4 SQUIDs, von denen jeweils die Hälfte nominell beladen und die andere unbeladen war. Dies wurde umgesetzt, indem bei dem in Abschnitt 3.4 gezeigten Ätzschritt die Aluminiumschicht der Nb/Al-AlO_x/Nb-Dreischichtstruktur bei der Hälfte der Chips mit einer alkalischen Ätzlösung und bei der anderen mit einer säurebasierten Ätzlösung entfernt wurde. Da sich die SQUIDs eines Chips im Rauschverhalten sehr ähnlich verhalten sollten, können mögliche Unterschiede im Rauschen eindeutig auf die Wasserstoffbeladung zurückgeführt werden.

Bereits die Funktionstests der mit alkalischen Lösung geätzten SQUIDs in einer Transportkanne für flüssiges Helium bei 4,2 K zeigten, dass die nominell mit Wasserstoff beladenen SQUIDs eine rein Ohmsche Kennlinie zeigten. Da die kritische Temperatur T_c von mit Wasserstoff beladenen Niobfilmen durch eine Wasserstoffbeladung verringert werden kann und die auf diese Weise beladenen SQUIDs somit potentiell bei 4,2 K nicht supraleitend waren [Jis98], wurden diese SQUIDs auch bei mK-Temperaturen getestet. Aber auch bei diesen Temperaturen zeigten diese SQUIDs nur Ohmsches Verhalten. Da dieses Verhalten der SQUIDs a priori nicht eindeutig auf die Josephson-Kontakte zurückgeführt werden kann und das Verhalten von SQUIDs durch eine Vielzahl an möglichen Fehlern beeinflusst werden kann, wurden Strom-Spannungs-Kennlinien der Josephson-Kontakte dieses Wafer aufgenommen. Dabei gab es sowohl Kontakte, welche mit säurebasierter Lösung geätzt wurden, als auch nominell beladene mit alkalischer Lösung geätzte Kontakte. In Abbildung 5.4 sind die Strom-Spannungs-Kennlinien von quadratischen Josephson-Kontakten der Kantenlänge 5 μm aufgetragen, wobei ein Kontakt mit säurebasierter, der andere mit alkalischer Lösung geätzt wurde. Es ist zu erkennen, dass der kritische Strom des beladenen Kontaktes komplett unterdrückt, keine eindeutige Gap-Spannung und keine Hysterese, wie sie bei einem unterdämpften Josephson-Kontakt auftritt, zu erkennen ist. Anhand der Ohmschen Bereiche lassen sich die normalleitenden Widerstände R_N der beiden Kontakte bestimmen. Der Widerstand des nominell mit Wasserstoff beladenen Kontaktes ist mit $R_N = 269 \Omega$ um 17 % höher als der Widerstand $R_N = 229 \Omega$ des nominell unbeladenen Kontaktes. Dies deckt sich mit Beschreibungen aus der Literatur, dass Nb/Al-AlO_x/Nb Josephson-Kontakte, welche mit Wasserstoff kontaminiert sind, niedrigere kritische Ströme und höhere normalleitende Wider-

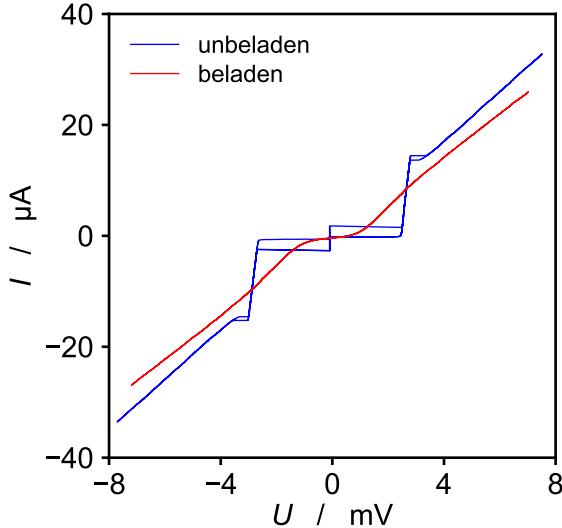


Abb. 5.4: Strom-Spannungs-Kennlinien eines mit alkalischer (rot) und eines mit säurebasiertem Lösung (blau) geätzten Josephson-Kontaktes bei einer Temperatur von 4,2 K.

stände aufweisen [Hin08, Hin10]. In diesen genannten Publikationen wurde ferner angenommen, dass die Austrittsarbeit von Niob und dadurch der Widerstand des Kontaktes durch die Beladung mit Wasserstoff ansteigt. Da der Effekt auf die Supraleitung nach [Hin08, Hin10] eher gering ausfällt, ändert sich V_G nur wenig und der gesunkene kritische Strom würde mit der Ambegaokar-Baratoff-Relation [Amb63]

$$I_c R_N = \frac{\pi V_G}{4} \tanh \left(\frac{e V_G}{4 k_B T} \right) \quad (5.1)$$

auf den Anstieg von R_N zurückzuführen sein. Da der nominell beladene Josephson-Kontakt in Abbildung 5.4 einen komplett unterdrückten kritischen Strom hat, ist dies nicht allein mit dem erhöhten Widerstand zu erklären. Auch ist in 5.4 eine Verringerung der Gap-Spannung zu erkennen, sodass möglicherweise eine stärker Beladung der Kontakte mit Wasserstoff als bei den in [Hin08, Hin10] untersuchten Kontakten eingetreten ist. Es bedarf demnach einer Methode, die Josephson-Kontakte schwächer mit Wasserstoff zu beladen, um die gesehenen Effekte zu unterdrücken. Das Ätzen des Aluminiums mit alkalischer Lösung könnte bei der Fabrikation die Josephson-Kontakte beschädigt und so für das ohmsche Verhalten der SQUIDs gesorgt haben. Um den direkten Kontakt der Josephson-Kontakte mit der alkalischen Lösung während des Beladungsprozesses zu vermeiden, muss eine andere Beladungsmethode verwendet werden.

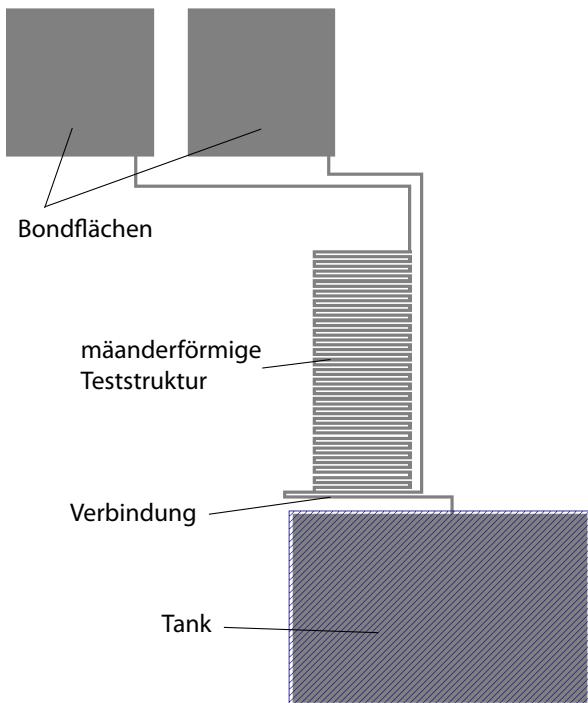


Abb. 5.5: Entwurfzeichnung einer mäanderförmigen Teststruktur mit Tank aus einer Nb/Al-Zweischichtstruktur zur kontrollierten Beladung mit Wasserstoff. Die mäanderförmige Teststruktur und die Bondflächen werden mit einer sauren Lösung geätzt, was zu keiner Wasserstoffbeladung führt, wohingegen der Tank (blau gestrichelt) mit der alkalischen Lösung geätzt wird und so Wasserstoff von der Tankstruktur in die gesamte Struktur diffundieren kann.

5.3 Gezielte Einstellung der Wasserstoffbeladung von Niobstrukturen durch Verwendung einer Tankstruktur

Um den direkten Kontakt der Josephson-Kontakte beim Beladungsprozess mit der alkalischen Ätzlösung zu vermeiden und um die Menge an Wasserstoff, mit der die Strukturen beladen waren, gezielt zu steuern, wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Methode entwickelt, bei der mit Hilfe einer Tankstruktur der Wasserstoff-Gehalt gezielt eingestellt werden kann. Wie bereits in Abschnitt 5.1 gezeigt, lässt sich eine beliebige Niobstruktur, auf welcher sich zunächst eine dünne Aluminiumschicht befindet, durch das Ätzen dieser Schicht mit einer alkalischen Lösung mit Wasserstoff beladen. Ist dabei die gesamte Struktur zunächst mit einer Aluminiumschicht bedeckt, so lässt sich eine maximale Beladung mit Wasserstoff gewährleisten, wobei der Wasserstoff homogen in der Struktur verteilt ist. Schließt man eine solche Struktur an eine weitere Niobstruktur an, so kann der Wasserstoff mit der Zeit in diese diffundieren. Die Diffusionskonstante D von Wasserstoff in Niob bei Raumtemperatur ist durch $D \sim 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ [Fuk85] gegeben. Nach einer gewissen Zeitspanne kann sich nun der Wasserstoff homogen in beiden Strukturen verteilen, wobei der Wasserstoff-Gehalt in diesen Strukturen geringer ist, als in der ursprünglich beladenen Struktur. Um eine solche Beladungsmethode zu untersuchen, wurden die in Abbildung 5.5 schematisch dargestellten Strukturen aus einer Zweischichtstruktur mit 20,5 nm Aluminium auf

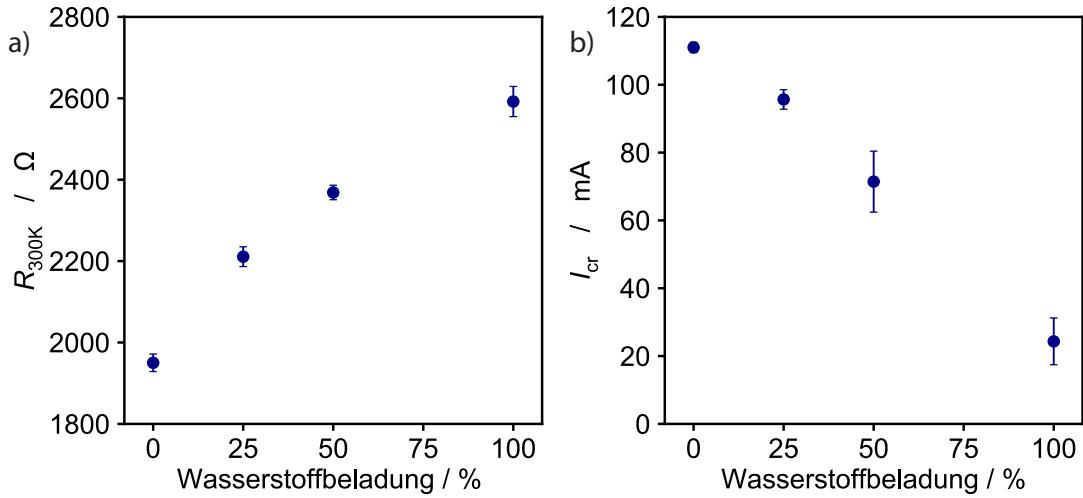


Abb. 5.6: a) Mittelwerte des Widerstand R_{300K} bei Raumtemperatur der mäanderförmigen Strukturen bei 300 K für verschiedene nominelle Wasserstoffbeladung. b) Mittelwerte der Stromtragfähigkeiten I_{cr} der Strukturen bei 4.2 K für verschiedene nominelle Wasserstoffbeladungen. Der angegebene Wert der Wasserstoffbeladung bezieht sich dabei auf die nominell maximal beladenen, nur mit alkalischer Lösung geätzten Teststrukturen.

250 nm Niob durch einen Lift-Off-Prozess hergestellt. Dabei war die Tankstruktur über eine lange Niobverbindung mit einer mäanderförmige Teststruktur verbunden. Die Länge l der Verbindung muss dabei länger sein als der Diffusionsweg d des Wasserstoffs während der Zeit des Beladungsprozesses. Da der Ätzprozess von 20,5 nm mit säurebasiertem Lösung eine Dauer von $t \approx 60$ s besitzt und so der Diffusionsweg $d = \sqrt{Dt} \approx 250 \mu\text{m}$ beträgt, wurde eine Länge der Verbindung von $l = 500 \mu\text{m}$ gewählt. Für den elektrischen Kontakt waren jeweils an beiden Enden der mäanderförmigen Teststruktur eine Bondfläche angebracht, welches durch einen Aluminium-Bonddraht mit einer Leiterplatine verbunden werden kann. Wird die Aluminiumschicht auf den Bondflächen und der mäanderförmigen Struktur mit säurebasiertem Ätzlösung geätzt, sind diese nominell unbeladen. Durch das Ätzen des Aluminiums auf der Tankstruktur mit säurebasiertem Lösung wird dieses beladen. Der Wasserstoff verteilt sich nach dem Ätzprozess homogen in allen Strukturen. Die Beladungsstärke kann durch die Größe der Tankstruktur bestimmt werden. Entspricht die Fläche des Tanks beispielsweise der Fläche der Teststruktur und den beiden Bondflächen, so ist eine Beladungsstärke von 50 % im Vergleich zur initialen maximalen Beladungsstärke des Tanks anzunehmen.

Um experimentell zu untersuchen, ob die entwickelte Beladungsmethode funktio-

niert, wurden eine Vielzahl an mäanderförmige Leitungsstrukturen aus Niob mit einer nominellen Beladungen von 0 %, 25 %, 50 % und 100 % vermessen. Die nominell unbeladenen Strukturen besaßen dabei keine Tanks und wurden ausschließlich mit säurebasierte Lösung, die Strukturen mit nomineller Maximalbeladung nur mit alkalischer Lösung geätzt. Zudem befanden sich an diesen Strukturen keine Tankstrukturen, da diese nur bei einer Teilbeladung benötigt werden und so mehr Platz für mäanderförmige Strukturen auf dem Chip war. Es wurden der Widerstand R_{300K} bei Raumtemperatur und die Stromtragfähigkeit I_{cr} bei 4,2 K für eine Vielzahl an Teststrukturen analog zu Abschnitt 5.1 bestimmt. In Abbildung 5.6 sind die Mittelwerte mit den dazugehörigen Fehlern des Mittelwertes für R_{300K} und I_{cr} für die mäanderförmigen Strukturen mit einer Breite von 5 μm aufgetragen. Dabei ist zu erkennen, dass der Widerstand bei Raumtemperatur R_{300K} mit der Größe der Tanks ansteigt und für den komplett mit alkalischer Lösung geätzten Strukturen maximal ist, was den Erwartungen für einen höheren Wasserstoffinhalt in dem Niob-Mäander entspricht. Die Stromtragfähigkeiten I_{cr} sinken mit ansteigender Tankgröße und deuten ebenfalls auf einen erhöhten Wasserstoffgehalt hin. Es ist demnach möglich, mit einer bestimmten Tankgröße eine gewünschte Beladung zu erreichen.

5.4 dc-SQUIDs mit Tankstruktur zur gezielten Beladung mit Wasserstoff

Im vorherigen Kapitel wurde gezeigt, dass man mithilfe einer einfachen Tankstruktur aus einer Niob-Aluminium-Schicht durch Ätzen des Aluminiums mit alkalischer Ätzlösung für eine Beladung von Niob mit Wasserstoff sorgen kann. Dies ermöglicht nun das Beladen eines SQUID-Washers mit Wasserstoff, ohne dabei in der Nähe der Tunnelkontakte mit der alkalischen Lösung ätzen zu müssen. Bei den in Abschnitt 5.2 gezeigten SQUIDS lässt sich die Aluminiumschicht der Dreilagenstruktur entweder mit säurebasierte oder alkalischer Lösung ätzen, sodass man entweder nominell unbeladene oder nominell beladene SQUIDS erhält. Es ist demnach nicht möglich, ein identisches SQUID im unbeladenen als auch im beladenen Zustand zu vermessen. Mit dem in Abbildung 5.7 gezeigten SQUID, lässt sich das SQUID jedoch sowohl im unbeladenen als auch im beladenen Zustand vermessen. Mögliche Abweichung des Rauschens durch verschiedene Tunnelkontakte und magnetische Verunreinigungen auf den Washern der SQUIDS sind damit eliminiert, was eindeutige Aussagen über den Einfluss von Wasserstoff auf das niederfrequente magnetische Flussrauschen zulässt. Im folgenden wird der dafür genutzte SQUID-Entwurf erklärt.

In Abbildung 5.7 a) ist das dazu verwendete SQUID-Design schematisch gezeigt.

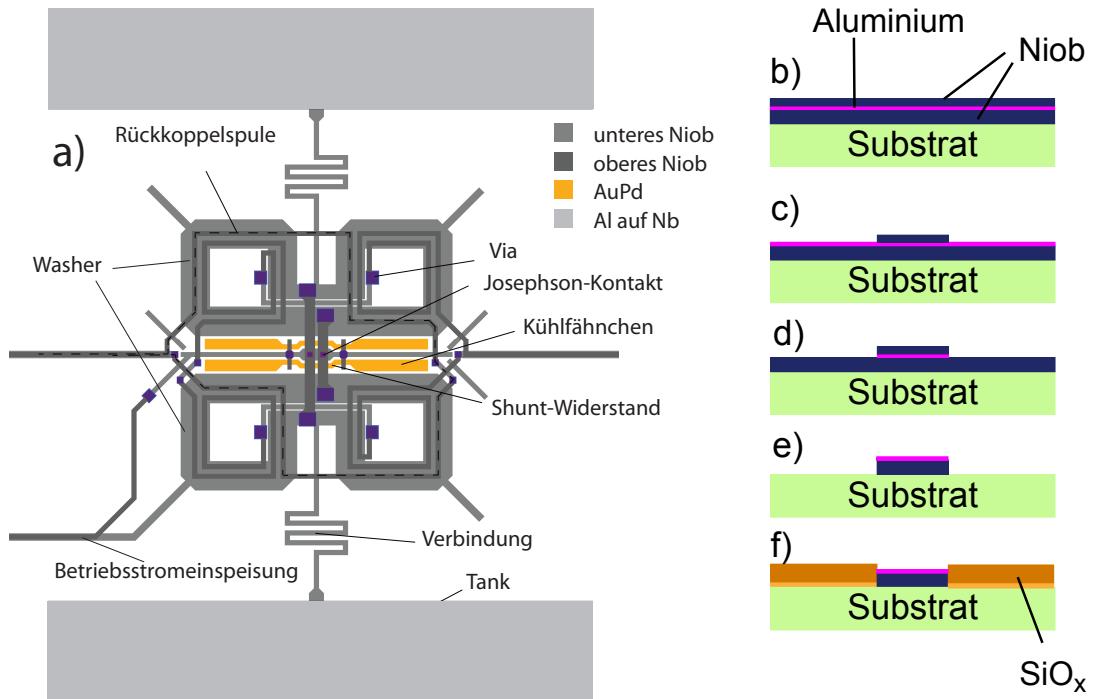


Abb. 5.7: a) Schematische Darstellung des verwendeten SQUID-Entwurfs. An beiden Washern befindet sich eine Niobstruktur mit einer darüber liegenden Aluminiumschicht, welche für eine Beladung von Niob mit Wasserstoff mit alkalischer Lösung geätzt werden kann. **Rechts:** Schematische Darstellung des zur Herstellung der Tankstruktur innerhalb des Standardprozesses. Gezeigt sind verschiedene Zwischenstufen des Prozesses. b) Nach der Deposition der Nb/Al-AlOx/Nb-Drei-Schicht-Struktur, c) nach der Strukturierung der Tankstruktur und der Deckelelektrode der Tunnelkontakte durch einen Trockenätzprozess mit SF₆ d) nach dem Nassätzen der freiliegenden Aluminium-Schicht in einer säurenbasierten Lösung, e) nach dem Entfernen des auf dem Aluminium des Tanks und neben dem Tank befindlichen Niobs durch einen Trockenätzprozess mit SF₆, f) nach der Deposition der isolierenden SiO_x-Lagen.

Dieses ähnelt vom Aufbau her dem in [Kem15] vorgestelltem und charakterisierten SQUID und ist damit gut für die Untersuchung des niederfrequenten magnetischen Flussrauschen in dc-SQUIDs geeignet. Die Washer des SQUIDs sind dabei derart angeordnet, dass sie ein Parallel-Gradiometer zweiter Ordnung darstellen. Die durch sowohl homogene Magnetfelder als auch durch Magnetfelder mit linearem Gradienten induzierten Ströme innerhalb SQUID kompensieren sich demnach. Mit der simulierten Induktivität von $L = 43 \text{ pH}$, den Shunt-Widerständen $R = 1,92 \Omega$ und der Fläche der Josephson-Kontakte von $A = (5,5 \mu\text{m})^2$ erge-

ben sich die Werte $\beta_c = 0,08$ und $\beta_L = 0,38$. Die Washer der SQUIDs liegen jeweils in der unteren Niobschicht und sind mit einer Leiterbahn aus Niob der Länge $l = 420 \mu\text{m}$ mit einer Tankstruktur verbunden. Um für eine Beladung dieser Tanks sorgen zu können, muss sich jeweils eine Aluminiumschicht auf dem Tank befinden. Um dies zu realisieren, wird während des ersten Schrittes des Ätzprozesses der Nb/Al-AlO_x/Nb-Dreischichtstruktur (siehe Abschnitt 3.4) der Tank neben den Deckelektroden der Josephson-Kontakte strukturiert (siehe Abbildung 5.7 c)). Das Aluminium, welches sich unter dem Niob der Tankstruktur befindet, wird so während des Ätzprozesses des Aluminiums nicht entfernt (siehe Abbildung 5.7 d)). Im folgenden Trockenätzprozess der unteren 250 nm dicken Niobschicht wird zusätzlich das auf dem Aluminium liegende 125 nm dicke Niob geätzt (siehe Abbildung 5.7 e)). Das Aluminium zwischen den Nioblagen dient dabei als Ätzstopp. Um nach der Fertigstellung des Wafers noch das Aluminium ätzen und damit die Tanks beladen zu können, muss die isolierende SiO_x-Schicht des Wafers über den Tanks ausgespart sein (siehe Abbildung 5.7 f)). Nachdem die einzelnen Chips, auf denen sich jeweils vier SQUIDs befinden, gesägt sind, lassen sich die SQUIDs zunächst ohne nominelle Beladung vermessen. Danach können die Chips einzeln in alkalische Ätzlösung gelegt und so das freiliegende Aluminium auf den Tanks geätzt werden, sodass es zu einer Wasserstoffbeladung kommt. Dabei wurden drei verschiedene Tankgrößen verwendet, welche für 12,5 %, 25 % und 50 %-Beladungen der SQUID-Washer sorgen. Dies sollte ermöglichen, einen eventuellen Einfluss von in Niob gespeichertem Wasserstoff auf das niederfrequente Flussrauschen zu quantifizieren.

5.5 Experimentelle Ergebnisse

Um den Einfluss von in Niob gespeichertem Wasserstoff auf das niederfrequente magnetische Flussrauschen zu untersuchen, wurden die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten SQUIDs zunächst ohne nominelle Wasserstoffbeladung für Temperaturen im Bereich zwischen 10 mK bis 700 mK mit Hilfe des in Abschnitt 3.1.3 vorgestellten Kreuzkorrelationsaufbaus charakterisiert. Aus den Rauschspektren wurde die spektrale Leistungsdichte $\sqrt{S_{1/f}}(1 \text{ Hz})$ und der Rauschexponent α durch Anpassung von Gleichung 2.18 an die gemessenen Spektren bestimmt.

In Abbildung 5.8 a) ist die spektrale Leistungsdichte $\sqrt{S_{1/f}}(1 \text{ Hz})$ für das SQUID des Chips HDSQ15w1 4A04 SQ1 im nominell unbeladenen Zustand aufgetragen. Diese fällt erwartungsgemäß für höhere Temperaturen ab. In Abbildung 5.8 b) ist die angepasste spektrale Leistungsdichte $\sqrt{S_{1/f}}$, welche durch die Anpassung der Gleichung 2.18 an die gemessenen Rauschspektren gegeben ist, aufgetragen. Dabei ist zu erkennen, dass sie für Temperaturen von 10 mK bis 400 mK um eine

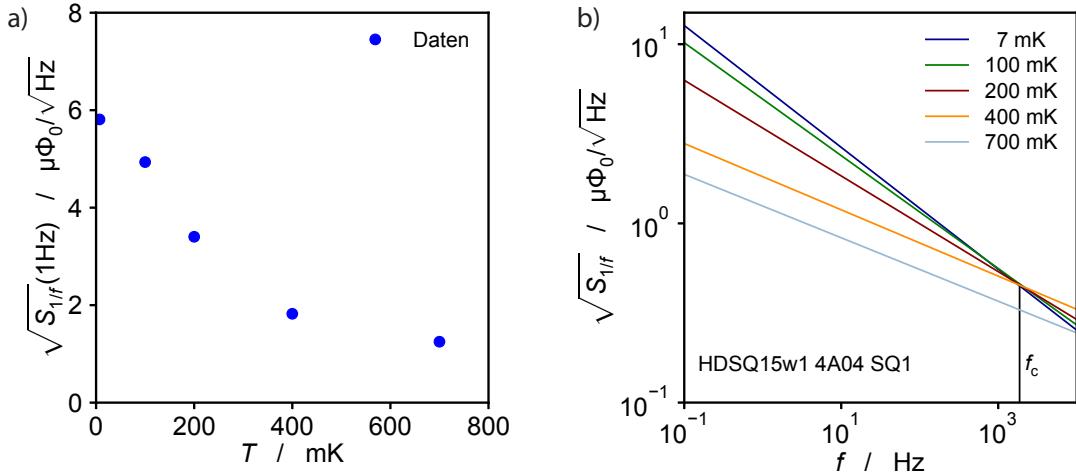


Abb. 5.8: a) Die spektrale Leistungsdichte $\sqrt{S_{1/f}}(1 \text{ Hz})$ in Abhängigkeit von der Temperatur T für das SQUID des Chips HDSQ15w1 4A04 SQ1. b) Die aus der Anpassung der Gleichung 2.18 an das gemessene Rauschspektrum erhaltene spektrale Leistungsdichte $\sqrt{S_{1/f}}(f)$ für Temperaturen im Bereich zwischen 10 bis 700 mK. Alle Kurven, bis auf die bei 700 mK gemessene, schneiden sich bei einer Frequenz von $f \approx 1,7 \text{ kHz}$.

Frequenz $f_c \approx 1,7 \text{ kHz}$ pivotieren. Ein analoges Verhalten wurde bei allen der sechs untersuchten SQUIDS beobachtet. In Abbildung 5.9 a) ist die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ für die sechs im Rahmen dieser Arbeit untersuchten SQUIDS gegen den Rauschexponenten α aufgetragen. An die Datenpunkte für Temperaturen zwischen 10 mK und 400 mK wurde die Gleichung 2.22 angepasst und eine Pivotierfrequenz von $f_c = (1,6 \pm 1,1) \text{ kHz}$ bestimmt, welche mit der Pivotierfrequenz $f_c \approx 1,7 \text{ kHz}$ des SQUIDS des Chips HDSQ15w1 4A04 in Abbildung 5.8 übereinstimmt. Die Amplitude der Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ variiert zwischen 10 mK und 700 mK dabei über mehr als eine Größenordnung. Um dieses Verhalten einordnen zu können, ist in Abbildung 5.9 b) die Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ über den Rauschexponenten α für die noch unbeladenen SQUIDS des Wafers HDSQ15w1 (rot) gegen die in [Kem16] präsentierten Daten (blau) aufgetragen. In [Kem16] wurde gezeigt, dass sich SQUIDS in einem $\epsilon - \alpha$ -Diagramm in bestimmte Gruppen aufteilen lassen, welche nach Gleichung 2.22 die selbe Pivotierfrequenz f_c aufweisen. Betrachtet man die Messergebnisse der nominell unbeladenen SQUIDS des Wafers HDSQ15w1, fällt auf, dass die untersuchten SQUIDS eine eigene Gruppe S5 bilden, welche eine höhere Pivotierfrequenz als andere Gruppen und eine vergleichsweise hohe Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ aufweist. Solch hohes niederfrequentes Flussrauschen trat bisweilen nur auf, wenn eine der Materiallagen des SQUIDS mit magnetischen Verunreinigungen kontaminiert war.

Um dies zu untersuchen, wurde eine Magnetisierungsmessung des SiO_x , welches

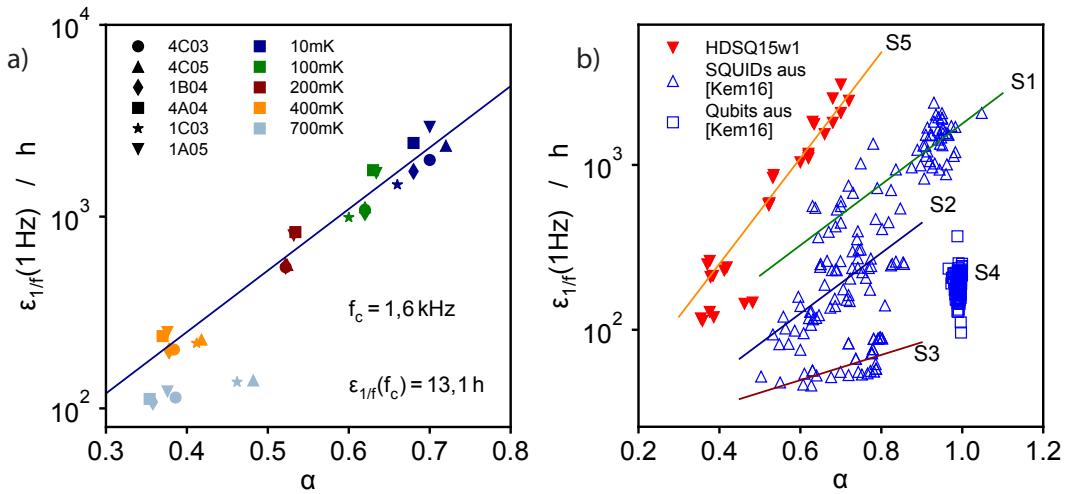


Abb. 5.9: a) Die Amplitude der Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ aufgetragen über dem Rauschexponenten α für Temperaturen im Bereich zwischen 10 mK und 700 mK der nominell unbeladenen SQUIDs. Der Farbverlauf der Temperatur ist dabei beispielhaft für das SQUID HDSQ15w1 4A04 SQ1 aufgezeigt. Die blaue Linie zeigt die numerische Anpassung von Gleichung 2.22 an die Daten im Temperaturbereich von 10 mK bis 400 mK. **Rechts:** Amplitude der Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ aufgetragen über dem Rauschexponenten α für die nominell unbeladenen SQUIDs (rot) zusammen mit den in [Kem16] gezeigten Daten (blau) für Temperaturen unter 1 K mit den numerischen Anpassungen an jede identifizierbare Gruppe.

sich auch auf dem Wafer HDSQ15w1 befand, vorgenommen. Als Probe wurde eine Magnetisierungsfolie aus einer Au-SiO_x-Au-Dreischicht-Lage hergestellt. Dabei muss sich das 300 nm dicke SiO_x zwischen zwei 500 nm dicken Gold-Schichten befinden, da reines SiO_x ein Glas darstellt und sich demnach keine Folie für das Magnetometer vorbereiten lässt. Die Magnetisierung dieser Folie wurde im Magnetometer MPMS XL der Firma Quantum Design¹ bei einer magnetischen Feldstärke von $H = 1 \text{ T}/\mu_0$ von 2 K bis 300 K gemessen. In Abbildung 5.10 a) ist die Magnetisierung dieser SiO_x-Folie gegen die inverse Temperatur T^{-1} aufgetragen. Dabei zeigt sich, dass sich die Magnetisierung um einen Wert von $\Delta M = 737 \text{ A/m}$ über den Temperaturbereich von 2 K bis 300 K ändert. Die Änderung der Magnetisierung dient dabei als Maß der magnetischen Verunreinigungen. Als Vergleich wurde eine Messung herangezogen, welche einige Monate zurück lag und in Abbildung 5.10 b) zu sehen ist. Diese weist im Vergleich eine Änderung der Magnetisierung von $\Delta M = 126 \text{ A/m}$ auf, was um einen Faktor 6 kleiner ist als die Messung in Abbildung 5.10 a), und so dafür spricht, dass es bei der SiO_x-Lage

¹Quantum Design Europe, Im Tiefen See 58, 64293 Darmstadt

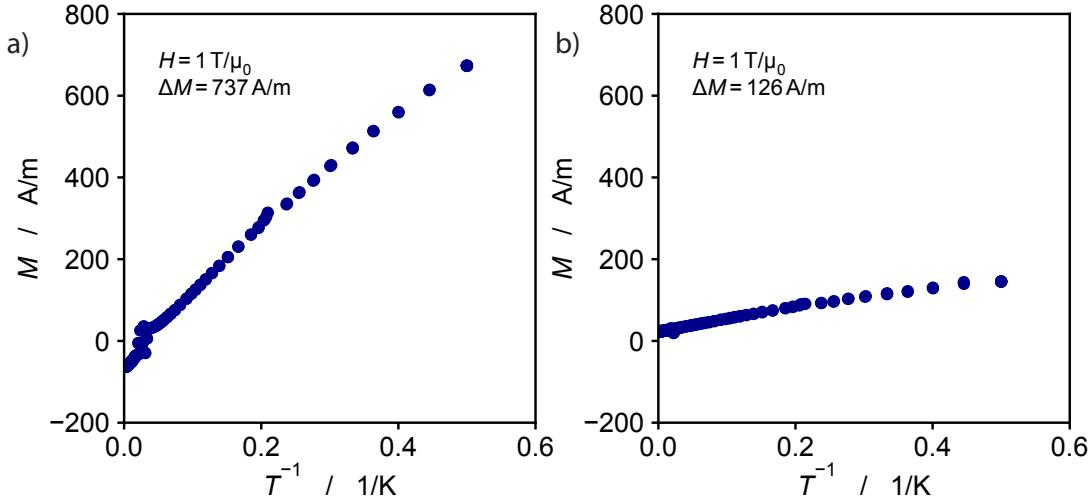


Abb. 5.10: Die Magnetisierung von Au-SiO_x-Au-Folien bei $H = 1 \text{ T}/\mu_0$ im Temperaturbereich von 2 K bis 300 K aufgetragen über die inverse Temperatur T^{-1} . Dabei ist in a) das SiO_x deponiert worden, welches sich auch auf dem Wafer HDSQ15w1 befand. In b) ist eine ältere Messung aufgezeigt, welche deutlich weniger magnetische Verunreinigungen aufweist. Dies könnte das erhöhte niederfrequente magnetische Flussrauschen erklären.

des Wafers HDSQ15w1 zu magnetischen Verunreinigungen gekommen ist. Wie in [FS20] gezeigt wird, gibt es einen direkten Zusammenhang zwischen magnetischen Verunreinigungen der SiO_x-Lagen und dem niederfrequenten magnetischen Flussrauschen von SQUIDs, welches auch das erhöhte Rauschen der SQUIDs von Wafer HDSQ15w1 erklären könnte.

Um die SQUIDs im Anschluss an die Messung nominell mit Wasserstoff zu beladen, wurden die Mikrochips in die alkalische Ätzlösung (vergleiche Abschnitt 5.1) gelegt. Es stellte sich heraus, dass die 20 nm Aluminium, die sich noch auf dem Niobtank befanden, nach einer Zeit von 55 s komplett entfernt waren und es so nominell zu einer Beladung mit Wasserstoff kommen konnte. In Abbildung 5.11 a) sind die Strom-Spannungs-Kennlinien des SQUIDs HDSQ15w1 4C03 für ganzzählige $\Phi_{\text{ext}} = n\Phi_0$ und für halbzählige $\Phi_{\text{ext}} = (n + 1/2)\Phi_0$ magnetische Flüsse vor und nach der Beladung aufgetragen. Die Kennlinie des nominell beladenen SQUIDs wurde dabei zwei Wochen nach der Beladung gemessen. Dabei ist zu erkennen, dass sich die Strom-Spannungs-Kennlinie mit der Wasserstoffbeladung deutlich verändert hat. Neben einem deutlichen Anstieg der Spannungsantwort durch einen erhöhten Wert des Normalwiderstandes, haben sich auch die idealen Betriebsströme $I_{\text{b},\text{max}}$ verringert.

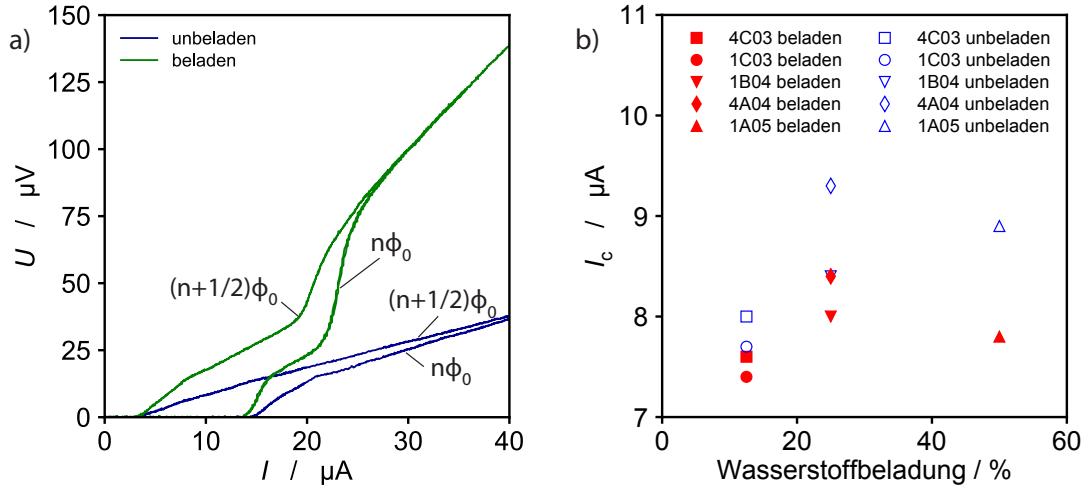


Abb. 5.11: a) Die Strom-Spannungs-Kennlinie des SQUID HDSQ15w1 4C03 bei einer Temperatur von 4,2 K vor (blau) und zwei Wochen nach der Beladung (grün) für ganzzahlige und halbzahlig externe Flüsse. b) Die kritischen Ströme I_c der Josephson-Kontakte vor und nach der Beladung mit Wasserstoff für die gemessenen SQUIDs als Funktion der nominellen Beladungsstärke. Diese wurden mit Gleichung 5.2 aus den idealen Betriebsströmen $I_{b,\max}$ der SQUIDs bestimmt.

Um zu überprüfen, ob es bei allen charakterisierten SQUIDS zu einer Beladung gekommen ist, wurde der ideale Betriebsstrom $I_{b,\max}$ vor und nach der Beladung bestimmt. Der kritische Strom I_c einer der Josephson-Kontakte ist durch den Ausdruck

$$I_c = \frac{I_{b,\max}}{2} + \frac{k_B T}{\Phi_0} \left(1 + \sqrt{1 + \frac{I_{b,\max}}{k_B T / \Phi_0}} \right) \quad (5.2)$$

gegeben [Dru96]. In Abbildung 5.11 b) sind die Werte von I_c , welche jeweils vor und zwei Wochen nach der Beladung bestimmt wurden, für die zuvor im Kryostat untersuchten SQUIDS mit der dazugehörigen vorgesehenen Beladungsstärke dargestellt. Dabei ist zu erkennen, dass die kritischen Ströme I_c der Tunnelkontakte nach der Beladung niedrigere Werte aufweisen, was mit den Beobachtungen aus [Hin08, Hin10] übereinstimmt. Der Unterschied zwischen den Werten vor und nach der Beladung steigt mit der Größe der Tankstruktur an und entspricht ebenfalls den Erwartungen.

Das niederfrequente magnetische Flussrauschen der SQUIDS der Chips 1C03, 4A04 und 1A05 wurde analog zum nominell unbeladenen Zustand gemessen und ausgewertet. In Abbildung 5.12 a) bis c) sind die spektrale Leistungsdichten $\sqrt{S_{1/f}}(1 \text{ Hz})$ für diese SQUIDS über die Temperatur aufgetragen. Dabei fällt auf, dass $\sqrt{S_{1/f}}(1 \text{ Hz})$ für die SQUIDS auf den Chips 1C03 und 4A04 bei Temperatu-

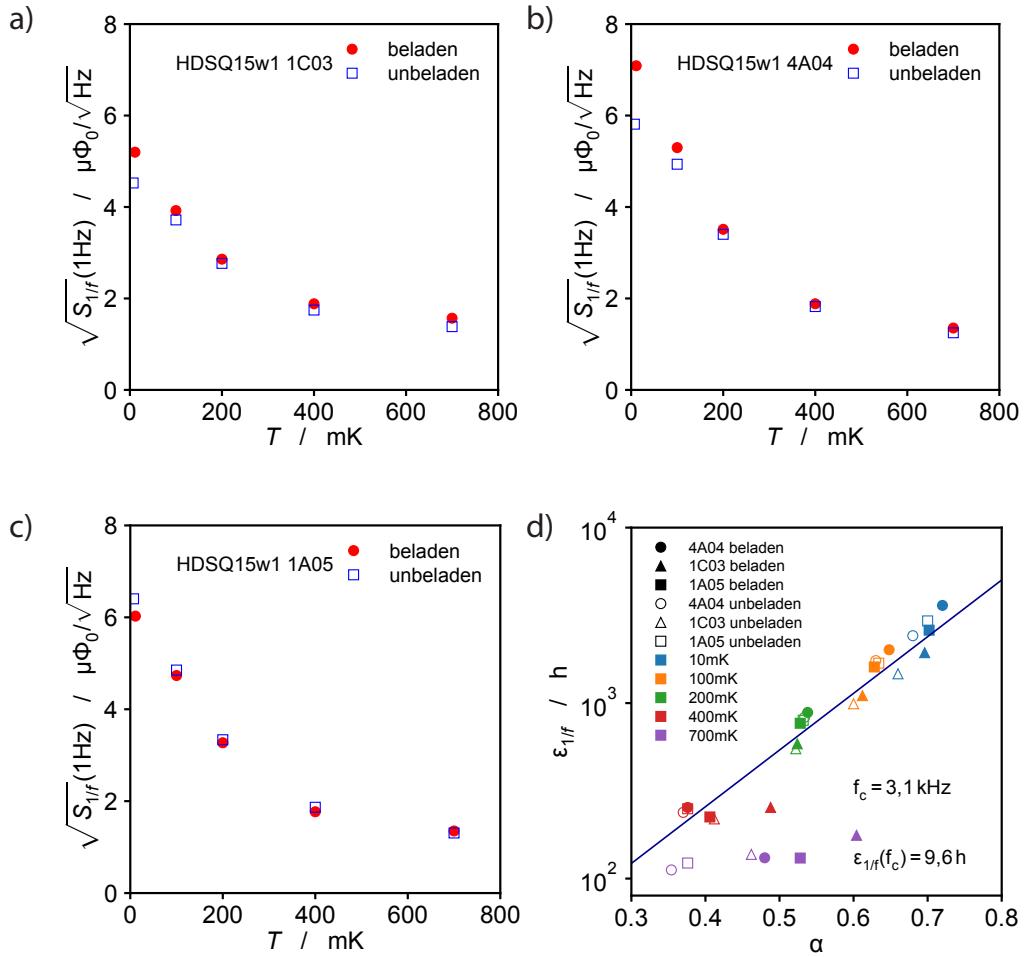


Abb. 5.12: Die spektrale Leistungsdichte $\sqrt{S_{1/f}(1\text{Hz})}$ vor und nach der Beladung mit Wasserstoff für die SQUIDs a) 1C03 (12,5 %), b) 4A04 (25 %) und c) 1A05 (50 %) in Abhängigkeit der Temperatur. Die Werte in Klammern geben die nominelle Beladungsstärke des Chips an. d) Energiesensitivität $\epsilon_{1/f}(1\text{Hz})$ bei 1 Hz als Funktion des Rauschexponenten α für die untersuchten SQUIDs vor und nach der Beladung mit Wasserstoff. Der Farbverlauf der Temperatur ist dabei beispielhaft für das SQUID HDSQ15w1 1A05 SQ1 im nominell beladenen Zustand aufgezeigt.

ren von $T = 10 \text{ mK}$ und $T = 100 \text{ mK}$ nach der Beladung einen signifikant höheren Wert aufweisen als ohne nominelle Beladung. Die Differenz der Werte ist dabei für das SQUID 4A04, welches eine nominelle Beladung von 25 % aufweist, ein wenig höher als bei Chip 1C03 mit einer nominellen Beladung von 12,5 %. Das SQUID 1A05 weist jedoch trotz einer nominellen Beladung von 50 % kein höheres Rauschen auf als vor der Beladung. In Abbildung 5.12 d) sind die Energiesensi-

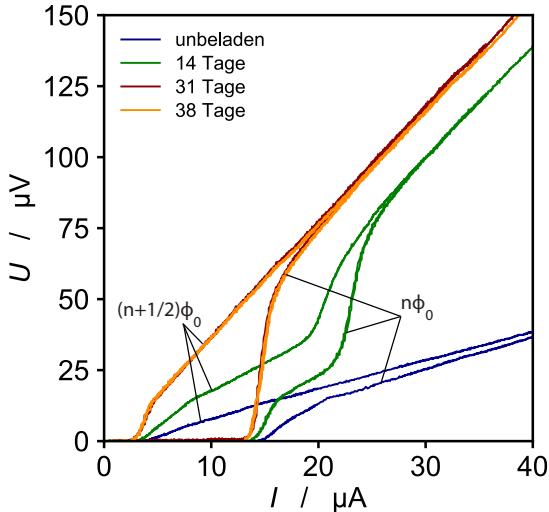


Abb. 5.13: Die Strom-Spannungs-Kennlinien des SQUIDs HDSQ15w1 4C03 für ganzzahlige und halbzahlig externe magnetische Flüsse vor der Beladung und 14, 31 und 38 Tage nach der Beladung bei einer Temperatur von 4,2 K.

tivitäten $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ für diese drei SQUIDs vor und nach der Beladung über den Rauschexponenten aufgetragen. Dabei ist zu erkennen, dass sich die Datenpunkte bei 10 mK und 100 mK für die zwei SQUIDs, welche nach der Beladung höheres Rauschen zeigen, leicht zu höheren Werten von $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ und α verschieben. Die Werte des Rauschexponenten α bei 700 mK haben sich bei allen drei SQUIDs nach der Beladung zu höheren Werten verschoben. Zusätzlich wurde durch die Anpassung der Gleichung 2.22 an die Messwerte der nominell beladenen SQUIDs eine Pivotierfrequenz von $f_c = (3,1 \pm 3,3) \text{ kHz}$ bestimmt. Diese stimmen innerhalb des Fehlerbereiches mit der Frequenz der unbeladenen SQUIDs $f_c = (1,6 \pm 1,1) \text{ kHz}$ überein, was auch in Abbildung 5.12 d) zu erkennen ist.

Es wurde bereits experimentell nachgewiesen, dass Wasserstoff in supraleitenden Bauteilen zu erhöhtem Rauschen führen kann. In [dG18] wurde beispielsweise ein deutlich erhöhtes niederfrequentes Rauschen von NbN-Resonatoren aufgrund von adsorbiertem Wasserstoff nachgewiesen. Das erhöhte niederfrequente magnetische Flussrauschen der nominell beladenen SQUIDs bei 10 mK und 100 mK könnte demnach auch auf den im Niob absorbierten Wasserstoff zurückgeführt werden. Da es, wie bereits erwähnt, zu möglichen magnetischen Verunreinigungen in der isolierenden SiO_x -Lage und damit zu hohem intrinsischen Flussrauschen der SQUIDs gekommen ist, ist eine Detektierung von kleinen zusätzlichen Rauschbeiträgen aufgrund des Wasserstoffs jedoch erschwert.

Zusätzlich wurde beobachtet, dass die Strom-Spannungs-Kennlinie von mit Wasserstoff beladenen SQUIDS sich mit der Zeit ändert. In Abbildung 5.13 sind die bei einer Temperatur von $T = 4,2 \text{ mK}$ gemessenen Strom-Spannungs-Kennlinien des SQUIDs HDSQ15w1 4C03 vor und jeweils 14, 31 und 38 Tage nach der Beladung mit Wasserstoff aufgetragen. Aus den Strom-Spannungs-Kennlinien wurden mit Gleichung 5.2 der kritische Strom I_c der Tunnelkontakte und aus dem linearen Be-

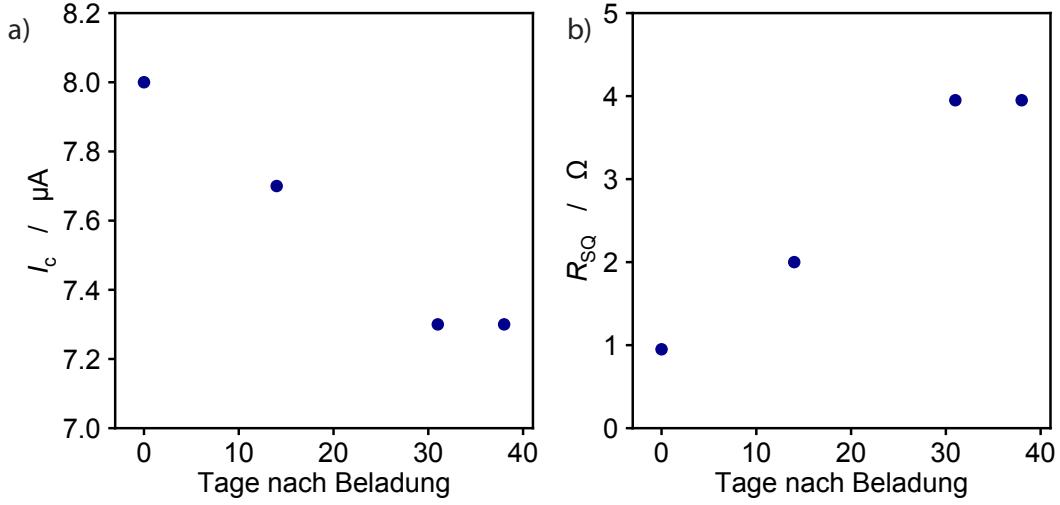


Abb. 5.14: a) Die kritischen Ströme I_c der Josephson-Kontakte und b) der Widerstand R_{SQ} des normalleitenden Bereichs aus der bei einer Temperatur von $T = 4,2 \text{ mK}$ aufgenommenen Strom-Spannungs-Kennlinie für unterschiedliche Zeitpunkte nach der Beladung.

reich der normalleitende Widerstand R_{SQ} bestimmt. Diese ermittelten kritischen Ströme I_c sind in Abbildung 5.14 a) und die ermittelten normalleitenden Widerstände R_{SQ} in Abbildung 5.14 b) als Funktion der Zeit nach der Beladung aufgetragen. Der Wert für null Tage nach der Beladung entspricht dabei dem nominell unbeladenen Zustand des SQUIDs. Dabei ist zu erkennen, dass der kritische Strom I_c der Tunnelkontakte nach der Beladung um etwa 10 % kleiner wurde, was nach [Hin08, Hin10] für eine Kontamination der Josephson-Kontakte mit Wasserstoff spricht. Der deutliche zeitliche Anstieg des Widerstands R_{SQ} des normalleitenden Bereichs der Kennlinie könnte auf einen deutlich erhöhten Widerstand des AuPd-Shunt-Widerstand zurückgeführt werden. Es ist bekannt, dass sowohl Palladium als auch AuPd große Mengen Wasserstoff aufnehmen können [Gra69, Sie29] und dass die Resistivität von Palladium und AuPd durch die Aufnahme von Wasserstoff erhöht werden kann [Ott69, Bab90]. Die zeitliche Änderung der Werte für R_{SQ} könnte damit erklärt werden, dass sich nach 31 Tagen mehr Wasserstoff in den AuPd-Shunt-Widerständen der Josephson-Kontakte befindet als nach 14 Tagen. Unter der Annahme, dass der Wasserstoff in einer Zeit t eine Strecke von $l = \sqrt{Dt}$ zurücklegt, sollte unter normalen Umständen bereits nach einer Minute Wasserstoff vom Tank in den Washer des SQUIDs diffundieren. Für eine detaillierte Analyse der Diffusion des Wasserstoffs durch das Niob wäre Kenntnis der genauen Wasserstoffkonzentration $c_{\text{H},\text{Nb}}$ von Nöten. Diese konnte im Rahmen dieser Arbeit allerdings nicht bestimmt werden. Daher kann nicht genau vorherge-

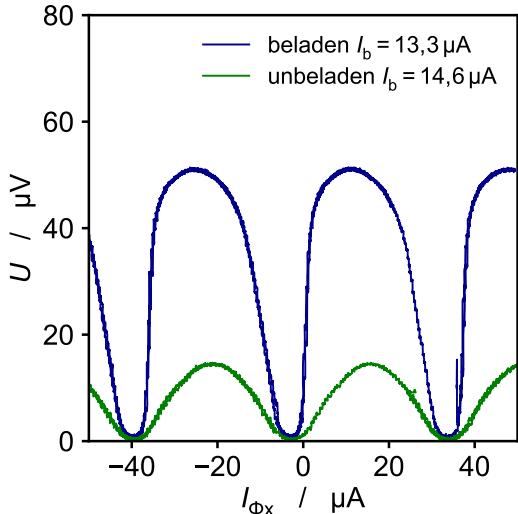


Abb. 5.15: Fluss-Spannungs-Kennlinie des SQUIDS HDSQ15w1 4C03 bei 4,2 K vor und 31 Tage nach der Beladung mit Wasserstoff.

sagt werden, nach welcher Zeitspanne der Wasserstoff homogen in der Niobschicht verteilt ist. Eine Zeitspanne von mehreren Wochen erscheint allerdings sehr unwahrscheinlich, weil das SQUID die gesamte Dauer über bei Raumtemperatur gelagert wurde. Eine alternative Erklärung findet sich in der komplexen Substruktur des SQUIDs, bei der mehrere Metalllagen miteinander verbunden sind. So befindet sich zwischen den Washern und den Josephson-Kontakten ein Via, welches die obere und die untere Nioblage kontaktiert. Naiv kann zwar angenommen werden, dass es sich dabei um einen idealen Übergang der zwei Nioblagen handelt, jedoch ist nicht auszuschließen, dass sich auf der unteren Nioblage eine dünne NbO_x -Schicht oder eine andere als Diffusionssperre agierende Schicht befindet. Hinweise darauf sind unter anderem in [Kra20] zu finden. Des Weiteren könnte das Diffusionsverhalten des Wasserstoffs in der Umgebung der Josephson-Kontakte eine wichtige Rolle für die zeitliche Abhängigkeit liefern. Erreicht der Wasserstoff in diesem Szenario die Deckelektrode der Tunnelkontakte, so kann er nicht in die Bodenelektrode diffundieren, da die höchste Wasserstoffkonzentration in Aluminium $c_{\text{H},\text{Al}} \sim (10^{-11} - 10^{-17})\%$ [Scu00], die Diffusionskonstante bei Raumtemperatur $D_{\text{H},\text{Al}} \sim 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ beträgt [You98] und Diffusion somit deutlich kleiner ist als in Niob. Jedoch könnte der Wasserstoff durch die Shunt-Widerstände indirekt an die Bodenelektrode der Josephson-Kontakte gelangen. Dies könnte erklären, dass sich die Strom-Spannungs-Kennlinie erst ab einer Zeit von ungefähr 30 Tagen nicht mehr ändert und ein Gleichgewichtszustand erreicht ist.

Zusätzlich zu den zuvor diskutierten Änderungen der Strom-Spannungs-Kennlinien wurde zudem eine Veränderung der Fluss-Spannungs-Kennlinie festgestellt. In Abbildung 5.15 ist die Fluss-Spannungs-Kennlinie vor und 31 Tage nach der Beladung aufgetragen. Wie bereits zuvor diskutiert, steigt der Widerstandswert der

Shunt-Widerstände und demnach auch der Spannungshub der Fluss-Spannungs-Kennlinie an. Jedoch ist auch zu erkennen, dass die Fluss-Spannungs-Kennlinie vor der Beladung symmetrisch und nach der Beladung asymmetrisch ist. Eine asymmetrische Kennlinie eines dc-SQUIDs ist auf eine Asymmetrie der kritischen Ströme I_c und der normalleitenden Widerstände R_N der zwei Josephson-Tunnelkontakte zurückzuführen [Tes77, Mul01]. Dies ist ein Indiz dafür, dass sich die Deckelektroden der beiden Tunnelkontakte und die beiden Shunt-Widerstände aus AuPd unterschiedlich stark mit Wasserstoff beladen haben könnten. Ein möglicher Grund dafür könnte die unterschiedliche Weglänge von der Tankstruktur zu den beiden Tunnelkontakten sein. In Abbildung 5.7 ist zu erkennen, dass die Vias auf der linken Seite der schematischen Darstellung direkt neben der Verbindung des Tanks liegen und somit der linke Josephson-Kontakt früher mit Wasserstoff beladen sein könnte. Um den rechten Kontakt zu erreichen, muss zunächst der SQUID-Washer durchdrungen werden. Dies könnte eine mögliche Asymmetrie der Tunnelkontakte und damit der Fluss-Spannungs-Kennlinie erklären.

Die präsentierten Rauschmessungen liefern das erste Indiz dafür, dass in Niob gespeicherter Wasserstoff in der Tat zu erhöhtem niederfrequenten magnetischen Flussrauschen in SQUIDs führt. Um jedoch eindeutige Aussagen treffen zu können, müssen in Zukunft noch einige Aspekte der Beladung des Niob der SQUID-Washer optimiert werden. Beispielweise ist von Interesse, den genauen Wasserstoffgehalt innerhalb einer nominell beladenen Niobstruktur experimentell bestimmen zu können. Da gezeigt wurde, dass sich die Kennlinien der nominell beladenen SQUIDs mit der Zeit änderten, könnte sich auch das niederfrequente Flussrauschen der bereits untersuchten SQUIDs geändert haben, da es beispielsweise zu einer homogeneren Verteilung des Wasserstoffs innerhalb des SQUIDs gekommen ist. Eine erneute Untersuchung dieser SQUIDs wäre demnach sinnvoll. Da auch gezeigt wurde, dass die SiO_x-Lage des Wafers HDSQ15w1 mit magnetischen Verunreinigungen kontaminiert ist und so das erhöhte intrinsische Flussrauschen der SQUIDs erklärt werden kann, sollte in Zukunft eine analoge Untersuchung an SQUIDs durchgeführt werden, deren SiO_x-Lage weniger Verunreinigungen aufweist. Dies sollte es ermöglichen, den Einfluss von Wasserstoff auf das niederfrequente magnetische Flussrauschen in SQUIDs eindeutiger zu bestimmen. Auch das Beladen des Niobs von SQUID-Arrays aus Niob und der Vergleich mit den Daten aus [Kem16] ist von großem Interesse. Ebenfalls sollte der Einfluss von Wasserstoff auf das Verhalten auf Josephson-Kontakten weiter untersucht werden. Dazu könnten beispielsweise ungeshundete Kontakte untersucht werden, bei welchen jeweils die Niobeletroden mit Wasserstoff beladen werden können.

6. Zusammenfassung

Niederfrequentes $1/f$ -Rauschen tritt in vielen Bereichen der Natur und unseres Alltags auf. Im Bereich der supraleitenden Elektronik etwa beeinflusst niederfrequentes magnetisches Flussrauschen sowohl die Eigenschaften von supraleitenden Qubits als auch die Leistungsfähigkeit von supraleitenden Quanteninterferenzdetektoren (SQUIDs). Neben wohlverstandenen Rauschbeiträgen, die etwa durch Fluktuationen von magnetischen Hintergrundfeldern oder von kritischen Strömen verursacht werden können, tritt bei flusssensitiven Josephson-Kontakt-basierten Bauelementen ein weiterer niederfrequenter Rauschanteil auf, der auch knapp 40 Jahre nach seiner ersten Beobachtung die Wissenschaftler noch immer vor große Rätsel stellt. Aktuell werden unter anderem Kernspins sowie auf der Oberfläche adsorbiert bzw. im Vollmaterial absorbiert Wasserstoff als mögliche Ursachen diskutiert.

Um beide Aspekte zu untersuchen, wurden im Rahmen dieser Arbeit Rauschuntersuchungen an dc-SQUIDs durchgeführt, die entweder gezielt mit Wasserstoff beladen oder die aus verschiedenen Materialien hergestellt wurden. Um dies zu ermöglichen, wurden zwei experimentelle Verfahren entwickelt, die es einerseits erlauben, auf der Grundlage von Nb/Al-AlO_x/Nb-Josephson-Tunnelkontakte SQUIDs herzustellen, bei denen die SQUID-Schleife aus verschiedenen Materialien bestehen, und die anderseits die gezielte Beladung der SQUID-Schleife mit Wasserstoff über eine Tankstruktur erlauben.

Für die Untersuchung einer potentiellen Materialabhängigkeit, die mit dem Einfluss von Kernspins einhergeht, wurden im Rahmen dieser Arbeit SQUIDs mit einer SQUID-Schleife aus Aluminium, welches einen Kernspin von $I = 5/2$, aufweist, sowie aus Niob, das einen Kernspin von $I = 9/2$ besitzt, hergestellt und hinsichtlich des niederfrequenten magnetischen Flussbeitrags miteinander verglichen. Insgesamt wurden 12 verschiedene 16-SQUID-Serienarrays mit SQUID-Schleifen aus Aluminium untersucht und mit Messungen von SQUIDs mit SQUID-Schleifen aus Niob verglichen. Bei den untersuchten SQUID-Arrays wurde gezielt die Kopplung der SQUID-Schleife mit der für den Betrieb notwendigen Rückkoppelpulse variiert, um den Einfluss äußerer Rauschbeiträge abschätzen zu können. In beiden Fällen liegen die Werte der Amplituden $\epsilon_{1/f}(1 \text{ Hz})$ der Energiesensitivität des niederfrequenten Flussrauschens unterhalb der Werte der zum Vergleich herangezogenen SQUIDs aus Niob. Weiterhin wurden baugleiche einfache Magnetometer-SQUIDs mit einer SQUID-Schleife aus Aluminium bzw. aus Niob mit Hilfe einer Kreuzkorrelationsmessmethode untersucht. Die ca. 20 % niedrigere Rauschamplitude

tude bei 1 Hz des $1/f$ -Rauschen ist durch die Baugleichheit eindeutig auf das Material der SQUID-Schleife zurückzuführen.

Für eine weitergehende Untersuchung der Materialabhängigkeit des niederfrequenten Flussrauschen ist für die Zukunft geplant, mit der entwickelten Technik SQUIDs mit SQUID-Schleifen aus Materialien mit anderer Kernspin-Quantenzahl herzustellen. So besitzen beispielsweise die häufigsten Isotope von Zink keinen Kernspin und in der Folge müsste das niederfrequente magnetische Flussrauschen von dc-SQUIDs mit SQUID-Schleifen aus Zink noch niedriger als das von SQUIDs mit SQUID-Schleifen aus Aluminium ausfallen. Sollte sich dies als korrekt herausstellen, so würde man den Einfluss des niederfrequenten magnetischen Flussrauschen gezielt durch die Materialwahl beeinflussen und damit minimieren können.

Um den Einfluss von in Niob absorbierten Wasserstoff auf das niederfrequente magnetische Flussrauschen von dc-SQUIDs zu untersuchen, wurde eine Methode entwickelt, mit der Mikrostrukturen aus Niob gezielt mit Wasserstoff beladen werden können. Diese Methode basiert auf dem nasschemischen Ätzen der Aluminium-Schicht einer Al/Nb-Zweischichtstruktur mit Hilfe einer alkalischen Ätzlösung. Da Wasserstoff in Strukturen aus Niob zu höheren Widerständen bei Raumtemperatur und einer niedrigeren Stromtragfähigkeit im supraleitenden Zustand führt, konnte mit Messungen der charakteristischen Eigenschaften von mäanderförmigen Strukturen die korrekte Funktionsweise der entwickelten Beladungsmethode verifiziert werden.

Mit Hilfe der entwickelten Methode wurden dc-SQUIDs nach dem in der Arbeitsgruppe über Jahre etablierten Standardprozess hergestellt, wobei der Aluminiumätzschnitt mit der alkalischen Lösung und nicht mit der ansonsten standardmäßig verwendeten säurebasierten Ätzlösung durchgeführt wurde. Da dies jedoch unerwarteterweise die Funktionstüchtigkeit der Josephson-Tunnelkontakte beeinträchtigt hat, wurde ein modifizierte Beladungsmethode entwickelt. Diese beruht auf der Beladung eines Tanks mit Wasserstoff, welcher mit einer beliebigen Struktur aus Niob auf einem Substrat in Kontakt gebracht werden kann. Der in diesem Tank befindliche Wasserstoff kann in die Niobstruktur diffundieren und führt so zu einer nominellen Beladung. Durch Variation der Tankgröße lassen sich unterschiedliche Beladungsstärken herbeiführen. Dies konnte durch Messungen an mäanderförmigen Strukturen, welche an unterschiedlich große Tanks angeschlossen waren, bestätigt werden.

Basierend auf dieser modifizierten Beladungsmethode wurden SQUIDs hergestellt, deren SQUID-Schleife zu einem beliebigen Zeitpunkt nach der Herstellung durch das Ätzen der auf dem Tank befindlichen Aluminiumschicht mit Wasserstoff beladen werden konnten. In der Folge wurden Rauschspektren von drei derarti-

gen SQUIDs sowohl im nominell unbeladenen als auch im nominell beladenen Zustand im Temperaturbereich zwischen 10 mK und 700 mK aufgenommen. Dabei war bei zwei der drei SQUIDs nach der Beladung eine erhöhte Amplitude des niederfrequenten magnetischen Flussrauschen zu beobachten. Dies stellt einen eindeutigen Hinweis auf durch Wasserstoff verursachtes niederfrequentes Flussrauschen dar.

Zudem wurde aus den Strom-Spannungs-Kennlinien der beladenen SQUIDs der Einfluss von Wasserstoff auf die Josephson-Kontakte untersucht, wobei sich zeigte, dass der kritische Strom durch eine Wasserstoffbeladung leicht reduziert wird. Nach der Beladung zeigte sich zudem eine erhöhte Spannungsantwort des SQUIDs. Diese erhöhte Spannungsantwort der beladenen SQUIDs ist auf einen durch den Wasserstoff in den AuPd-Shunt-Widerständen erhöhten Widerstand zurückzuführen. Um in Zukunft den Einfluss von Wasserstoff auf die Kennlinien von Josephson-Kontakten weiter zu untersuchen, könnten einzelne Josephson-Kontakte, welche keine Shunt-Widerstände besitzen, mit Wasserstoff beladen und untersucht werden. Zudem ist die Untersuchung von mit Wasserstoff beladenen SQUID-Arrays von Interesse, um diese mit den bereits in [Kem16] gesammelten Daten zu vergleichen. Für beide Vorgehen liegen bereits Entwürfe vor.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen liefern damit eindeutige Hinweise, auf welche Weise das niederfrequente magnetische Flussrauschen in Josephson-Tunnelkontakt-basierten Quantenbauelementen reduziert werden kann. Eine derartige Reduktion wird sich hierbei positiv auf die Durchführung von SQUID-basierten Präzisionsmessungen sowie potentiell auch auf die Realisierung eines auf supraleitenden Qubits basierenden Quantencomputers auswirken.

7. Anhang

Symbol	SQUID	$M_{fx}^{-1} / \mu\text{A}/\Phi_0$
◆	HDSQ4b 3D15 SQ2	9,80
◆	HDSQ4b 3D15 SQ1	9,70
●	HDSQ4b 3C15 SQ2	9,83
▼	HDSQ4b 3C15 SQ1	9,90
■	HDSQ4b 3C12 SQ1	9,90
◊	HDSQ14w1 2C9 SQ2	11,67
◊	HDSQ14w1 2C9 SQ1	11,75
○	HDSQ14w1 1D17 SQ2	11,83
▽	HDSQ14w1 1D17 SQ1	11,85
△	HDSQ14w1 2B17 SQ2	11,75
□	HDSQ14w1 2B17 SQ1	11,75

Tab. 7.1: Die Rückkoppelsensitivitäten M_{fx}^{-1} der SQUID-Arrays mit direkter Kopplung aus Abbildung 4.5 a). Die ausgefüllten Symbole gehören dabei zu den SQUID-Arrays mit Al-Washer, die unausgefüllten zu denen mit Nb-Washern.

Symbol	SQUID	$M_{fx}^{-1} / \mu\text{A}/\Phi_0$
●	HDSQ4b 3C16 SQ1	178
▼	HDSQ4b 3C16 SQ2	160
▲	HDSQ4b 3B16 SQ2	172
■	HDSQ4b 3B16 SQ1	166
◆	HDSQ4b 3A16 SQ2	182
◆	HDSQ4b 3A16 SQ1	144
○	HDSQ4b 3A1 SQ2	32,75
△	HDSQ4b 3A1 SQ1	32,95

Tab. 7.2: Die Rückkoppelsensitivitäten M_{fx}^{-1} der SQUID-Arrays mit direkter Kopplung aus Abbildung 4.5 b). Die ausgefüllten Symbole gehören dabei zu den SQUID-Arrays mit Al-Washer, die unausgefüllten zu denen mit Nb-Washern.

Symbol	SQUID	$M_{\text{fx}}^{-1} / \mu\text{A}/\Phi_0$
◆	HDSQ4b 3D15 SQ2	9,80
◆	HDSQ4b 3C15 SQ1	9,80
●	HDSQ4b 3C12 SQ1	9,83
▼	HDSQ4b 3C15 SQ2	9,90
■	HDSQ4b 3C12 SQ2	9,90
◊	HDSQ4b 3A16 SQ2	182
◊	HDSQ4b 3A16 SQ1	144
○	HDSQ4b 3C16 SQ1	178
▽	HDSQ4b 3C16 SQ2	160
△	HDSQ4b 3B16 SQ2	172
□	HDSQ4b 3B16 SQ1	166

Tab. 7.3: Die Rückkoppelsensitivitäten M_{fx}^{-1} der Al-SQUID-Arrays mit direkter (ausgefüllt) und indirekter (unausgefüllt) Kopplung aus Abbildung 4.6.

Literaturverzeichnis

- [Ale78] G. Alefeld und J. Völkl, *Hydrogen in Metals I*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1978.
- [Amb63] Vinay Ambegaokar und Alexis Baratoff, Tunneling between superconductors, *Phys. Rev. Lett.*, **10**, 486–489, 1963.
- [Ant03] Claire Antoine und S. Berry, H in niobium: Origin and method of detection, **671**, 2003.
- [Ant13a] S. Anton, *Magnetic flux noise in SQUIDs and qubits*, dissertation, UC Berkeley, 2013.
- [Ant13b] S. M. Anton, J. S. Birenbaum, S. R. O’Kelley, V. Bolkhovsky, D. A. Braje, G. Fitch, M. Neeley, G. C. Hilton, H.-M. Cho, K. D. Irwin, F. C. Wellstood, W. D. Oliver, A. Shnirman, und John Clarke, Magnetic flux noise in dc squids: Temperature and geometry dependence, *Phys. Rev. Lett.*, **110**, 147002, 2013.
- [Bab90] K. Baba, U. Miyagawa, K. Watanabe, Y. Sakamoto, und T.B. Flanagan, Electrical resistivity changes due to interstitial hydrogen in palladium-rich substitutional alloys, *Journal of Materials Science*, **25**(9), 3910–3916, 1990.
- [Ber09] J Bergli, Y M Galperin, und B L Altshuler, Decoherence in qubits due to low-frequency noise, *New Journal of Physics*, **11**(2), 025002, 2009.
- [Bru82] V.J. de Waal Bruines, J.J.O. und J.E. Mooij, Comment on:’dc squid: Noise and optimization’ by tesche and clarke, *J. Low Temp. Phys.*, **46**, 383–386, 1982.
- [Cla96] J. Clarke (Ed.), *SQUID Sensors: Fundamentals, Fabrication and Applications*, H. Weinstock, 1996.
- [Cla04] J. Clarke und A. I. Braginski (Ed.), *The SQUID Handbook: Vol. 1, Fundamentals and Technology of SQUIDs and SQUID Systems*, Wiley-VCH, 2004.
- [deS07] Rogerio deSousa, Dangling-bond spin relaxation and magnetic $1/f$ noise from the amorphous-semiconductor / oxide interface: Theory, *Physical Review B*, **76**(24), 2007.

- [dG18] S.E. de Graaf, L. Faoro, J. Burnett, und et al., Suppression of low-frequency charge noise in superconducting resonators by surface spin desorption, *Nat Commun*, **9**, 2018.
- [Dru96] D. Drung, F. Ludwig, W. Müller, U. Steinhoff, L. Trahms, H. Koch, Y. Q. Shen, M. B. Jensen, P. Vase, T. Holst, T. Freltoft, und G. Curio, Integrated $\text{yba}_2\text{cu}_3\text{o}_7 - x$ magnetometer for biomagnetic measurements, *Applied Physics Letters*, **68**(10), 1421–1423, 1996.
- [Dru05] Dietmar Drung und Michael Mück, *SQUID Electronics*, chapter 4, 127–170, John Wiley & Sons,Ltd, 2005.
- [Dru06] Dietmar Drung, Colmar Hinnrichs, und Henry-Jobes Barthelmess, Low-noise ultra-high-speed dc SQUID readout electronics, *Superconductor Science and Technology*, **19**(5), S235–S241, 2006.
- [Dru11] D. Drung, J. Beyer, J. Storm, M. Peters, und T. Schurig, Investigation of low-frequency excess flux noise in dc squids at mk temperatures, *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, **21**(3), 340–344, 2011.
- [Ens05] C. Enss und S. Hunklinger, *Low-Temperature Physics*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2005.
- [Fer94] M.J. Ferrari, M. Johnson, und F.C. Wellstood, Magnetic flux noise in copper oxide superconductors, *J Low Temp Phys*, **94**, 15–61, 1994.
- [FS20] A. Ferring-Siebert, *In Bearbeitung*, dissertation, Universität Heidelberg, 2020.
- [Fuk85] Y. Fukai und H. Sugimoto, Diffusion of hydrogen in metals, *Advances in Physics*, **34**(2), 263–326, 1985.
- [Gra69] Thomas Graham, On the relation of hydrogen to palladium, *Proceedings of the Royal Society of London*, **17**, 212–220, 1869.
- [Gup84] M Gupta, Why does hydrogen destroy superconductivity in niobium and lanthanum?, *Solid State Communications*, **50**(5), 439 – 444, 1984.
- [Hin08] Kenji Hinode, Tetsuro Satoh, Shuichi Nagasawa, und Mutsuo Hidaka, Hydrogen-inclusion-induced variation of critical current in nb–alox–nb josephson junctions, *Journal of Applied Physics*, **104**(2), 023909, 2008.
- [Hin10] Kenji Hinode, Tetsuro Satoh, Shuichi Nagasawa, und Mutsuo Hidaka, Origin of hydrogen-inclusion-induced critical current deviation in nb/alox/al/nb josephson junctions, *Journal of Applied Physics*, **107**(7), 073906, 2010.

- [Hol13] Aaron M. Holder, Kevin D. Osborn, C. J. Lobb, und Charles B. Musgrave, Bulk and surface tunneling hydrogen defects in alumina, *Phys. Rev. Lett.*, **111**, 065901, 2013.
- [Isa80] S. Isagawa, Hydrogen absorption and its effect on low temperature electric properties of niobium, *Journal of Applied Physics*, **51**(8), 4460–4470, 1980.
- [Jis98] N. M. Jisrawi, M. W. Ruckman, T. R. Thurston, G. Reisfeld, M. Weinert, M. Strongin, und M. Gurvitch, Reversible depression in the T_c of thin nb films due to enhanced hydrogen adsorption, *Phys. Rev. B*, **58**, 6585–6590, 1998.
- [Joh28] J. B. Johnson, Thermal agitation of electricity in conductors, *Phys. Rev.*, **32**, 97–109, 1928.
- [Jos62] B. D. Josephson, Possible new effects in superconductive tunnelling, *Physics Letters*, **1**(7), 251–253, 1962.
- [Kem13] S. Kempf, A. Ferring, A. Fleischmann, L. Gastaldo, und C. Enss, Characterization of the reliability and uniformity of an anodization-free fabrication process for high-quality nb/al–alo_x/nb josephson junctions, *Supercond. Sci. Technol.*, **26**, 065012, 2013.
- [Kem15] S Kempf, A Ferring, A Fleischmann, und C Enss, Direct-current superconducting quantum interference devices for the readout of metallic magnetic calorimeters, *Superconductor Science and Technology*, **28**(4), 045008, 2015.
- [Kem16] Sebastian Kempf, Anna Ferring, und Christian Enss, Towards noise engineering: Recent insights in low-frequency excess flux noise of superconducting quantum devices, *Applied Physics Letters*, **109**(16), 162601, 2016.
- [Kem18] S. Kempf, A. Fleischmann, L. Gastaldo, und C. Enss, Physics and Applications of Metallic Magnetic Calorimeters, *Journal of Low Temperature Physics*, **193**, 365–379, 2018.
- [Khi86] A. Khintchine, *Korrelationstheorie der stationären stochastischen Prozesse*, volume 109, Mathematische Annalen, 1986.
- [Koc83] R.H. Koch, J Clarke, W.M. Goubau, J.M. Martins, C.M. Pegrum, und D.J. van Harlingen, Flicker (1/f) noise in tunnel junction dc squids, *Journal of Low Temperature Physics*, **51**, 207–224, 1983.

- [Koc07] Roger H. Koch, David P. DiVincenzo, und John Clarke, Model for $1/f$ flux noise in squids and qubits, *Phys. Rev. Lett.*, **98**, 267003, 2007.
- [Kra20] M. Krantz, *Development of a metallic magnetic calorimeter with integrated SQUID readout*, dissertation, Universität Heidelberg, 2020.
- [Kum16] P. Kumar, S. Sendelbach, M. A. Beck, J. W. Freeland, Zhe Wang, Hui Wang, Clare C. Yu, R. Q. Wu, D. P. Pappas, und R. McDermott, Origin and reduction of $1/f$ magnetic flux noise in superconducting devices, *Phys. Rev. Applied*, **6**, 041001, 2016.
- [LaF15] S. LaForest und Rogério de Sousa, Flux-vector model of spin noise in superconducting circuits: Electron versus nuclear spins and role of phase transition, *Phys. Rev. B*, **92**, 054502, 2015.
- [Lik86] K. K. Likharev, *Dynamics of Josephson Junctions and Circuits*, Gordon and Breach, New York, 1986.
- [Lon50] F. London, *Superfluids: Macroscopic theory of superconductivity*, Structure of matter series, John Wiley & Sons, 1950.
- [Mac54] Stefan Machlup, Noise in semiconductors: Spectrum of a two parameter random signal, *Journal of Applied Physics*, **25**(3), 341–343, 1954.
- [McC68] D. E. McCumber, Effect of ac impedance on dc voltage-current characteristics of superconductor weak-link junctions, *Journal of Applied Physics*, **39**, 3113, 1968.
- [Mul01] Jochen Muller, Stefan Weiss, Rudolf Gross, Reinhold Kleiner, und Dieter Koelle, Voltage-flux-characteristics of asymmetric dc squids, *Applied Superconductivity, IEEE Transactions on*, **11**, 912 – 915, 2001.
- [Mus76] Toshimitsu Musha und Hideyo Higuchi, The $1/f$ Fluctuation of a traffic current on an expressway, *Japanese Journal of Applied Physics*, **15**(7), 1271–1275, 1976.
- [Mus82] T. Musha und M. Kobayashi, $1/f$ fluctuation of heartbeat period, *IEEE Trans Biomed Eng.*, **29**(6), 456–457, 1982.
- [Nyq28] H. Nyquist, Thermal agitation of electric charge in conductors, *Phys. Rev.*, **32**, 110–113, 1928.
- [Ott69] Dumas A. Otterson und Richard James Anthony Smith, Absorption of hydrogen by palladium and electrical resistivity up to hydrogen-palladium atom ratios of 0.97, 1969.

- [Pob96] F. Pobell (Ed.), *Matter and Methods at Low Temperatures*, Springer-Verlag, 1996.
- [Rog83] C. Rogers und R. Buhrman, Conductance fluctuations and low frequency noise in josephson junctions, *IEEE Transactions on Magnetics*, **19**(3), 453–457, 1983.
- [Rub10] Enrico Rubiola und Francois Vernotte, The cross-spectrum experimental method, 2010.
- [Scu00] J. Scully, George Young, und Stephen Smith, Hydrogen solubility, diffusion and trapping in high purity aluminum and selected al-base alloys, *Materials Science Forum*, 1583–1600, 2000.
- [Sen08] S. Sendelbach, D. Hover, A. Kittel, M. Mueck, John M. Martinis, und R. McDermott, Magnetism in squids at millikelvin temperatures, *Phys. Rev. Lett.*, **100**, 227006, 2008.
- [Sha49] C. E. Shannon, Communication in the presence of noise, *Proceedings of the IRE*, **37**(1), 10–21, 1949.
- [Sie29] A Sieverts, Absorption of gases by metals, *Zeitschrift für Metallkunde*, **21**, 37–46, 1929.
- [Sli12] D. H. Slichter, R. Vijay, S. J. Weber, S. Boutin, M. Boissonneault, J. M. Gambetta, A. Blais, und I. Siddiqi, Measurement-induced qubit state mixing in circuit qed from up-converted dephasing noise, *Phys. Rev. Lett.*, **109**, 153601, 2012.
- [Sta04] Gheorghe Stan, Stuart B. Field, und John M. Martinis, Critical field for complete vortex expulsion from narrow superconducting strips, *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 097003, 2004.
- [Ste68] W. C. Stewart, Current-voltage characteristics of josephson junctions, *Applied Physics Letters*, **12**(8), 277–280, 1968.
- [Sun17] Z.H. Sung, M. Wang, A.A. Polyanskii, C. Santosh, S. Balachandran, C. Compton, D.C. Larbalestier, T.R. Bieler, und P.J. Lee, Development of low angle grain boundaries in lightly deformed superconducting niobium and their influence on hydride distribution and flux perturbation, *J. Appl. Phys.*, **121**(19), 193903, 2017.
- [Taf74] B. A. Taft und D.J. Baker B.M. Hickey, C. Wunsch, Equatorial undercurrent and deeper flows in the central pacific, *Deep Sea Research and Oceanographic Abstracts*, **21**(6), 403–430, 1974.

- [Tes77] C.D. Tesche, dc squid: Noise and optimization., *J Low Temp Phys*, **29**, 301–331, 1977.
- [Tol11] S. K. Tolpygo, D. Amparo, R. T. Hunt, J. A. Vivalda, und D. T. Yohannes, Diffusion stop-layers for superconducting integrated circuits and qubits with nb-based josephson junctions, *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, **21**(3), 119–125, 2011.
- [Wak86] R. T. Wakai und D. J. Van Harlingen, Low frequency noise and discrete charge trapping in small area tunnel junction dc squid's, *Applied Physics Letters*, **49**(10), 593–595, 1986.
- [Wan15] Hui Wang, Chuntai Shi, Jun Hu, Sungho Han, Clare C. Yu, und R. Q. Wu, Candidate source of flux noise in squids: Adsorbed oxygen molecules, *Phys. Rev. Lett.*, **115**, 077002, 2015.
- [Wan18] Zhe Wang, Hui Wang, Clare C. Yu, und R. Q. Wu, Hydrogen as a source of flux noise in squids, *Phys. Rev. B*, **98**, 020403, 2018.
- [Wat80] K Watanabe und Y Fukai, Electrical resistivity due to interstitial hydrogen and deuterium in v, nb, ta and pd, *Journal of Physics F: Metal Physics*, **10**(8), 1795–1801, 1980.
- [Wel67] P. Welch, The use of fast fourier transform for the estimation of power spectra: A method based on time averaging over short, modified periodograms, *IEEE Transactions on Audio and Electroacoustics*, **15**(2), 70–73, 1967.
- [Wel87] Frederick C. Wellstood, Cristian Urbina, und John Clarke, Low frequency noise in dc superconducting quantum interference devices below 1 k, *Applied Physics Letters*, **50**(12), 772–774, 1987.
- [Wie30] Norbert Wiener, Generalized harmonic analysis, *Acta Math.*, **55**, 117–258, 1930.
- [Wu12] Jiansheng Wu und Clare C. Yu, Modeling flux noise in squids due to hyperfine interactions, *Phys. Rev. Lett.*, **108**, 247001, 2012.
- [You98] G.A. Young und J.R. Scully, The diffusion and trapping of hydrogen in high purity aluminum, *Acta Materialia*, **46**(18), 6337 – 6349, 1998.

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegeben Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, 12. August 2020

.....

(Fabian Kaap)