

Bachelorarbeit  
zur Erlangung des wissenschaftlichen Grades  
**Bachelor of Science**

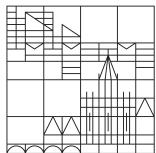
---

Optimierung der Herstellung und elektrische  
Charakterisierung ultrakleiner Tunnelkontakte aus  
Aluminium und Aluminiumoxid

---

vorgelegt an der

Universität  
Konstanz



Fachbereich Physik  
AG Scheer  
Mesoskopische Systeme

von Teo Conzelmann

1. Gutachter: Prof. Dr. Elke Scheer
2. Gutachter: Dr. Torsten Pietsch

durchgeführt vom 4. April bis 4. Juli 2016



## **Abstract**

With the aim to the manufacturing process of superconducting single-electron transistors, I have studied the manufacturing process of tunnel junctions formed by layer system of aluminum - aluminum oxide - aluminum. A dependence of the aluminum film's roughness on the evaporation rates can be shown. The lowest roughness was found at films that were manufactured with rates about  $6 \text{ \AA s}^{-1}$ . Electric measurements of the tunnel junctions show that optimizing the roughness leads to junctions with lower resistances and decreased variation. However the relative variance of those resistances does not improve.



## **Inhaltsverzeichnis**

<b>1 Einleitung</b>	<b>5</b>
<b>2 Probenherstellung</b>	<b>6</b>
2.1 Herstellung des Lacksystems und Nanostrukturierung der Proben . . . . .	7
2.2 Bedampfung und Oxidation . . . . .	8
<b>3 Untersuchung von Oberflächenrauigkeiten</b>	<b>9</b>
3.1 Quantitative Beschreibung von Oberflächenrauigkeiten . . . . .	9
3.2 Vorgehen . . . . .	9
3.3 Ergebnisse . . . . .	11
<b>4 Elektrische Charakterisierung der Tunnelkontakte</b>	<b>17</b>
4.1 Oxidation von Aluminium . . . . .	17
4.2 Vorgehen . . . . .	17
4.3 Ergebnisse . . . . .	19
<b>5 Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>23</b>



## 1 Einleitung

Effekte der Supraleitung können anhand von Einzelelektronentransistoren untersucht werden. Die erste Realisierung von normalleitenden Einzelelektronentransistoren gelang FULTON und DOLAN im Jahr 1987 [FD87]. Nach der Realisierung der normalleitenden Einzelelektronentransistoren begann die Forschung an supraleitenden Einzelelektronentransistoren, die zusätzliche Stromzyklen zeigen [FPT98, HDV<sup>+</sup>98].

Einzelelektronentransistoren bestehen aus einer Insel, die über Tunnelkontakte an zwei Zuleitungen gekoppelt ist. Aufgrund der Coulomb-Abstoßung zwischen Elektronen kostet das Hinzufügen eines Elektrons auf die Insel Energie. Dieser Effekt wird Coulomb-Blockade genannt. Um die Coulomb-Blockade unterdrücken zu können, wird eine Gate-Elektrode kapazitiv an die Insel angekoppelt.

SPRENGER untersuchte in ihrer Masterarbeit [Spr16] die Herstellung supraleitender Einzelelektronentransistoren mit einem variablen Kontakt und einem statischen Tunnelkontakt. Der variable Tunnelkontakt wird durch einen mechanisch einstellbaren Bruchkontakt realisiert. Der nicht variable Tunnelkontakt hat eine Oxidschicht als Tunnelbarriere. Für zuverlässige elektrische Messungen müssen die Widerstandswerte der Tunnelkontakte bekannt sein und in einem für die Messungen passenden Bereich liegen. Dazu untersuchte SPRENGER den Einfluss des Oxidationsdrucks auf den Widerstandswert. Die von ihr dabei hergestellten Oxidkontakte zeigten eine große Streuung der Widerstandswerte bei gleich bleibendem Oxidationsdruck.

In dieser Arbeit wird der Einfluss der Rauigkeiten der Aluminiumfilme auf den Widerstand eines solchen Tunnelkontakte untersucht. Eine glattere Oberfläche führt zu einem gleichmäßiger wachsenden Oxid und vermeidet folglich Kurzschlüsse in Form von so genannten *Pinholes*. Diese verkleinern den Widerstandswert um mehrere Größenordnungen.

Im ersten Teil der Arbeit wird die Herstellung der Proben beschrieben. Der zweite Teil untersucht die Abhängigkeit der Oberflächenrauigkeit von der Aufdampfrate. Im dritten Teil werden Tunnelkontakte auf ihre Reproduzierbarkeit und ihre absoluten Widerstandswerte geprüft. Zusätzlich wird der Einfluss der Größe der Kontaktfläche auf den elektrischen Widerstand untersucht.

## 2 Probenherstellung

In diesem Kapitel wird der Herstellungsprozess eines Tunnelkontakte beschrieben, der aus der Schichtfolge Aluminium-Aluminiumoxid-Aluminium aufgebaut ist. Diese Schichtfolge wird durch eine Schattenbedampfung hergestellt.

Abbildung 1 zeigt eine Rasterelektronenmikroskop(REM)-Aufnahme eines vollständig prozessierten Kontakts. Auf der linken Seite befindet sich die Zuleitung aus Aluminium, auf der ein Aluminium-Finger mittig aufliegt. Der Finger hat eine Breite von circa 90 nm und eine Länge von circa 200 nm. Zwischen Finger und Insel befindet sich eine Tunnelbarriere aus Aluminiumoxid.

Auf jeder Probe befinden sich vier solcher Tunnelkontakte, die einzeln kontaktiert werden können.

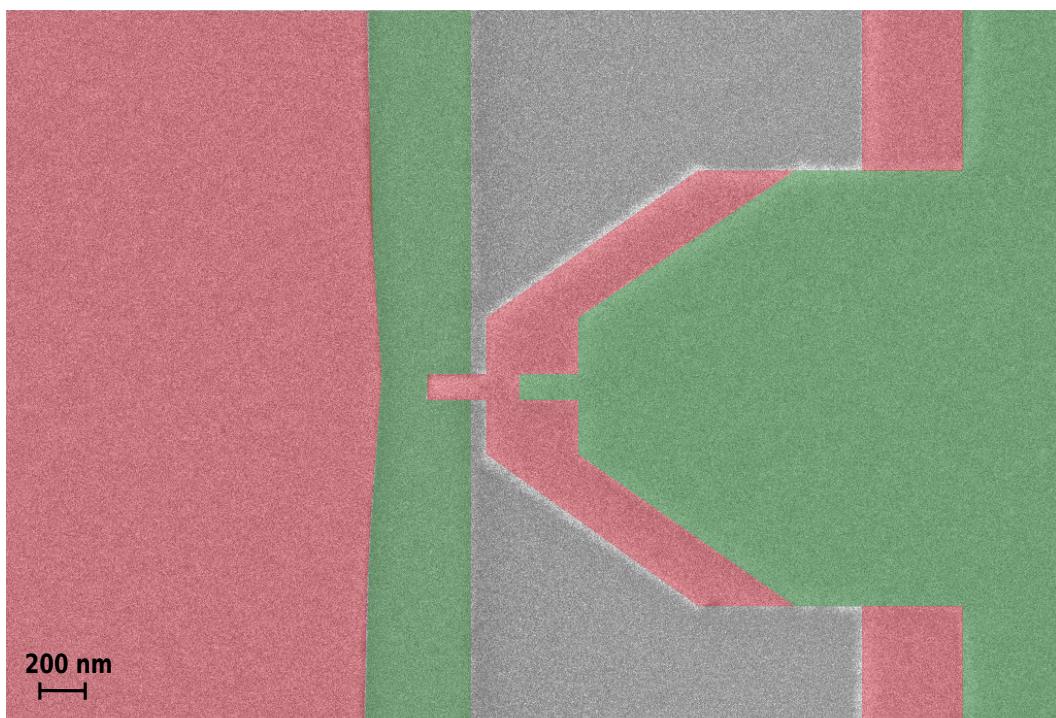


Abbildung 1: REM-Aufnahme eines Tunnelkontakte in Falschfarbdarstellung. Links befindet sich die Zuleitung, der Finger ist rechts abgebildet. Die grün eingefärbte Schicht wird zuerst aufgedampft und oxidiert. Die rot eingefärbte Schicht wird anschließend so aufgedampft, dass der Finger auf der Zuleitung aufliegt. Der Versatz der beiden Schichten wird durch Schattenbedampfung erzeugt.

## 2.1 Herstellung des Lacksystems und Nanostrukturierung der Proben

Als Substrat für die Proben dient ein rundes 300 µm dickes Bronzeblech, welches poliert und gereinigt wird. Als Erstes wird mit einem Spincoater eine Opferschicht aus Polyamid aufgeschleudert und auf einer Vakuum-Heizplatte ausgebacken (Abb. 2 (a)). Nun werden in gleicher Weise die elektronensensitiven Negativlacke aufgebracht. Diese bestehen aus einer Schicht MMA-MAA und einer Schicht PMMA (Abb. 2 (b)). Anschließend wird das Substrat in 3 mm × 22 mm große Proben zerschnitten. Eine detailliertere Beschreibung der Herstellung der Proben, inklusive aller Parameter, enthält die Dissertation von SCHIRM [Sch09].

Die Nanostrukturierung der Proben erfolgt durch Elektronenstrahlolithographie. Die obere Lackschicht wird präzise mit dem Elektronenstrahl belichtet. Die Schicht darunter wird von an dem Substrat gestreuten Elektronen verwaschen belichtet, wodurch nach dem Entwickeln ein Unterschnitt entsteht (Abb. 2 (c)).

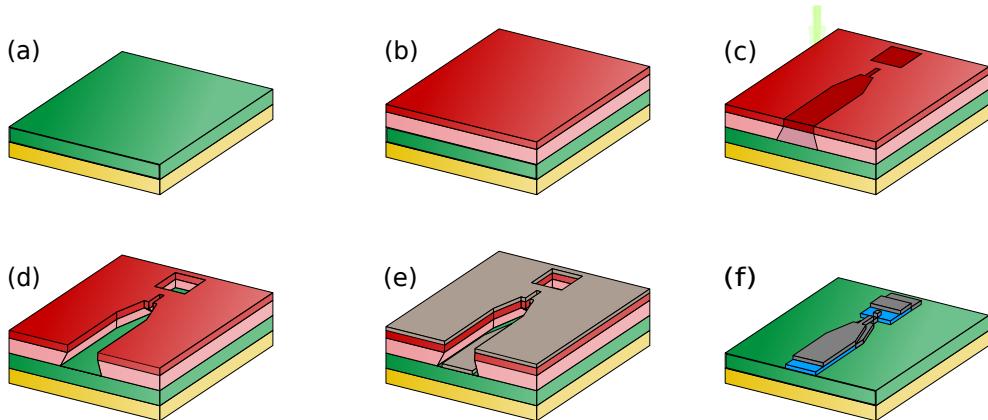


Abbildung 2: Schematische Darstellung der Probenherstellung. (a) Auf das Bronzesubstrat (gelb) wird die Opferschicht aus Polyamid (grün) aufgeschleudert. (b) Die Lackschichten MMA-MAA (rosa) und PMMA (rot) werden auf das Polyamid aufgebracht. (c) Die Probe wird mit einem Elektronenstrahl lithographiert. Die belichteten Stellen sind dunkel eingefärbt. (d) Durch das Entwickeln der Probe einsteht der Unterschnitt. (e) Die erste Aluminiumschicht wird aufgedampft (Winkel:  $-13^\circ$ ). (f) Nach dem Oxidieren der ersten Aluminiumschicht (blau) und Aufdampfen der zweiten Aluminiumschicht (Winkel:  $23^\circ$ ), wird der Lift-Off durchgeführt. Der Versatz zwischen den beiden Filmen entsteht durch die Schattenbedampfung.

Anschließend werden die Proben in einer Lösung aus MIBK und Isopropanol entwickelt und mit Isopropanol ausgewaschen. Dabei wird der belichtete Lack entfernt (Abb. 2 (d)). Der entstandene Unterschnitt ist für die folgende Schattenbedampfung der Proben notwendig.

## 2.2 Bedampfung und Oxidation

Die Herstellung des Oxidkontakte wird durch Schattenbedampfung realisiert. Die Winkel, unter denen die beiden Aluminiumschichten aufgedampft werden, sind so gewählt, dass nach dem zweiten Aufdampschritt der Finger auf der Leitung aufliegt.

Zuerst wird eine 45 nm dicke Aluminiumschicht unter einem Winkel von  $-13^\circ$  zur Verdampfungsquelle aufgedampft (Abb. 2 (e)). Nun folgt die Oxidation dieser Aluminiumschicht. Dazu wird die Probe in die evakuierte Schleusenkammer zurückgezogen und ein Gasgemisch aus Argon und Sauerstoff (Verhältnis 9:1) bis zu einem bestimmten Druck über ein Nadelventil eingeleitet. Dieses Gasgemisch wird verwendet, um saubere Oxidschichten zu erhalten. Es hat sich gezeigt, dass reiner Sauerstoff unsauberere Oxidschichten erzeugt. Zusätzlich kann mit dem Gasgemisch der Sauerstoffdruck im niedrigen Druckbereich genauer eingestellt werden. Dann wird das Ventil geschlossen, sodass der Druck während des gesamten Oxidationsprozesses konstant bleibt. Nach der Oxidation wird die Probe wieder in die Hauptkammer transferiert und eine zweite Aluminiumschicht von 65 nm unter einem Winkel von  $23^\circ$  aufgedampft. Die genauen Parameter für die Oxidation sind in Abschnitt 4.2 beschrieben.

Als letzter Schritt folgt der so genannte Lift-Off in Aceton. Dabei löst sich der unbelichtete Lack und somit auch das überschüssige Aluminium. Zurück bleibt die bei der Lithographie geschriebene Struktur aus Aluminium-Aluminiumoxid-Aluminium (Abb. 2 (f)).

## 3 Untersuchung von Oberflächenrauigkeiten

In diesem Kapitel wird die Rauigkeit der Aluminiumfilme in Abhängigkeit von der Aufdampfrate untersucht. Die Aufdampfrate, bei der die Oberflächen die kleinsten Rauigkeiten aufweisen, soll später zur Herstellung der Tunnelkontakte benutzt werden.

### 3.1 Quantitative Beschreibung von Oberflächenrauigkeiten

Eine Möglichkeit die Oberflächenrauigkeit der aufgedampften Aluminiumfilme quantitativ zu beschreiben, ist die quadratische Rauigkeit (RMS aus *Root-Mean-Squared roughness*). Diese kann aus Aufnahmen von einem Rasterkraftmikroskop (AFM) ermittelt werden. Die quadratische Rauigkeit einer Fläche lässt sich wie folgt berechnen:

$$\text{RMS} = \sqrt{\frac{1}{MN} \sum_{m=1}^M \sum_{n=1}^N (z(x_m, y_n) - \langle z \rangle)^2}. \quad (1)$$

Die Variable  $M$  stellt die Anzahl der Pixel der Aufnahme in  $x$ -Richtung und  $N$  die Anzahl der Pixel in  $y$ -Richtung dar.  $z(x_m, y_n)$  ist der an der jeweiligen Stelle gemessene Höhenwert mit dem arithmetischen Mittelwert über alle Höhenwerte  $\langle z \rangle$ .

Zusätzlich können die Histogramme der Höhenwerte der AFM-Bilder untersucht werden. Sie folgen jeweils ungefähr einer Gauß-Verteilung. Die Breite ist ein zweites Maß für die Rauigkeit der Oberfläche. Sie entspricht der Streuung der Höhenwerte.

Eine weitere Möglichkeit zur Beschreibung von Oberflächenrauigkeiten besteht darin, die Größe der Körner auf der Oberfläche zu analysieren. Zur algorithmischen Segmentierung der einzelnen Körner kann die so genannte Wasserscheidentransformation angewendet werden. Dieser Algorithmus wird in [KNA16, S. 76] genau beschrieben. Aus den segmentierten Körnern wird eine mittlere Korngröße ermittelt, indem über die Durchmesser der Körner gemittelt wird.

### 3.2 Vorgehen

Für die Untersuchung der Oberflächenrauigkeiten reicht es aus, die in Abschnitt 2 beschriebene Probenherstellung bis einschließlich des ersten Aufdampfschritts durchzuführen, da die Qualität des Oxids durch den zuerst aufgedampften Aluminiumfilm bestimmt wird. Die Vergleichbarkeit zum Herstellungsprozess der Tunnelkontakte soll gewährleistet sein. Aus diesem Grund wurde die erste Aluminiumschicht unter dem gleichen Winkel und mit der gleichen Dicke aufgedampft, wie sie bei der Herstellung der Tunnelkontakte für elektrische Messungen verwendet werden.

Es wurden Proben bei neun verschiedenen zeitlich konstanten Aufdampfraten hergestellt und untersucht. Die Raten liegen im Bereich zwischen  $1,3 \text{ \AA s}^{-1}$  und  $10 \text{ \AA s}^{-1}$ . Bei jeder Rate wurden zwei Proben im gleichen Herstellungsprozess prozessiert, um Fehler im Herstellungsprozess erkennen zu können (Reihe 1 und 2). Von diesen Proben wurden  $5 \mu\text{m} \times 5 \mu\text{m}$  große Bilder mit einem Rasterkraftmikroskop aufgenommen. Anhand dieser Aufnahmen wurde die Analyse der Oberflächen mit den in Abschnitt 3.1 beschriebenen Methoden durchgeführt.

Bei ausgewählten Aufdampfraten wurde eine weitere Serie von Proben hergestellt (Reihe 3). Dies ermöglichte, die Reproduzierbarkeit der Rauigkeiten zwischen verschiedenen Aufdampfvorgängen mit annähernd gleichen Raten überprüfen zu können.

Auf den AFM-Aufnahmen sind vereinzelt sehr große Körner auf der Oberfläche zu sehen. Diese Körner stellen mit großer Wahrscheinlichkeit eine nachträgliche Verunreinigung der Probe dar. Bedingt durch die Funktionsweise des AFM, werden die Höhenwerte der Probe um die Körner herum fehlerhaft gemessen, das heißt es bildeten sich so genannte Artefakte. In Abbildung 3 ist ein Beispiel für eine solche Verunreinigung mit Bildung eines Artefakts in Form eines Schattens zu sehen. Um zu vermeiden, dass diese und andere zufällige Artefakte die Ergebnisse verfälschen, wurden aus den Aufnahmen nicht betroffene Bereiche zur Analyse ausgewählt. Durch die Auswahl von drei Bereichen ist eine statistische Auswertung möglich.

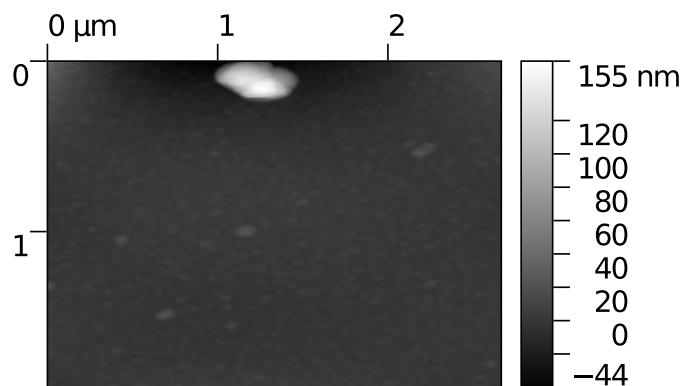


Abbildung 3: Ausschnitt einer der AFM-Aufnahmen mit grober Verunreinigung. Um die Verunreinigung herum ist ein dunkler Schatten zu sehen. In diesem Bereich sind Höhenwerte fehlerhaft gemessen worden.

Die Aufnahmen der gewählten Ausschnitte wurden mit der Software Gwyddion bearbeitet. Zuerst wurde die Mittelwertebene von den Daten abgezogen (Funktion: *Zeilen durch Abgleich des Höhen-Medians korrigieren*). Dadurch wurde die Skalierung der Höhenwerte so verschoben, dass die Mittelwertebene auf dem Höhenwert  $z = 0$  liegt. Dann wurde das Bild zeilenweise so korrigiert, dass die Höhen-Medians der Zeilen auf einer Höhe liegen (Funkti-

on: *Zeilen durch Abgleich des Höhen-Medians korrigieren*). Für eine weitere Korrektur der Zeilen wurden sie horizontal zueinander verschoben, sodass Striche vermieden wurden (Funktion: *Horizontale Fehlerzeilen korrigieren*). Als letztes wurde der polynomiale Verlauf des Untergrunds entfernt (Funktion: *Polynomiellen Untergrund entfernen*).

### 3.3 Ergebnisse

Anhand der AFM-Aufnahmen können qualitative Unterschiede der Oberflächen festgestellt werden. Abbildung 4 zeigt vier unterschiedliche Proben, die mit den Aufdampfraten  $1,3\text{ \AA s}^{-1}$ ,  $4\text{ \AA s}^{-1}$ ,  $6,1\text{ \AA s}^{-1}$  und  $10,1\text{ \AA s}^{-1}$  hergestellt wurden.

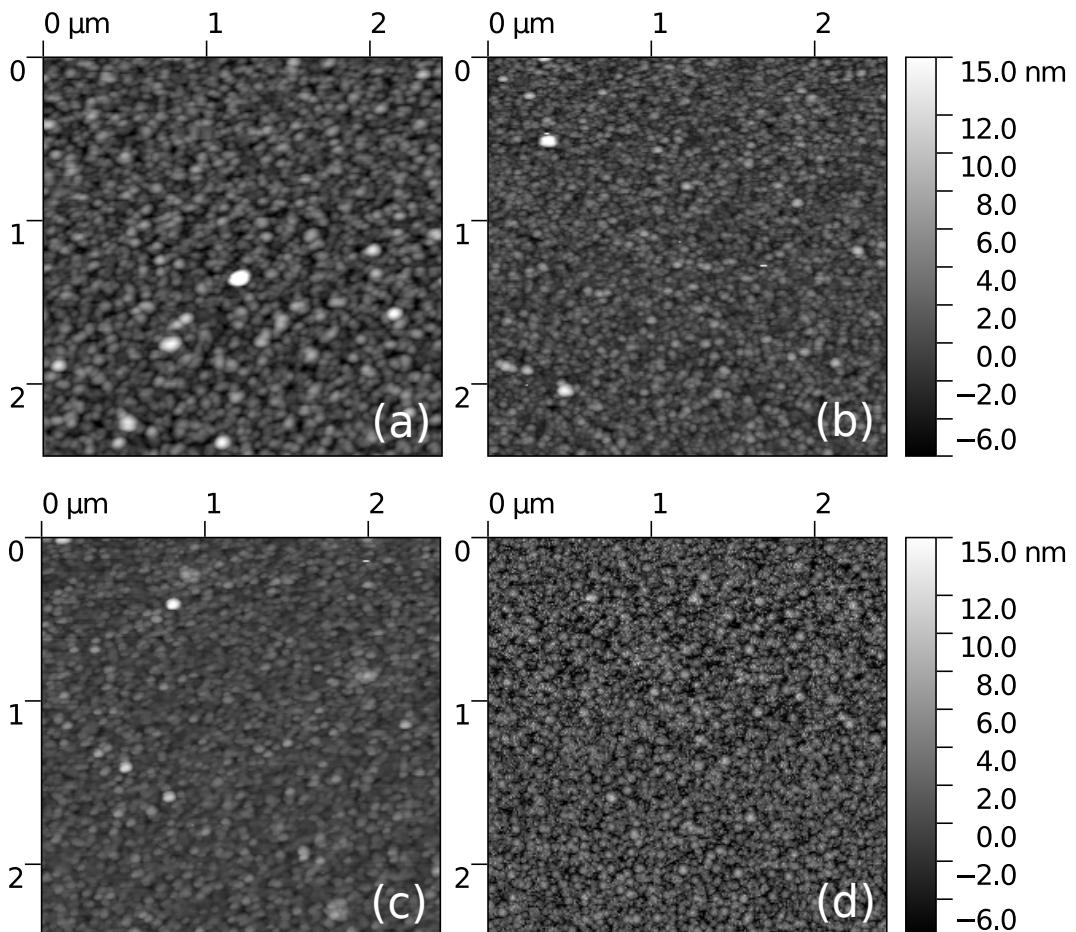


Abbildung 4: Ausschnitte der AFM-Aufnahmen vierer Proben, hergestellt mit den Aufdampfraten (a)  $1,3\text{ \AA s}^{-1}$ , (b)  $4\text{ \AA s}^{-1}$ , (c)  $6,1\text{ \AA s}^{-1}$  und (d)  $10,1\text{ \AA s}^{-1}$ .

Es sieht so aus, als seien bei der Probe mit der kleinsten (a) und größten (d) Aufdampfrate größere Körner entstanden, als bei den Proben mit den mittleren Aufdampfraten

((b) und (c)). Es ist zu erkennen, dass bei den Proben mit mittleren Aufdampfraten die Verteilung der Höhenwerte am geringsten ist. Bei den anderen beiden Proben sind die Höhenwerte breiter verteilt, da auch Werte mit großem Betrag vertreten sind. Qualitativ scheinen die mittleren Raten die geringsten Rauigkeiten aufzuweisen.

### Quadratische Rauigkeit

Die quadratische Rauigkeit für eine Probe wurde jeweils aus den drei ausgewählten Bereichen der AFM-Aufnahme berechnet. Die drei Werte wurden gemittelt, um pro Probe einen Wert mit Unsicherheit zu erhalten. Abbildung 5 zeigt die RMS-Werte aller Proben. Als Unsicherheit wird die Standardabweichung der Mittelung angenommen.

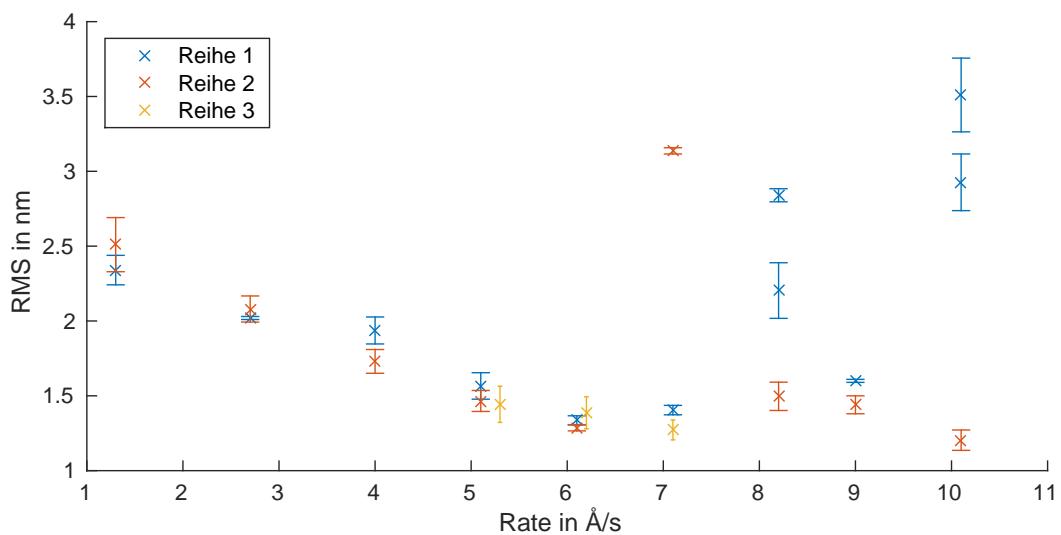


Abbildung 5: Darstellung der quadratischen Rauigkeiten der Proben. Die Proben aus Reihe 1 mit den Raten  $8,2 \text{\AA s}^{-1}$  und  $10,1 \text{\AA s}^{-1}$  wurden an zwei verschiedenen Stellen analysiert. Bis zu der Rate  $6 \text{\AA s}^{-1}$  ist die Abweichung der RMS-Werte zwischen Proben gleicher Raten klein. Die mit  $6 \text{\AA s}^{-1}$  hergestellten Proben weisen außerdem die niedrigste Rauigkeit auf.

Im Bereich kleiner Raten sinkt die Rauigkeit mit zunehmender Aufdampfrate. Zudem sind die Ergebnisse reproduzierbar. Ab einer Rate von  $7 \text{\AA s}^{-1}$  ist für jede Rate eine deutliche Abweichung der RMS-Werte zwischen den Proben zu bemerken. Vor allem bei den Raten  $8,2 \text{\AA s}^{-1}$  und  $10,1 \text{\AA s}^{-1}$  ist der Unterschied zwischen den gleich prozessierten Proben groß (Reihe 1 und 2).

Auffällig ist auch die Größe der Standardabweichungen bei den verschiedenen Aufdampfraten. Bei den kleinen Raten liegen die Fehler im Bereich von 9 %, während bei den

großen Raten die Fehler im Bereich von 13 % liegen. Das bedeutet, dass die Rauigkeiten innerhalb dieser Proben an verschiedenen Stellen stärker voneinander abweichen.

### Histogramme der Höhenwerte

Für jeden Bereich eines AFM-Bildes wurde aus den Höhenwerten ein Histogramm erstellt. Abbildung 6 zeigt die Histogramme zweier Proben, die mit Aufdampfraten von  $4 \text{ Å s}^{-1}$  beziehungsweise  $8,2 \text{ Å s}^{-1}$  hergestellt wurden.

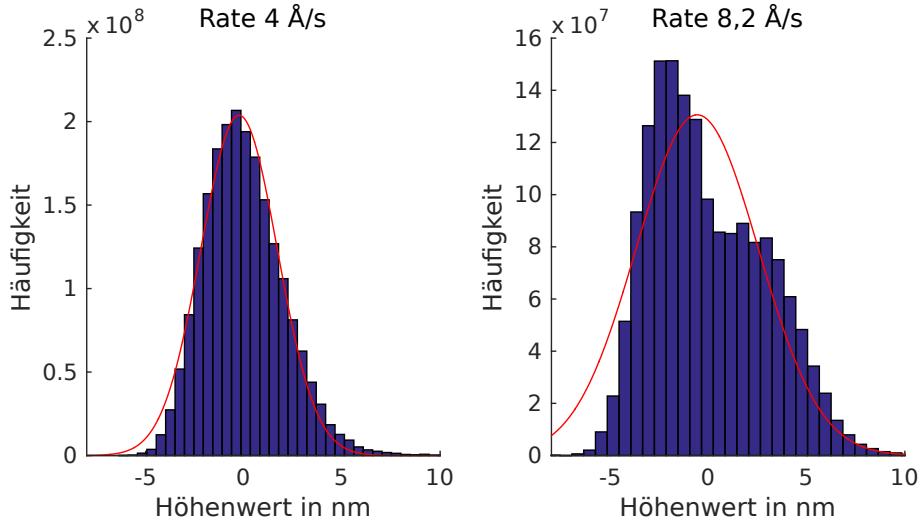


Abbildung 6: Vergleich der Höhenwerte nach Entfernung des polynomiellen Untergrunds von Proben mit unterschiedlichen Aufdampfraten. Die Schwerpunkte der Histogramme liegen auf dem Höhenwerte 0. Die angepassten Gauß-Verteilungen sind rot eingezeichnet. Die Verteilung der Probe mit der niedrigen Aufdampfrate (links) ist nahezu symmetrisch und gaußförmig. Bei der Probe mit der hohen Aufdampfrate (rechts) ist die Verteilung asymmetrisch. Sie kann als zwei verschobene Gauß-Verteilungen aufgefasst werden.

Die Verteilung der Probe mit der niedrigen Aufdampfrate ist nahezu gaußförmig um den Schwerpunkt verteilt. Die Probe mit der hohen Aufdampfrate hat eine asymmetrische Verteilung mit einer Stufe neben dem Maximum.

Durch die Stufe wird der Schwerpunkt nach rechts verschoben. Dadurch sind die häufig auftretenden Höhenwerte weiter vom Schwerpunkt entfernt. Bei der Probe mit der niedrigen Aufdampfrate liegen die Werte hoher Häufigkeit im Gegensatz dazu nahe am Schwerpunkt. Das erklärt, warum die RMS-Werte bei hohen Aufdampfraten wieder steigen.

Die Stufe in der Verteilung der Probe mit der hohen Aufdampfrate kann auch als zweites Maximum interpretiert werden. Das Histogramm wäre dann eine Überlagerung zweier Gauß-

Verteilungen. Eine mögliche Erklärung dafür ist folgende: Bei höheren Raten entsteht zuerst eine Schicht aus Körnen, die auch bei niedrigen Raten vorzufinden ist. Die Höhenwerte aus dieser Schicht sind in der höheren Gauß-Verteilung vertreten. Auf dieser Schicht entstehen dann weitere Körner, deren Höhenwerte die zweite Gauß-Verteilung bilden.

Die Breiten der Höhenverteilungen sind ein zweiter Indikator für die Rauigkeit der Oberfläche. Um die Breiten der Verteilungen der Höhenwerte zu bestimmen, wurden die Histogramme mit Gauß-Verteilungen angepasst und deren Breite bestimmt. Die Unsicherheit der Breite wird durch die numerische Anpassung ermittelt. Für jede Probe wurde eine Breite durch die Berechnung des gewichteten Mittelwerts aus den Breiten der drei untersuchten Bereichen ermittelt. Abbildung 7 stellt die berechneten Werte in Abhängigkeit der zugehörigen Aufdampfraten dar.

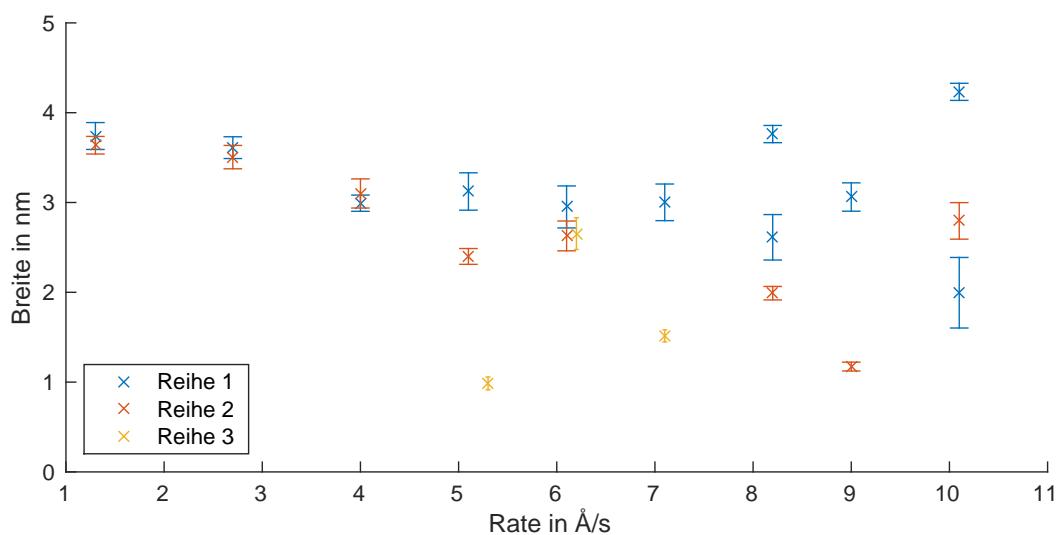


Abbildung 7: Breiten der Verteilungen der Höhenwerte von Proben unterschiedlicher Aufdampfraten. Die Übereinstimmung zwischen den Reihen wird bei größeren Aufdampfraten kleiner. Die kleinste noch reproduzierbare Breite ist bei einer Aufdampfrate von  $6 \text{ \AA s}^{-1}$  zu finden.

Die Breiten der Verteilungen der Höhenwerte verhalten sich ähnlich wie die RMS-Werte. Sie sinken ungefähr bis zu einer Aufdampfrate von  $6 \text{ \AA s}^{-1}$ . Bis zu dieser Aufdampfrate sind die Ergebnisse zwischen den Reihen ebenfalls übereinstimmend. Die Unsicherheiten steigen mit der Aufdampfrate.

Als Ursache dafür kann die oben beschriebene Formveränderung der Höhenverteilungen angenommen werden. Die numerische Anpassung an eine Gauß-Verteilung führt daher zu einem Anstieg der Unsicherheit.

### Mittlere Korngrößen

Als letztes werden die auftretenden Korngrößen analysiert. Die Segmentierung und die Bestimmung der Korngrößen wurden mit einer Wasserscheidentransformation durchgeführt.

Für jede Probe wurde aus den drei ausgewählten Bereichen die mittlere Korngröße ermittelt. Die Varianz der Werte der einzelnen Bereiche dient als Maß für die Unsicherheit. Aus den Ergebnissen der Proben mit gleicher Aufdampfrate wurde der gewichtete Mittelwert berechnet. Für jede Aufdampfrate ergibt sich damit eine mittlere Korngröße.

Bei der Wasserscheidentransformation muss der mögliche numerische Einfluss der Startparameter berücksichtigt werden. Um diesen Einfluss einschätzen zu können, wurden die Startparameter auf unterschiedliche Gesichtspunkte optimiert.

In Durchgang 1 wurden die Parameter so gewählt, dass die Segmentierung der Körner für Proben kleiner Aufdampfraten optimal erscheint. Im Gegensatz dazu wurde die Optimierung für Durchgang zwei an einer Probe mit hoher Aufdampfrate durchgeführt. In Durchgang 3 wurden die Parameter, die für die Lokalisierung der Körner zuständig sind, für jede Probe einzeln optimiert. Die Parameter der Auffüllung, die einen großen Einfluss auf den numerischen Wert haben, wurden konstant gehalten.

Die Ergebnisse der drei Durchgänge sind in Abbildung 8 dargestellt.

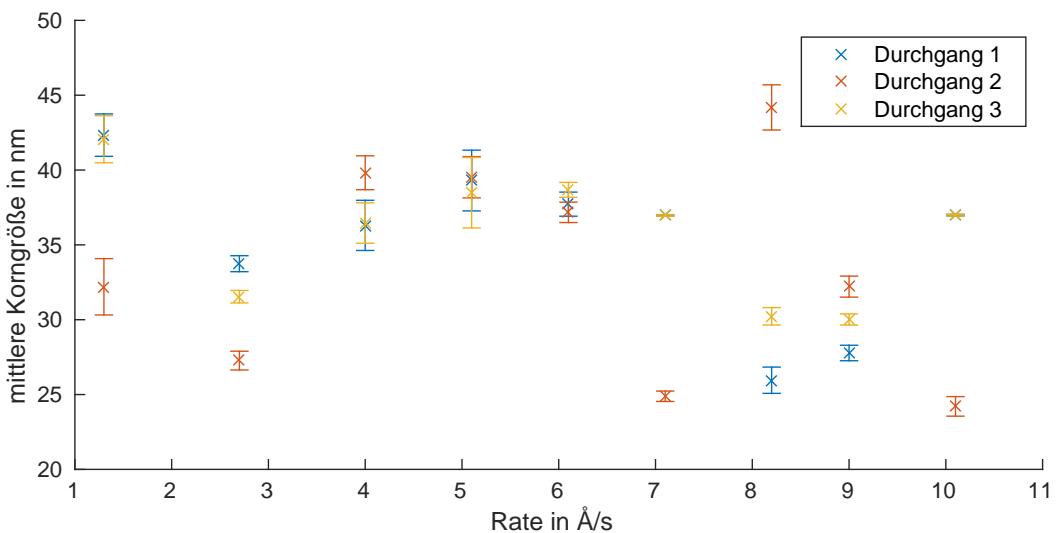


Abbildung 8: Mittele Korngrößen in Abhängigkeit der Aufdampfrate. Die Werte aller Proben einer Aufdampfrate wurden gewichtet mit ihren Unsicherheiten gemittelt. Die drei Durchgänge wurden mit verschiedenen optimierten Startparametern für die Wasserscheidentransformation durchgeführt. Bei den Raten  $7,1 \text{ Å s}^{-1}$  und  $10,1 \text{ Å s}^{-1}$  liegen die Datenpunkte der Durchgänge 1 und 3 exakt übereinander.

Die Ergebnisse zeigen, dass bei der Segmentierung wahrscheinlich stets zu große Korngrößen ermittelt wurden. Im einfachsten Modell ist bei einer Korngröße von 45 nm und einer Schichtdicke von 45 nm kein geschlossener Film mehr zu erwarten. Der optische Vergleich mit den AFM-Bildern legt allerdings den Eindruck eines geschlossenen Films nahe. Aus diesem Grund kann den absoluten Korngrößen nur bedingt eine Aussagekraft beigemessen werden. Aussagekräftiger scheint hingegen der Verlauf der Korngrößen mit der Aufdampfrate zu sein.

Die Werte von Durchgang 1 und Durchgang 3 weisen für alle Raten den gleichen Verlauf auf. Durchgang 2 bestätigt den Verlauf von Durchgang 1 und 3 bis zu einer Rate von  $6 \text{ Å s}^{-1}$ . Die mittlere Korngröße steigt zwischen den Raten  $3 \text{ Å s}^{-1}$  und  $5 \text{ Å s}^{-1}$  an und fällt dann wieder ab.

Eine Erklärung dieses Verlaufs ist unter Berücksichtigung der Wachstumsprozesse dünner Oberflächen möglich. Können Aluminiumatome auf einer polymeren Oberfläche diffundieren, bilden sie aus energetischen Gründen bevorzugt Cluster. Aus diese Clustern entstehen später die sichtbaren Körner. Die Größe der Körner hängt von der Mobilität der Atome ab. Diese wird durch die Temperatur der Probe und durch die zur Diffusion verfügbare Zeit bestimmt. Die Mobilität steigt mit Erhöhung der Temperatur und Verlängerung der Diffusionszeit. Mit steigender Aufdampfrate steigt die Temperatur der Probe, wohingegen die Diffusionszeit abnimmt. Der oben beschriebene Verlauf könnte damit erklärt werden, dass mit steigender Aufdampfrate zuerst der Temperatureffekt und dann der Zeiteffekt überwiegt. [Lei16]

### Zusammenfassung

Die RMS-Werte liefern die deutlichsten Ergebnisse über die Oberflächen. Die Aufdampfrate  $6 \text{ Å s}^{-1}$  ergibt die niedrigste Rauigkeit mit einer guten Reproduzierbarkeit. Die Histogramme der Höhenwerte bestätigen dieses Ergebnis. Die Analyse der Korngrößen hat sich als nicht aussagekräftig herausgestellt, da kein klarer Trend erkennbar ist und damit keine Rate bevorzugt werden kann.

## 4 Elektrische Charakterisierung der Tunnelkontakte

In diesem Abschnitt werden vollständig prozessierte Tunnelkontakte elektrisch charakterisiert. Beide Aluminiumfilme wurden mit Raten um  $6 \text{ \AA s}^{-1}$  aufgedampft. Diese Rate wurde in Abschnitt 3.3 als optimal bestimmt.

Es wird überprüft, ob die Widerstände dieser Tunnelkontakte eine höhere Reproduzierbarkeit aufweisen als die Widerstände von Tunnelkontakten, die mit einer anderen Rate hergestellt wurden. Zusätzlich wird der Zusammenhang zwischen Kontaktfläche und Widerstand der Tunnelkontakte untersucht. Die Kontaktfläche wird über die Breite der Finger variiert.

### 4.1 Oxidation von Aluminium

Lagern sich Sauerstoffmoleküle an der Oxidschicht von Aluminium an, werden diese durch Aluminiumatome unterhalb des Oxids reduziert. Dabei tunneln Elektronen von den Aluminiumatomen durch die Oxidschicht zu den Sauerstoffmolekülen. Die dadurch ionisierten Aluminiumatome sind durch die Oxidschicht räumlich von den reduzierten Sauerstoffmolekülen getrennt. Dadurch entsteht eine Potentialdifferenz, welche auch MOTT-Potential genannt wird. Diese Potentialdifferenz erzeugt einen Diffusionsstrom der reduzierten Sauerstoffmoleküle durch die Oxidschicht zu den ionisierten Aluminiumatomen hin. Dort bildet sich neues Aluminiumoxid. [BGH14, Lim98]

Ab einer bestimmten Dicke der Oxidschicht ist die Tunnelwahrscheinlichkeit für Elektronen durch diese zu klein, sodass der Tunnelstrom der Elektronen zusammenbricht. Der Oxidationsprozess kommt damit selbstständig zum Erliegen [Lim98]. Simulationen des Oxidationsprozesses von BARAN et. al. ergaben, dass ein weiterer begrenzender Faktor des Oxidwachstums die Sauerstoffbedeckung der Oxidoberfläche ist. Diese nimmt mit wachsender Dicke des Oxids ab. Grund dafür ist die sich dabei verändernde Adsorptionsenergie. Als Folge bricht das MOTT-Potential bei einer bestimmten Oxiddicke zusammen. [BGH14]

Der Sauerstoffdruck ändert die Sauerstoffbedeckung der Oberfläche, dadurch beeinflusst er die entstehende Dicke der Oxidschicht. Bei größeren Drücken werden höhere Dicken erreicht. Ab einem Sauerstoffdruck von 1 Torr ist eine maximale Dicke der Oxidschicht von circa  $12,4 \text{ \AA}$  erreicht. [CZMS11]

### 4.2 Vorgehen

Für die Herstellung der Proben wurden alle in Abschnitt 2 beschriebenen Schritte durchgeführt. Die beiden Aluminiumschichten wurden mit einer Rate im Bereich von  $6 \text{ \AA s}^{-1}$  aufgedampft, da sich bei dieser Rate die kleinsten Oberflächenrauigkeiten bilden. Um sicher zu stellen,

## 4 ELEKTRISCHE CHARAKTERISIERUNG DER TUNNELKONTAKTE Teo Conzelmann

---

dass die Sättigungsdicke erreicht ist, betrug die Oxidationszeit mindestens 2 Stunden. Der Sauerstoffpartialdruck lag je nach Probe zwischen 15 µbar und 20 µbar.

Es wurden zwei verschiedene Arten von Proben hergestellt, die sich nur in ihrer Struktur aus Aluminium auf der Oberfläche unterscheiden. Die Struktur *KontaktIdent* besteht aus vier Tunnelkontakten mit Fingern identischer Breite. Mit den Proben dieser Struktur kann die Reproduzierbarkeit der Widerstände überprüft werden.

Die Struktur *KontaktBreiten* besteht aus vier Tunnelkontakten mit Fingern unterschiedlicher Breite (70 nm, 90 nm, 110 nm und 130 nm). Die Kontrolle der Breiten im REM nach dem Aufdampfen zeigte, dass die Aluminiumfinger jeweils etwa 20 nm breiter sind. Mit diesen Proben wurde die Abhängigkeit zwischen Kontaktfläche und elektrischen Widerstand der Kontakte untersucht.

Zur Ermittlung der Widerstandswerte wurde für jeden Kontakt eine Strom-Spannungs-Kennlinie aufgenommen, aus der die Größe des Widerstands an der Steigung abgelesen werden konnte. Fehlerhafte Proben wurden anhand von REM-Bildern von der Auswertung ausgeschlossen. Ein häufig beobachteter Fehler war, dass der Finger nicht auf der Zuleitung aufliegt. Das kann durch einen nicht ausreichenden Versatz der Aluminiumfilme passieren.

Ein weiterer Fehler bestand aus Kurzschlüssen, die Aufgrund von *Pinholes* oder fehlender Oxidschicht auftreten. Um diesen Fehler identifizieren zu können, wurde eine Referenzprobe ohne Oxidschicht hergestellt. Deren Widerstandswerte lagen in der Größenordnung von circa 150 Ω. Kontakte, mit Widerständen dieser Größenordnung, wurden von der Auswertung ausgeschlossen.

### 4.3 Ergebnisse

#### Reproduzierbarkeit der Widerstände

In Abbildung 9 sind die Widerstände der Tunnelkontakte über den Oxidationsdruck aufgetragen. Die Widerstandswerte der Kontakte liegen im Bereich von  $5\text{ k}\Omega$  bis  $45\text{ k}\Omega$ . Die absolute Streuung beträgt somit circa  $40\text{ k}\Omega$  und die relative Streuung liegt bei 1,8. Der Mittelwert der Widerstandswerte ist  $23\text{ k}\Omega$ .

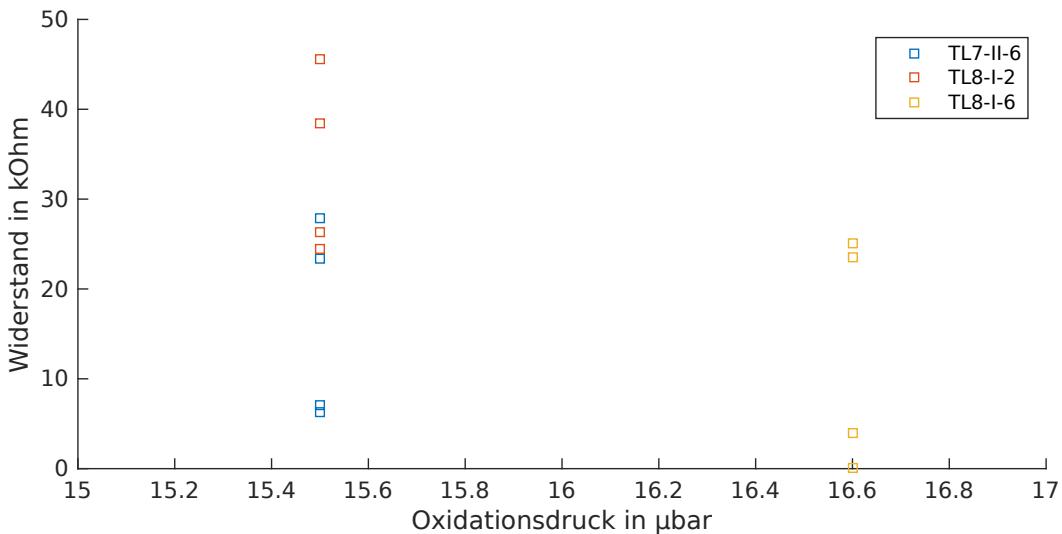


Abbildung 9: Widerstände der Tunnelkontakte auf den Proben mit der Struktur *KontaktIdent*. Die Aluminiumschichten wurden mit Aufdampfraten im Bereich von  $6\text{ \AA s}^{-1}$  hergestellt. Die Widerstände ohne Kurzschlüsse liegen zwischen  $4\text{ k}\Omega$  und  $45\text{ k}\Omega$ .

Um bewerten zu können, ob sich die Reproduzierbarkeit der Widerstände durch die veränderten Aufdampfraten verbessert, werden Vergleichsdaten herangezogen, die aus der Masterarbeit von SPRENGER [Spr16] entnommen wurden. Die Proben aus ihrer Arbeit wurden mit Aufdampfraten im Bereich von  $2,5\text{ \AA s}^{-1}$  hergestellt. Die Daten werden in Abbildung 10 dargestellt. Die Widerstandswerte sind zwischen  $15\text{ k}\Omega$  und  $90\text{ k}\Omega$  verteilt. Die absolute Streuung beträgt  $75\text{ k}\Omega$  und die relative Streuung liegt bei 1,6. Im Mittel haben die Kontakte einen Widerstandswert von  $47\text{ k}\Omega$ .

Die absolute Streuung wurde somit durch die Wahl der optimalen Aufdampfrate halbiert. Beim Vergleich der relativen Streuungen ist allerdings zu sehen, dass sich die Reproduzierbarkeit der Widerstände nicht verbessert hat. Es ist offensichtlich eine bessere Kontrolle des Oxidationsvorgangs nötig, um die Reproduzierbarkeit zu erhöhen (siehe Abschnitt 5).

Die absoluten Widerstandswerte der Proben, die mit Aufdampfraten im Bereich von

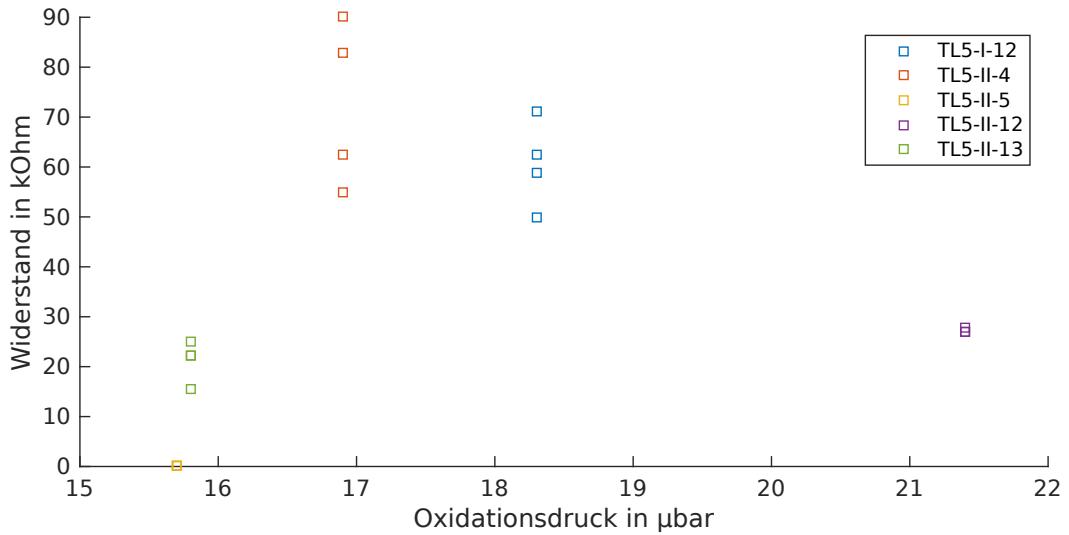


Abbildung 10: Widerstände der Tunnelkontakte auf den Proben mit der Struktur *KontaktIdent*. Die Aluminiumschichten wurden mit Aufdampfraten im Bereich von  $2,5 \text{ Å s}^{-1}$  hergestellt. Die Daten sind aus [Spr16] entnommen. Die Widerstände ohne Kurzschlüsse liegen zwischen  $15 \text{ k}\Omega$  und  $90 \text{ k}\Omega$ .

$6 \text{ Å s}^{-1}$  hergestellt wurden, sind kleiner als die Widerstandswerte der anderen Proben. Der Mittelwert hat sich halbiert. Das kann vermutlich damit erklärt werden, dass auf einer glatten Aluminium-Oberfläche das Oxid gleichmäßiger wächst. Dadurch haben die Finger eine größere Auflagefläche auf den Zuleitungen, was zu kleineren Widerständen führt.

### Einfluss der Kontaktfläche auf den Widerstand

Die Größe der Kontaktflächen wurde anhand der Fingerbreite variiert. Es besteht eine Proportionalität zwischen den beiden Größen.

In Abbildung 11 sind die Widerstandswerte über die Fingerbreiten aufgetragen. Die Daten wurden mit linearen Funktionen angepasst. Die Probe *TL6-I-14* wurde mit einer Rate von circa  $2,5 \text{ Å s}^{-1}$  hergestellt. Von dieser Probe wurde ein Kontakt von der Auswertung ausgeschlossen, da ihr Finger direkt mit der Zuleitung verbunden ist. Die anderen Proben (*TL6-I-3* und *TL8-I-12*) wurden mit Raten im Bereich von  $6 \text{ Å s}^{-1}$  hergestellt.

Die Daten deuten einen linearen Zusammenhang zwischen Breite der Finger und Widerstandswert an. Damit ist auch die Kontaktfläche proportional zum Widerstand.

Physikalisch ist zwischen Kontaktfläche und Widerstandswert ein anderer Zusammenhang zu erwarten, wenn der Widerstandswert durch die Kontaktfläche dominiert werden würde. Im Grenzwert der Breite gegen Null sollte der Widerstandswert gegen unendlich gehen.

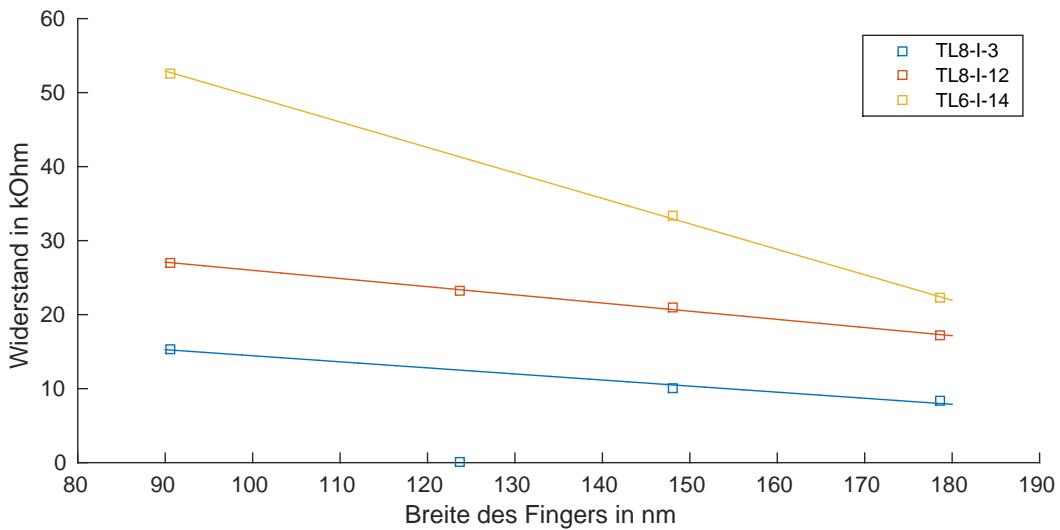


Abbildung 11: Widerstandswerte in Abhängigkeit der Fingerbreiten. Die Daten sind linear angepasst. Probe *TL6-I-14* wurde mit einer Rate von circa  $2,5 \text{ \AA s}^{-1}$  hergestellt. Proben *TL8-I-3* und *TL8-I-12* wurden mit Raten im Bereich von  $6 \text{ \AA s}^{-1}$  hergestellt.

Für unendlich große Breiten sollte der Widerstandswert gegen Null gehen. Das Verhalten entspräche einer Parallelschaltung von Widerständen und wäre damit proportional zu  $x^{-1}$  und nicht linear.

Allerdings könnte der gemessene lineare Zusammenhang damit erklärt werden, dass die Randeffekte in dem eben vorgestellten Modell nicht beachtet werden. Wenn die Widerstandswerte im Bereich der untersuchten Breiten von Randeffekten dominiert werden, ist ein linearer Verlauf denkbar.

Bei den Geraden der Proben, die mit hohen Aufdampfraten hergestellt wurden, sind die Steigungen nahezu identisch (*TL8-I-3*:  $-0,082 \text{ k}\Omega \text{ nm}^{-1}$  und *TL8-I-12*:  $-0,110 \Omega \text{ nm}^{-1}$ ). Die Gerade der Probe *TL6-I-14* weist mit dem Wert  $-0,344 \Omega \text{ nm}^{-1}$  einen deutlich höheren Betrag der Steigung auf. Daraus folgt, dass die Abhängigkeit des Widerstandswerts von der Fingerbreite bei Probe *TL6-I-14* stärker ist.

Eine mögliche Erklärung dafür könnte der Längenunterschied der Finger zwischen den verschiedenen Aufdampfraten sein. Die Auswertung der REM-Bilder ergab, dass die Finger der zwei Proben mit den hohen Aufdampfraten circa doppelt so weit auf der Zuleitung liegen wie die Finger der Probe mit der niedrigen Aufdampfrate. Dadurch sind die Kontaktflächen der Proben mit den hohen Aufdampfraten ungefähr doppelt so groß wie bei der Probe mit niedriger Aufdampfrate. Das führt eventuell zu einem unterschiedlich starken Einfluss der Randeffekte und verändert damit die Abhängigkeit des Widerstandswerts von der

#### 4 ELEKTRISCHE CHARAKTERISIERUNG DER TUNNELKONTAKTE Teo Conzelmann

Fingerbreite.

Zudem ist zu sehen, dass die Geraden in  $y$ -Richtung zueinander verschoben sind. Die Kontakte der Probe mit der niedrigen Aufdampfrate (*TL6-I-14*) weisen die höchsten Widerstände auf. Das deckt sich mit den Erkenntnissen aus dem vorhergehenden Teil der Arbeit.

## 5 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde der Zusammenhang zwischen der Aufdampfrate und Rauigkeiten von dünnen Aluminiumfilmen analysiert. Die Auswirkungen der Rauigkeiten auf Tunnelkontakte aus Aluminium-Aluminiumoxid-Aluminium werden anhand elektrischer Messungen untersucht.

Es konnte gezeigt werden, dass die Aufdampfrate Einfluss auf die Rauigkeit der Oberfläche von dünnen Aluminiumfilmen hat. Bis zu einer Rate von  $6 \text{ \AA s}^{-1}$  sind die Ergebnisse sehr gut reproduzierbar. Diese Rate weist den niedrigsten reproduzierbaren RMS-Wert auf. Es muss allerdings beachtet werden, dass diese Ergebnisse von der verwendeten Aufdampfanlage abhängig sind.

Die Widerstände der Proben mit geringen Rauigkeiten sind kleiner als die mit höheren Rauigkeiten. Die relative Streuung der Widerstandswerte konnte durch die Kontrolle der Oberflächenrauigkeit nicht verbessert werden. Die absolute Streuung wurde halbiert.

Um eine höhere Reproduzierbarkeit der Widerstände zu erlangen, muss im nächsten Schritt der Oxidationsprozess optimiert werden. Eine Möglichkeit dafür ist, die Temperatur der Proben vor und während der Oxidation zu kontrollieren. Außerdem kann versucht werden, den Oxidationsdruck vor der Oxidation schneller aufzubauen. Zusätzlich können Kontakte, die höhere Widerstandswerte haben, auf die absolute Streuung ihrer Widerstandswerte untersucht werden. Bleibt die absolute Streuung gleich, sinkt die relative Streuung. Die Erhöhung der Widerstandswerte kann erreicht werden, indem die Winkel bei den Verdampfungsstufen oder die Breite der Finger der Kontakte verkleinert werden.

Zudem wurde gezeigt, dass die Widerstandswerte von der Größe der Auflagefläche des Fingers auf der Zuleitung abhängig sind. Es besteht ein nahezu linearer Zusammenhang. Die Stärke der Abhängigkeit hängt vermutlich von der Größe der Auflagefläche ab. Für ein tieferes Verständnis, wie dieser Zusammenhang durch Randeffekte beeinflusst wird, sind weitere Experimente notwendig.



## Literatur

- [BGH14] Jakub D. Baran, Henrik Grönbeck, and Anders Hellman. Mechanism for Limiting Thickness of Thin Oxide Films on Aluminum. *Phys. Rev. Lett.*, 112:146103, April 2014.
- [CZMS11] Na Cai, Guangwen Zhou, Kathrin Müller, and David E. Starr. Tuning the Limiting Thickness of a Thin Oxide Layer on Al(111) with Oxygen Gas Pressure. *Phys. Rev. Lett.*, 107:035502, Juli 2011.
- [FD87] T. A. Fulton and G. J. Dolan. Observation of single-electron charging effects in small tunnel junctions. *Phys. Rev. Lett.*, 59:109–112, Jul 1987.
- [FPT98] R. J. Fitzgerald, S. L. Pohlen, and M. Tinkham. Observation of Andreev reflection in all-superconducting single-electron transistors. *Phys. Rev. B*, 57:R11073–R11076, Mai 1998.
- [HDV<sup>+</sup>98] P. Hadley, E. Delvigne, E. H. Visscher, S. Lähteenmäki, and J. E. Mooij. 3e tunneling processes in a superconducting single-electron tunneling transistor. *Phys. Rev. B*, 58:15317–15320, Dezember 1998.
- [KNA16] Petr Klapetek, David Necas, and Christopher Anderson. *Gwyddion user guide*, Mai 2016.
- [Lei16] Prof. Dr. Paul Leiderer. Persönliches Gespräch am 24. Juni, 2016.
- [Lim98] Bernhard Limbach. Untersuchung von Einzelelektronentransistoren auf der Basis von nanostrukturiertem Aluminium, April 1998.
- [Sch09] Christian Schirm. *Einfluss hoher Ströme auf atomare Kontakte*. PhD thesis, 2009.
- [Spr16] Susanne Sprenger. Herstellung und Charakterisierung von supraleitenden Einzelelektronentransistoren. Juni 2016.



**Abbildungsverzeichnis**

1	REM-Aufnahme eines Tunnelkontakte . . . . .	6
2	Schematische Darstellung der Probenherstellung . . . . .	7
3	AFM-Aufnahmen mit grober Verunreinigung und Bildung eines Artefakts . .	10
4	Qualitativer Vergleich der Oberflächen . . . . .	11
5	RMS-Werte . . . . .	12
6	Vergleich der Verteilung der Höhenwerte zweier Proben . . . . .	13
7	Breiten der Höhenverteilungen der Proben . . . . .	14
8	Mittele Korngrößen . . . . .	15
9	Widerstände der Tunnelkontakte in Abhängigkeit des Oxidationsdrucks. Auf-dampfraten im Bereich $6 \text{ Å s}^{-1}$ . . . . .	19
10	Widerstände der Tunnelkontakte in Abhängigkeit des Oxidationsdrucks. Auf-dampfraten im Bereich $2,5 \text{ Å s}^{-1}$ . . . . .	20
11	Widerstände der Tunnelkontakte in Abhängigkeit der Fingerbreiten . . . . .	21



## Danksagung

An erster Stelle danke ich Frau Prof. Dr. Elke Scheer dafür, dass Sie mir die Durchführung meiner Bachelorarbeit in Ihrer Arbeitsgruppe ermöglicht haben. Es war für mich sehr hilfreich, dass wir meine Daten persönlich diskutieren konnten und Sie mir dadurch neue Ideen für die Arbeit vermittelten. Ich danke Herrn Dr. Torsten Pietsch für die Übernahme der Zweitkorrektur.

Die Arbeitsgruppe hat mich vom ersten Tag an freundlich aufgenommen und gab mir bei allen Problem eine schnelle Hilfestellung. Ich möchte mich besonders bei Martin und Julian für die schnellen Reparaturen der Aufdampfanlage bedanken.

Ein großer Dank geht an meine Eltern, die mir das Studium erst ermöglicht haben und mich während des ganzen Studiums unterstützt haben. Ein großes Dankeschön geht an Anja und meinen Vater. Ihr habt viel Zeit investiert, um meine schriftliche Arbeit durch Anmerkungen zu verbessern.

Der größte Dank geht an meine Betreuer Susi und Thomas. Die Begeisterung für eure Forschung hat sich schnell auf mich übertragen. Ihr habt mir mit viel Geduld und Aufwand alle Abläufe und die Bedienung aller Geräte im Labor gezeigt und habt mich sogar ins das NanoLab eingeführt. Ich konnte Euch jederzeit mit Fragen und Problemen aufsuchen, für deren Beantwortung Ihr euch immer viel Zeit genommen habt. Die kubanischen Abende werde ich nicht vergessen.