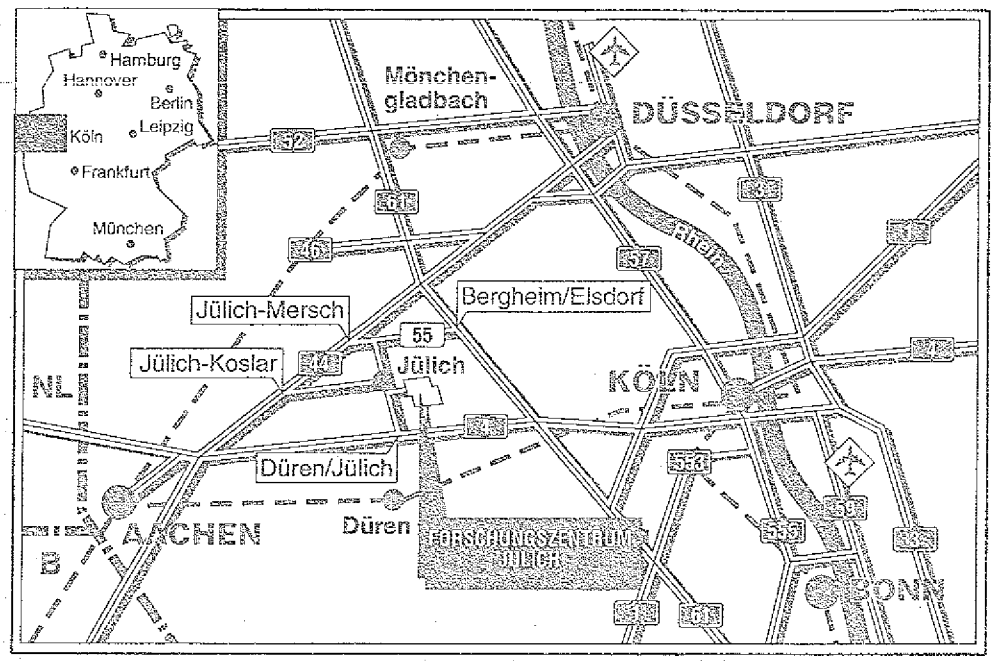
FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GmbH KFA

Institut für Schicht- und Ionentechnik

Präparation und Charakterisierung von kleinen Nb-Al-Al_2O_3-Nb-Tunnelkontakten

Dirk Heumann



Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 2520
ISSN 0366-0885
Institut für Schicht- und Ionentechnik Jül-2520

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek
Postfach 1913 · D-5170 Jülich · Bundesrepublik Deutschland
Telefon: 02461/61-6102 · Telefax: 02461/61-6103 · Telex: 833556-70 kfa d

Präparation und Charakterisierung von kleinen Nb-Al-Al_2O_3-Nb-Tunnelkontakten

Dirk Heumann

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung:

Josephson-Kontakte, die auf Supraleiter-Isolator-Supraleiter-Kontakten (kurz SIS-Kontakten) basieren, können vielfältig in verschiedenen Anwendungen wie Magnetfeldsensoren, Mischern, Verstärkern und in digitalen Schaltungen verwendet werden.

Insbesondere bei digitalen Schaltungen, angefangen bei einfachen Gattern bis zu kompletten Mikroprozessoren, ist aber eine hohe Reproduzierbarkeit der Kontakte, eine hohe Integrationsdichte und eine einfache Prozeßführung mit wenigen Prozeßschritten notwendig. Dies trifft insbesondere dann zu, wenn man die große Konkurrenz durch herkömmliche Si- und aufstrebende GaAs-Technologie in Betracht zieht.

Vorteilhaft für die Nb-Technologie im Vergleich mit der Si- und GaAs-Technologie ist der geringere Energieverbrauch und die kurzen Schaltzeiten von wenigen Picosekunden. Beides ist wichtig für eine hohe Integration (wegen der hohen Wärmeentwicklung mußte man in der Si-Technik von den schnelleren bipolaren- zu den langsameren und sparsameren CMOS-Schaltkreisen übergehen) und eine hohe Taktfrequenz (Josephson-Elemente: Taktfrequenzen im unteren GHz-Bereich üblich und bis in THz-Bereich mit RSFQ-Logik möglich) der benötigten Bauteile.

Die extrem hohen Taktfrequenzen, die geforderte hohe Integration sowie der Zwang zu kleinen Verlustleistungen zwingen zum Bau von sehr kleinen, möglichst sub-μm-Kontakten mit niedrigen RC-Werten.

In dieser Arbeit wurde versucht, gut reproduzierbare, zwei bis 800 μm^2 große Josephson-Kontakte aus Nb-Al-Al_2O_3/Nb zu präparieren. Die Herstellungsprozesse sollten hierbei möglichst einfach sein und keine naßchemischen Prozeßschritte verwenden.

Hierfür wurden geshuntete Josephson-Kontakte und nicht geshuntete, in-situ hergestellte Josephson-Kontakte präpariert.

2 Theoretische Grundlagen des Josephson-Kontakts

2.1 Die Supraleitung

Der supraleitende Zustand, der 1911 von Heike Kamerlingh Onnes an Quecksilber entdeckt wurde, beruht auf der Bildung von Elektronenpaaren, den sogenannten Cooper-Paaren. Hierbei paaren sich zwei Elektronen mit jeweils entgegengesetztem Spin und Impuls (Cooper-Paar: $\vec{p}\uparrow$, $-\vec{p}\downarrow$) und bilden ein Boson, weshalb sie nicht mehr der Fermi-Statistik, sondern der Bose-Statistik folgen und einen gemeinsamen „makroskopischen" Quantenzustand besetzen.

2.2 Der SIS-Kontakt

Hat man einen Supraleiter-Isolator-Supraleiter-Kontakt (SIS-Kontakt) — die Isolatorschicht ist hierbei nur wenige nm dünn — so muß man bei dem Anlegen einer Spannung an die beiden Supraleiter zwei Ströme trennen, da durch die Isolationsschicht Elektronen und Cooper-Paare tunneln.

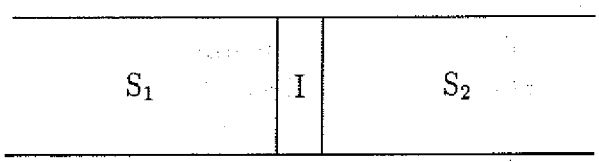


Abbildung 1: Bild eines SIS-Kontakts, z.B. eines Nb-Nb_2O_5-Nb Kontakts.

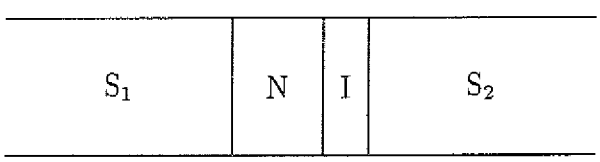


Abbildung 2: Bild eines SNIS-Kontakts, z.B. eines Nb-Al-Al_2O_3-Nb Kontakts

2.2.1 Der Quasipartikel-Tunnelstrom

Bei der Beschreibung der Quasipartikel-Tunnelströme muß natürlich auf das Pauli-Prinzip geachtet werden. Damit muß der Tunnelstrom $I_{L\to R}$ vom linken

Supraleiter S_L in den rechten Supraleiter S_R proportional

- zur Tunnel-Wahrscheinlichkeit
- zur Konzentration der Elektronen im linken Supraleiter (Anzahl der besetzten Zustände) $N_L(E)f_L(E)$
- zur Anzahl der unbesetzten Zustände im rechten Supraleiter $N_R(E)(1-f_R(E))$

sein. So erhält man für die Tunnelwahrscheinlichkeit von Elektronen von der linken in die rechte Elektrode:

$$I_{L\to R} = \frac{2\pi}{\hbar}\int_{-\infty}^{+\infty} |T|^2 N_L(E) f_L(E) N_R(E)(1-f_R(E))dE$$

Der Gesamtstrom I ergibt sich aus der Summe der beiden Tunnelströme $I_{L\to R}$ und $I_{R\to L}$, wobei die Energie eines Supraleiters bei angelegter Spannung um eV erhöht wird:

$$I = \frac{2\pi}{\hbar}\int_{-\infty}^{+\infty} |T|^2 N_L(E) N_{R(E+)}(f_L(E) - f_R(E+eV))dE$$

Nimmt man das Tunnel-Matrixelement $|T|$ als energieunabhängig an und setzt die Zustandsdichten für Elektronen im Supraleiter ein (Siehe z.B. Abbildung 20 bei Buckel [4]), so kann man das Integral numerisch lösen.

2.2.2 Der Cooper-Paar-Tunnelstrom

Für Cooper-Paare $\vec{p}\uparrow$, $-\vec{p}\downarrow$, die den Gesamtspin 0 haben, muß das Pauli-Prinzip nicht beachtet werden. So befinden sich alle Cooper-Paare in einem Supraleiter in ein und demselben Zustand $\psi = \sqrt{n}e^{i\phi}$, wobei n die Cooper-Paar-Dichte und ϕ ihre Phase darstellt (Amplitude $\propto \sqrt{\text{Dichte}}$).

Der Cooper-Paar-Tunnelstrom läßt sich phänomenologisch mit einer Herleitung von Feynman (1965; siehe Barone [2], S. 9 ff, Hinken [11] S. 65 ff) berechnen, wobei man von zwei getrennten Cooper-Paar-Wellenfunktionen $\Psi_i = \sqrt{n_{Ci}}\, e^{i\phi_i}$, $i = 1, 2$ für den linken bzw. rechten Supraleiter ausgeht. Hierbei ist n_{Ci} die Cooper-Paar-Konzentration und ϕ_i die Phase der Cooper-Paare.

Die beiden Wellenfunktionen müssen der zeitunabhängigen Schrödinger-Gleichung gehorchen. Wegen der Kopplung durch die dünne Barriere kommt jeweils ein Koppelterm hinzu:

$$\frac{\partial \Psi_i}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar}E_i\Psi_i + E_K\Psi_{j,j\neq i}.$$

Hieraus kann berechnet werden, daß die Stromdichte J in folgender Weise von der Phasendifferenz $\phi = \phi_1 - \phi_2$ abhängt:

$$J = J_c \sin\phi,$$

wobei J_c die kritische Stromdichte darstellt, bei der alle Cooper-Paare aufbrechen.

Will man die kritischen Stromdichten durch einen Kontakt berechnen, so muß man die mikroskopische Theorie, die komplizierte BCS-Theorie (Barone [2], S. 25 ff) anwenden. Es ergibt sich die in Abbildung 3 sichtbare Kennlinie.

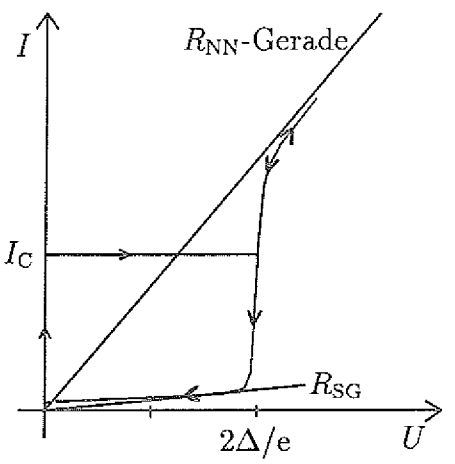


Abbildung 3: IV-Kennlinie eines SIS-Kontakts mit Quasipartikel- und Cooper-Paar Tunnelstrom. R_{NN} =Normalwiderstand des Kontakts, R_{SG} =Widerstand unter Energielücke (sub gap)

2.3 Der Qualitätsparameter V_m

Josephson-Tunnelkontakte haben eine besonders hohe Güte, wenn das Verhältnis von Cooper-Paar- zu Quasipartikel-Tunnelstrom für Spannungen unterhalb von $2\Delta/e$ besonders groß ist. Als Maß für die Qualität eines Kontakts definierte man $V_m = I_C \cdot R_{SG}(U) = I_C \cdot U/I(U)$ (siehe Abbildung 3).

Für Nb-Tunnelkontakten wählt man im U =2mV ($\frac{2\Delta(4{,}2\ \mathrm{K})}{e}$ = 3mV). Dies ergibt z.B. bei dem Kontakt von Abbildung 4 einen Wert von V_m von 6 mV.

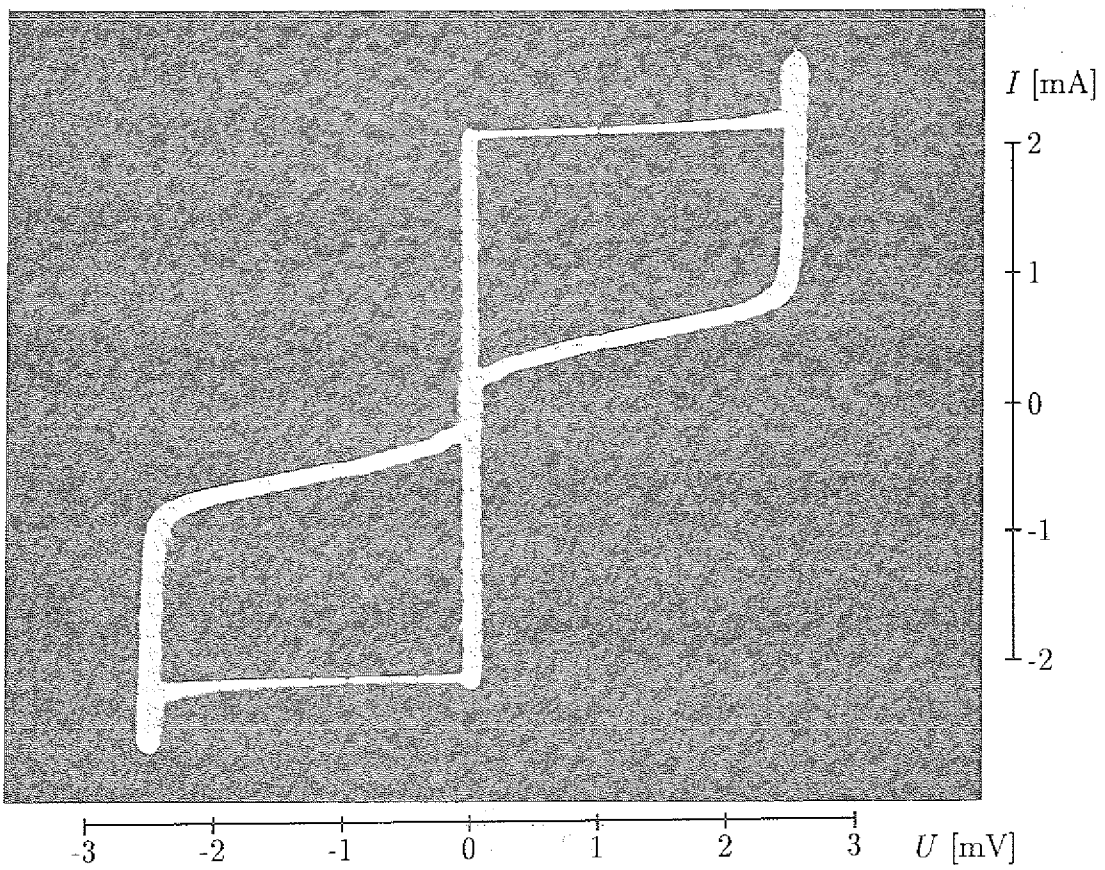


Abbildung 4: IV-Kurve von Probe XL.4

$$I_C = 2,1 \text{ mA}, V_m = 2,1 \text{ mA} \cdot \frac{2 \text{ mV}}{0,7 \text{ mA}} = 6 \text{ mV}.$$

2.4 Die Abhängigkeit des Tunnelstroms vom Magnetfeld

Betrachten wir einen *rechteckigen* Josephson-Kontakt mit homogener Barriere, welche senkrecht zur Z-Achse ist, eine Fläche $L_x \cdot L_y$ hat und auf den ein homogenes Magnetfeld $B = B_y = \vec{B} = (0, B, 0)$ einwirkt (siehe Abbildung 5):

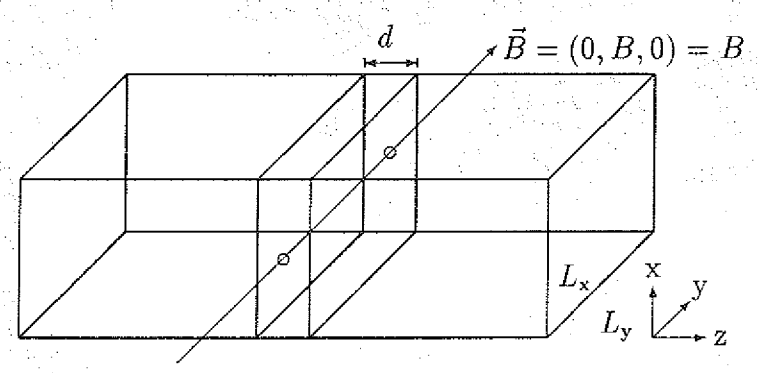


Abbildung 5: Josephson-Kontakt im Magnetfeld

Ist die dem Magnetfeld zugewandte Seite L_x kleiner als die Josephson-Eindringtiefe λ_j, mit

$$\lambda_j = \sqrt{\frac{\Phi_0}{2\pi\mu_0\, d\, j_{\max}}}, \tag{1}$$

wobei $d = d_I + \lambda_1 + \lambda_2$ (bzw. $d = d_I + d_N + \lambda_1 + \lambda_2$ für SNIS Kontakte) die effektive Spaltdicke darstellt mit d_I = Dicke der Isolationsschicht, d_N die Dicke des Normalleiters und λ_1 bzw. λ_2 = London-Eindringtiefen der Grund- bzw. Deckelektrode, so kann man den Einfluß des Stroms durch die Barriere vernachlässigen und man erhält folgende Abhängigkeit vom Magnetfeld (siehe Abbildung 6):

$$\frac{I_C(B)}{I_C} = \frac{\sin(\pi\Phi/\Phi_0)}{\pi\Phi/\Phi_0} \tag{2}$$

Φ ist hierbei der magnetische Fluß durch den Kontakt und $\Phi_0 = \frac{h}{2e} \approx 2 \cdot 10^{-15}\mathrm{Tm}^2$ das Flußquant.

Für andere Kontaktgeometrien oder inhomogene Stromverteilungen durch die Barriere ergeben sich andere, sprich kompliziertere, nicht mehr geschlossen lösbare Abhängigkeiten, welche sich nur numerisch berechnen lassen. Für eine umfangreiche Darstellung von $I_C(B)$ bei unterschiedlichen Kontaktgeometrien und Stromverteilungen verweise ich auf Barone [2].

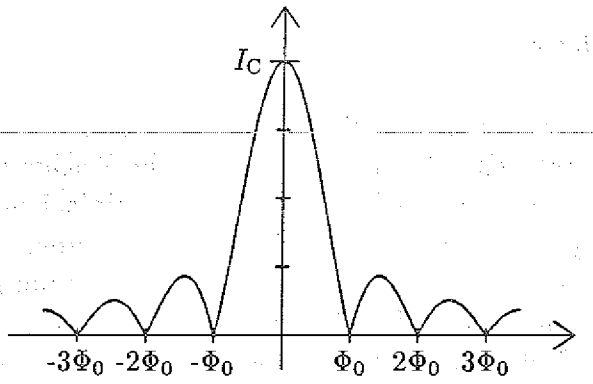


Abbildung 6: Tunnelstrom gegen eingeprägtem Fluß

Als einfache Merkregel für die komplizierten Zusammenhänge läßt sich sagen, daß ein erhöhter Stromfluß im Zentrum des Kontakts für eine Verkleinerung und ein erhöhter Stromfluß in der Peripherie des Kontakts für eine Vergrößerung der Nebenmaxima (siehe Gleichung 2) sorgt.

3 Präparation der geshunteten Josephson-Kontakte

In diesem Kapitel werde ich die Präparation der geshunteten Kontakte beschreiben, wobei auf Seite 14 und 15 schematische Zeichnungen der Prozeßschritte eingefügt sind, um das Verständnis zu vereinfachen.

Die Zeichnungen stellen jeweils Schnitte durch einen Teil der Proben dar, welche am Ende der Präparation zwei hintereinandergeschaltete Tunnelkontakte ergeben. Dies erleichtert zum einen die Vorstellung über den Stromfluß in der Probe und entspricht zum anderen auch genau einem Ausschnitt der von mir am meisten hergestellten Proben von in Reihe geschalteten Josephson-Kontakten.

Probleme, die während der Prozeßschritte auftreten, werden in einem abschließendem Abschnitt am Ende des Kapitels ausgeführt und erläutert.

3.1 Kurzbeschreibung der Herstellung:

Auf einem gereinigten Si-Wafer wird im ersten Schritt die Nb-Grundelektrode mittels DC-Sputterns aufgetragen und anschließend im Lift-off strukturiert. Anschließend wird SiO aufgedampft, um die Tunnelkontaktflächen in einem Lift-off-Prozeß zu definieren und die Grundelektrode zu isolieren. Im letzten Vakuumzyklus wird Al gesputtert, das aufgetragene Al in 1 mbar O_2 Athmosphäre oxidiert und anschließend die Nb-Gegenelektrode durch DC-Sputtern — analog dem Auftragen der Grundelektrode — aufgebracht. Die im letzten Vakuumzyklus aufgebrachten Schichten werden anschließend im Lift-off strukturiert.

3.2 Präparation der Grundelektrode

Das Substrat (Si-Wafer) wird gereinigt und anschließend mit Photolack belackt. Als Photolacke werden AZ 1350 und AZ 1512 verwendet, die, abhängig von der verwendeten Maske, mit 2000 bis 4000 Umdrehungen pro Minute auf einer Lackschleuder geschleudert werden. Anschließend kommen die Wafer für 30 Minuten in einen 75° Grad warmen Ofen.

Nach dem Belichten und Entwickeln in 0,2-molarer Natronlauge kommt der Wafer in eine turbogepumpte Sputteranlage[1] und der Rezipient wird bis auf einen Hintergrunddruck $p_H < 3 \cdot 10^{-4}$ Pa abgepumpt.

[1] während der ersten Wochen wurde auch eine Balzer Sputteranlage mit Diffusionspumpe genutzt (siehe Abschnitt 10.1.1)

Aktion	Druck	Dauer	Anmerkungen
Abpumpen	$\rightarrow 3 \cdot 10^{-4}$ Pa	6–8 h	
Vorsputtern Nb	0,6 Pa Ar	2 min	DC-Sputtern, 750 mA
Ionenätzen	0,6 Pa Ar	2 min	RF-Sputtern, 800 V DC-Potential
Vorsputtern Nb	0,6 Pa Ar	1 min	DC-Sputtern, 750 mA
Sputtern Nb	0,6 Pa Ar	45 sec	DC-Sputtern, 750 mA

Tabelle 1: 1. Vakuumzyklus, Präparation der Grundelektrode

Nach Erreichen des Hintergrunddruckes kann mit den Vorbereitungen für das Aufsputtern der Nb-Schicht begonnen werden. Der Druck wird durch Einlaß von 99,999%-igen Argon auf 0,6 Pa erhöht und die Wasserkühlung für den Substrathalter angeschaltet. Um das Nb-Target und das Substrat zu reinigen, wird das Nb-Target vorgesputtert und das Substrat mittels eines mehrminütigen Ionenätzen gereinigt. Bei den in Tabelle 1 genauer ersichtlichen Prozeßbedingungen wird die Grundelektrode bei 750 mA Strom mit einer Sputterrate von 2,45±0,1 nm/min erzeugt.

Nach einer kurzen Pause kann die Sputteranlage belüftet werden. Das Substrat wird aus der Sputteranlage herausgenommen und für den Lift-off in eine Abdeckschale mit Aceton gegeben. Nach dem Lift-off ist der Wafer bereit für Vorbereitungen des zweiten Vakuumzyklus.

3.3 Präparation der Isolation

Nach dem erfolgreichen Lift-off der Grundelektrode wird der Wafer mit Photolack belackt um die Kontaktflächen für die Josephson-Kontakte zu definieren. Hierfür werden, abhängig von der Größe der Kontakte, folgende Fotolacke verwendet:

Bezeichnung	Art	Kontaktgröße
AZ 1350	positiv-Photolack	$> 20 \cdot 20\ \mu m^2$
AZ 1512	positiv-Photolack	$> 20 \cdot 20\ \mu m^2$
PMMA 200	positiv-Elektronenstrahl-Photolack	$< 5 \cdot 5\ \mu m^2$
PMMA 496	positiv-Elektronenstrahl-Photolack	$< 5 \cdot 5\ \mu m^2$
PMMA 950	positiv-Elektronenstrahl-Photolack	$< 5 \cdot 5\ \mu m^2$.

Die Elektronenstrahl-Photolacke werden nach dem Aufspinnen bei 2000 bis 4000 U/min in einer Lackschleuder belackt und zwei Stunden bei 150–

175°C getrocknet und gehärtet. Entwickelt wird der PMMA-Lack in einem organischen Entwickler. Die Verarbeitung der AZ-Photolacke erfolgt wie im vorigen Abschnitt beschrieben.

Nach der Belichtung und Entwicklung kommt der Wafer in die Varian-Aufdampfanlage (siehe Abschnitt 10.1.3). Ist ein Hintergrunddruck von $6 \cdot 10^{-5}$ mbar erreicht, so wird der Druck mit Argon auf $2 \cdot 10^{-2}$ mbar erhöht und 2 Minuten lang mit ca. 15 Watt ionengeätzt. Anschließend wird der Argonzufluß wieder abgeschaltet und man beginnt mit dem Dampfen von SiO.

Um Verschmutzungen auf der Probe zu vermeiden, dampft man eine halbe Minute auf ein Schutzschild, welches man vor die Probe drehen kann — in dieser Zeit kann man einen kurzen Anstieg und dann den Abfall des Drucks sehen und so beobachten, daß anfangs Verschmutzungen abdampfen — und bedampft dann das Substrat. Beim Aufdampfen muß man die Probe genau beobachten, da hier die Schichtdicke mit Hilfe der Interferenzfarben zu kontrollieren ist. Dieser Vorgang dauert ca. 20 bis 40 Sekunden. Nach Abkühlen der Probe wird die Aufdampfanlage geöffnet und die Isolationsschicht durch Lift-off im Acetonbad strukturiert (siehe Abbildungen (f) und (g) auf Seite 14).

3.4 Al-Tunnelschicht und Deckelektrode

Nach dem Auftragen, Belichten und Entwickeln des Photolacks (analog Grundelektrode) wird die Probe in eine Leybold-Sputteranlage (siehe S. 78) eingelegt und der letzte Vakuumzyklus kann beginnen.

Nach dem Erreichen des Hintergrunddrucks $p_H < 3 \cdot 10^{-4}$ Pa wird die Wasserkühlung des Substrathalters eingeschaltet. Dann wird das Substrat mehrmals mittels Ionenätzen gereinigt und Aluminium mit unterschiedlichen Spannungen vorgesputtert (siehe Tabelle 2).

Nach dem Aufsputtern des Aluminiums wird die Argonzufuhr abgeschaltet und der Rezipient auf den ursprünglichen Hintergrunddruck abgepumpt. Die Vakuumpumpen werden ausgeschaltet und 99,998%-iger Sauerstoff wird eingelassen, bis 100 Pa erreicht sind. In dieser Sauerstoff-Athmosphäre wird das Substrat zweieinhalb Stunden oxidiert.

Nach dem thermischen Oxidieren wird die Sputteranlage wieder abgepumpt, bis der ursprüngliche Hintergrunddruck von $p_H < 3 \cdot 10^{-4}$ Pa erreicht ist. Dann wird die Wasserkühlung eingeschaltet, der Druck durch Argon-Zufluß auf 0,6 Pa erhöht und nach zweiminütigem Ionenätzen und Vorsputtern von Niob die Deckelektrode aufgesputtert. Die Wasserkühlung wird abgeschaltet und der Rezipient nach einer kurzen Pause geöffnet.

Nach dem abschließenden Lift-off in Aceton ist der Wafer fertiggestellt

und der Wafer wird mit einer Wafersäge gesägt, um einzelne kleine Proben zu erhalten.

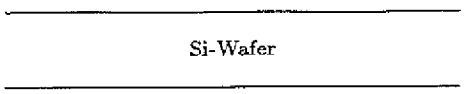
Aktion	Druck	Dauer	Anmerkungen
Abpumpen	$\rightarrow 3 \cdot 10^{-4}$ Pa	ca. 6–8 h	
Ionenätzen	0,6 Pa Ar	2 min	800 V DC-Potential
Vorsputtern Al	2 Pa Ar	2 min	RF-Sputtern, 600 V DC-Potential
Al	2 Pa Ar	1 min	RF-Sputtern, 800 V DC-Potential
Al	2 Pa Ar	1 min	RF-Sputtern, 1000 V DC-Potential
Al	2 Pa Ar	1 min	RF-Sputtern, 1200 V DC-Potential
Al	2 Pa Ar	2 min	RF-Sputtern, 1500 V DC-Potential
Ionenätzen	2 Pa Ar	2 min	800 V DC-Potential
Vorsputtern Al	2 Pa Ar	1 min	RF-Sputtern, 600 $\rightarrow$ 1500 V DC-Potential
Sputtern Al	2 Pa Ar	ca. 20 sec.	RF-Sputtern, 1500 V DC-Potential
Abpumpen	$\rightarrow 3 \cdot 10^{-4}$ Pa	5–10 min	
O_2 einlassen	100 Pa O_2	ca. 1 min	
Oxidation	100 Pa O_2	2 h 30 min	
Abpumpen	$\rightarrow 3 \cdot 10^{-4}$ Pa	1–2 h	
Vorsputtern Nb	0,6 Pa Ar	2 min	DC-Sputtern, 750 mA
Sputtern Nb	0,6 Pa Ar	45 sec	DC-Sputtern, 750 mA

Tabelle 2: 3. Vakuumzyklus, Präparation der Al-Al_2O_3/Nb-Schicht

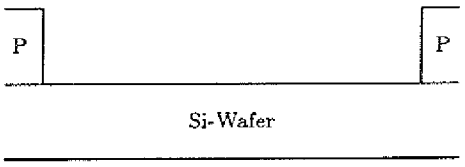
Zeichnungen zu den Prozeßschritten

Auf den folgenden zwei Seiten befinden sich die Zeichnungen zu den Prozeßschritten.

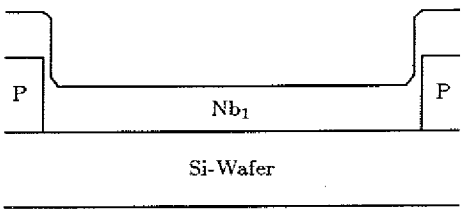
(a) Prozeßvorbereitungen
- Substrat reinigen



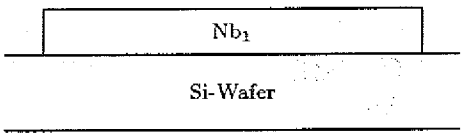
(b) 1. Lithografieschritt
(P = Photolack)



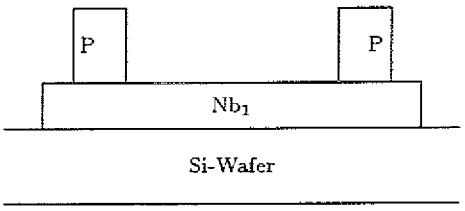
(c) Ionenätzen
Sputtern der
Nb-Grundelektrode



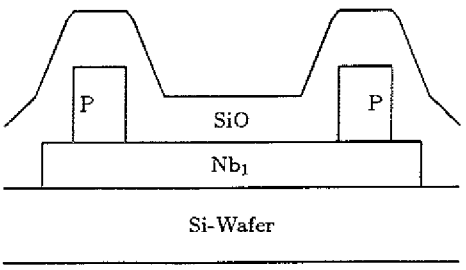
(d) Strukturierung der
Grundelektrode mit Lift-off



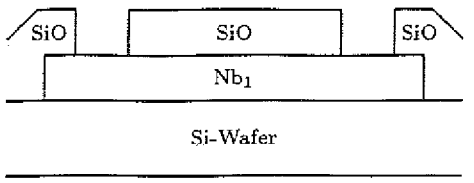
(e) 2. Lithografieschritt



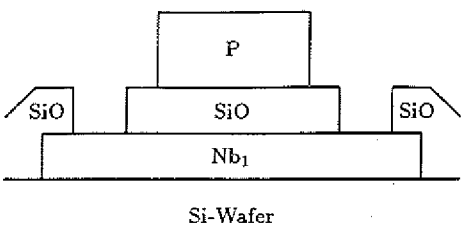
(f) Ionenätzen
Aufdampfen der Isolation



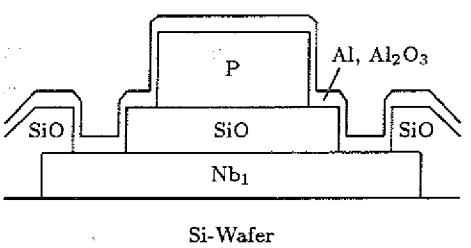
(g) Strukturierung der Isolation mit Lift-off



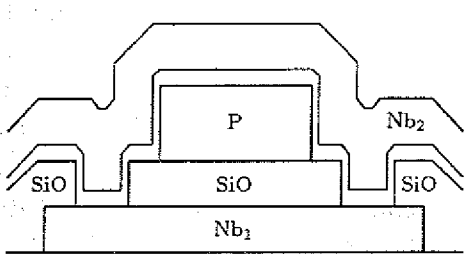
(h) 3. Lithografieschritt



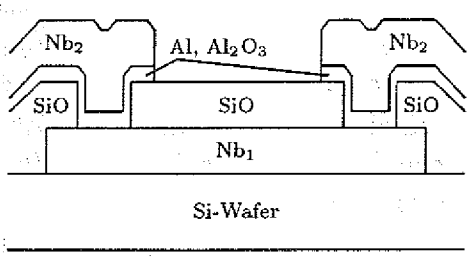
(i) Ionenätzen, Sputtern der Aluminium-Schicht, Oxidation



(j) Sputtern der oberen Niob-Schicht



(k) Strukturierung der Deckelektrode mit Lift-off



3.5 Probleme während der Herstellung

Die größten Probleme bei der Herstellung der Proben betreffen die Lift-off Schritte zur Strukturierung von Grund- und Deckelektrode und der Isolation.

3.5.1 Gemeinsame Probleme beim Strukturieren der Grund- und Deckelektrode

In der Sputteranlage wird der Photolack durch das Ionenätzen und die Wärme beim Sputtern von Nb und Al so geschädigt, daß der Lift-off zwischen einer halben und mehreren Stunden dauert[2], da der Photolack sich nicht mehr gut löst.

Diese Schwierigkeiten konnten aber durch einen kleinen Umbau der Sputteranlage behoben werden. Wurden zu Anfang die Wafer einfach auf einen Substratteller gelegt, so wird der Wafer seit November 1990 mit Hilfe eines Stahl- bzw. eines Aluminiumrings auf dem Substratteller festgeschraubt.

Damit vereinfachte und beschleunigte sich der Lift-off von Grund- und Deckelektrode stark, und vorher beobachtete Schädigungen des Lacks durch Temperaturen über 130°C verschwanden.

3.5.2 Probleme bei dem Lift-off der Isolation

Grundsätzlich treten bei dem Lift-off der Isolation ähnliche Probleme auf wie bei der Strukturierung der Grund- und Deckelektrode (Wärme, Löslichkeit). Zusätzliche Probleme treten aber durch die Größe der aufzulösenden Strukturen und den Eigenschaften von SiO (Härte, Brüchigkeit) auf.

Das Ionenätzen vor dem Aufdampfen von SiO ist sehr wichtig für die Definition des Tunnelkontakts. Ist das Ionenätzen nicht stark genug, so haftet die SiO-Schicht schlecht auf dem Substrat. Beim anschließenden Lift-off können so SiO-Bruchstücke über das gewollte Fenster in SiO hinaus herausbrechen, wodurch die Kontaktfläche ungewollt größer wird.

Bei sehr kleinen, elektronenstrahllithographisch strukturierten Kontakten hat man oft Schwierigkeiten, die SiO-Schicht überhaupt wegzubrechen. Meistens muß man mit einem Wattestäbchen auf der Probe reiben, damit die Kanten abbrechen. Die Anwendung der Wattestäbchen wiederum hat den Nachteil, daß hierdurch die Gefahr für das ungewollte Herausbrechen einzelner SiO-Stücke ansteigt.

Um die Schwierigkeiten beim Lift-off kleiner Kontakte zu umgehen, präparierte ich auch kleine Kontakte mittels eines zweistufigen Isolationsprozesses.

[2] Öfters wurde der Wafer während der Nacht im Acetonbad stehengelassen, wobei das Verdampfen des Acetons verhindert werden mußte.

3.5.3 Der zweistufige Isolationsprozeß

Beim zweistufigen Isolationsprozeß (siehe Zeichnung 7) wird die Kontaktfläche durch zwei aufeinanderfolgende Lithographie-, Aufdampf- und Lift-off-Prozesse definiert. Die Prozesse selbst sind die gleichen wie bei dem einfachen Isolationsschritt.

Dem Vorteil des leichteren Lift-offs wegen der jeweils dünneren Isolationsschicht stehen folgende Nachteile gegenüber:

1. Zwei Vakuumzyklen anstatt einem
2. Zwei genaue Lithographieschritte notwendig (sehr genaue Justierung bei zweitem Lithographieschritt)
3. Schichtdickenmessung erforderlich, da das Höhenprofil genaue Fokussierung verhindern kann (Scharfe Photolackkanten auf dem SiO aber unscharf auf dem Nb)

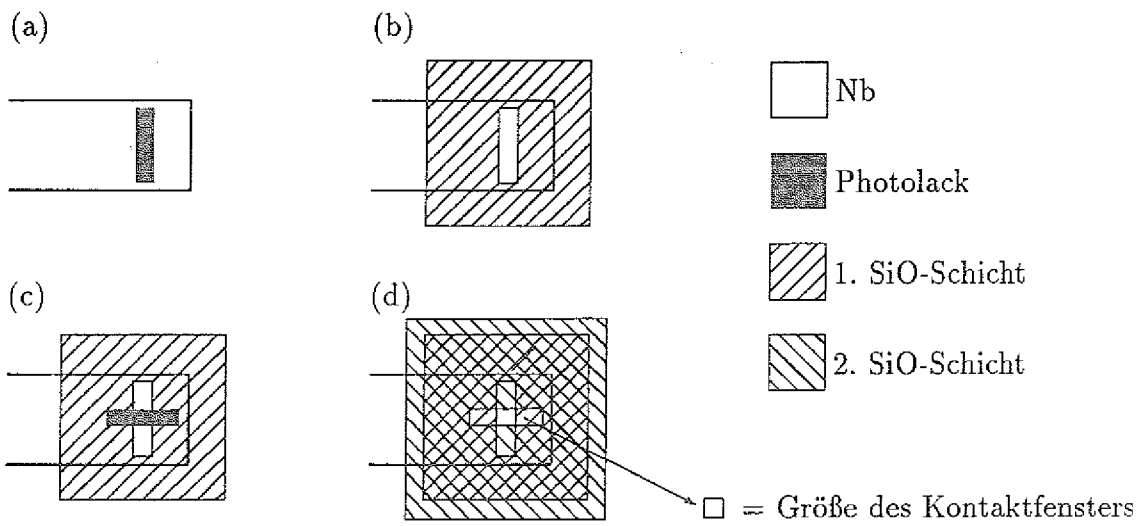


Abbildung 7: Aufsicht auf einen zweistufigen Isolationsprozeß

(a) Nb-Elektrode mit Photolack.
(b) Substrat nach Aufdampfen und Lift-off der ersten SiO-Schicht.
(c) zweite Photolackschicht auf SiO und Nb.
(d) Substrat nach zweitem Lift-off mit kleinem Kontaktfenster.

4 In-situ Präparation der Josephson-Kontakte

In diesem Kapitel will ich die in-situ Präparation der Josephson-Kontakte beschreiben. In-situ heißt, daß die gesamte SIS bzw. SNIS-Struktur in einem Vakuumzyklus präpariert wird.

Bevor ich die Präparation beschreibe, werde ich auf die Motive für das Fertigen von in-situ Kontakten eingehen. Der Beschreibung der Präparation schließen sich auf Seite 27 bis 29 die Zeichnungen zu den Präparationsschritten an.

Anschließend gehe ich auf die Probleme ein, die während der Herstellung der Kontakte auftraten. Dies ist erforderlich, da bei diesem neuen Prozeß erst durch die Lösung technischer und prozeßbedingter Fragen die Präparation von qualitativ guten Kontakten möglich ist.

Die Beschreibung dieser Probleme während der Beschreibung des Prozesses würde nur das Lesen und das Verständnis des Lesers erschweren.

4.1 Warum in-situ Kontakte?

Ausgangspunkt für die Fertigung der in-situ Josephson-Kontakte waren mehrere Gründe. Hierzu gehörten:

- Die Präparation von nicht geshunteten Kontakten, bei denen die Messung des Qualitätsparameters V_m möglich ist, um Vergleiche mit anderen Ergebnissen zu ermöglichen.

- Präparation von Kontakten mit höherer Qualität — Die Fertigung der geshunteten Kontakte war in eine Sackgasse geraten, da die Qualität der Kontakte, was die Schwankung der I_C sowie die bloße Funktionsfähigkeit bzw. Ausbeute der Kontakte betrifft, zu wünschen übrig ließ.

- Der Wunsch nach einer Präparation noch kleinerer Kontakte.

Dies führte zu Überlegungen über ein neues Herstellungsverfahren.

4.1.1 Anforderungen an Herstellungsprozeß

Als Forderung für ein passendes Verfahren setzte ich die Vermeidung von naßchemischen Prozessen, die in vielen Verfahren zur Herstellung der Isolation benutzt werden (Siehe Kapitel 8).
„Nasse“ Prozesse wollte ich aus folgenden Gründen vermeiden:

- Hohe Abstimmungsarbeit notwendig, d.h. die verschiedenen Prozeßparameter wie Art und Konzentration des Anodisationsmittels, Temperatur und Stromdichten während der Anodisation verlangen lange Versuchsreihen zur Optimierung des Prozesses.

- Inherente Gefahren in nassen Schritten; die Oxidationsmittel können unkontrolliert „in den Kontakt kriechen" (siehe Diplomarbeit von M. Anders [1]), d.h. die Reproduzierbarkeit der Kontakte wird verringert.

- Keine Erfahrung mit naßchemischen Prozessen.

Diese Überlegungen führten zu einem Verfahren, welches noch folgende weitere Vorteile besitzt:

1. eine einfache Realisation,

2. ein vorerst kleiner apparativer Aufwand,

3. ein mit vier Vakuumzyklen kleine Anzahl von Prozeßschritten (Vergleiche Kapitel 8),

4. Weiterverwendung der vorhandenen Masken,

5. keine zusätzlichen neuen Masken.

4.1.2 Realisation des RIE-Prozesses

Anfangs stand mir zum reaktiven Ionenätzen eine kleine RIE-Anlage (siehe Seite 79) für Wafer bis zu zwei Zoll Durchmesser und SF_6 als Ätzmittel zur Verfügung. Da SF_6 kein Aluminium ätzt, war nur die Herstellung geshunteter Proben in dieser Anlage möglich.

Mit einer neuen Ätzanlage versuchte ich nun, die Al-Schicht zu ätzen. Die Veröffentlichung von Yano bei Hitachi [26] ließ das Durchätzen der Al-Schicht mit CF_4 möglich erscheinen. Glücklicherweise war das reaktive Ionenätzen bei dem in dieser Veröffentlichung genannten CF_4-Druck von 0,3 Pa möglich sodaß das Aluminium durchgeätzt wurde[3].

[3]Der CF_4-Druck hierbei ist so gering, daß man aber eher von einem reaktiven Ionen*strahl*ätzen (RIBE - reactive ion beam etching) oder von einem Wegsputtern der Schicht sprechen muß (zum Vergleich: in der kleinen RIE-Anlage ätzt man bei 100 Pa SF_6).

4.2 Kurzbeschreibung der Präparation

Als erster Schritt wird eine vollständige Nb-Al-Nb-Schicht gesputtert. Hierbei wird zuerst die Nb Grundelektrode und anschließend Al gesputtert. Die Barriere wird durch thermisches Oxidieren bei Raumtemperatur der Al-Oberfläche bei 100 Pa Sauerstoff erzeugt[4]. Nach der Oxidation wird die Nb-Deckschicht gesputtert.

Damit wird bei diesem Verfahren schon im ersten Vakuumzyklus die SNIS-Struktur für den Tunnelkontakt erzeugt.

Die Kontaktfläche wird durch Elektronenstrahl- oder Lichtlithografie definiert und der Wafer in eine RIE-Anlage eingelegt. Dort werden die obere Nb- und die Al-Schicht weggeätzt. Geschützt durch den Photolack bleiben dort, wo die Kontakte entstehen sollen, „Säulen" von Aluminium und Niob für die zukünftigen Tunnelkontakte stehen.

Nach dem RIE-Prozeß wird eine Isolationschicht aus SiO oder SIO_2 aufgedampft bzw. aufgesputtert. Über den Kontakten wird die überschüssige Isolationsschicht zur Kontaktierung mit der Deckelektrode durch Lift-off weggebrochen. Nach einem weiteren Lithografieschritt wird die Nb-Deckelektrode aufgesputtert.

4.3 Erster Vakuumzyklus — Nb-Al-Nb

Ein gereinigter 2"-(111)-Si-Wafer wird — genau wie bei den geshunteten Kontakten — belackt, belichtet und entwickelt und in die Sputteranlage mit wassergekühlten Substrattellern und Targetplätzen eingelegt. Die Wafer werden dort mit einem Aluminiumring auf den wassergekühlten Substratteller geschraubt.

Nach Erreichen des Hintergrunddrucks $p_H < 3 \cdot 10^{-4}$ Pa[5] wird die Wasserkühlung für Substrate und Targets eingeschaltet. 99,999%-iges Ar-Gas wird in den Rezipienten eingeleitet, bis ein Druck von 0,6 Pa erreicht ist. Anschließend wird Niob vorgesputtert, der Druck auf 2 Pa Argon erhöht und Aluminium vorgesputtert (siehe Tabelle 3).

Nach dem Vorsputtern von Al und Nb kann die Nb-Grundelektrode aufgebracht werden. Dies dauert, je nach geforderter Dicke der Grundelektrode zwischen 45 und 60 Sekunden. In diser Zeit wächst eine zwischen 110 und 150 nm dicke Nb-Schicht.

[4] Um große I_C zu erzielen und Verunreinigungen während des Oxidierens zu vermeiden, wurden bei diesen Kontakten ausschließlich Oxidationszeiten von einer halben Stunde verwendet.

[5] Die Belüftung der Sputteranlage mit N_2 seit Anfang 1991 machte einen kürzeren Zyklus und höhere Spannungen beim Vorsputtern möglich.

Danach wird das Barrierenmaterial Al aufgetragen. Bei einer Sputterrate von 0,35±0,05 nm Aluminium wird eine zwischen 7 und 15 nm dicke Al-Schicht gesputtert. Nach dem Aufsputtern der Al-Schicht ist der erste Sputterzyklus zu Ende und die Wasserkühlung wird ausgeschaltet.

Aktion	Druck	Dauer	Anmerkungen
Ionenätzen	0,6 Pa Ar	2 min	800 V DC-Potential
Abpumpen	$\rightarrow 3 \cdot 10^{-4}$ Pa	ca. 3–4 h	
Vorsputtern Nb	0,6 Pa Ar	2 min	DC-Sputtern, 750 mA
Al	2 Pa Ar	1 min	RF-Sputtern, 1000 V DC-Potential
Al	2 Pa Ar	1 min	RF-Sputtern, 1200 V DC-Potential
Al	2 Pa Ar	1 min	RF-Sputtern, 1500 V DC-Potential
Al	2 Pa Ar	2 min	RF-Sputtern, 2000 V DC-Potential
Nb	0,6 Pa Ar	1 min	DC-Sputtern, 750 mA
Sputtern Nb	0,6 Pa Ar	45–75 sec	DC-Sputtern, 750 mA
Vorsputtern Al	2 Pa Ar	1 min	RF-Sputtern, 1000 → 2000 V DC-Potential
Sputtern Al	2 Pa Ar	ca. 20 sec.	RF-Sputtern, 1000→ 2000 V DC-Potential
Abpumpen	$\rightarrow 3 \cdot 10^{-4}$ Pa	1–3 min	
O_2 einlassen	100 Pa O_2	ca. 1 min	
Oxidation	100 Pa O_2	30 min	
Abpumpen	$\rightarrow 3 \cdot 10^{-4}$ Pa	30–60 min	
Vorsputtern Nb	0,6 Pa Ar	2 min	DC-Sputtern, 750 mA
Sputtern Nb	0,6 Pa Ar	45 sec	DC-Sputtern, 750 mA

Tabelle 3: 1. Vakuumzyklus, Präparation der Nb-Al-Al_2O_3/Nb-Schicht

Sauerstoff wird in den Rezipienten eingelassen, die Vakuumpumpen werden ausgeschaltet und das Aluminium bei 100 Pa Sauerstoff Druck eine halbe Stunde lang thermisch oxidiert.

Nach der Oxidation wird die Anlage innerhalb von 10 bis 30 min auf $p_H < 3 \cdot 10^{-4}$ Pa ausgepumpt und nun kann mit dem zweiten Sputterzyklus begonnen werden.

Nach dem Einschalten der Wasserkühlung wird das Nb mit denselben Parametern wie bei dem Auftragen der 1. Nb-Grundschicht zwei Minuten

lang vorgesputtert und anschließend eine 75 bis 110 nm dicke Nb-Schicht aufgetragen. Die Wasserkühlung wird ausgeschaltet und nach zehnminütigem Warten kann der Wafer der Sputteranlage entnommen werden. Das nun fertiggestellte Nb-Al-Al_2O_3/Nb-Trilayer wird mit Lift-off strukturiert und anschließend für den folgenden Schritt wieder mit gewöhnlichen- oder Elektronenstrahl-Photolack beschichtet.

4.4 Strukturieren der Josephson-Kontakte mittels RIE

Die Proben werden so belichtet, daß auf den Josephson-Kontakten Photolack stehen bleibt, und anschließend werden die Wafer in eine RIE-Anlage eingelegt. Dadurch kann man selektiv die obere Nb- und Al-Schicht wegätzen, und es bleiben die Kontakte auf der Nb Grundelektrode.

4.4.1 Ätzen der oberen Nb-Schicht

Als 1. Schritt in der reaktiven Ionenätzanlage wird die Nb-Schicht weggeätzt. Zum Ätzen der Nb-Schicht standen zwei RIE-Anlagen mit SF_6 bzw. SF_6 und CF_4 als Ätzmittel zur Verfügung.

Je nach RIE-Anlage und apparativer Ausstattung unterscheiden sich Prozeßparameter für das Ätzen stark. Versuche zum Ätzen von Niob mit CF_4 und SF_6 ließen mich auch bei der zweiten RIE-Anlage für SF_6 als Ätzgas entscheiden, wobei folgende Prozeßparameter verwendet wurden:

Maschine, Druck	Leistung	Bias-Spannung	Ätzrate	Gasfluß
kleine RIE-Anlage 70–140 Pa SF_6	40 W		0,5–2 nm/sec	
PT-RIE-Anlage 3 Pa SF_6	60 W	-60 V	1,7 nm/sec	20 sccm

In der kleinen RIE-Anlage ist der Wafer während des Ätzens sichtbar. Der Wafer wird so lange geätzt, bis überall unter dem graumetallenen Nb die helle glänzende Al-Schicht sichtbar wird. Damit man die Aluminium-Schicht überhaupt erkennen kann, muß sie hierzu mindestens 10–15 nm dick sein. Das Ätzen wird abgebrochen und der Wafer ist fertig für den folgenden Prozeßschritt, dem Aufbringen der Isolation.

Ein nachfolgendes Ätzen von Aluminium ist bei den in dieser Anlage verarbeiteten Wafern nicht möglich, da das unter dem Niob liegende Aluminium während des Ätzens durch die Bildung von AlF_3 passiviert und weder mit CF_4 noch mit SF_6 geätzt werden kann.

In der großen RIE-Anlage konnte man seit März 1991 mittels eines Laserinterferometers beobachten, wann die Nb-Al-Grenzfläche erreicht war. Zu diesem Zweck richtete man den Strahl des Lasers auf einen großen Kontaktpad der Probe. Die Reflexion stieg beim Erreichen des Aluminiums von Nb-typisch ca. 60% auf ca. 75%, abhängig von der Dicke des Aluminiums[6], an. Das Ätzen wurde gestoppt, wenn die Reflexion 70% überschritt und die Ableitung der Reflexion nach der Zeit ihr Maximum durchlaufen hatte. Dann ist das Aluminium noch nicht vollständig geätzt bzw. passiviert und ein nachfolgendes Durchätzen der Barriere ist möglich.

Das Stoppen des Ätzens ist der kritischste Punkt beim Ätzen des Kontakts. Diesen kritischen Punkt versuchte ich durch Ätzen mit CF_4 zu umgehen, hatte aber dadurch so viele andere Nachteile, daß ich nach vielen Versuchen das Ätzen mit CF_4 aufgab (siehe Abschnitt 4.8.3).

4.4.2 Ätzen der Al-Schicht

Steigt die Reflexion auf über 70% an und hat die Ableitung der Reflexion nach der Zeit ihr Maximum überschritten, so muß das Ätzen der ersten Schicht sofort gestoppt werden. Ein kurzes Weiterätzen kann die Probe hierbei schon unbrauchbar machen.

Nach vielen Versuchen ätzte ich das Aluminium mit CF_4 bei 0,3 Pa Druck und 150 W Leistung. Hierbei baute sich eine Bias-Spannung von -475 V auf. Die Ätzrate betrug ungefähr 0,14 nm/sec.

Um das Durchätzen des Aluminiums auf dem ganzen Wafer sicherzustellen und so Inhomogenitäten auszugleichen, ätzte ich die Al-Schicht meist so lange, bis die Ableitung der Reflexion nach der Zeit fast Null war. Nb wird bei diesen niedrigen Drücken und hohen Leistungen kaum von CF_4 angegriffen (Ätzraten $< 0,1$ nm/sec).

Ein Durchätzen der Al-Barriere auf Zeit ist, wie auch bei der Nb-Schicht, nicht möglich, da die Zeit sehr stark von dem „Treffen" der Grenzfläche abhängt. Ein starkes Überätzen sollte man wegen der hohen mechanischen und thermischen Belastung in diesem Schritt nicht riskieren. Bei allen meinen Proben ätzte ich nach dem Durchätzen der Al-Barriere noch einmal die darunterliegende Nb-Grundelektrode mit den gleichen Prozeßparametern wie während des Ätzens der 1. Nb-Schicht. Hierdurch erhoffte ich mir eine Erleichterung des Lift-offs und eine Verbesserung der Isolation. Damit ist der Kontakt definiert (siehe Abbildung (j) auf Seite 28).

[6] 8–10 nm dicke Al-Schichten zeigten eine Reflexion von ca. 75%, während Al-Schichten mit über 20 nm Dicke eine 90–95% große Reflexion zeigten

4.5 Aufbringen der Isolation

Nach dem „Herausätzen" der Kontakte kann die Isolationsschicht aufgedampft (SiO) bzw. aufgesputtert (SiO_2) werden. Abhängig vom benutzten Maskensatz werden dabei die für das Laserinterferometer freigelassenen Kontaktflächen durch eine mechanische Maske geschützt.

Das Aufdampfen von SiO gestaltet sich so wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, sofern die gleiche Maschine benutzt wurde. Für die Kontakte von Wafer 23.4.91.b (siehe 6.2.2) mußte auch auf eine Leybold Univex 300 Aufdampfanlage (siehe 10.1.4) ausgewichen werden.

Um die Isolation zu verbessern und den Lift-off der Isolation zu vereinfachen wurden außerdem bei manchen Proben Isolierungen aus SiO_2 gesputtert (siehe Abschnitt 6.2.1).

Die Wirksamkeit einer Isolierung aus einer Schicht SiO_2 und einer Lage SiO konnte nicht mehr nachgeprüft werden, da bei den hierfür im Mai 1991 hergestellten Proben der Lift-off der Isolationsschicht nicht gelang.

Ist der Lift-off erfolgreich — dies kann man bei kleinen Kontakten mit einem Durchmesser unter 2 μm kaum noch beurteilen (Grenze Lichtmikroskop) — so wird der Wafer für den letzten Schritt mit Photolack belackt, belichtet und entwickelt.

4.6 Aufbringen der Deckelektrode

Das Auftragen der Deckelektrode erfolgt bei den schon mehrfach beschriebenen Standardbedingungen. Die obere Nb-Schicht wird mittels DC-Sputterns nach dem Ionenätzen des Substrats aufgebracht (Tabelle 4) und mit Lift-off strukturiert.

Aktion	Druck	Dauer	Anmerkungen
Abpumpen	$\rightarrow 3 \cdot 10^{-4}$ Pa	ca. 3–4 h	
Vorsputtern Nb	0,6 Pa Ar	2 min	DC-Sputtern, 750 mA
Ionenätzen	0,6 Pa Ar	2 min	800 V DC-Potential
Vorsputtern Nb	0,6 Pa Ar	1 min	DC-Sputtern, 750 mA
Sputtern Nb	0,6 Pa Ar	45 sec	DC-Sputtern, 750 mA

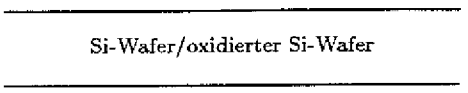
Tabelle 4: 4. Vakuumzyklus, Präparation der Deckelektrode

Mit dem letzten Lift-off ist die Probe fertiggestellt (Siehe Abbildung (o) auf Seite 29), der Wafer kann zum Trennen der einzelnen Proben gesägt werden.

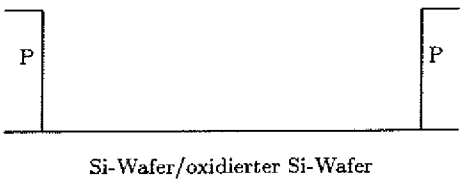
Zeichnungen zu den Prozeßschritten

Auf den folgenden drei Seiten befinden sich die Zeichnungen zu den Prozeßschritten.

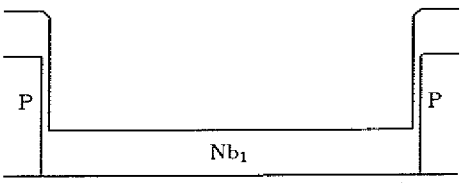
(a) Prozeßvorbereitungen
- Substrat reinigen
- evtl. Wafer oxidieren



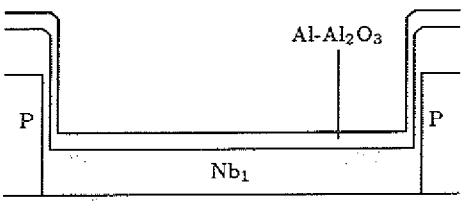
(b) 1. Lithografieschritt



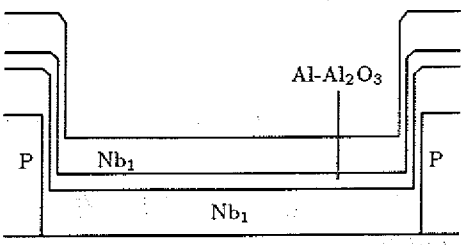
(c) Ionenätzen,
Sputtern von Niob



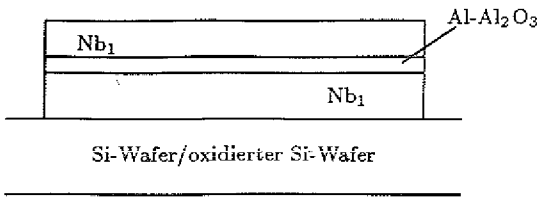
(d) Sputtern von Aluminium,
Oxidieren



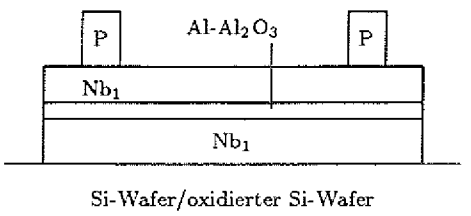
(e) Sputtern von Niob



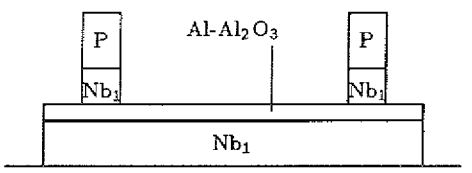
(f) Strukturierung der Grundelektrode mit Lift-off



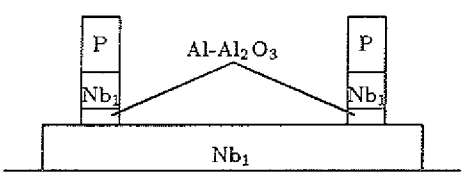
(g) 2. Lithografieschritt



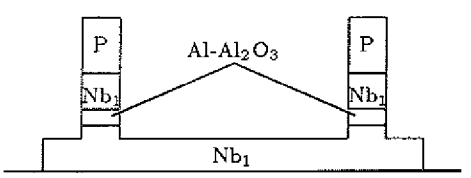
(h) Reaktives Ionenätzen der oberen Nb-Schicht mit SF_6



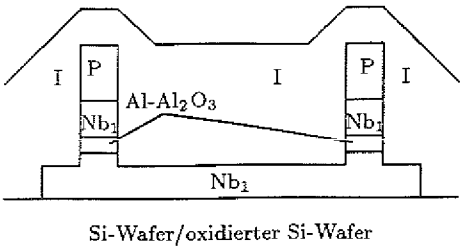
(i) Reaktives Ionenätzen der Al-Schicht mit CF_4



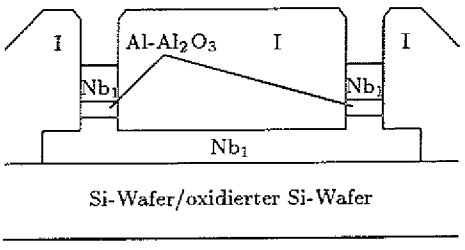
(j) Reaktives Ionenätzen in die untere Nb-Schicht mit SF_6



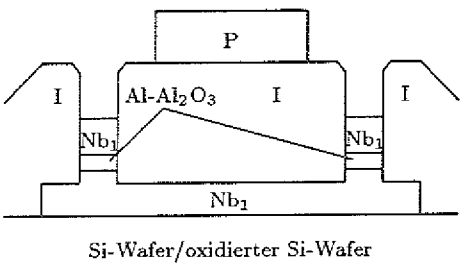
(k) Ionenätzen, Aufdampfen bzw. Aufsputtern der Isolation I



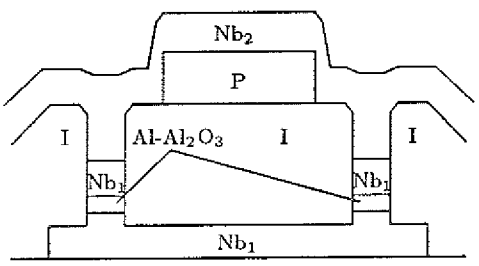
(l) Strukturierung der Isolation mit Lift-off



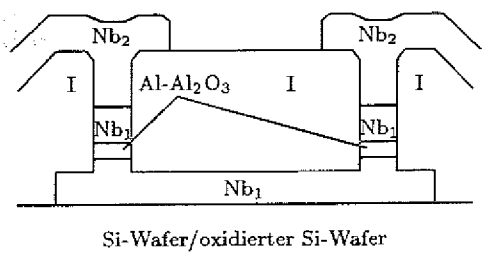
(m) 3. Lithographieschritt



(n) Ionenätzen, Aufsputtern der Niob-Deckelektrode



(o) Strukturierung der Deckelektrode mit Lift-off



4.7 Untersuchung des Kontakts anhand von REM-Aufnahmen

Um Rückschlüsse auf

1. die Kantenschärfe beim Ätzen,
2. dem Verhalten des Photolacks und
3. das Ätzen ins Substrat

ziehen zu können, wurden REM-Aufnahmen von der in der PT-RIE-Anlage unter Standardbedingungen geätzten Probe 8.5.91.b (siehe Tabelle 5) gemacht.

Substrat	oxidierter Si-Wafer	
Kontaktdurchmesser	2,1 μm	
Definition der Kontakte	AZ PN 114	
Schichtdicken Grundelektrode	Nb	180 nm
	Al	7 nm
	Nb	110 nm

Tabelle 5: „Technische Daten“ der Probe 8.5.91.b

Auf den hier im Heft gezeigten Aufnahmen (siehe Abbildung 8) kann man deutlich die Spuren des Ätzens erkennen.

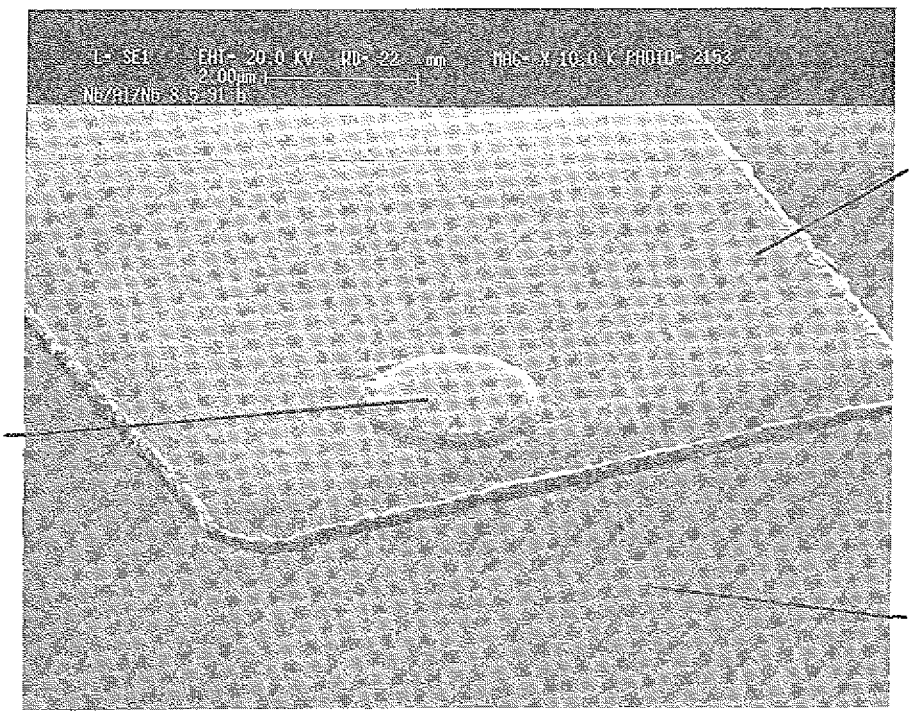
Man sieht, daß der Photolack während des Ätzens kleiner geworden sein muß, und während des Ätzens von Aluminium am meisten an Größe verliert. Dies bestätigen die Prozeßdaten, da man bei dem Ätzen des Aluminiums besonders hohe Leistungen und hohe Beschleunigungsspannungen benutzt.

Deutlich ist das Ätzen in das Substrat zu erkennen. Der Absatz, bestehend aus dem Rest der Grundelektrode (Nb) und geätztem Substrat (SiO_2) ist hier knapp 250 nm hoch (ein typischer, auch mit mechanischen Schichtdickenmeßgeräten gemessener Wert).

Das Ätzen der Kontakte habe ich anhand der REM-Aufnahmen gezeichnet (siehe Abbildung 9), wobei ich auf die Stufen in der Barriere, im Substrat, das unterschiedliche Ätzen und das Verhalten des Photolacks geachtet habe.

4.8 Diskussion des RIE-Prozesses

Bei der Entwicklung des RIE-Prozesses hatte ich mit vielfältigen technischen Schwierigkeiten wie z.B.



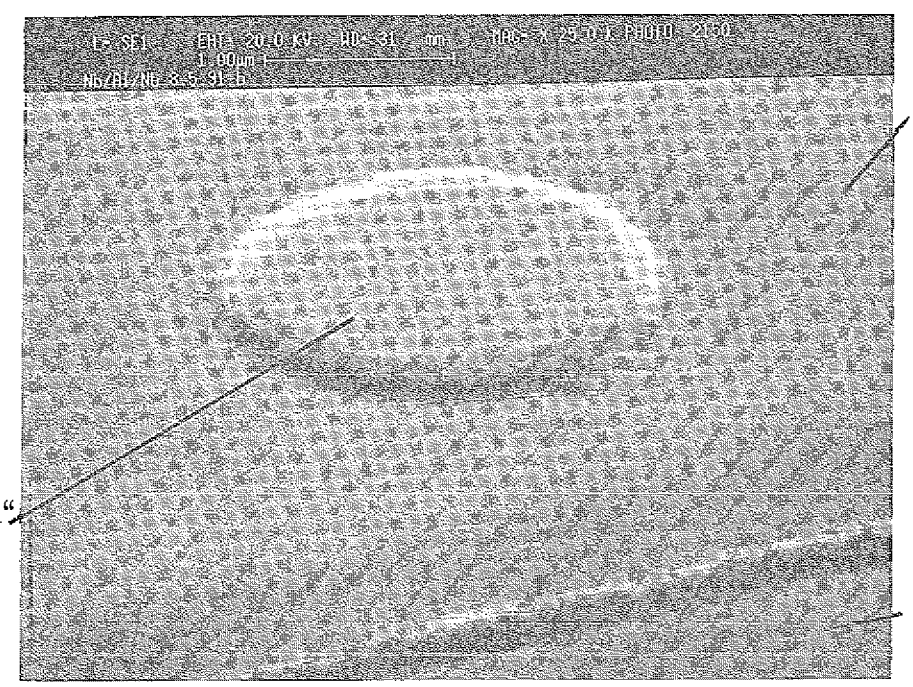


Abbildung 8: REM-Aufnahmen der geätzten Probe 8.5.91.b

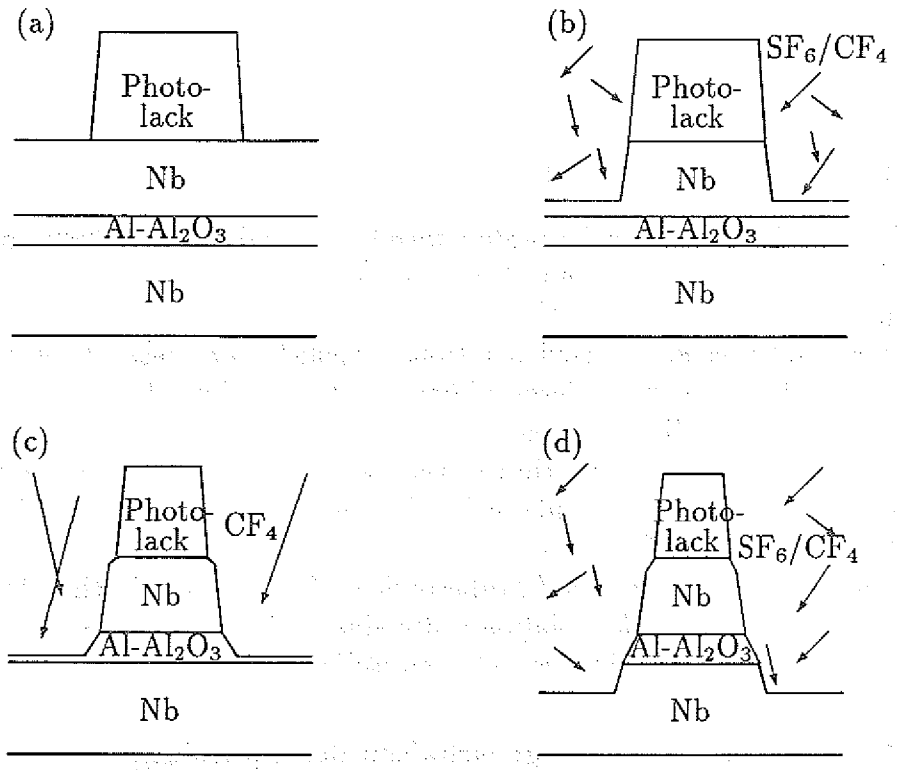


Abbildung 9: Der RIE-Prozess anhand von REM-Aufnahmen.

(a) Kontakt mit Photolack vor dem Ätzen
(b) Ätzen der oberen Nb-Schicht
(c) Ätzen der Al-Barriere
(d) Anätzen der unteren Grundelektrode

- dem Ätzen des Substrats
- den Eigenschaften der Photolacke
- den unterschiedlichen Eigenschaften von CF_4 und SF_6
- dem Lift-off der Isolation

zu kämpfen. Die Lösung bzw. Vermeidung von Problemen möchte ich in diesem Abschnitt beschreiben.

4.8.1 Ätzen des Substrats

Auch das Silizium des Siliziumwafers wird während des Ionenätzens angegriffen. Messungen ergeben, daß während der Ätzprozesse das Silizium zwischen 250 und 1100 nm geätzt wird[7].

Dies erschwert den Lift-off der Isolationschicht, da diese damit eine gewisse Dicke haben muß. Außerdem können Schatteneffekte beim Aufdampfen die Isolation unmöglich machen.

Auf den Vorschlag von Herrn Andreas Schüppen hin begann ich im April 1991 die Wafer zu oxidieren[8]. Hiermit reduzierte sich das Ätzen in das Substrat auf 50 bis 150 nm.

Auch mit dem Umstieg auf oxidierte Si-Wafer blieb die Beschränkung bei der Isolation stehen. Die Isolation sollte eine Dicke von mindestens 200 nm haben, um die Grundelektrode sicher zu isolieren.

4.8.2 Probleme durch Eigenschaften der Photolacke

Der RIE-Prozeß stellt große Forderungen hinsichtlich der mechanischen und chemischen Beständigkeit an den zu verwendenden Photolack. Deshalb hat die Auswahl des Lacks eine große Bedeutung für den Prozeß.

Für große Kontaktflächen ($> 20 \cdot 20\ \mu m^2$) verwendete ich die Photolacke AZ 1350 und AZ 1512 die in 0,2 m NaOH/Lauge entwickelt werden.

Leider passivieren OH^--Ionen die Nb-Oberfläche, indem sie Nioboxide/-hydroxide bilden, welche nicht durch reaktives Ionenätzen mit SF_6 geätzt werden.

Um der Bildung einer geschlossenen passivierten Oberfläche vorzubeugen — hierzu reicht schon das 20 Sekunden lange Benetzen von Nb in 0,2 molarer

[7]Die starken Schwankungen ergeben sich durch die Passivierung der Nb- und Al-Schichten und demzufolge stark unterschiedlichen Ätzdauern.

[8]Die Wafer wurden zwei Stunden bei 1050°C in einem thermischen Oxidationsofen unter Sauerstoffzufuhr oxidiert.

Natronlauge aus — werden die Lacke so überbelichtet, daß die Entwicklungszeit unter 20 Sekunden bleibt.

Zur Herstellung kleiner Kontakte standen mir folgende Elektronenstrahl-Lacke zur Verfügung:

Lack	Entwickler	Lacktyp
PMMA 50	organischer Entwickler	positiv-Lack
PMMA 200	organischer Entwickler	positiv-Lack
PMMA 496	organischer Entwickler	positiv-Lack
PMMA 950	organischer Entwickler	positiv-Lack
AZ PN 114	0,2 m NaOH/Lauge	negativ-Lack

Um keine Probleme durch die Passivierung der Nb-Schicht zu bekommen, benutzte ich ich anfangs die PMMA Photolacke, deren Entwickler die Nb-Oberfläche nicht angreifen. Leider waren diese Lacke aber selbst als Bilayer aus PMMA 50/PMMA 496 oder PMMA 200/PMMA 950 den RIE-Ätzschritten nicht gewachsen.

Der AZ PN 114 Photolack erwies sich als Lack mit vielen Vor- und Nachteilen

- \+ sehr hohe Widerstansfähigkeit gegen reaktives Ionenätzen (siehe Abbildung 10)
- \+ als negativ Photolack sind die Kontakte sehr viel leichter zu belichten, hier muß nur die Kontaktfläche selbst belichtet werden und nicht die Fläche, welche geätzt werden soll ⇒ wesentlich kürzere Belichtungszeiten
- – Laugen als Entwickler (durch Benutzung von 0,2 molarer NaOH als Entwickler anstatt des empfohlenen Entwicklers sinkt die Entwicklungszeit auf weniger als 20 Sekunden)
- – sehr hohe Empfindlichkeit gegenüber den PMMA-Lacken, wodurch der Lack schon wärend der Fokussierung mit dem Elektronenmikroskop belichtet wird
- – sehr schlechte Löslichkeit ⇒ zusätzliche Schwierigkeiten beim Lift-off der Isolation

war aber insbesondere durch seine hohe Widerstandsfähigkeit der für den RIE-Prozeß am besten geeignete Lack.

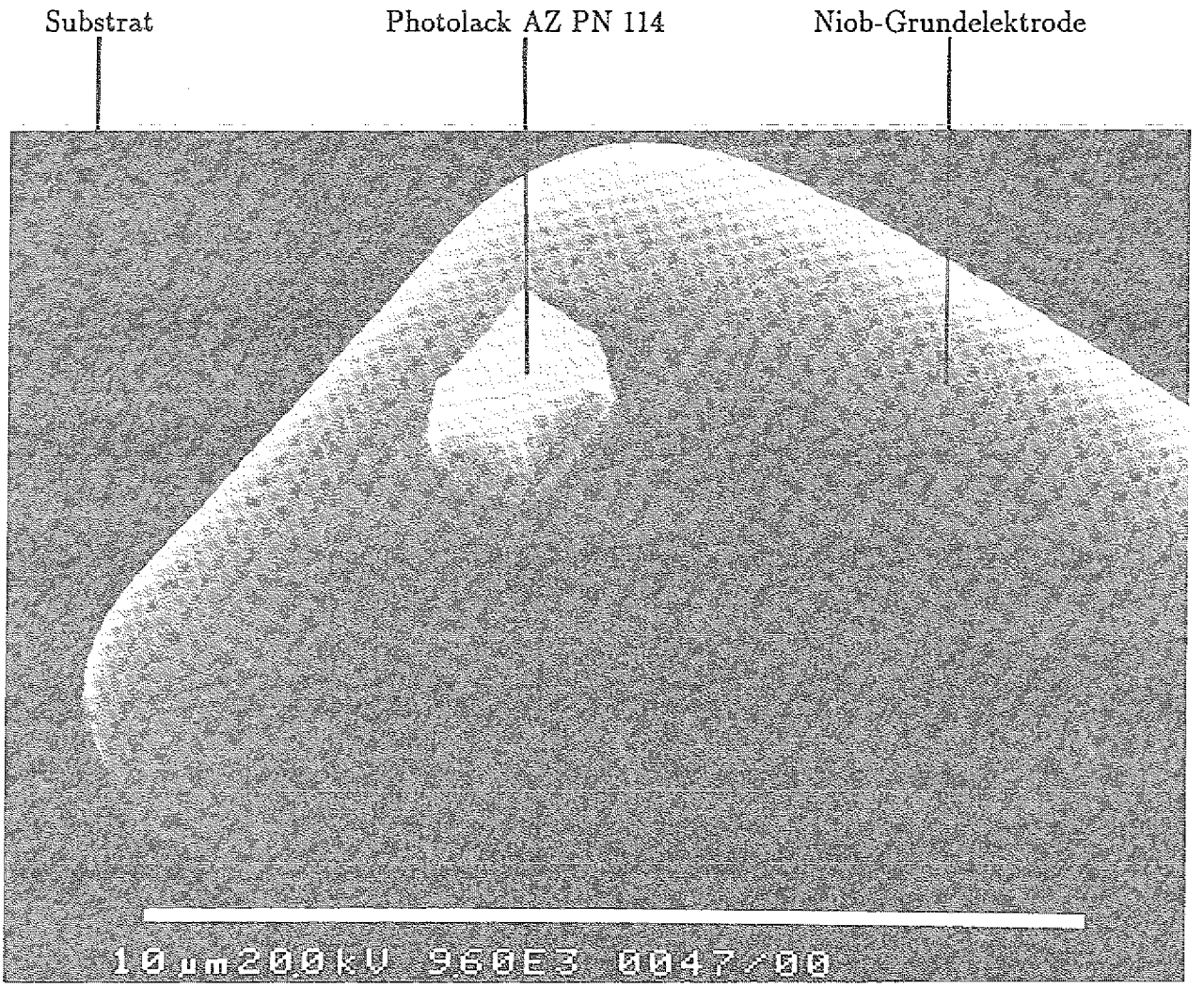


Abbildung 10: REM-Aufnahme der geätzten und noch mit AZ PN 114-Photolack bedeckten Probe 14.3.91.d, der Kontakt hat eine Größe von ungefähr $1,8 \cdot 2,4\ \mu\mathrm{m}^2$.

4.8.3 CF_4 oder SF_6 zum Ätzen von Nb

Wie man in der Tabelle 6 sehen kann, ist generell SF_6 als Ätzmittel von Nb dem CF_4 überlegen. Für Schwefelhexafluorid sprechen sowohl die niedrigen Ätzleistungen als auch die hohen Ätzraten, d.h. mechanische wie thermische Belastung werden klein gehalten.

Stoff	Druck	Leistung	Bias-Spannung	Ätzrate	Durchfluß
SF_6	70–140 Pa	40 W		0,5–2 nm /sec	
SF_6	3 Pa	60 W	-60 V	1,7 nm /sec	20 sccm
SF_6	3 Pa	100 W	-250 V	0,4 nm/sec	7,2 sccm
CF_4	3 Pa	250 W	-560 V	0,3 nm /sec	36 sccm
CF_4	3 Pa	350 W	-645 V	0,3 nm /sec	36 sccm

Tabelle 6: Reaktives Ionenätzen von Niob

Beim Erreichen der Nb-Al-Grenzschicht reagiert das Aluminium sowohl mit SF_6 als auch — bei Verwendung von kleinen Leistungen — mit CF_4 zu Aluminiumfluorid. AlF_3 aber läßt sich nicht mehr mit den Fluor-Gasen ätzen und der Wafer ist für die Herstellung von nicht-geshunteten in-situ Kontakten verloren.

Somit nutzte ich von Herbst 1990 bis März 1991 CF_4 als Ätzmittel[9]. Die mechanischen und thermischen Probleme stellten sich aber als zu groß heraus. So ist keine der in dieser Diplomarbeit vorgestellten in-situ Proben ausschließlich mit CF_4 geätzt.

Nachdem ich Anfang März 91 des Laserinterferometers neu kalibrierte, konnte ich auf SF_6 zum Ätzen umsteigen, da man anschließend das Erreichen der Nb-Al-Grenzschicht beobachten konnte.

4.8.4 Lift-off der Isolation

Wie auch bei den geshunteten Proben ist bei den in-situ Proben der Lift-off der Isolation ein kritischer Schritt. Leider gestaltet sich aber dieser Schritt hier besonders schwer, da der Lack hier stärker beansprucht wird. Löslichkeit, Höhe und Steilheit des Lacks nehmen durch folgende Prozesse ab und die Kanten werden abgerundet:

[9]Ein genaues Ätzen der oberen Nb-Schicht nach Zeit ist wegen der Passivierung der Nb-Oberfläche durch den Entwickler und Umwelteinflüsse nicht möglich, da sich hierdurch die notwendige Ätzzeit verfielfachen kann.

- Ätzen der oberen Nb-Al-Nb-Schichten mit SF_6 bzw. CF_4, wobei der Lack chemisch (Fluor und Fluorverbindungen), mechanisch sowie thermisch belastet wird
- Ionenätzen mit Ar in der Aufdampf- bzw. Sputteranlage (mechanische, thermische Belastung)
- thermische Belastung beim Aufdampfen bzw. Aufsputtern der Isolationsschicht

Hierdurch wird der Lift-off wesentlich erschwert, und ca. 80% der Proben mit Kontakten kleiner als $3 \cdot 3\mu m$ gingen hierdurch verloren.

Die verringerte Löslichkeit des Photolacks in Aceton versuchte ich bei den letzten Proben mit kleinen Kontakten durch die Verwendung des Photolack-Entferners AZ 200 von Hoechst zu kompensieren[10]. Dieser brachte aber keine durchbrechende Erleichterung des Lift-off, da die Schwierigkeit darin bestand, das Lösungsmittel durch die Isolationsschicht an den Photolack zu bringen.

[10]Die Verwendung von Laugen oder Wasserstoffperoxid als Lösungsmittel für den Photolack verbietet sich, da hierdurch die Nb-Oberfläche angegriffen wird.

5 Messungen an geshunteten Josephson-Kontakten

In den folgenden zwei Kapiteln werden die Meßergebnisse an den geshunteten und an den in-situ Kontakten präsentiert.

5.1 Meßaufbau und -elektronik

Die Strom-Spannungs-Charakteristiken aller Kontakte wurden mit Hilfe einer batteriebetriebenen Meßelektronik für Vierpunktmessung bestimmt. Diese Elektronik wird mit Koaxialkabeln an einem Probenstab angeschlossen, an dessen Spitze die Probe in einem Probenhalter sitzt.

Die Probe kann wahlweise durch eine Bleiabschirmung von elektromagnetischen Feldern geschützt werden. Alle Messungen wurden in einer Helium-Kanne bei 4,2 K, dem Siedepunkt des flüssigen Heliums durchgeführt.

Für die Messungen im Magnetfeld wurde eine Spule mit 1000 Wicklungen auf ein Isolierband gewickelt (siehe Abbildung 11) und so am Probenhalter angebracht, daß die Probe im homogenen Feld der Spule liegt.

5.2 Messungen an Proben mit $20 \cdot 40\ \mu m^2$-Kontakten

Diese Proben waren die mit den größten Kontakten, welche von mir hergestellt wurden.

Alle Proben dieser Art wurden zwischen März 1990 und Juli 1990 hergestellt, zweieinhalb Stunden bei 100 Pa Sauerstoff oxidiert und mit den in Tabelle 7 angegebenen Schichtdicken präpariert[11].

Grundelektrode	Nb	110 nm
Isolation	SiO	
Deckelektrode	Al	16 nm
	Nb	110 nm

Tabelle 7: Aufbau der Proben

Auf den Proben befinden sich neunundachtzig mäanderförmig angeordnete Josephsonkontakte, die hintereinandergeschaltet sind. So kann man die Kennlinie aller Kontakte in Reihe aufnehmen.

[11] Die Grundelektroden von Wafer I bis Wafer VI wurden in der Balzer-, die der nachfolgenden in der Leybold-Sputteranlage präpariert

Für Messungen einzelner Kontakte lassen sich bei diesen Proben dank zusätzlicher Kontaktpads zwei dieser 89 Kontakte auch alleine messen, was insbesondere bei Messungen im Magnetfeld notwendig ist.

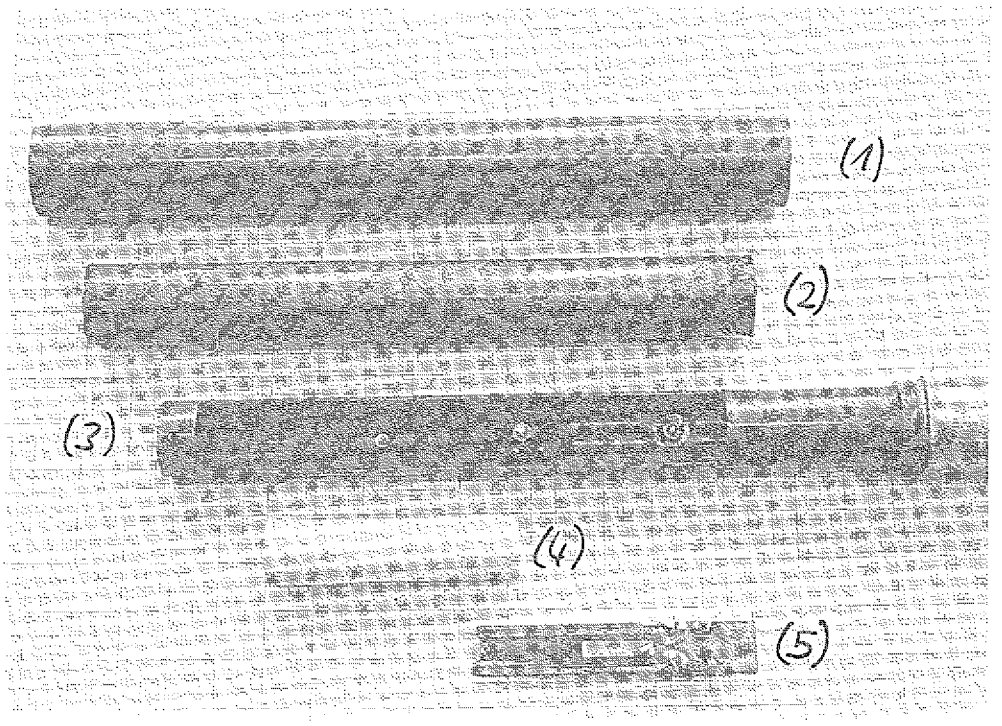


Abbildung 11: Spitze von Probenstab mit Zubehör

1. Kupferrohr als Schutz zum Aufschrauben auf den Probenstab
2. Bleiabschirmung (Zylinder aus gewalztem Blei)
3. Spitze des Probenstabs
4. Handgewickelte Spule mit ca. 1000 Windungen, 50 μm Kupferlack-Draht
5. Probenhalter mit eingelegter $20 \cdot 40\ \mu m^2$-Probe

5.2.1 Messungen an hintereinandergeschalteten Kontakten

Bei der Messung der Strom-Spannungs-Kurven der verschiedenen Proben (siehe Abbildung 12 als typische Kennlinie einer guten Probe mit hintereinandergeschalteten Josephsonkontakten) muß man auf den Einschluß von Magnetfeldern achten.

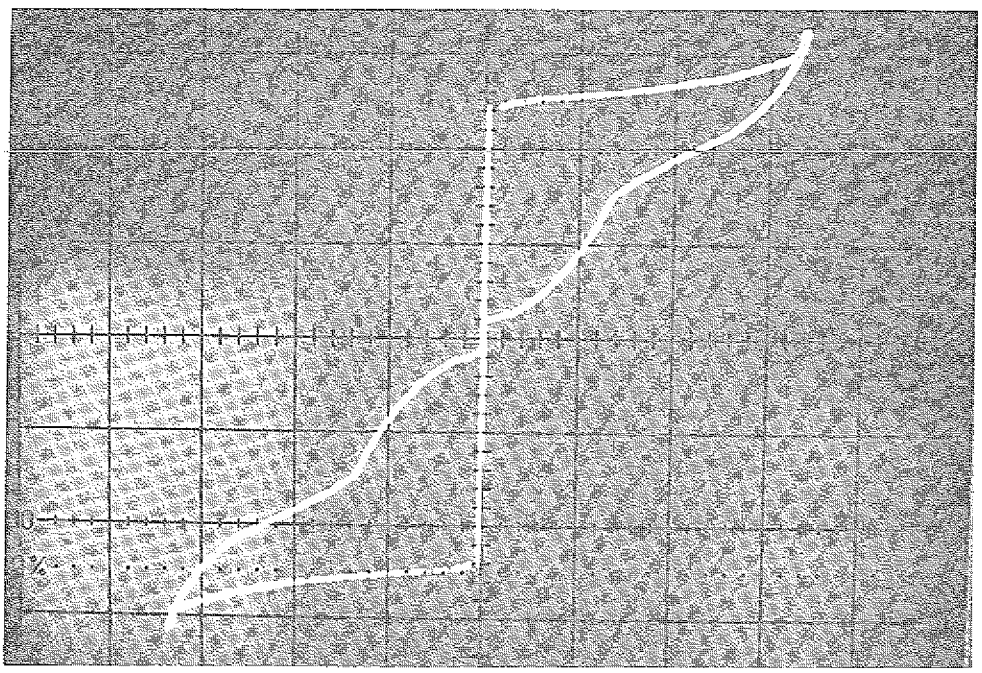


Abbildung 12: Probe XI.1, X = 50 mV/DIV, Y = 0,5 mA/DIV

Auch bei Benutzung der Bleiabschirmung gegen magnetische Felder ist es die Regel, daß in der Probe magnetische Flüsse eingeforen werden. Kommt es zu einem Einfrieren von Flußfäden, so kann man keine Aussage mehr über die Höhe der kritischen Ströme der Proben machen.

Bei vielen hintereinandergeschalteten Kontakten wird im Extremfall der kritische Strom von allen Kontakten der Probe verändert. In Abbildung Abbildung 13 zeige ich die Strom-Spannungs-Kennlinie von Probe I.1, einmal mit viel und einmal mit sehr wenig eingefrorenem Fluß.

Trotz gleicher Präparation unterschieden sich die kritischen Ströme und Stromdichten stark, sofern die Proben nicht aus dem gleichen Wafer herausgesägt wurden (siehe Tabelle 8).

Streuung der kritischen Ströme

Betrachtet man die Streuung der kritischen Ströme und Stromdichten innerhalb der Proben, so liegt sie bei den besten Proben zwischen zwei und zehn Prozent.

In Tabelle 9 sind die Streuung der kritischen Stromstärken der Proben eingetragen, bei denen man Aufgrund der Gestalt der gemessenen *IV*-Kennlinien davon ausgegangen kann, daß die Messungen nur wenig durch

Wafer Nr.	I_C [mA]	j_C [A/cm^2]
I	1,15	144
I(*)	1,025	128
VI	1,1	138
IX	1,43	178
XI	1,22	152
XVI	0,305	38
XVII	0,64	80
XXVIII	1,0	125

Tabelle 8: Kritische Ströme und Stromdichten ausgewählter Proben. (*) Kritischer Strom nach Tempern.

Magnetfeldeinflüsse verzerrt sind.

Probe Nr.	Streuung um mittleres I_C
I.1	± 2%
II.1	± 10%
VI.3	± 7%
XI.4	± 8%
XI.1	± 9%
XVII.1	± 6%
XXVIII.1	± 9%

Tabelle 9: Streuung von kritischer Ströme einiger ausgewählter Proben.

Probe I.1, welche mehrfach gemessen wurde, zeigte bei den Messungen Abweichungen vom durchschnittlichen kritischen Strom von nur ± 2% (Siehe Abbildung 13 auf S. 42).

Damit läßt sich abschätzen, wie groß der Fehler durch unzulängliche Lithographie ist.

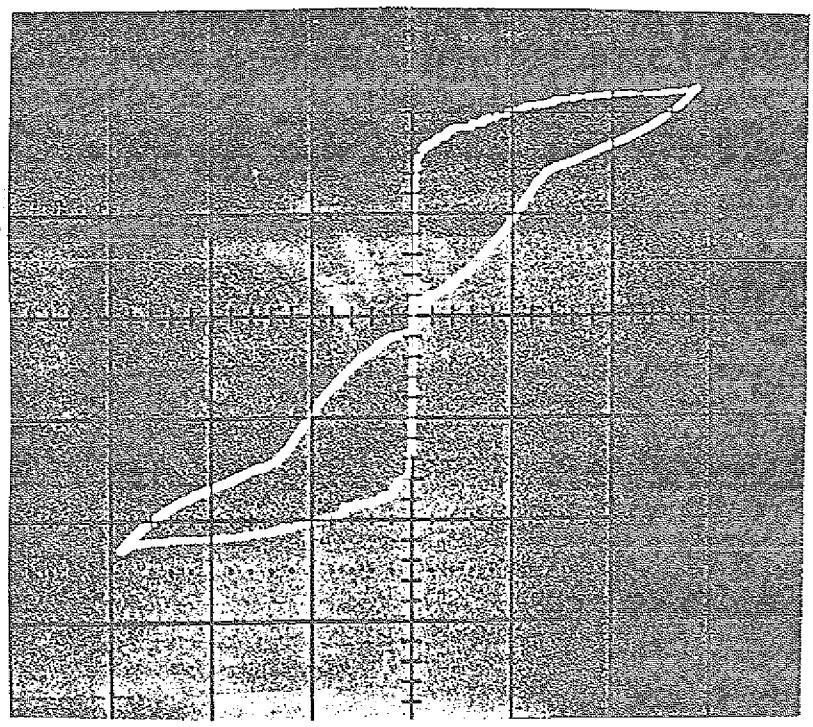
Die Tunnelkontakte dieser Proben bedecken eine rechteckige Fläche F von $L_x \cdot L_y = 40 \cdot 20\,\mu m^2$. Der größte Fehler beträgt damit $dF := dL_x \cdot L_y + L_x \cdot dL_y$. Man kann annehmen, daß der Lithographiefehler d unabhängig von der Richtung ist und so setzte ich $d = dL_x = dL_y$.

Einsetzen von $L_x = 40\ \mu m$ und $L_y = 20\ \mu m$ ergibt $dF = 60\ \mu m \cdot d$. Da

der relative Fehler dF/F kleiner als zwei Prozent sein soll, ist $d = 0,02 \cdot 800\ \mu\text{m}^2/60\ \mu\text{m} = 0,25\ \mu\text{m}$.

Der Fehler durch die Lithographie läßt sich also auf 0,25 μm begrenzen und die Kontakte haben eine Fläche von $(40 \pm 0,25) \cdot (20 \pm 0,25)\ \mu\text{m}^2$.

Streuungen der kritischen Ströme über 2% hinaus weisen damit auf zusätzliche Einflüsse hin und lassen sich nicht mehr mit unzulänglicher Lithographie begründen.



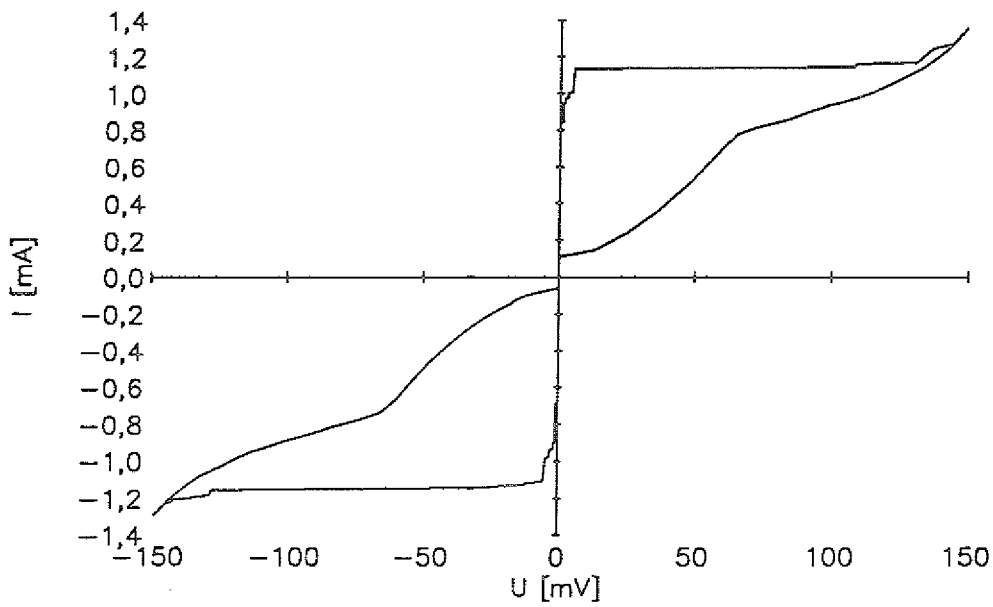


Abbildung 13: Probe I, mit viel (oben, X=50 mV/DIV, Y=0,5 mA/DIV) und sehr wenig (unten) eingefrorenem Fluß. Vernachlässigt man große Abweichungen von wenigen Kontakten, so liegt I_C bei $1,15 \pm 0,02$ mA.

5.2.2 Messungen am einzelnen Kontakt

Nachdem man deutlich sehen konnte, daß die kritischen Stromdichten stark gesunken und deren Streuung innerhalb einer Probe stark gestiegen waren[12], mußte man die Ursache hierfür untersuchen.

Um herauszufinden, ob hierfür möglicherweise thermische Effekte während des Prozesses verantwortlich sind, legte ich Probe I.1 eine Stunde lang in einen 180°C warmen Ofen[13]. Hierbei ergab sich eine Verringerung der kritischen Ströme um 11%.

Da die geringe Streuung der kritischen Stromstärke aber durch das Tempern nicht beeinflußt worden ist, kann ausgeschlossen werden, daß die Qualität der Al_2O_3-Barriere durch das Tempern bei diesen Temperaturen verringert wird.

Das Tempern der Proben hat ausschließlich einen Einfluß auf die Höhe der kritischen Ströme. Die Höhe der kritischen Ströme wird während des Temperns durch die Diffusion des Aluminiums gesenkt.

Magnetfeldabhängigkeit des kritischen Stroms

Für weitere Aussagen über die Qualität der Kontakte kann man die Abhängigkeit der kritischen Ströme vom eingeprägten Magnetfeld messen.

Aus der Abhängigkeit von I_C vom eingeprägten Magnetfeld B lassen sich folgende Aussagen gewinnen:

1. Aussagen über die Qualität des Kontakts
   (a) wie z.B. Barrierendefekte
   (b) wie z.B. Homogenität der Stromdichte im Kontakt
2. Bestimmen der effektiven Dicke d der Barriere, und damit auch
   (a) der Josephson-Eindringtiefe
   (b) der London-Eindringtiefen in Niob

Die Punkte in Abbildung 15 zeigen Meßwerte des kritischen Stroms in Abhängigkeit zum eingeprägten Magnetfeld bei Probe I.1. Die durchgezogene Linie ist die Fitfunktion

$$f(x) = \left| a \cdot \frac{\sin(b \cdot \pi(x-c))}{b \cdot \pi(x-c)} \right| ; \; a,\, b,\, c \text{ freie Parameter.}$$

[12] Dazu mehr in Kapitel 7

[13] Die Wahl fiel auf diese Probe, da sie die geringste Streuung der kritischen Stromstärken besaß

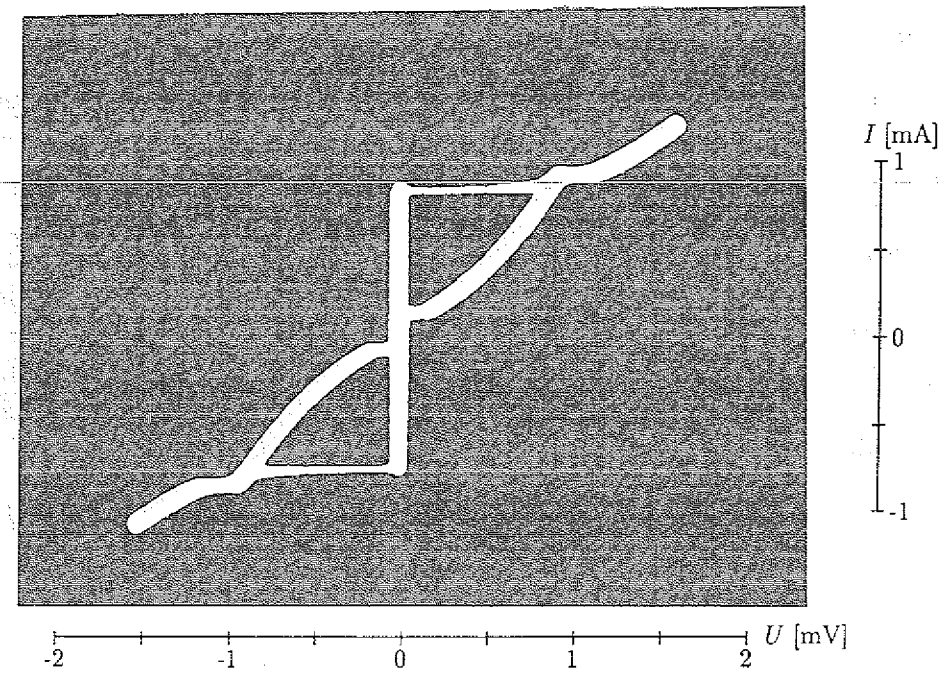


Abbildung 14: Probe I.1.l, einzelner Kontakt

Diese Funktion ist die Verallgemeinerung der Funktion 2 auf Seite 8. Mit Hilfe der Methode der kleinsten Quadrate kann man die Abweichungen von den Meßwerten minimieren und die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment überprüfen.

Für Probe I ergeben sich folgende Werte für die Fitparameter:

$$a = 1{,}68$$
$$b = 0{,}056$$
$$c = -11{,}9$$

Die gute Übereinstimmung der Meßwerte mit der Theorie läßt den Schluß auf eine sehr homogene Stromverteilung im Kontakt zu[14].

Die nur in einem Minimum auf Null fallenden Werte für den kritischen Strom deuten auf Mikrokurzschlüsse („pinholes") in der Barriere hin.

[14]Auch das gerne benutzte Verhältnis zwischen den kritischen Ströme am nullten und jeweils ersten Maxima liegen mit 1 : 0,21 bzw. 1 : 0,2 nahe am theoretischen Wert von 1 : 0,22

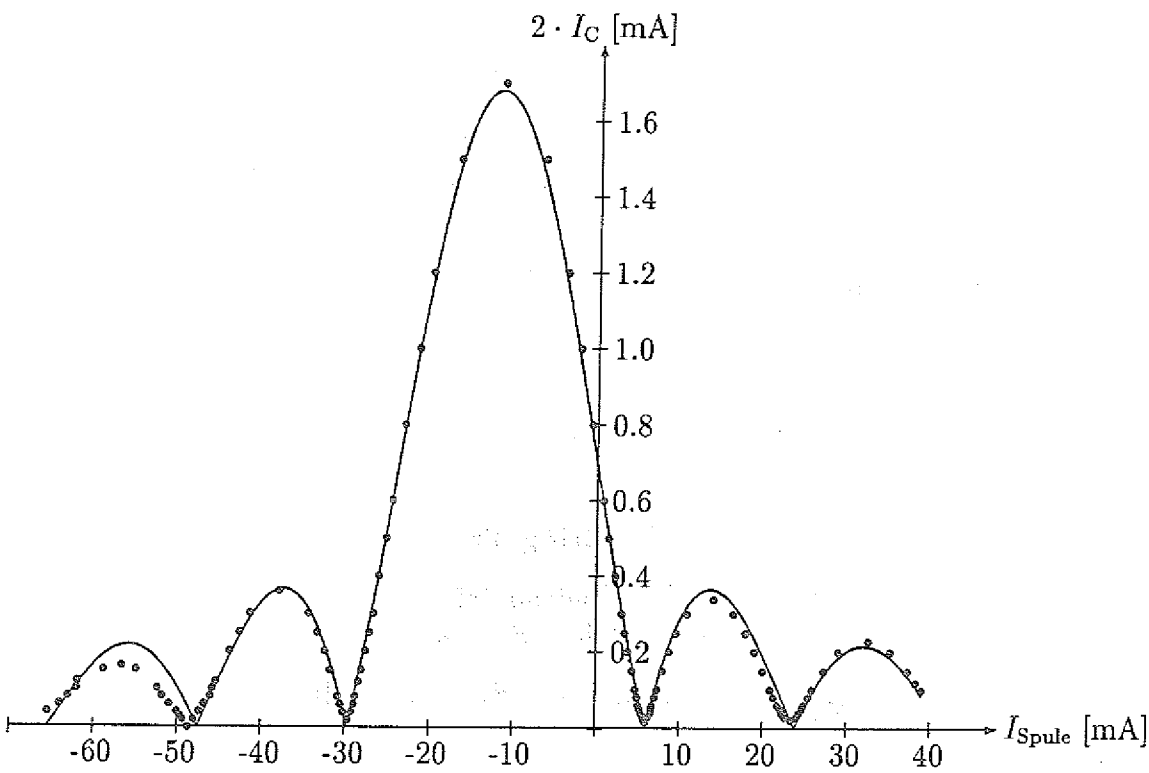


Abbildung 15: $2 \cdot I_C(I_{Spule})$ von Probe I.1.l mit angepaßter Funktion

Die effektive Dicke d des Kontakts

Aus $I_C(B)$ läßt sich die effektive Dicke d des Kontakts berechnen. Hierzu muß berechnet werden, bei welchen Magnetfeldern genau ein Flußquant in den Kontakt eingeprägt wird.

Mit der angefitteten Funktion lassen sich die „Nullstellen" des kritischen Stroms in Abhängigkeit zum Spulenstrom bestimmen.

D.h. man kann eine Aussage darüber machen, bei welchen Spulenstromstärken ein ganzzahliges Vielfaches eines Flußquants in den Kontakt eingeprägt ist.

Es ergibt sich:

$$b = 0,056 \Rightarrow I_{\text{Spule}}/\Phi_0 = 1/0,056\ \text{mA}/\Phi_0 \approx 17,9\ \text{mA}/\Phi_0.$$

Bei 17,9 mA Strom liefert die Spule ein Feld von ungefähr

$$B \approx \mu_0 \frac{I\,n}{l} \approx \mu_0 \frac{0,0179 \cdot 1000}{0,05}\text{T} = 0,45\text{mT}.$$

Das Substrat war so im Probenhalter montiert, daß die 40 μm lange Kontaktseite senkrecht zum Magnetfeld stand, d.h. $L_x = 40\ \mu$m. Damit berechnet sich die effektive Dicke d zu:

$$\Phi_0 = L_x \cdot d \cdot B \Leftrightarrow d = \frac{\Phi_0}{L_x \cdot B} = 111\ \text{nm}$$

London- und Josephson-Eindring-Tiefen

Mit d können wir die London-Eindringtiefen λ von den gesputterten Niob-Schichten bei 4,2 K berechnen (siehe Seite 8):

$$\lambda(\text{Niob, T} = 4{,}2\ \text{K}) = \frac{d - d_{\text{Al}}}{2} = \frac{111 - 16}{2} \approx 48\ \text{nm}.$$

Aus dem Literaturwert $\lambda(\text{Niob, T} = 0\ \text{K}) = 32$ nm (siehe z.B. Buckel [4]) errechnet man mit Hilfe von

$$\lambda(T) = \lambda(0) \cdot \left(1 - (T/T_C)^4\right)^{-0,5} \text{ (BCS-Thoerie)}$$

einen Wert von 33 nm für λ(massives Niob, T = 4,2 K). Dieser Wert liegt deutlich unter unserem Wert, wie es zu erwarten ist, da gesputterte Schichten mit kleinen normalleitenden Bereichen eine höhere London Eindringtiefe haben.

Nach Formel 1 auf Seite 8 kann mit d die Josephson-Eindringtiefe berechnet werden. Es ergibt sich eine Länge von 46,6 μm für die Josephson Eindringtiefe.

5.3 Messungen an Proben mit $20 \cdot 20\,\mu m^2$-Kontakten

Auch bei den Proben mit den $20{\cdot}20\mu m^2$ Kontaktflächen wird die gleiche Struktur für Grund- und Deckelektrode genutzt, wobei die Strukturen der Grund- und Deckelektrode so gegeneinander versetzt werden, daß die 100 Kontakte in Reihe geschaltet sind.

Leider sind bei diesen Kontakten keine zusätzlichen Anschlußpads zur Messung einzelner Kontakte, wodurch gezielte Messungen, wie z.B. die Abhängigkeit des Tunnelstroms vom eingeprägten Feld, entfallen.

Grund- und Deckelektrode haben die gleiche Dicke wie die größeren Kontakte, die Dicke der Al-Schicht wurde aber von 4 bis 18 nm variiert (siehe Tabelle 10), um hierdurch Rückschlüsse auf die Abhängigkeit der kritischen Stromdichten und deren Streuung in Abhängigkeit von der Dicke der Al-Schicht zu erhalten (siehe Kapitel 7).

Grundelektrode	Nb	110 nm
Isolation	SiO	
Deckelektrode	Al	4–18 nm
	Nb	110 nm

Tabelle 10: Aufbau der Proben mit $20{\cdot}20\mu m^2$-Kontakten

Im Gegensatz zu den Proben mit $40{\cdot}20\mu m^2$Kontakten, die mäanderförmig auf einem kleinen Bereich verteilt sind, sind hier die Kontakte linear angeordnet.

Wafer Nr.	Al-Dicke [nm]	I_C [mA]	j_C [A/cm^2]
4	13,5	0,22	55
5	13,5	0,17	42
6	18,0	0,13	33
7	18,0	0,11	27
10	9,0	0,27	68
11	11,3	0,28	69
12	4,5	0,18	44
21	11,3	0,37	92

Tabelle 11: kritische Ströme verschiedener Proben

Hierdurch steigt die größtmögliche Entfernung zweier Kontakte auf einer Probe von ungefähr 165 auf 6000 μm, wodurch man mit einer Erhöhung der Streuung der kritischen Ströme rechnen muß. Der starke Anstieg der Streuung der kritischen Stromichte, wie er bei diesen Proben zu beobachten ist, ist aber nicht mehr durch diese Tatsache gerechtfertigt. Würde dieser Fehler nur durch lithografische Fehler entstehen, so würde man mit $\pm 1,5\,\mu$m Genauigkeit belichten.

Tabelle 12 zeigt die Streuung der kritischen Ströme bei den beiden besten Proben und Abbildung 16 die Strom-Spannungskurve der besten Probe mit dieser Kontaktgröße. Die restlichen über 20 Wafer mit deren Proben zeigten eine Kennlinie wie Probe 11.4 (Abbildung 17) oder gar keinen Cooper-Paar-Tunnelstrom.

Probe Nr.	Al-Dicke [nm]	Streuung um mittleres I_C
5.1	13,5	$\pm$ 13%
12.1	4,5	$\pm$ 17%

Tabelle 12: Streuung der kritischen Ströme ausgewählter Proben

Der Anstieg der Streuung war so stark, daß ein Schätzen eines mittleren I_C sehr stark erschwert wurde (siehe Abbildung 17).

Da gleichzeitig mit der Verschlechterung der Ergebnisse die kritischen Stromdichten im Vergleich zu den $20 \cdot 40\,\mu$m-Proben (vergleiche Tabellen 11 und 8 auf Seite 40) sanken, muß man auch mit erhöhten Witterungseinflüssen durch steigende Temperaturen und Luftfeuchtigkeit rechnen. Für eine Diskussion und Abschätzung dieser Effekte und anderer Einflüsse verweise ich auf Kapitel 7.

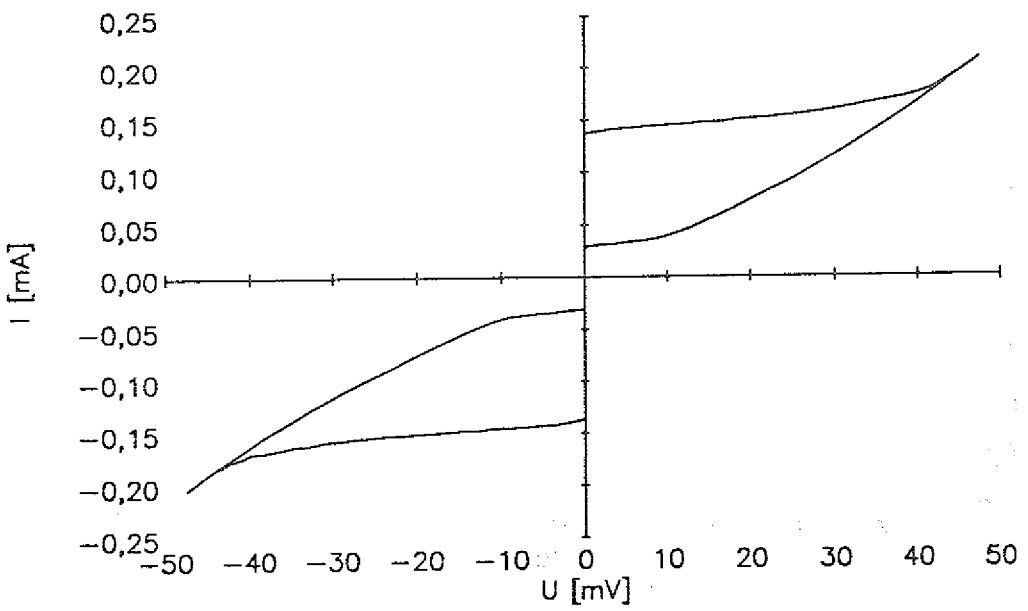


Abbildung 16: Probe 5.1; I_C zwischen 0,14 und 0,18 mA
Probe 5.1, eine der wenigen guten Proben mit $20 \cdot 20\ \mu m^2$-Kontakten.

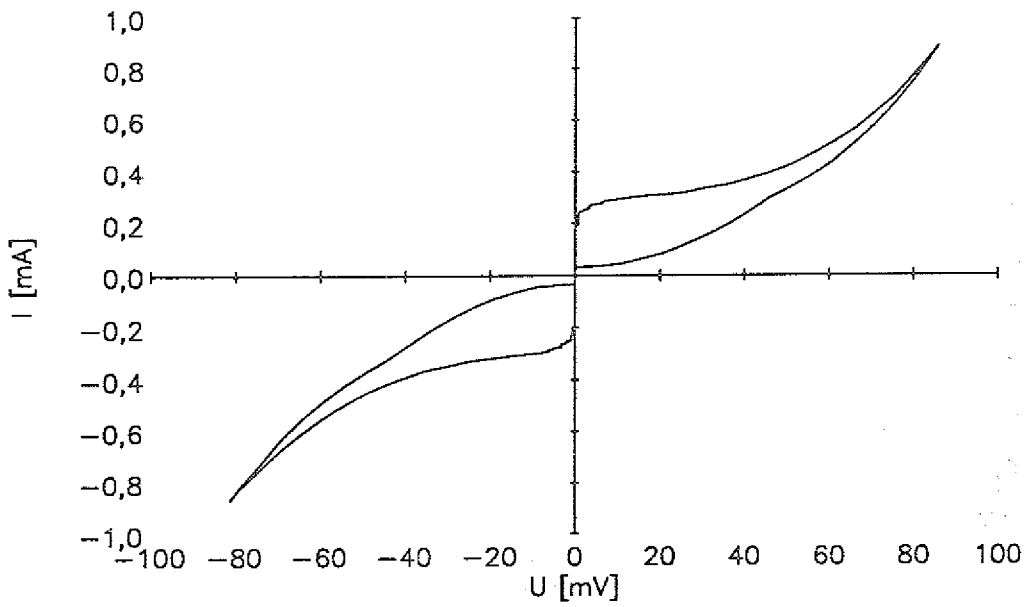


Abbildung 17: Probe 11.4; $I_C \approx 0,31$ mA
Dies ist eine typische Kennlinie für Proben mit 100 hintereinandergeschalteten $20 \cdot 20\ \mu m^2$-Kontakten. Als mittleres I_C setze ich den Wert, bei dem die Steigung $\frac{dI}{dU}$ minimal ist.

6 Messungen an den in-situ Josephson-Kontakten

Wie im vorigen Kapitel beschreibe ich hier zuerst die Meßergebnisse der Proben mit großen Kontakten und gehe dann zu den Proben mit kleineren Kontakten über.

Alle Proben wurden im März/April 1991 hergestellt. Hiermit erklärt sich ihre geringe Zahl, da die meisten Proben während des Lift-offs der Isolation verlorengingen. So beziehen sich alle Ergebnisse auf Proben von vier Wafern (siehe Tabelle 13).

Wafer	Kontaktgröße
XL	$40 \cdot 20\mu m^2$
XLI	$40 \cdot 20\mu m^2$
22.3.91.d	$5\mu m^2$
23.4.91.b	$2\mu m^2$

Tabelle 13: in-situ Proben

Die Kennlinien der in-situ Kontakte wurden mit den gleichen Meßgeräten wie für die geshunteten Kontakte aufgenommen (siehe Abschnitt 5.1).

6.1 Messungen an Proben mit $40 \cdot 20\mu m^2$-Kontakten

Mit dem mir zum Schluß zur Verfügung stehenden RIE-Prozeß präparierte ich zwei Wafer mit $40 \cdot 20\mu m^2$-Kontakten auf einem nicht oxidierten Si-Wafer (siehe nachfolgende Tabelle).

Wafer Nr.:		XL	XLI
Grundelektrode	Nb	180 nm	180 nm
vor reaktivem	Al	7 nm	ca. 14 nm
Grundelektrode	Nb	110 nm	110 nm
Isolation	SiO		
Deckelektrode	Nb	110 nm	110 nm

6.1.1 Messungen hintereinandergeschalteter Kontakte

Obwohl Wafer XLI eine dickere Al-Schicht hat als Wafer XL, haben seine Proben einen höheren kritischen Strom.

Die kritischen Ströme I_C liegen bei 2 mA bzw. 2,6 mA für die Proben XL und XLI (Siehe Abbildungen 18 und 19). Damit ergeben sich kritische Stromdichten j_C von 250 bzw. 325 A/cm^2, die höchsten kritischen Stromdichten aller gemessenen Proben.

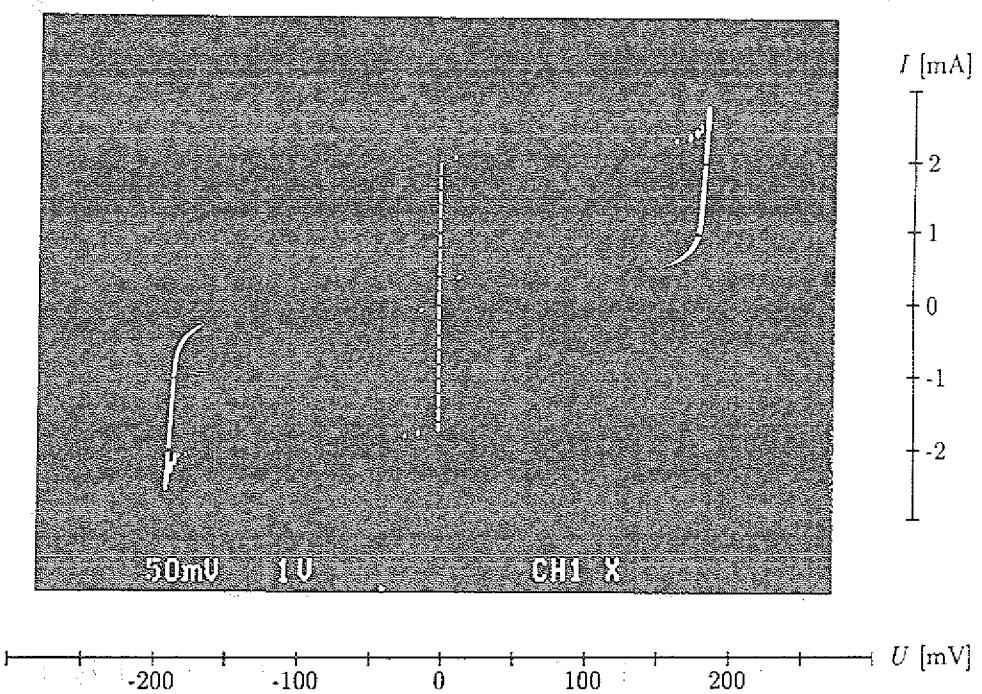


Abbildung 18: IV-Kurve von Probe XL.1, $X = 50$ mV/DIV, $Y = 1$ mA/DIV

Betrachtet man die Strom-Spannungs-Kennlinien von Probe XL.1 und XLI.1 genauer, so fällt auf, daß an 89 Josephsonkontakten jeweils eine Spannung von 175 bzw. 188 mV anfallen, d.h. jeweils 1,95 bzw. 2,08 mV/Kontakt. Dies liegt deutlich unter den Werten der Energielückenspannug eines einzelnen Kontakts.

Die niedrigen Spannungen lassen sich aber auf Fehler in der Isolation zurückführen. RIE-Kontakte werden kurzgeschlossen, sowie etwas von der SiO-Isolation beim Lift-off wegbricht.

Anhand der Strom-Spannungs-Kurve eines einzelnen Kontakts kann (Einzelner Kontakt von Probe XL.4 auf Seite 7, Abbildung 4) nun berechnet werden, wieviele Kontakte funktionsfähig bzw. kurzgeschlossen sind.

So sind bei Probe XL ca. 175 mV/2,5 mV = 70 Kontakte und bei

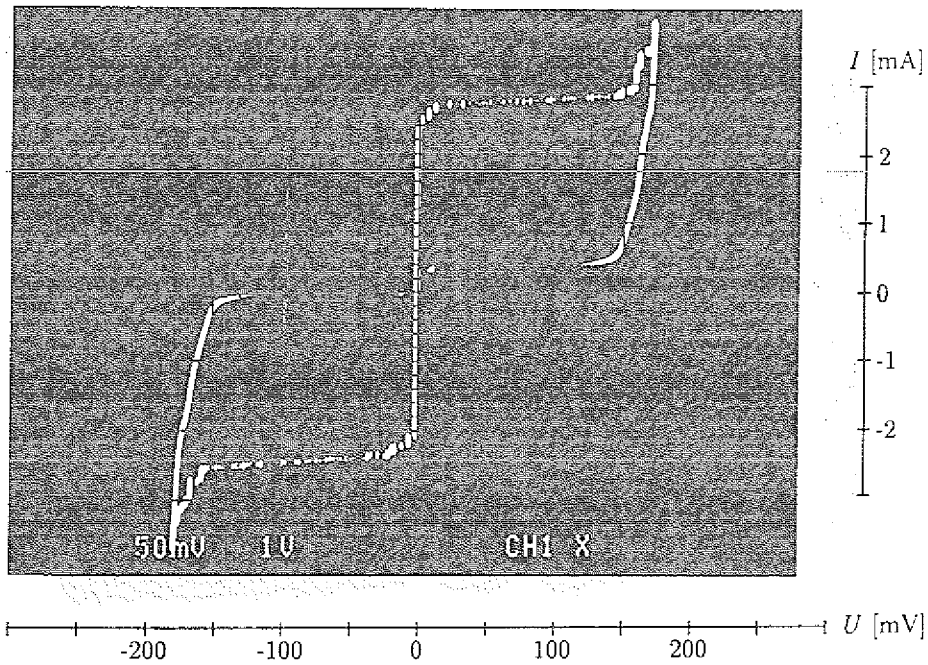


Abbildung 19: IV-Kurve von Probe XLI.1, X = 50 mV/DIV, Y = 1 mA/DIV

Probe XLI ca. 75 Kontakte funktionsfähig. Damit sind 21 bzw. 16% der Kontakte nicht funktionsfähig.

Mit der Anzahl der funktionsfähigen Kontakte können wir uns als weitere Information den mittleren Qualitätsparameter $\overline{V_m}$ ermitteln, indem wir den Subgapstrom bei 70 bzw. $75 \cdot 2$ mV ablesen.

Es ergibt sich:

$$\overline{V_m}(\text{Probe XL}) \approx 2\ \text{mV} \cdot \frac{2\ \text{mA}}{0{,}34\ \text{mA}} \approx 11{,}8\ \text{mV}$$

$$\overline{V_m}(\text{Probe XLI}) \approx 2\ \text{mV} \cdot \frac{2{,}6\ \text{mA}}{0{,}6\ \text{mA}} \approx 8{,}7\ \text{mV}$$

6.1.2 Messungen am einzelnen Kontakt

Bei Messungen im Magnetfeld konnten bei Probe XL.4.r Fiske-Stufen beobachtet werden. Auf Abbildung 20 ist die IV-Kennlinie hiervon zu sehen.

Verantwortlich für die Fiske-Stufen sind stehende Wellen von Josephson-Wechselströmen im Kontakt. Hat der rechteckige Kontakt Kanten L_x und L_y, so ergibt sich:

$$n \cdot \lambda/2 = L, \text{ mit } L = L_x \text{ bzw. } L_y$$

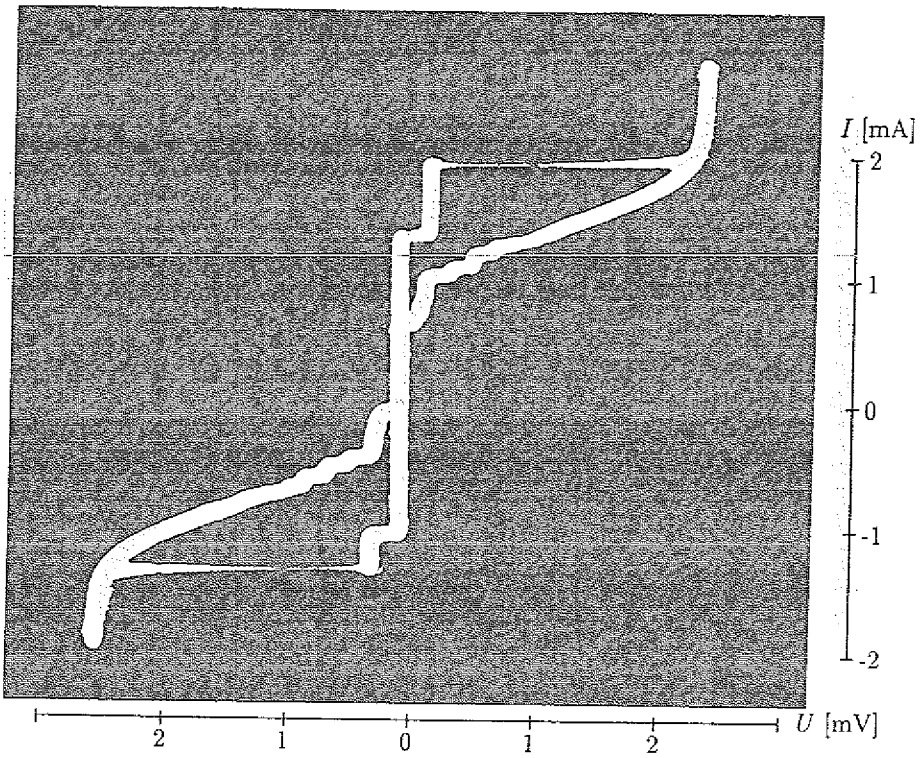


Abbildung 20: IV-Kurve von Probe XL.4 im Magnetfeld

Die Frequenz ν des Josephson-Wechselstroms berechnet sich aus

$$\nu = \frac{U_{\mathrm{DC}}}{\Phi_0}.$$

Mit $c = \lambda \cdot \nu$ ergibt sich für die Wellengeschwindigkeit c_{K} im Kontakt:

$$c_{\mathrm{K}} = 2 \cdot L \cdot \frac{U_{\mathrm{DC}}}{\Phi_0}$$

Für die erste, energiearme Fiske-Stufe gilt $n = 1$. Bei einem rechteckigen Josephsonkontakt treten die Resonanzen zuerst an den langen Seiten auf. Es ergibt sich für $L = L_{\mathrm{x}} = 40\ \mu\mathrm{m}$:

$$c_{\mathrm{K}} = 2 \cdot 40\ \mu\mathrm{m} \cdot \frac{0,28\ \mathrm{mV}}{2 \cdot 10^{-15}\ \mathrm{T/m^2}} = 1,12 \cdot 10^7 \mathrm{m/s}$$

Der Zusammenhang zwischen der Dicke d_{I} der Barriere und den gemessenen Spannungen bzw. Wellengeschwindigkeiten findet man z.B. bei Fiske [5], Barone [2] oder Mück [18]:

$$c_{\mathrm{K}} = \mathrm{c} \cdot \sqrt{d_{\mathrm{I}}/(\varepsilon_r\, d)}$$

$$d_I = \left(\frac{c_K}{c}\right)^2 d \cdot \varepsilon_r$$

Wenn wir für die effektive Dicke d 100 nm (Dies entspricht beinahe der bei Probe I.1 gemessenen Dicke von 111 nm) einsetzen — $\varepsilon_r(Al_2O_3) \approx 8$ (siehe Gurvitch [9], S. 793) — so errechnet sich die Dicke der Isolationsschicht zu

$$d_I = \frac{11200000 \text{ m/s}^2}{3 \cdot 10^8 \text{ m/s}^2} 100 \text{ nm} \cdot 8 \approx 1,1 \cdot 10^{-9} \text{ m} = 1,1 \text{ nm}.$$

Dies ist ein vernünftiger Wert für die Barrierendicke.

6.2 Messungen an Proben mit 2–5 μm^2-Kontakten

6.2.1 Probe von Wafer 22.3.91.d

Wafer 22.3.91.d hat als einziger Wafer eine Isolationsschicht aus SiO_2. Aufgrund der großen Höhenunterschiede von 200 bis über 1000 nm bei nicht-oxidierten Si-Wafern durch das reaktive Ionenätzen wurde hier versucht, den Schattenwirkungen[15] beim Dampfen auszuweichen und die Isolationsschicht aufzusputtern.

Aufgrund der Geometrie der Sputteranlage — die Sputterkathoden haben einen größeren Durchmesser als der Abstand der Kathoden zum Substrat — kann man davon ausgehen, daß die Isolationsschicht sich isotrop auch über Kanten ausbildet. Dies würde die Kantenisolation sicherer machen.

Bei der Herstellung dieser Probe wurden die Nachteile, die die Isolation mit SiO_2 mit sich bringt, wie

1. viel dünnere Isolationsschichten (nur ca. 40 nm bei dieser Probe),
2. wesentlich höhere thermische Belastung während des Aufbringens der Isolation und
3. viel geringere Aufwachsraten

bewußt in Kauf genommen.

Die SiO_2-Isolationsschicht der Probe wurde mit 40 nm mindestens fünfmal dünner als die übliche Isolation aus SiO.

Die SiO_2-Schicht wurde in Intervallen (siehe Tabelle 14) — 30 Sekunden Sputtern, 90 Sekunden Pause — aufgetragen, um den Photolack nicht zu zerstören. Außerdem sollten die Nb-Al-Nb-Grenzflächen nicht geschädigt

Zweck	DC-Potential	Druck	Zeit
Vorsputtern SiO_2	800 V	2 Pa Ar	1 min
Vorsputtern SiO_2	1000 V	2 Pa Ar	1 min
Vorsputtern SiO_2	1200 V	2 Pa Ar	1 min
Vorsputtern SiO_2	1500 V	2 Pa Ar	2 min
Ionenätzen	800 V	2 Pa Ar	2 min
Vorsputtern SiO_2	800 $\rightarrow$ 1500 V	2 Pa Ar	1 min
sowie achtmal:			
Sputtern SiO_2	1500 V	2 Pa Ar	30 sec
Vorsputtern SiO_2	1500 V	2 Pa Ar	90 sec

Tabelle 14: Prozeßablauf beim Aufbringen der SiO_2-Isolation in der Leybold Sputteranlage (SiO_2-Sputterrate ca. 7 nm/min).

werden. Durch das Sputtern in Intervallen erhält man natürlich zusätzlich Verunreinigungen in der Isolation.

Leider zeigen die *IV*-Kurven der Proben einen sehr hohen Subgapstrom. Dies deutet auf

- ein Versagen des RIE-Schritts (kein Durchätzen der Al-Barriere) oder
- eine sehr starke Diffusion des Aluminiums

hin. Die schwache Sichtbarkeit des Proximity-Knie's und die auftretenden Spannungen am Kontakt (siehe Abbildung 22) deuten mehr eine sehr starke Diffusion des Aluminiums hin, welche sich durch die hohen Temperaturen beim Aufbringen der Isolation erklären (siehe Tanabe [24] und Imamura [17]).

In der folgenden Tabelle sind alle gemessenen kritischen Ströme eingetragen. Die Stromdichten beziehen sich auf eine Kontaktfläche von 5 μm^2. Zu den „gerechneten" Stromdichten von über 200 A/cm^2 kommt man durch Kurzschlüsse in der Isolation und Fehler in der Barriere.

Trotz der dünnen Isolationsschicht mußte auch bei den Proben von Wafer 22.3.91.d ein Wattestäbchen benutzt werden, um die Isolationsschicht zu entfernen. Interessant wäre es zu wissen, ob dies die Ursache für die Defekte der Isolation sind.

[15]und daraus resultierenden Problemen bei der Kantenisolation

Probe Nr.	I_C [μA]	j_C [A/cm^2]
22.3.91.d.1.1	2,4	48
22.3.91.d.1.2	2,8	56
22.3.91.d.1.5	70	1400
22.3.91.d.1.6	6,2	124
22.3.91.d.2.1	64	2480
22.3.91.d.2.2	20	400
22.3.91.d.3.3	13,5	270
22.3.91.d.4.2	17	340

Tabelle 15: Proben von Wafer 22.3.91

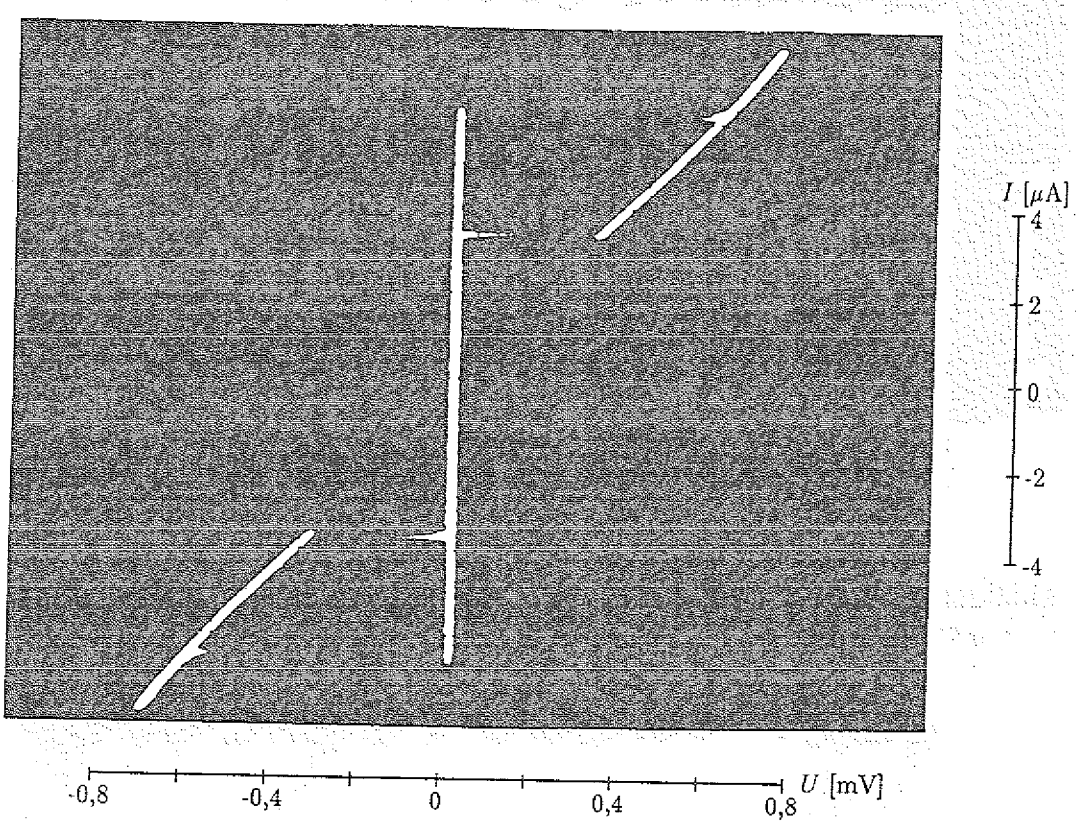


Abbildung 21: IV-Kurve von Probe 22.3.91.d.1.6, X=0,2 mV/DIV, Y=1 μA/DIV, $I_C = 6,2\,\mu$A.

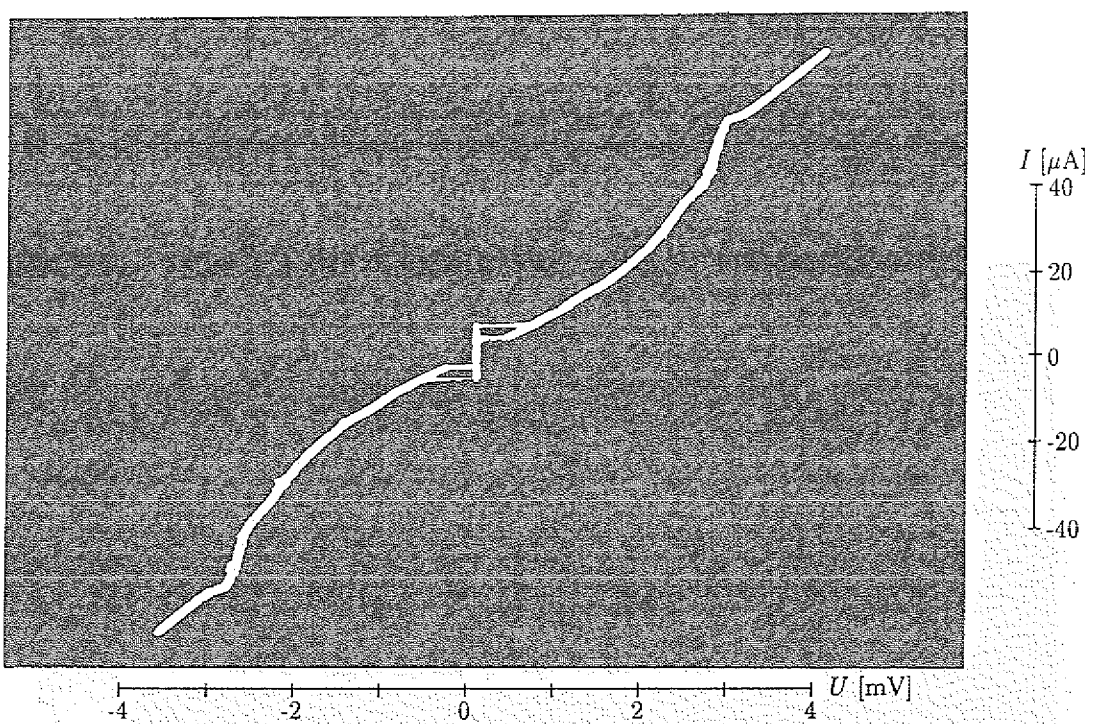


Abbildung 22: *IV*-Kurve von Probe 22.3.91.d.1.6, X=20 mV/DIV, Y=1 μA/DIV

6.2.2 Wafer 23.4.91.b

Der Wafer 23.4.91.b lieferte von allen während meiner Arbeit präparierten Proben die mit den besten Ergebnissen, und das obwohl es der Wafer mit den kleinsten Josephsonkontakten war.

Dieser Wafer war mit dem Wafer 23.4.91.a die ersten, welche vor den Präparationsschritten zwei Stunden lang bei 1050°C mit reinem Sauerstoff oxidiert wurden, um das reaktive Ionenätzen in das Substrat zu reduzieren.

Die Grundelektrode vor dem Ionenätzen bestand aus 180 nm Nb, 7 nm Al und 110 nm Nb. Der Wafer wurde — anders als alle anderen in dieser Arbeit vorgestellten Kontakte — in einer Leybold Aufdampfanlage (siehe 10.1.4) nach halbminütigem Ar-Ionenätzen mit einer Ionenkanone bei einer Aufdampfrate von ca. 1 nm/sec. mit ungefähr 250 nm SiO bedampft. Als Deckelektrode sputterte man hier eine 140 nm dicke Nb-Schicht.

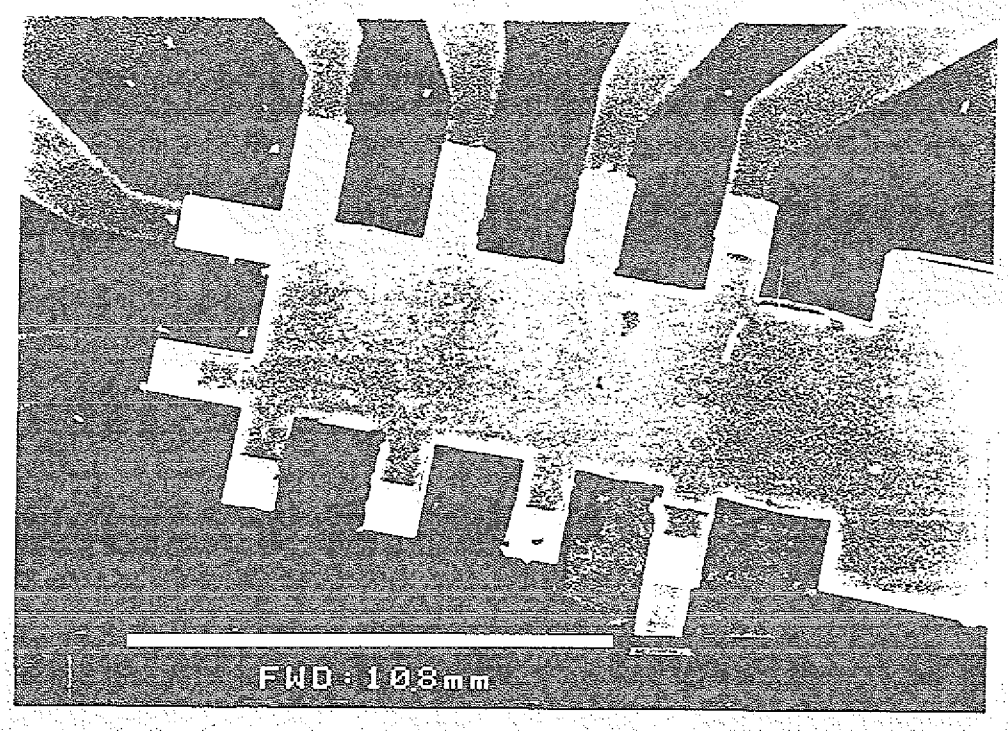


Abbildung 23: Elektronenmikroskopische Aufnahme von Probe 23.4.91.b.3.

Schwierigkeiten bei den Messungen durch das Einfrieren von Magnetfeldern brachten es mit sich, daß im Laufe der Messungen (siehe Abbildung 24) Probe 23.4.91.b.3.4 öfter über T_C erwärmt und wieder abgekühlt wurde. Damit ergaben sich bei neuen Messungen verbesserte Werte für I_C und V_m:

$2 \cdot I_C(2mV)$ [μA]	$2 \cdot I_Q(2mV)$ [μA]	V_m [mV]
2,60	0,400	13,0
3,25	0,387	16,8

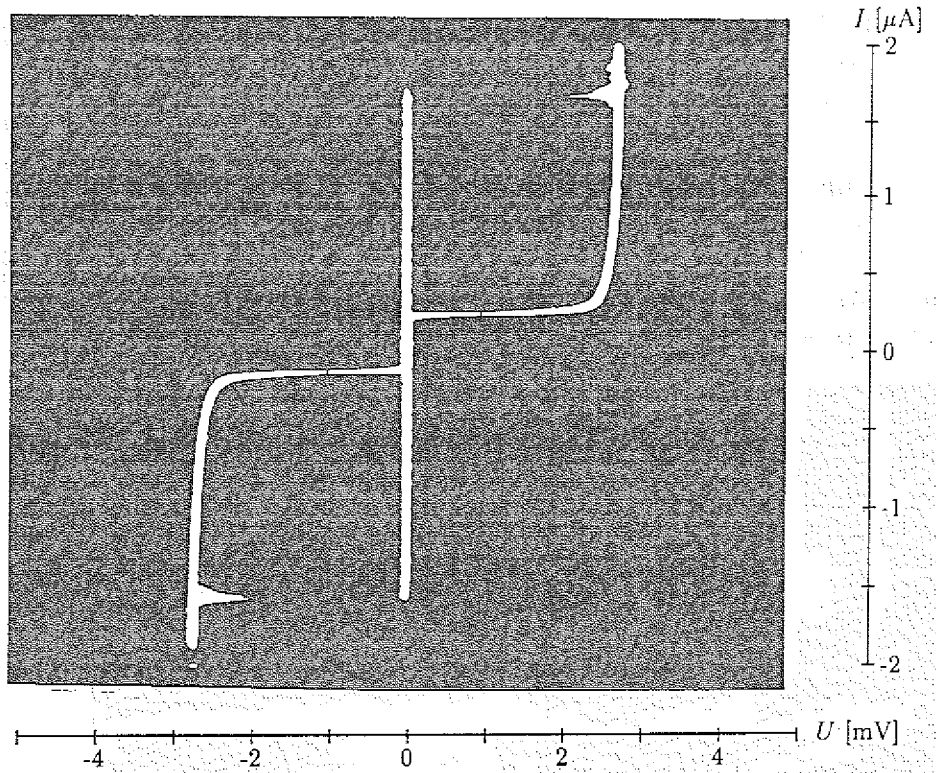


Abbildung 24: IV-Kennlinie von Probe 23.4.91.b.3.4; X=1 mV/DIV, Y=0,5 μA

Der Kontakt im Magnetfeld

Ähnlich wie bei Probe I.1 (siehe S. 5.2.2) läßt sich auch bei Probe 23.4.91.b.3.4 mit Hilfe der Magnetfeldabhängigkeit (Abbildung 25) des kritischen Stroms die effektive Dicke d des Josephson-Kontakts berechnen. Die „Nullstellen" bei denen jeweils ein Φ_0 eingeprägt wurde, konnten hier, im Gegensatz zu Probe I.1 direkt gemessen werden. Bei ± 600 mA Spulenstrom wurde I_C vollständig unterdrückt. Damit ergibt sich:

$$\frac{\Phi_0}{L_x\, B} = d \Leftrightarrow d \approx \frac{2 \cdot 10^{-15}}{1,6 \cdot 10^{-6}\, 4\pi 10^{-7} \frac{1000 \cdot 0,6}{0,05}}\ \mathrm{m} \approx 83\ \mathrm{nm}.$$

Kontakt Nr.	Ic [μA]	Datum	Anmerkungen
23.4.91.b.1.1		7.5.91	„Fenster“, supraleitend
23.4.91.b.1.5	1,5	13.5.91	
23.4.91.b.1.7	1,2	13.5.91	
23.4.91.b.2.1		7.5.91	„Fenster“, supraleitend
23.4.91.b.2.4	1,3	13.5.91	
23.4.91.b.2.10	1,15	14.5.91	
23.4.91.b.3.1		7.5.91	„Fenster“, supraleitend
23.4.91.b.3.2		7.5.91	isolierend
23.4.91.b.3.3		7.5.91	Kurzschluß
23.4.91.b.3.4	1,3	13.5.91	
23.4.91.b.3.5	1,3	13.5.91	
23.4.91.b.3.6	1,3	13.5.91	
23.4.91.b.3.7		13.5.91	Kurzschluß
23.4.91.b.3.8	1,4	13.5.91	
23.4.91.b.3.9	1,4	13.5.91	
23.4.91.b.3.10	1,5	14.5.91	
23.4.91.b.4.1		7.5.91	„Fenster“, supraleitend
23.4.91.b.4.3	2	7.5.91	
23.4.91.b.4.4	0,8	13.5.91	
23.4.91.b.4.8	1	13.5.91	

Tabelle 16: Meßergebnisse von Wafer 22.4.91.b, gemessen ohne Blei-Abschirmung. Mit „Fenster“ bezeichne ich die Stelle der Probe, an denen sich kein Josephsonkontakt befindet, Grund- und Deckelektrode aber wegen Lithographietechnischer Gründe in Berührung kommen.

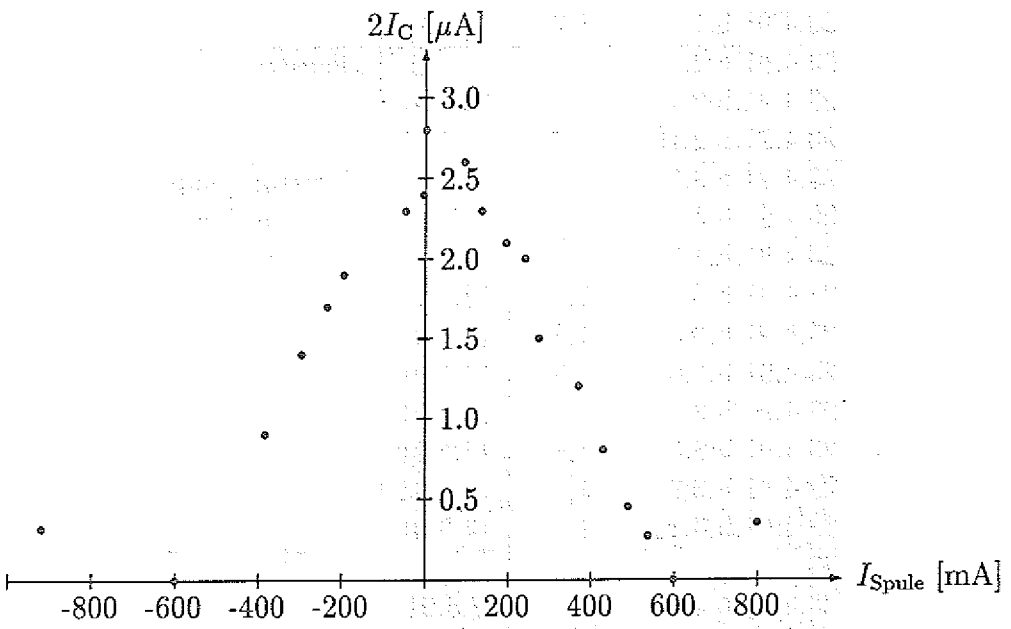


Abbildung 25: Magnetfeldabhängigkeit von Probe 23.4.91.b.3.4

Die meisten funktionstüchtigen Kontakte (13 von 36) zeigten bei geringer Streuung kritische Ströme von $1,3 - 1,5$ mA bei Messungen ohne Bleiabschirmung (siehe Tabelle 16). Diese Werte ließen sich meist wie bei Probe 23.4.91.b.3.4 durch Messungen mit Bleiabschirmung auf 1,6 μA, dies entspricht einer kritischen Stromdichte von 75 A/cm^2, erhöhen.

Insgesamt zeigten alle in-situ Proben mit Kontaktflächen von 800 μm^2 bis hinunter auf 2 μm^2 eine sehr geringe Streuung der kritischen Stromdichten, solange die Isolationsschicht intakt war.

Die unterschiedliche Qualität der Kontakte sind auf unterschiedliche Isolationsmaterialien, unterschiedliche Prozesse zum Aufwachsen der Isolation und verschiedene Maschinen zum Aufbringen der Isolation zurückzuführen.

7 Diskussion der Meßergebnisse

In diesem Kapitel will ich alle Meßergebnisse der Kontakte bewerten und vergleichen. Als Ergebnis daraus sollen Bedingungen und Anforderungen an die Präparation zukünftiger Kontakte aufgestellt werden.

7.1 Die weit streuenden kritischen Stromdichten

Insgesamt schwanken bei allen Proben, die während der Versuche hergestellt wurden, die j_C unterschiedlicher Wafer stark. Hierbei ist es gleichgültig, ob die Wafer gemeinsam die einzelnen Prozesse durchliefen oder nicht[16].

Betrachtet man die Stromdichten der geshunteten Kontakte, so kann man sie in zwei Gruppen teilen:
Die erste Gruppe der früh hergestellten Proben zeigten ein j_C von ca. 130 bis 180 A/cm^2 und eine sehr gute Verteilung der I_C auf einer Probe.

Die zweite Gruppe der später hergestellten Proben zeigten bei gleichen Prozeßbedingungen (außer Umwelteinflüsse) ein j_C von ca. 35 bis 75 A/cm^2 bei deutlich schlechterer Verteilung der I_C und verringerter Ausbeute. Tabelle 17 zeigt die typischen kritischen Ströme aller Proben, einschließlich der in-situ hergestellten.

Die Verringerung der kritischen Stromdichten um den Faktor 2,5 bei dem Durchschnitt aller Proben läßt sich aber nicht mehr durch Schwankungen im Präparationsprozeß, wie

- unterschiedliche Substrattemperatur vor dem Aufsputtern von Aluminium ($\rightsquigarrow$ Diffusion von Aluminium in die Niob Oberfläche) und
- unterschiedliche Substrattemperatur vor dem Oxidieren des Aluminiums ($\rightsquigarrow$ Einfluß auf Oxidationsgeschwindigkeit)

erklären, da gleichzeitig die Streuung der kritischen Ströme innerhalb einer Probe gestiegen ist (siehe z.B. Abbildung 17 auf Seite 50, mit 0,23 mA$<$ I_C $<$0,8 mA).

Als Gründe für die starke Reduzierung der kritischen Stromdichten kommen folgende Aspekte in Betracht:

1. Anstieg der Lufttemperaturen
2. Anstieg der Luftfeuchtigkeit

[16] In der Leybold-Sputteranlage können jeweils zwei Wafer hintereinander in einem Vakuumzyklus verarbeitet werden.

Oxidations-zeit	Oxidations-druck	mittlere j_C A/cm^2	Anmerkungen
2:30 h	100 Pa O_2	150	frühe, geshuntete Proben, $20 \cdot 40 \mu m^2$, typisches d_{Al} bei 15 bis 20 nm.
2:30 h	100 Pa O_2	60	späte, geshuntete Proben, $20 \cdot 20 \mu m^2$, typisches d_{Al} bei 15 bis 20 nm.
0:30 h	100 Pa O_2	280	$20 \cdot 40 \mu m^2$ große in-situ Kontakte, typisches d_{Al} bei 7 bis 16 nm.
0:30 h	100 Pa O_2	60–75	2 μm^2 große in-situ Kontakte, typisches d_{Al} bei 7 bis 8 nm.

Tabelle 17: Mittlere J_C der Proben

3. Anstieg der Kühlwassertemperaturen
4. Wechsel der Hochfrequenz-Röhre zum RF-Sputtern von Aluminium und zum Ionenätzen in der Leybold-Sputteranlage

Noch denkbare rein thermische Einflüsse (Temperatur während des Aufbringens der Schichten) können wegen der Messungen an Probe I.1 ausgeschlossen werden (siehe S. 43). Erst bei sehr dünnen Aluminium-Schichten (kleiner als 7 nm) spielen diese Effekte eine Rolle. Tanabe [24] und Imamura [17] beschreiben die Abhängigkeit und Veränderung der Strom-Spannungs-Kennlinien in Abhängigkeit der wärmebedingten Diffusion.

Den oben aufgezählten Umwelteinflüssen versuchte ich durch die Variierung der Prozeßparameter beim reaktiven Ionenätzen zu begegnen.

Den Wechsel der Hochfrequenz-Röhre zum Sputtern von Aluminium und zum Ionenätzen in der Leybold Sputteranlage muß man wegen der nicht geänderten Geometrie der Sputterkathoden und der Substrathalter als Grund für schlechtere Schichten verwerfen.

Ein Einfluß dieser Röhre auf nachweisbare Prozesse, wie z.B. der Sputterrate von Aluminium konnten zudem nicht festgestellt werden.

Letztendlich müssen äußere Bedingungen für die Verschlechterung der Kontakte verantwortlich gemacht werden. Durch höhere Temperaturen und höhere Luftfeuchtigkeit kommt mehr Wasser und Sauerstoff auf die Grundelektrode der geshunteten Kontakte.

Durch die höheren Temperaturen können Wasser wie Sauerstoff weiter in die Nb-Oberfläche eindringen, sodaß die Nb-Oberfläche stärker durch die Bildung von Nioboxiden und -Hydroxiden geschädigt wird. Die Schädigung muß hierbei so weit gehen, daß sie sich nicht mehr durch Ionenätzen rückgängig machen läßt.

Die Anwesenheit von Nioboxiden, -Hydroxiden und Wasser erklärt auf einfache Weise alle Beobachtungen, wie verringerte kritische Stromdichten und der Erhöhung der Streuung, da Nioboxide ein schlechtes Barrierenmaterial bilden. Wasser im Kontakt sorgt für eine weitere Verschlechterung der Kontakteigenschaften.

7.1.1 Abhängigkeit vom Tunnelstrom von der Schichtdicke

In der Hoffnung, die Tunnelstromdichte der später hergestellten, geshunteten Kontakte auf die bei den beobachteten Werte der früh hergestellten Proben zu erhöhen, prüfte ich die Abhängigkeit der Tunnelstromdichte von der Dicke der Al-Schicht. Hierbei ergaben sich die in der Abbildung 26 sichtbaren Werte für die Stomdichte:

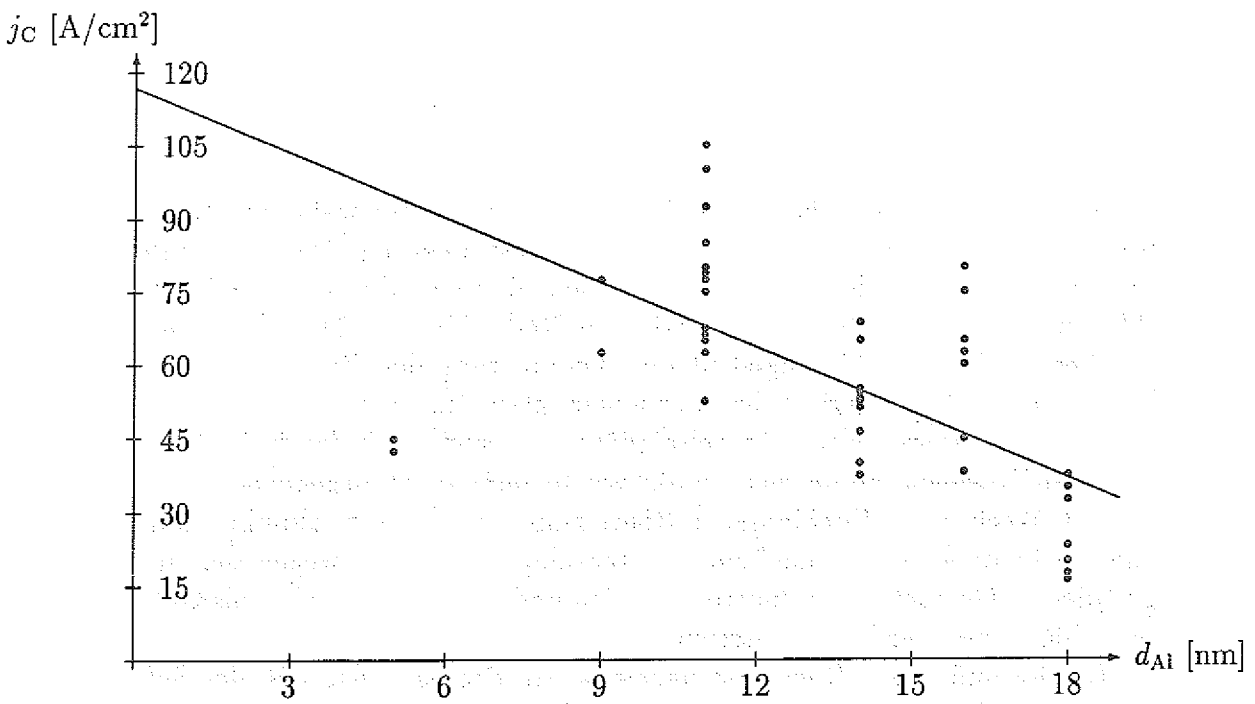


Abbildung 26: Abhängigkeit von j_C [A/cm^2] von d_{Al} [nm]

Die eingezeichnete Regressionsgerade wurde mit allen Werten $d_{Al} > 5$ nm

berechnet.
Auf die beiden Werte mit $d_{Al} < 5$ nm habe ich deshalb verzichtet, da man hier davon ausgehen muß, daß wegen der geringen Dicke der Aluminium-Barriere auch das Niob partiell oxidiert wurde, was zwangsläufig zu einer Abnahme des kritschen Stroms führt.

7.2 Unterschiede der Kontakteigenschaften

Wenn man die IV-Kennlinien und die kritischen Ströme der von mir hergestellten Kontakte mit denen anderer Gruppen vergleicht, so fallen einem folgende Unterschiede auf:

1. Die niedrigen kritischen Stromdichten von 30 bis 325 A/cm^2 bei gleichen Oxidationsdrucken und -zeiten.

2. Das große Verhältnis von 6 bis 8 : 1 von Quasipartikel-Tunnelstrom am Proximity-Knie zu Cooper-Paar-Tunnelstrom I_C (siehe Abbildung 27).

Die kleinen kritischen Stromdichten zeigen, daß bei meinen Kontakten während des Sputter- und Oxidationsprozesses die Temperaturen deutlich über den Raumtemperaturen liegen.

Ohne die Oxidationsparameter zu verändern, könnte man durch eine weitere Verbesserung der Kühlung wie z.B. Verbesserung des Kontakts zwischen Wafer und Substrathalter durch Einlegen einer Indium-Folie die Stromdichten leicht erhöhen.

Name	Verhältnis
Anders [1]	3,5–2,5 : 1
Blamire [3]	1,8 : 1
Gottfried [6]	2 : 1
Gates, Gurvitch, Huggins [7], [8], [9] [12]	1,7–1,5 : 1
Imamura [14] – [17]	2,8–1,5 : 1
Morohashi [20]	2 : 1
Tanabe [24]	2 : 1

Das große Verhältnis zwischen den Quasipartikel- und Cooper-Paar-Tunnelströmen (siehe Abbildung 27) bei der Energielücke ist nur schwer zu erklären.

Nach den Theorien über SNIS-Kontakte (auch Proximity-Effekt-Kontakte genannt; siehe Wyatt [25]) reduziert die Normalleiter-Schicht dieses Verhältnis. Da aber die Aluminium-Schichtdicken bei nur 7–15 nm für in-situ Kontakte lagen, ist ein solch starker Einfluß nicht zu erwarten.

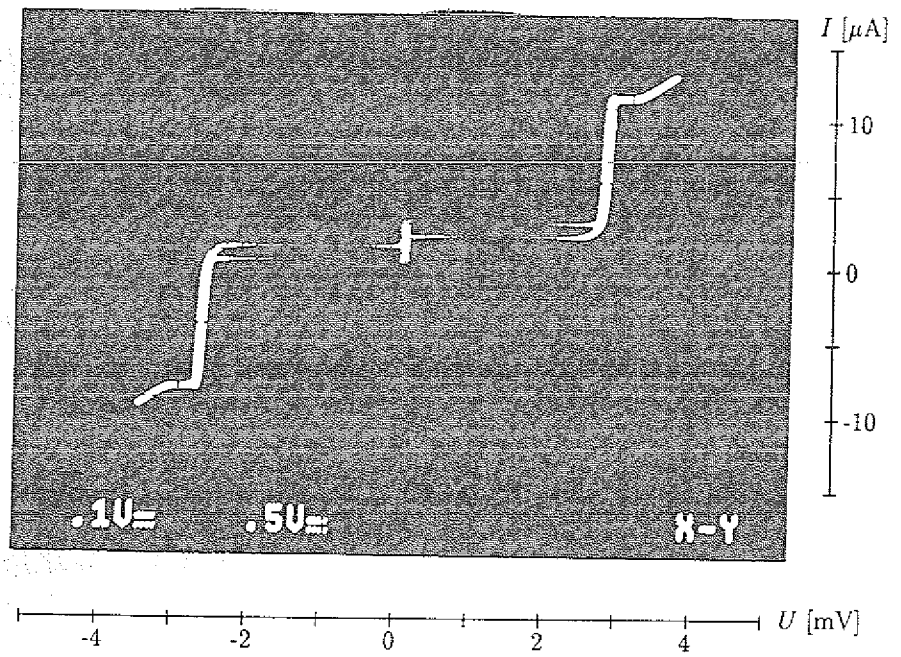


Abbildung 27: Probe 23.4.91.b.3.4; X=1mV/DIV, Y=5μA/DIV, I_C = $1,3\mu$A, $I(3\,\mathrm{mV}) = 10\,\mu$A

Ursache könnten aber Verschmutzungen der Barriere (der Hintergrunddruck der Leybold-Sputteranlage ist im allgemeinen deutlich höher als die von anderen verwendeten Anlagen) oder nicht optimal abgestimmte Sputterparameter von Niob sein.

8 Vergleich verschiedener Herstellungsverfahren

In den Kapiteln zur Herstellung meiner Kontakte habe ich schon an verschiedenen Stellen auf Vor- und Nachteile des jeweiligen Herstellungsverfahrens hingewiesen, aber die beiden Verfahren noch nicht direkt gegenübergestellt.

Für eine umfassende Übersicht sollte man aber nicht nur die eigenen Verfahren betrachten, sondern auch andere Verfahren mit in Betracht ziehen. So werde ich in diesem Kapitel folgendermaßen vorgehen:

1. Vorstellung und Beschreibung anderer weltweit zur Anwendung kommender Verfahren mit ihren Vor- und Nachteilen.

2. Vergleich der verschiedenen Verfahren zur Herstellung von Josephson-Tunnelkontakten.

3. Gedanken über einen verbesserten Herstellungsprozeß.

8.1 Andere Verfahren zur Herstellung von Nb-Al-Nb-Tunnelkontakten

Zur Herstellung von Nb-Al-Nb-Tunnelkontakten werden in anderen Instituten und Firmen viele verschiedene Verfahren mit unterschiedlicher Komplexität und unterschiedlichem Ertrag verwendet.

In diesem Abschnitt will ich die beiden meistgenutzten Verfahren, den SNAP- und den SNEP-Prozeß (sieh Gurvitch [8]) sowie den komplizierteren SCAN-Prozeß (siehe Imamura [13]) beschreiben.

Da deren Herstellungsschritte zum großen Teil denen zur Präparation der in-situ Kontakte (siehe Kapitel 1) ähnlich sind, werde ich die Schritte nur teilweise durch Zeichnungen erläutern.

Für eine ausführliche Beschreibung dieser und anderer Prozesse (Nakagawa [22], [17]; Blamire [3]) verweise ich auf die oben angführten Veröffentlichungen.

8.1.1 Der SNAP- und der SNEP-Prozeß

Wohl eine der ersten Methoden zur sicheren Herstellung von kleinen Nb-Al-Nb-Tunnelkontakten war der SNAP- (selective niobium anodization process, siehe Abbildung 28) sowie dessen Weiterentwicklung, der SNEP-Prozeß (selectiv niobium etching process), welche sich durch wenige und einfache Prozesse auszeichnen.

[17] SAWW-Prozeß self-aligning whole-wafer; Besonderheit: Definition der Kontaktfläche mit dem Aufbringen der Deckelektrode

Der SNAP-Prozeß besteht nur aus zwei Vakuum- und einem Anodisationsschritt:

1. Vakuumschritt	Nb-Al-Nb Grundelektrode sputtern und anschließend strukturieren
Anodisation	Definition der Kontaktfläche und Erzeugen der Isolation (siehe Abbildung 28)
2. Vakuumschritt	Aufbringen der Deckelektrode

Die beiden Vakuumschritte entsprechen hierbei genau dem ersten und letzten Vakuumprozeß, mit dem ich die in-situ Kontakte präpariert habe.

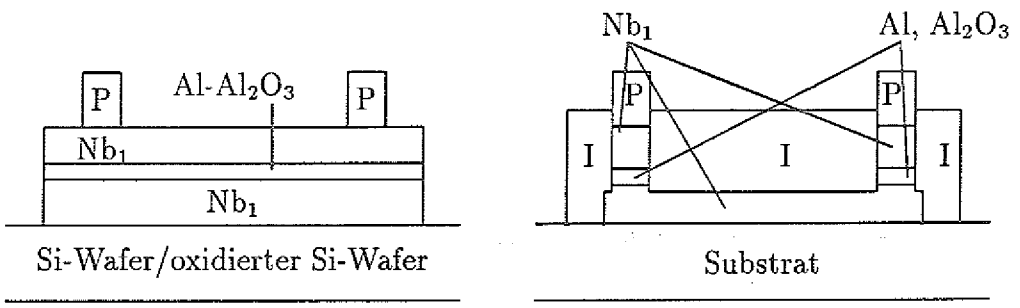


Abbildung 28: Teil des SNAP-Prozesses, I=Isolation aus anodisiertem Niob und Aluminium, P=Photolack
Probe vor und nach dem Anodisationsprozeß. Man sieht, daß die Probe — durch den Photolack geschützt — selektiv oxidiert wird, und so Isolation und Kontaktdefinition in einem Schritt stattfinden.

Der SNEP-Prozeß ist dem SNAP-Prozeß sehr ähnlich. Hier wird nur zusätzlich die obere Nb-Schicht vor dem Anodisationsprozeß reaktiv ionengeätzt:

1. Vakuumschritt	Nb-Al-Nb Grundelektrode sputtern und anschließend strukturieren
2. Vakuumschritt	reaktives Ionenätzen der oberen Nb-Schicht
Anodisation	Definition der Kontaktfläche und Erzeugen der Isolation (siehe Abbildung 28)
3. Vakuumschritt	Aufbringen der Deckelektrode

Vergleicht man die Abbildungen von SNAP- und SNEP-Prozeß mit den Abbildungen zu meinen Herstellungsprozeß von in-situ Tunnelkontakten, so sieht man, daß diese Prozesse sehr ähnlich sind.

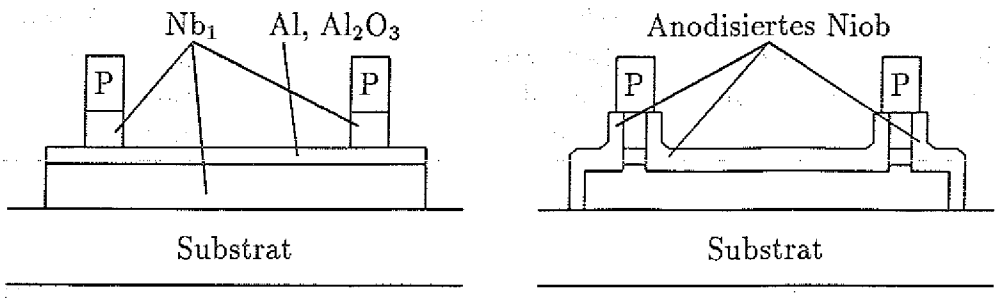


Abbildung 29: Teil des SNEP-Prozesses vor und nach dem Anodisationsschritt (P = Photolack).

Der Unterschied zwischen diesen Prozessen beruht im wesentlichen auf der unterschiedlichen Isolation.

8.1.2 Der SCAN-Prozeß

Der SCAN-Prozeß (self aligned contact with anodized niobium) wurde von der Gruppe bei Fujitsu für die Herstellung von sub-μm Josephson-Tunnelkontakten erdacht.

Ich will ihn hier erwähnen, da er die Tendenz zu neuen und komplizierten Prozeßschritten aufzeigt, einen eleganten Prozeß zur Kontaktierung der Deckelektrode hat, und nicht auf eine Anodisation verzichtet.

Der SCAN-Prozeß besteht aus 6 Vakuumzyklen und einem naßchemischen Prozeß[18]:

Schritt	Aktion	Hauptzweck
1.	Sputtern von Nb, Al, Nb, SiO_2	Erzeugen der Grundelektrode, Barriere
2.	RIE-Ätzen von SiO_2 mit CHF_3	Definition der Kontakte
3.	Anodisation der oberen Nb-Schicht	Kontakt isolieren
4.	RIE-Ätzen von Trilayer	Strukturierung Grundelektrode
5.	Sputtern von SiO_2	Isolation aufbringen
6.	RIE-Ätzen mit CHF_3	Kontaktloch erzeugen
7.	Nb-sputtern	Auftragen Deckelektrode

Der Aufwand zur Herstellung von Kontakten mit dem SCAN-Prozeß ist sehr groß.

[18]Für eine ausführliche Darstellung verweise ich wegen der Komplexität des Prozesses auf die oben genannte Originalliteratur

So dient die im ersten Schritt aufgetragene SiO_2-Schicht als Maske zur Kontaktdefinition, da eine Maske aus Photolack nach Imamura die Kontakte nicht stark genug gegen Schäden durch die Anodisation schützt.

Der sechste Schritt, das reaktive Ionenätzen eines Kontaktlochs ist ein Prozeß, der sehr viel Abstimmung benötigt. An ihm wird deutlich, wie aufwendig und elegant der Prozeß den Tunnelkontakt mit der Deckelektrode kontaktiert.

Um einen Kontakt kleiner als das Kontaktloch zu ermöglichen und gleichzeitig die lithographischen Anforderungen zu verringern, wird hier mit CHF_3 das Kontaktloch geätzt, wobei die unterschiedlichen Ätzraten für Nb, Nb_2O_5 und SiO_2 ausgenutzt werden.

8.2 Vergleich der verschiedenen Verfahren

Zählt man die Anzahl der Prozeßschritte und betrachtet, wie kompliziert das Verfahren ist, so kann man eindeutig sagen, daß der SNAP-Prozeß der einfachste Herstellungsprozeß für Nb-Al-Nb-Josephsonkontakte ist. Bei großen Kontakten hat er zudem eine hohe Ausbeute und erbringt gleichmäßige kritische Ströme.

Verfahren	Anzahl der Prozeßschritte
eigene Verfahren	
gesh. Kont.	3 Vakuumzyklen
in-situ Kont.	4 Vakuumzyklen
fremde Verfahren	
SNAP	2 Vakuumzyklen, 1 Anodisationsprozeß
SNEP	3 Vakuumzyklen, 1 Anodisationsprozeß
SCAN	6 Vakuumzyklen, 1 Anodisationsprozeß

Bei dem SNAP-Prozeß wird aber fast die gesamte Grundelektrode anodisiert. Dies vergrößert die Gefahren, welche die Anodisation als Prozeßschritt mit sich bringt:

- Die Anodisation ist als naßchemischer Prozeß nicht so leicht zu steuern bezüglich der Richtung in die man ätzt. So kann man einen Kontakt „unterätzen“, sprich die Kontaktfläche wird kleiner.

- Nicht untersucht ist auch der Nb_2O_5-wachstumsbedingte Druck auf den Kontakt, da das Nioboxid eine geringere Dichte als Niob hat. So „bläht“

sich das Niob während der Anodisation auf und könnte zu einer Spannung auf den Kontakt führen, was z.B. die gleichmäßige Verteilung der I_C auf einem Substrat verschlechtern könnte[19].

SNEP- und SCAN-Prozeß begrenzen den Umfang der Anodisation auf einen Teil der Grundelektrode, um die Anodisation in den Kontakt hinein zu begrenzen.

Der SCAN-Prozeß geht noch weiter, um die Anodisation sicher zu machen. Allerdings muß dies mit einem sehr hohen Preis, wie zusätzlichen Vakuumzyklen und Anodisationsmasken z.B. aus SiO_2 bezahlt werden[20].

Das man die Qualität der Kontakte während der Anodisation im Voraus prüfen kann, dürfte diese Nachteile nicht aufwiegen (siehe Imamura [16], [17]).

Die von mir angewandten Verfahren haben folgende Nachteile:

- Der Prozeß für geshuntete Kontakte ist, da die Kontakte nicht in-situ strukturiert werden, von vorneherein anfällig gegen äußere Einwirkungen wie z.B. Änderungen der Temperatur und Luftfeuchtigkeit.

- Der Lift-off der Isolation ist für kleine Kontakte ein großer Unsicherheitsfaktor. Der Großteil der Proben ging wegen dem nicht gelungenen Lift-off der Isolation verloren. Insbesondere kann man bei meinem in-situ-Prozeß die Dicke der Isolation nicht verringern. Außerdem müssen Probleme bei der Haftung der Isolation erwartet werden.

Da im Winter/Frühjahr 1990 gute $20 \cdot 40 \mu m^2$-Kontakte mit geringer Streuung gefertigt wurde, kann man davon ausgehen, daß man sich z.B. durch Reinräume mit konstanten Umweltparametern und Argon- bzw. Stickstoffgefluteten Behältern die Oxidation der Grundelektrode soweit begrenzen kann, daß die Fertigung nicht zu kleiner, geshunteter Kontakte mit geringer Streuung möglich ist.

Den Lift-off der Isolation könnte man durch vereinfachen, indem man den Wafer vor dem Aufbringen der Grundelektrode reaktiv Ionenätzt. Hierdurch könnte man die Struktur planarisieren und die notwendige Dicke für die Isolationsschicht reduzieren.
Auch durch ein besseres Lösungsmittel könnte man den Lift-off vereinfachen.

Den großen Nachteil des Lift-offs der Isolation vermeiden alle hier aufgeführten, fremden Verfahren[21].

[19] Literatur zur Abhängigkeit von V_m zur mechanischen Spannung auf dem Kontakt: Murduck [21], Imamura [14]

[20] Auch Imamura [13] bekennt, daß bei mit dem SCAN-Prozeß präparierten Kontakten im 1 μm^2-Bereich die Streuung so rasch anwächst, daß sie nicht mehr durch Lithografiefehler zu erklären ist.

[21] Yano [26] verwendet ein Verfahren mit Lift-off und doppelter Isolation mit Silizium

Ausblick auf ein besseres RIE-Verfahren

Als optimalen Prozeß zur Präparation von Josephson-Kontakten muß ein Verfahren angesehen werden, welches nicht die oben aufgeführten Nachteile enthält.

Möglich wäre z.B. eine Kombination aus dem SCAN-Verfahren und meinem Verfahren. Diesen Prozeß habe ich auf den Seiten 75 bis 76 skizziert.

So müßte man bei meinem Verfahren vor dem Aufbringen der Isolation den Photolack vollständig ablösen und dann die Isolation aufbringen (siehe Zeichnungen (k) und (l) auf Seite 75).

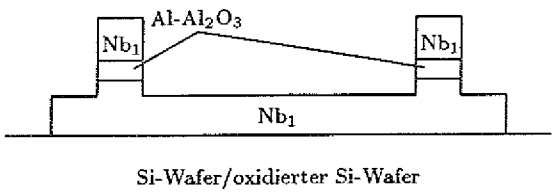
Die Kontaktierung könnte man dann ähnlich wie bei dem SCAN-Prozeß vornehmen, indem man die Isolationsschicht selektiv mittels reaktiven Ionenätzen durchätzt (siehe Zeichnungen (m) und (n)).

Der Vorteil des SCAN-Prozesses, daß das Kontaktloch hierbei größer sein kann als der eigentliche Kontakt, bliebe bei einem solchen Verfahren bestehen und man hätte einen Prozeß, mit dem sich zuverlässig gut reproduzierbare sub-μ-Tunnelkontakte herstellen ließen.

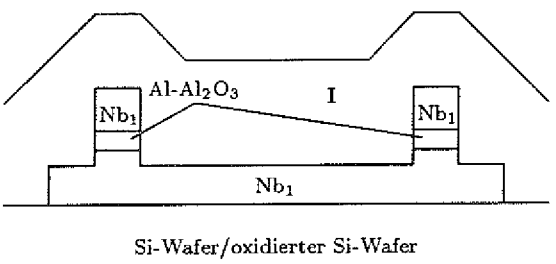
Zeichnungen zu den Prozeßschritten

Auf den folgenden zwei Seiten befinden sich die ergänzenden Zeichnungen zum „Idealprozeß". Die ersten Schritte unterscheiden sich nicht von meinem Prozeß (siehe Zeichnungen (a) bis (j) auf den Seiten 26 bis 27). Dementsprechend sind die Abbildungen mit (k) bis (q) bezeichnet.

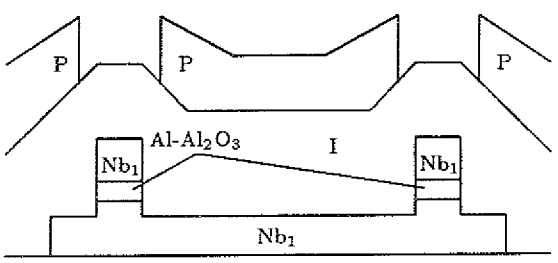
(k) Ablösen des Photolacks



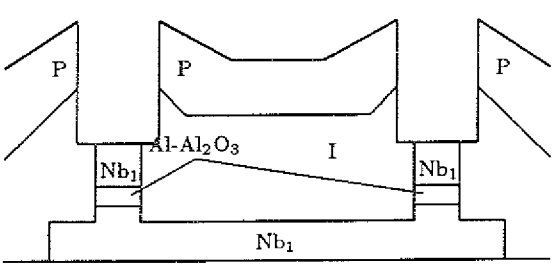
(l) Ionenätzen, Aufbringen der Isolation I



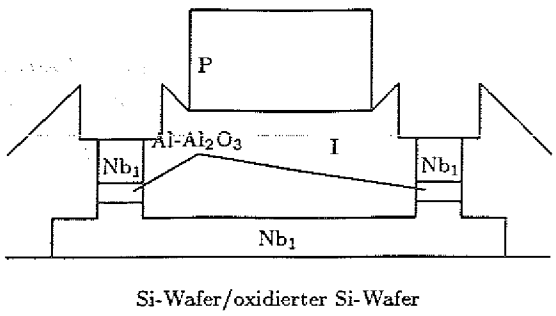
(m) 3. Lithographieschritt



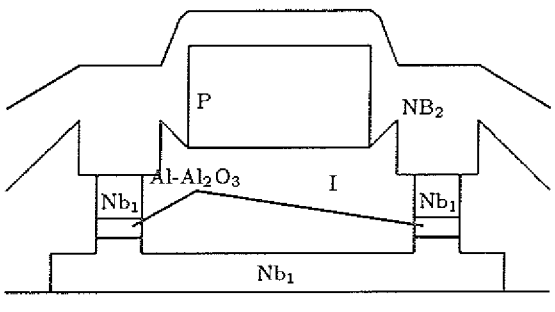
(n) Reaktives Ionenätzen des Kontaklochs



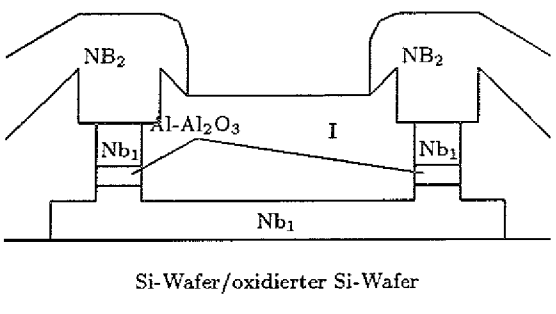
(o) 4. Lithografieschritt



(p) Ionenätzen, Aufbringen der Nb-Deckelektrode



(q) Strukturierung der Deckelektrode mittels Lift-off



9 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden kleine Nb-Al-Nb-Tunnelkontakte mit einer Fläche von 800 bis ungefähr 2 μm^2 Fläche mit Hilfe von zwei Verfahren hergestellt.

Das erste Verfahren, bei dem die Kontakte nicht in-situ hergestellt werden, erwies sich im Laufe der Arbeit als zu unzuverlässig, um viele kleine, funktionsfähige und gleichmäßig gute Kontakte bei hoher Ausbeute herzustellen.

Um Umwelteinflüssen aus dem Weg zu gehen und kleinere Kontakte bei besserer Qualität herzustellen, mußte ein neues in-situ Verfahren entwickelt werden.

Hauptforderung an das neue Verfahren waren der Verzicht auf naßchemische Prozesse. Außerdem sollte das Verfahren aus wenigen Prozeßschritten bestehen, vorhandene Ressourcen nutzen können und nicht geshuntete Kontakte liefern, bei welchem der Qualitätsparameter V_m meßbar ist.

Diese Anforderungen führten zu einem Verfahren, bei dem die Josephsonkontakte mittels reaktivem Ionenätzen definiert werden, und welches nur drei Lithographie- und vier Vakuumschritte benötigt.

Bei der Realisation des Verfahrens mußten viele neue technische Probleme — wie z.B. das Durchätzen der Aluminium-Barriere — bewältigt werden.

Die größten, unbewältigten Probleme und Schwierigkeiten wurden durch die mittels Lift-off strukturierte, meist aufgedampfte Isolationsschicht aus SiO verursacht.

So ist es für ein abgeändertes Verfahren dringend zu empfehlen, insbesondere bei kleinen Kontakten die Isolation nicht mit Lift-off zu strukturieren. Der Lift-off der Isolation war bei Proben mit einem Kontaktdurchmesser unter 2 μm so schwierig, daß hierbei über 80% der Proben verloren gingen.

Die besten Meßwerte lieferte eine der kleinsten Proben mit einem $V_m >$ 16 mV bei 1,6 μm Kontaktdurchmesser, und dies, obwohl der Quasipartikelstrom am „Proximity-Knie“ über sechsmal so groß war wie der kritische Strom des Kontakts. Dies läßt es für wahrscheinlich erscheinen, daß bei neuerlicher Abstimmung der Prozeßparameter, wie z.B. Sputterrate und Sputterdruck von Niob ein V_m von 50 mV bei Kontakten bis zu 1 μm Durchmesser möglich ist.

Sollte man den Prozeß noch dahingehend ändern, daß man — wie im letzten Kapitel erläutert — die Isolationsschicht nicht mehr im Lift-off strukturiert, so dürfte die Ausbeute stark steigen.

Der Prozeß sollte wegen seiner Sicherheit durch Verzicht auf naßchemische Prozesse sehr gut reproduzierbare Kontakte erbringen und durch die relativ einfache Prozeßführung auch interessant für eine industrielle Anwendung sein.

10 Anhang

10.1 benutzte Geräte und Maschinen

10.1.1 Sputtermaschine Balzer

Vorpumpe	Drehschieberpumpe
Hauptpumpe	Diffusionspumpe
Target	1: Nb, wassergekühlt
Substrathalter	1
Hintergrunddruck p_H	$2 \cdot 10^{-4}$ Pa
DC-Sputtern	Nb, 300 V, 300 mA Targetstrom

10.1.2 Sputtermaschine Leybold Z 400

Vorpumpe	Drehschieberpumpe
Hauptpumpe	Turbomolekularpumpe
Targets	1. Nb, 3" Durchmesser, 3,3 cm über Substrathalter; 2. Al, 4" Durchmesser, 4,5 cm über Substrathalter; 3. SiO_2, 4. Glas,
Substrathalter	zwei wassergekühlt, einer heizbar
Hintergrunddruck p_H	$3 \cdot 10^{-4}$ Pa
Nb-Sputtern	DC-Sputtern, 750 mA Targetstrom, 0,6 Pa Argon (99,999%)
Al-Sputtern	RF-Sputtern, 1200/1500 V DC-Potential, 2 Pa Argon
Oxidieren	100 Pa O_2 (99,998%)

10.1.3 Aufdampfanlage Varian VE 10

Vorpumpe	Drehschieberpumpe
Hauptpumpe	Öldiffusionspumpe
Substrathalter	1
Hintergrunddruck p_H	$6 \cdot 10^{-3}$ Pa
Ionenätzen	2 Pa, 10 bis 40 W

10.1.4 Aufdampfanlage Leybold Univex 300

Vorpumpe	Drehschieberpumpe
Hauptpumpe	Turbomolekularpumpe
Substrathalter	1
Hintergrunddruck p_H	$6 \cdot 10^{-3}$ Pa
Ionenätzen	$3 \cdot 10^{-2}$ Pa, 500 V Beschleunigungsspannung

10.1.5 PT-RIE-Anlage

Vorpumpe	Drehschieberpumpe
Hauptpumpe	Turbomolekularpumpe
Ätzgase	CF_4, SF_6 u.a.
Substrathalter	1, Graphitelektrode, ca. 7" Durchmesser liegt auf wassergekühltem „Teller"
Hintergrunddruck p_H	$1 \cdot 10^{-4}$ Pa

10.1.6 kleine RIE-Anlage

Vakuumpumpe	Drehschieberpumpe
Ätzgas	SF_6 u.a.
Substrathalter	Edelstahl, ca. 5,5 cm Durchmesser
Hintergrunddruck wenige Pa	

Literatur

[1] M. Anders: *Ein Verfahren zur Herstellung von SNINS-Tunnelkontakten*; Diplomarbeit im Fach Physik an der Justus-Liebig-Universität Gießen, 1985

[2] A. Barone, G. Paternò: *Physics and Applications of the Josephson Effect*; Verlag John Wiley & sons, 1982

[3] M. G. Blamire, R. E. Somekh, G. W. Morris, J. E. Evetts: *Characteristics of vertically-stacked planar tunnel junctions structures*; IEEE Trans. on Magn. 25, S. 1135, 1989

[4] W. Buckel: *Supraleitung: Grundlagen und Anwendung*; Physik-Verlag, 4. Auflage 1990

[5] M. D. Fiske: *Temperature and magnetic field dependences of the Josephson tunneling current*; Rev. of Mod. Phys., S. 221, 1964

[6] R. Gottfried-Gottfried: *Ein DC-SQUID-System mit integrierter hochkompensierter Gradiometeranordnung*; Diplomarbeit im Fach Physik an der Justus-Liebig-Universität Gießen, 1985

[7] J. V. Gates, M. A. Washington, M. Gurvitch: *Critical current uniformity and stability of Nb/Al-oxide-Nb Josephson junctions*; J. Appl. Phys. 55 (5), S. 1419, 1984

[8] M. Gurvitch, M. A. Washington, H. A. Huggins: *High quality refractory Josephson tunnel junctions utilizing thin aluminum layers*; Appl. Phys. Lett. 42 (5), S. 472, 1983

[9] M. Gurvitch, M. A. Washington, H. A. Huggins, J. M. Rowell: *preparation and properties of Nb Josephson junctions with thin aluminum layers*; IEEE Trans. on Magn. vol. MAG-19, no. 3, S. 791, 1983

[10] K.-H. Hellwege: *Einführung in die Festkörperphysik*; Springer Verlag, 3. Auflage 1988

[11] J. H. Hinken: *Supraleiter-Elektronik: Grundlagen und Anwendungen in der Mikrowellentechnik*; Springer-Verlag 1988

[12] H. A. Huggins, M. Gurvitch: *preparation and characteristics of Nb/Al-oxide-Nb tunnel junctions*; J. of Appl. Phys. 57 (6), S. 2103, 1985

[13] T. Imamura, S. Hasuo: *A submicrometer Nb/AlO$_x$/Nb Josephson junction*; J. Appl. Phys. 64 (3) 1988, S. 1586

[14] T. Imamura, S. Hasuo: *Effects of intrinsic stress on submicrometer Nb/AlO$_x$/Nb Josephson junctions*; IEEE Trans. on Magn. 25, S. 1119, 1989

[15] T. Imamura, S. Hasuo: *A submicrometer Nb/AlO$_x$/Nb Josephson junction*; J. Appl. Phys. 64 (3), S. 1586, 1988

[16] T. Imamura, S. Hasuo: *Characterization of Nb/AlOx-Al/Nb junction structures by anodization spectroscopy*; J. Appl. Phys. 66 (5), S. 2173, 1989

[17] T. Imamura, S. Hasuo: *Characterization of Nb/AlOx-Al/Nb Josephson junctions by anodization profiles*; J. Appl. Phys. 66 (5), S. 2173, 1989

[18] H. M. Mück: *Eigenschaften und Anwendungen von Josephsonkontakten aus Supraleitern mit hohem Sprungpunkt unter besonderer Berücksichtigung von Nanobrücken*; Dissertation im Fach Physik an der Justus-Liebig-Universität Gießen, 1987

[19] D. E. McCumber: *Tunneling and weak-link superconductor phenomena having potential device applications*; Journal of Appl. Phys., vol. 39, no. 6, 1968

[20] S. Morohashi, F. Shinoki, A. Shoji, M. Aoyagi, H. Hayakawa: *High quality Nb/Al-AlO$_x$/Nb Josephson junction*; Appl. Phys. Lett. 46 (12), S. 1179, 1985

[21] J. M. Murduck, J. Porter, W. Dozier, R. Sandell, J. Burch, J. Bulman, C. Dang, L. Lee: *Niobium trilayer process for superconducting circuits*; IEEE Trans. on Magn. 25, S. 1139, 1989

[22] H. Nakagawa, K. Nakaya, I. Kurosawa, S. Takada, H. Hayakawa: *Nb/Al-oxide/Nb tunnel junctions for Josephson integrated circuits*; Jap. J. Appl. Phys. 25 1986, S. L70

[23] H. Stolz: *Supraleitung*; Vieweg Verlag, 1979

[24] K. Tanabe, H. Asano, O. Michikami: *Ellipsometric study of Nb-Al-AlOx layered structure for all-refractory Josephson junctions*; Jap. J. Appl. Phys. 25, S. 183, 1986

[25] P. W. Wyatt, R. C. Barker, A. Yelon: *Tunneling Study of the Superconducting Proximity Effect in the Thin-Normal Limit*; Phys. Rev. B 6, S. 4169, 1972

[26] S. Yano, Y. Hatano, H. Mori, H. Yamada, K. Nakahara, M. Hirano, U. Kawabe: *A 1-GHz-clock josephson microcomputer system*; Veröffentlichung zu einem Vortrag auf der Applied Superconductivity Conference 1990

Danksagung

Diese Arbeit wurde am Institut für Schicht- und Ionentechnik des Forschungszentrums Jülich GmbH angefertigt.

Ich danke Herrn Prof. Dr. Ch. Heiden für die Themenstellung, seine Unterstützung und sein Interesse am Fortschreiten meiner Arbeit.

Meinem Betreuer Herrn Dr. H. M. Mück danke ich für seine Hilfe und Diskussionsbereitschaft während der Experimente und beim Anfertigen dieser Arbeit.

Vor allem möchte ich Herrn Dr. H. Kirchner, durch dessen Interesse und Hilfe die Herstellung der nicht-geshunteten Kontakte überhaupt erst möglich wurde, und Herrn A. Schüppen für dessen Ratschläge zum reaktiven Ionenätzen danken.

FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GmbH

KFA

Jül-2520
September 1991
ISSN 0366-0885