



Michael Burst (Autor)

**Widerstandsfluktuationen abschreckend  
kondensierter, nanostrukturierter Silberschichten**

Michael Burst

---

**Widerstandsfluktuationen abschreckend  
kondensierter, nanostrukturierter  
Silberschichten**

---



Cuvillier Verlag Göttingen

<https://cuvillier.de/de/shop/publications/2219>

Copyright:

Cuvillier Verlag, Inhaberin Annette Jentzsch-Cuvillier, Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen,  
Germany

Telefon: +49 (0)551 54724-0, E-Mail: [info@cuvillier.de](mailto:info@cuvillier.de), Website: <https://cuvillier.de>

# Kapitel 1

## Einleitung

Anfang der achtziger Jahre wurden die technischen Voraussetzungen geschaffen, metallische Strukturen mit lateralen und longitudinalen Abmessungen im Bereich von  $1\text{ }\mu\text{m}$  herzustellen. Damit wurde experimentell ein neues Gebiet der Festkörperphysik unter dem Stichwort „mesoskopische Systeme“ zugänglich, dessen interessante elektronische Transporteigenschaften schon über zwei Jahrzehnte zuvor theoretisch angesprochen wurden [1]. Der Leitwert untersuchter Strukturen, hinreichend niedrige Temperaturen vorausgesetzt, ist nicht mehr klassisch der Boltzmann-Gleichung genügend zu beschreiben, sondern es müssen Quanteninterferenzeffekte berücksichtigt werden [2].

Makroskopische Parameter, wie z.B. die Größe und Form sowie die Konzentration und die mittlere Streuzeit  $\tau$  der Ladungsträger, begründen den Leitwert einer makroskopischen Probe. Bei tiefen Temperaturen dominieren Verunreinigungen, Gitterfehler, usw. die Streuzeit. Da in einer makroskopischen Probe über die Anordnung dieser Streuzentren gemittelt wird, wirkt sich nur ihre Dichte, nicht jedoch die mikroskopische Konfiguration der Streuzentren auf den Leitwert aus.

Wird die Größe der Probe verringert, gewinnen mikroskopische Effekte an Bedeutung: Das Elektron muss im Wellenbild beschrieben werden und kann sich auf verschiedene Partialwellen aufteilen, welche die Probe durchlaufen, an Streuzentren gestreut werden und alle miteinander interferieren. Auch kleine Veränderungen in der mikroskopischen Struktur der Probe beeinflussen also das gesamte Interferenzverhalten und es sind statische Fluktuationen im Leitwert für Proben identischer Abmessungen zu beobachten.

Hier muss eine Ergänzung zu der Aussage über die makroskopische Mittelung des Leitwertes erfolgen. Es ist nämlich nicht der Fall, dass makroskopische Strukturen einen zeitlich konstanten unveränderlichen Widerstand zeigen, sondern auch hier sind Fluktuationen sichtbar<sup>1</sup>. Diese Widerstandsfluktuationen werden unter dem Stichwort „Rauschen“ auch schon seit vielen Jahren untersucht, sind aber immer noch nur teilweise verstanden.

---

<sup>1</sup>In der „Rauschliteratur“ wird gemeinhin von Widerständen und entsprechend Widerstandsfluktuationen gesprochen, anstatt der dem Leser vielleicht vertrauteren Argumentation über den Leitwert. Ebenfalls hat sich der Begriff des  $1/f$ -Rauschens und nicht etwa  $1/\omega$ -Rauschens eingebürgert.

Das gilt insbesondere für den Teilbereich des  $1/f$ -Rauschens.

Rauschen ist im experimentellen Alltag nahezu omnipräsent, wird aber generell eher wie ein zu vermeidendes Ärgernis behandelt, als ein Mittel zum Erkenntnisgewinn über ein System eingesetzt. Da das intrinsische Rauschen bei Metallen im Allgemeinen sehr gering ist, fällt das Ignorieren leichter bzw. die Erkenntnisgewinnung schwerer, je nach Sichtweise. Diese Annahme ist bei kleinen, mesoskopischen Systemen nicht mehr unbedingt richtig. Es wurde deshalb auch schon früh eine Verbindung zwischen durch Quanteninterferenzeffekte entstehenden universellen Leitwertfluktuationen und  $1/f$ -Rauschen erkannt [3].

In dieser Arbeit werden nun bewusst mesoskopische Silberproben mit starken Rauschsignalen untersucht. Dabei wird von jungfräulichen abschreckend kondensierten Schichten ausgegangen und durch Tempern die mikroskopische Struktur verändert. Dies macht aufwändige *in situ*-Messungen notwendig.

Durch die angesprochene Sensitivität von Rauschmessungen liegt allerdings bezeichnenderweise oft die Schwierigkeit nicht im Erhalt von Rauschsignalen, sondern in der korrekten Interpretation. Dies hat zur Folge, dass das eigentliche wissenschaftliche Neuland in dieser Arbeit, und zwar Rauschuntersuchungen an nanostrukturierten, abschreckend kondensierten Silberproben im jungfräulichen Zustand, sehr vorsichtig betreten werden muss, und die in diesem Zustand durchgeführten Messungen immer in Zusammenhang gesetzt werden müssen. Entsprechend dieser Charakterisierungsnotwendigkeit ist diese Arbeit aufgebaut. So nehmen die einzelnen Abschnitte und Kapitel immer wieder Bezug aufeinander und führen schließlich auf die Messungen im jungfräulichen Probenzustand in Abschnitt 5.4 und dann auf die Gegenüberstellung der wichtigsten Rauschmessungen in Abschnitt 5.5 hin. Abschließend wird dann die gesamte Arbeit zusammengefasst.

# Kapitel 2

## Einführung in die Rauschterminologie, Einordnungsverfahren

Der Begriff des Rauschens wird vorgestellt, erläutert und spezifiziert. Es wird erklärt, wie der sonst in der Messtechnik unerwünschte und „bekämpfte“ Effekt des Rauschens [4] zum Informationsgewinn über das untersuchte Material eingesetzt werden kann. Der Fokus in der vorgestellten Theorie liegt dabei auf einer Darstellung des zum Verständnis dieser Arbeit notwendigen Teiles. Zu Grundlagen über  $1/f$ -Rauschen sei auf die Übersichtsartikel [5–8] verwiesen.

### 2.1 Rauschen

Der Rauschbegriff ist sehr allgemein gefasst und lässt sich z.B. so definieren: „Beim Rauschen handelt es sich um statistische Schwankungen um einen Mittelwert“. Dies lässt zunächst offen, ob es sich um statische Systeme oder dynamische Systeme handelt.

Als Beispiel für statische Systeme kann z.B. die Messung der Oberflächenrauheit einer bestimmten Fläche dienen: Wird eine Oberfläche durch eine Vielzahl von Einzelmessungen auf ihre Rauigkeit hin untersucht, wird der oben beschriebene Mittelwert der Dicke und eine Vielzahl von unterschiedlichen nicht miteinander korrelierten Schwankungen der Dicken sichtbar werden, welche den Mittelwert überlagern. Werden diese Schwankungen in einem Histogramm aufgetragen, lassen sie sich, eine hinreichende Anzahl an Messungen vorausgesetzt, durch eine Gaußfunktion beschreiben. Ein Maß für die Größe des Rauschvorgangs kann durch die Bildung des zweiten statistischen Moments, der Varianz, gefunden werden. Es lässt sich so ein Effektivwert („root-mean-square-value“) ermitteln. Wird dieser Wert quadriert, spricht man von der „Leistung“ des Rauschvorgangs. Man kann somit in diesem Sprachgebrauch von der Rauigkeit einer Oberfläche als Leistung eines Rauschvorgangs im Ortsraum sprechen. Ist, im Gegensatz zu der hier vorgestellten Dickenmessung, die Messgröße von der Zeit abhängig, spricht man von dynamischen Systemen. Wie schon bei statischen Systemen gibt es auch hier eine Vielzahl an Messgrößen, an denen Rausch-

betrachtungen durchgeführt werden können. Im Folgenden werden nur elektrische Größen näher betrachtet.

## 2.2 Widerstandsfluktuationen

Unter der Annahme, ein System lässt sich durch einen elektrischen Widerstand  $R$  beschreiben, kann eine Zeitabhängigkeit  $R(t)$  dieses Widerstandes angenommen werden. Wird mit einer hinreichend großen Präzision gemessen, werden Fluktuationen des Widerstandes um einen Mittelwert  $R_0$  sichtbar:  $R(t) = R_0 + \Delta R(t)$ . Diese Fluktuationen in Abhängigkeit von der Zeit werden als Rauschen bezeichnet. Mit der Autokorrelationsfunktion  $\phi(\tau)$  dieser Fluktuationen über der Messzeit  $T$ , beginnend zum Zeitpunkt  $\tau_0$ ,

$$\phi(\tau) = \langle \Delta R(t + \tau) \Delta R(t) \rangle_t = \frac{1}{T} \int_{\tau_0}^{\tau_0+T} R(t) \cdot R(t + \tau) dt \quad (2.1)$$

folgt gemäß dem Wiener-Khintchine-Theorem [9]:

$$S_R(f) = \int_{-\infty}^{\infty} \phi(\tau) \cos(2\pi f \tau) d\tau \quad (2.2)$$

$S_R(f)$  ist die spektrale Rauschleistungsdichte der Widerstandsfluktuationen (siehe auch [10–12]) und wird in einigen Publikationen auch als Rauschen bezeichnet. Da üblicherweise Spannungsfluktuationen gemessen werden, schreibt sich die zugehörige Rauschleistungsdichte  $S_U(f)$ , wobei gilt:  $S_U(f)/U^2 = S_R(f)/R^2$ . Entsprechendes gilt für das Stromrauschen  $S_I(f)$ .

### 2.2.1 Fundamentale Rauscharten

Allgemein wird frequenzunabhängiges Rauschen als weißes Rauschen („white noise“) bezeichnet. Entsprechend nennt man frequenzabhängiges Rauschen auch rosa Rauschen („pink noise“). Diese Bezeichnung ist allerdings eher im elektrotechnischen Sprachgebrauch üblich, in „rein physikalischer“ Literatur wird sie kaum verwendet.

Die wichtigsten Arten von Rauschen elektrischer Natur in der Festkörperphysik sind:

- Thermisches Rauschen:

Im angloamerikanischen Sprachraum wird diese Rauschart auch als Johnson-Noise nach seinem experimentellen Entdecker benannt. Im Deutschen wird eher die Be-

zeichnung Nyquist-Rauschen bevorzugt, aufgrund der theoretischen Beschreibung dieses Phänomens durch Nyquist [13]. Die Herleitung ist analog zu Überlegungen hinsichtlich der Strahlungsleistung eines schwarzen Strahlers. Aus diesem Grund besitzt die Formel für die Rauschleistungsdichte in ihrer frequenzabhängigen Form dieselbe Struktur wie die Plancksche Strahlungsformel. In dem von uns betrachteten Limes, in dem  $hf \ll k_B T$  gilt, vereinfacht sich dies zu einem Term mit weißem Spektrum:

$$S_U(f) = 4k_B T R \quad (2.3)$$

- Schrot-Rauschen:

Diese Rauschart entsteht aufgrund der Quantisierung der Ladungsträger und ist proportional der Stromstärke durch die Probe. Der Begriff des Schrotrauschens wurde 1918 von Walter Schottky geprägt, der auf die Ähnlichkeit zwischen dem Verhalten von Elektronen und Schrotkörnern hinwies. Man spricht folglich auch von Schottky-Rauschen. Schottky bezog sich dabei auf die zufällige, zeitabhängige, nicht miteinander korrelierte Emission von Elektronen aus der Kathode einer Vakuumröhre. Für solch einen Poisson-Prozess folgt für das Leistungsspektrum:

$$S_I(f) = 2eI \quad (2.4)$$

mit der Elementarladung  $e$ . Im Rahmen der Charakterisierung des Messaufbaus in Abschnitt 4.1.6 wird der Nachweis geführt, dass der Anteil des Schrotrauschens bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Rauschuntersuchungen unerheblich ist. Es sei an dieser Stelle angemerkt, dass die oben vorgestellte Formel in speziellen Systemen wie z.B. Quantenpunkten ihre allgemeine Gültigkeit verliert und dort Variationen des Vorfaktors auftreten. Ein Einstieg in dieses Themengebiet lässt sich beispielsweise durch [14] finden.

- $1/f$ -Rauschen:

$1/f$ -Rauschen ist nach seiner Form im Rauschleistungsspektrum benannt: Wird die Rauschleistungsdichte über der Frequenz  $f$  aufgetragen, lässt sich die Messkurve mit einer Anpassungsfunktion annähern, die einen  $1/f$ -Verlauf hat. Man spricht auch von Flicker-, Funkel-Rauschen („flicker noise“= wörtlich: Aufflackerndes Rauschen). Diese Namensgebung erklärt sich aus der Auftragung von Fluktuationen über der Zeit und bezieht sich auf die kurzen Impulse mit großer Amplitude, die über dem

typischen Rauschbild in größeren Zeitabständen sichtbar sind. Diese Bezeichnungen werden anhand der Abbildungen in Kapitel 4 klarer. Dort werden im Rahmen der Beschreibung der Datennahme und der Datenprozessierung die unterschiedlichen Auftragungen vorgestellt und weiter erläutert.

### 2.2.2 Skalierung des $1/f$ -Rauschens

Die in Abschnitt 2.2.1 vorgestellte Definition nach der Form des Rauschspektrums klingt wiederum sehr allgemein und dies täuscht auch nicht. Die Vielzahl der Systeme, in denen  $1/f$ -Rauschen beobachtet werden kann, ist in der Tat erstaunlich und beschränkt sich auch nicht auf elektrische Messgrößen, auf die das Augenmerk hier liegt. Doch auch bei einer Beschränkung auf diese sind die möglichen physikalischen Ursachen immer noch mannigfaltig.

In diesem Abschnitt soll der nahezu erste Schritt bei jeder Rauschuntersuchung, die Skalierung der spektralen Rauschleistungsdichte, erläutert werden. Zur deren Erklärung bietet es sich tatsächlich an, einen quasi historischen Weg zu gehen: 1969 wurden  $1/f$ -Rauschmessungen an stromdurchflossenen Goldfilmen [15] vorgestellt und kurz darauf mit der sogenannten Hooge-Formel eine Möglichkeit präsentiert, die Größenordnung des Rauschens zu charakterisieren [16]:

$$S_U(f) = \gamma_H \frac{U^2}{fN} \quad (2.5)$$

mit dem Hooge-Parameter  $\gamma_H$  und der Anzahl der Ladungsträger  $N$ . Ursprünglich wurde angenommen, der Hooge-Parameter hätte den universellen Wert  $\simeq 2 \cdot 10^{-3}$  und man könnte  $1/f$ -Rauschen aufgrund von elektrischen Ursachen generell mit dieser Formel beschreiben.

Der anfängliche Erfolg dieser rein phänomenologischen Beschreibung lässt sich darauf zurückführen, dass die Formel (2.5), wenn sie auf folgende Kernaussage reduziert wird, die tatsächlichen Gegebenheiten nahezu immer korrekt wieder gibt: Je kleiner ein betrachtetes System mit Rauschquellen wird, hier durch die Anzahl der Ladungsträger ausgedrückt, und je größer der Widerstand und damit die abfallende Spannung werden, desto größer wird das Rauschen, genauer die spektrale Rauschleistungsdichte.

Mit einer zunehmenden Zahl an Experimenten stellten sich dann Widersprüche hinsichtlich der exakten Form von Formel (2.5) heraus. Dies waren beispielsweise Veränderungen des Hooge-Parameters  $\gamma_H$  in Abhängigkeit der Temperatur und Abweichungen von der  $1/f$ -Form der Spektren. Der nächste Schritt die experimentellen Ergebnisse zu beschreiben, war dann eine Modifikation der Hooge-Formel in der Form:

$$S_U(f) = \gamma_H \frac{U^{2+\beta}}{N f^\alpha} \quad (2.6)$$

mit zusätzlichen Parametern  $\alpha$ ,  $\beta$ . In dieser Form wird außerdem der Anspruch, dass  $\gamma_H$  einen festen Wert besitzt, aufgegeben. Wird nun Formel (2.6) noch weiter erweitert, so z.B. durch die Einführung einer Temperaturabhängigkeit mit Parametern wie  $\gamma(T)$  und  $\alpha(T)$ , kann die „Gültigkeit“ der Beschreibung auf viele Systeme mit  $1/f$ -Rauschen, allerdings immer noch nicht auf alle, ausgeweitet werden. Da aber heute deutlich mehr über mikroskopische Ursachen bekannt ist und es klar ist, dass es tatsächlich unterschiedliche  $1/f$ -Rauschquellen gibt, die dann ein sehr ähnliches  $1/f$ -Messsignal zeigen, endet dieser Weg mit der immer allgemeineren Formel, wenn er zu weit beschritten wird, letztendlich in der Beliebigkeit. Es sind zum weiteren Verständnis daher unbedingt Modelle notwendig, die über diese rein phänomenologische Betrachtung hinausgehen. Darauf wird ab dem nächsten Abschnitt 2.2.3 Bezug genommen. Benutzt wird Formel (2.6) allerdings heute immer noch, und zwar zu Skalierungszwecken und ersten Einordnungsversuchen. Ausreichende Vorsicht vorausgesetzt, können über Vergleiche der benötigten Parameter durchaus erste Hinweise in Bezug auf die untersuchten Systeme gefunden werden. In dieser Arbeit wird im Allgemeinen eine Skalierungsformel in der folgenden Form benutzt:

$$S_U(f) = C \frac{U^{2+\beta}}{V f^\alpha} \quad (2.7)$$

mit der Konstanten  $C$  und dem Volumen  $V$  der Probe. Anstelle des Begriffes der Größe des Systems am Anfang dieses Abschnittes, oder auch die Anzahl der Ladungsträger  $N$ , tritt in Formel (2.7) nun ganz konkret das Volumen der zu untersuchenden Probe. Dabei ist festzuhalten: Der Begriff von der Größe des Systems wurde bewusst so allgemein gewählt, weil eben in vielen Fällen von  $1/f$ -Rauschen eine Beschreibung mit dem Volumen der Probe als Rauschquelle wie Formel (2.7) prognostiziert, falsch oder zumindestens unvollständig ist. Begründungen für die Annahme, dass wenigstens bei Metallen eine Beschreibung mittels des Probenvolumens zulässig ist, werden im nächsten Abschnitt gegeben. Die Skalierungsformel (2.7) ist unbestreitbar nützlich und wird auch in dieser Arbeit häufig verwendet. Es muss aber bei jeder Anwendung sorgfältig vorgegangen werden und herausgestellt werden, was genau unter welchen Voraussetzungen miteinander verglichen wird. Dies geschieht bereits im experimentellen Kapitel 4 und dann jeweils bei der Vorstellung von Rauschmessungen ab Abschnitt 5.2.



### 2.2.3 $1/f$ -Rauschen in Metallen

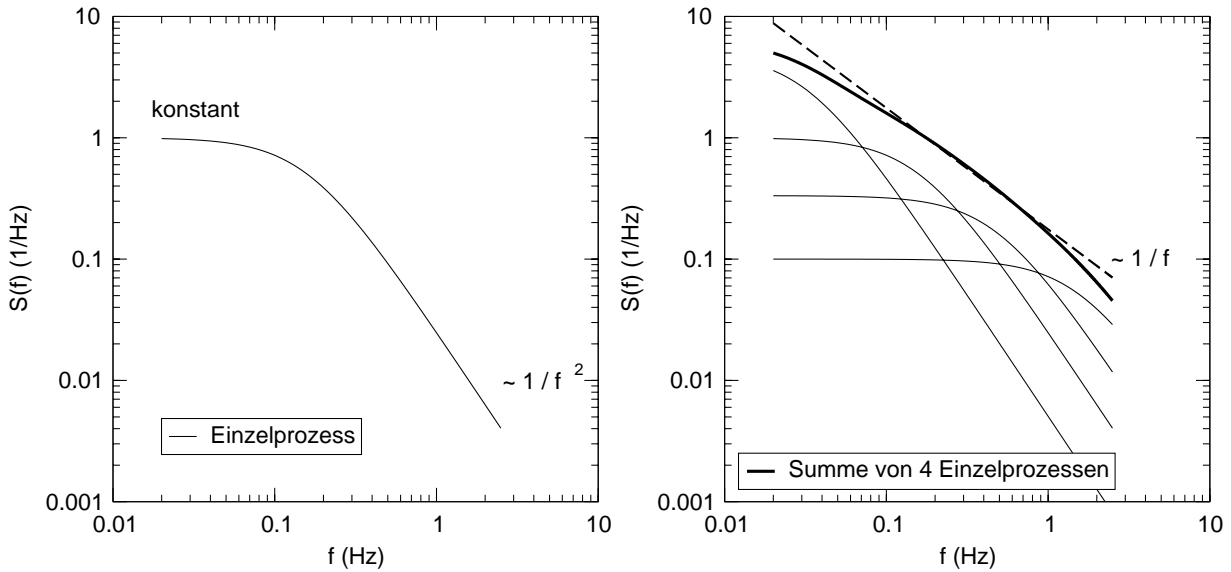
Rauschen in Metallfilmen wurde schon sehr früh untersucht, allerdings zunächst nur im Hochtemperaturbereich. Bei der Beschreibung mittels Formel (2.6) finden sich folgende Kenndaten für Metalle: Für  $\alpha$  gilt  $0.8 < \alpha < 1.4$ . Der Wert von  $\beta$  ist im Allgemeinen null, das Rauschen also als ohmsch zu bezeichnen. Die im vorherigen Abschnitt angesprochene Identifizierung des Probenvolumens als Quelle des Rauschens (siehe Formel (2.7)) war lange Zeit höchst umstritten. Als mögliche andere Ursache wurde die Kontaktfläche beispielsweise zwischen der Metallschicht und dem Substrat oder auch zwischen unterschiedlichen Metallschichten, also ein von der Oberfläche statt vom Volumen abhängiger Effekt, propagiert. Unter dem Stichwort „bulk effect“ bzw. „surface effect“ finden sich hierzu eine Vielzahl an Arbeiten. Über die Veröffentlichungen [5, 17–20] lässt sich ein Einstieg in diese Diskussion finden. Zum einen zeigt die lange Zeit der Diskussion und die Vielzahl an Experimenten um die korrekte Abhängigkeit, wie schwierig Aussagen und Vergleiche von absoluten Rauschstärken sein können. Dazu zählt zum Beispiel, dass auch bei Metallen teilweise eine Abhängigkeit von dem benutzten Substrat gefunden worden ist [21], was bei einem von dem Volumen der Metallprobe ausgehenden Effekt zunächst verwunderlich erscheint. Das Temperaturfluktuations-Modell von Voss und Clarke [22], das diesen Widerspruch erklären kann, soll hier kurz erwähnt, aber nicht weiter ausgeführt werden. Zum anderen muss betont werden, dass zwar bei Metallen im Allgemeinen von einer Skalierbarkeit der spektralen Rauschleistungsdichte bezüglich des Probenvolumens [23, 24] auszugehen ist, wobei Wismuth ein prominentes Gegenbeispiel hierzu darstellt [25, 26], bei anderen Substanzen wie z.B. Halbleitern aber eher die Oberfläche bzw. Kontaktfläche für die Rauschstärke bedeutsam ist [27]. Auch Kombinationen der angesprochenen Abhängigkeiten oder Effekte, die weder durch „surface effect“- noch „bulk effect“-Überlegungen gut erklärt werden können, kommen, je nach untersuchtem System, vor [7, 8]. Die Diskussionen zwischen „surface“ und „bulk effect“ werden generell heute deswegen nicht mehr so rigoros geführt. Daraus folgend wird in dieser Arbeit also zunächst von einer Volumenabhängigkeit des Rauschens der untersuchten Metallschichten ausgegangen, aber diese Annahme beständig überprüft (siehe die Skalierungsformeln im vorherigen Abschnitt). Es sei hier bereits auf einen möglichen Einfluss des Substrates auf die beobachtete Rauschstärke und insbesondere auf Abschnitt 5.3 verwiesen.

Wenn davon ausgegangen werden kann, dass tatsächlich nur der intrinsische Metallanteil einer Probe gemessen wird, lassen sich als Rauschquellen Defekte identifizieren, deren atomare Konfiguration aufgrund von Unordnung instabil ist und zeitlich fluktuieren kann. In vereinfachter Form sei dies kurz veranschaulicht:

Es soll zunächst ein Fluktuator in einem Metall angenommen werden. Dieser Fluktuator wechselt zwischen zwei durch eine Energiebarriere getrennten Zuständen mit einer bestimmten Relaxationsrate  $\tau^{-1}$  hin und her. Weiterhin soll angenommen werden, dass Elektronen an diesem Fluktuator streuen können. In den jeweiligen Zuständen, unterschiedliche Wirkungsquerschnitte vorausgesetzt, wird dieser Fluktuator somit Elektronen unterschiedlich streuen und so zu einer Fluktuation des Widerstandes, also Rauschen, führen. Die Relaxationsrate  $\tau^{-1}$  des angenommenen Fluktuators wird also die Fluktuation des Widerstandes beeinflussen. Dabei kann gezeigt werden, dass für die spektrale Rauschleistungsdichte  $S_x(f)$  eines Streuprozesses gilt:

$$S_x(f) \propto \frac{\tau}{1 + (2\pi f)^2 \tau^2} \quad (2.8)$$

Durch eine Überlagerung von vielen solchen Einzelprozessen kann dann ein  $1/f$ -Verlauf im Rauschleistungsspektrum erreicht werden. Anschaulich ist dies in Abbildung 2.1 gezeigt.



**Abbildung 2.1:** Links ist ein Einzelprozess mit  $\tau = 1$  s dargestellt. Rechts eine Überlagerung mehrerer Einzelprozesse mit unterschiedlichen Relaxationszeiten  $\tau$ . Die entsprechenden Relaxationszeiten sind von oben nach unten gesehen:  $\tau_a = 5$  s,  $\tau_b = 1$  s,  $\tau_c = \frac{1}{3}$  s,  $\tau_d = 0.1$  s. Bereits bei der Überlagerung von nur 4 Einzelprozessen ist die Annäherung des Gesamtsignals an einen  $1/f$ -Verlauf zu erkennen.

Die Identifizierung dieser Fluktuatoren als thermisch aktivierte Defektbewegung ist die große Leistung des Modells von Dutta, Dittia und Horn (und natürlich entsprechender experimenteller Untersuchungen [28, 29]) und soll hier nicht im Einzelnen ausgeführt werden. Das Modell von Dutta, Dittia und Horn ist das „Standardmodell“ für Rausch-