

Untersuchungen von dünnen Aluminiumoxid-Schichten

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades
der Fakultät für Physik der
Universität Bielefeld

vorgelegt von
Sławomir Czerkas
aus Poznań

5. März 2004

Erklärung

Hiermit erkläre ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfaßt und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel verwendet habe.

Bielefeld, 5. März 2004

(Sławomir Czerkas)

Gutachter:

Prof. Dr. Günter Reiss
Prof. Dr. Armin Gölhäuser

Datum des Einreichens der Arbeit: 11. März 2004

Veröffentlichungen:

Teile dieser Arbeit sind veröffentlicht in:

1. T. Luciński, S. Czerkas, H. Brückl, G. Reiss: *Growth and properties of Co/Al-O_x/Ni(80)Fe(20) trilayers monitored in-situ during deposition process*, J. Magn. Magn. Matter **222**, S. 327-336 (2000).
2. S. Czerkas, G. Reiss: *Dielectric breakdown in ultrathin Al-O_x films forced by STM*, in Vorbereitung.
3. S. Czerkas, G. Reiss: *Barrier parameters distribution in ultrathin Al-O_x films investigated by STM*, in Vorbereitung.

Tagungen:

1. T. Luciński, S. Czerkas, H. Brückl, G. Reiss: *Influence of Al thickness on magnetisation process of Co/Al-O/(Ni₈₀Fe₂₀) trilayers*, The European Conference PHYSICS OF MAGNETISM 1999 Poznan, P.2.25
2. S. Czerkas, G. Reiss: *Studying thin Al-O_x barriers with a scanning tunneling microscope (STM)*, DPG Frühjahrstagung 2001 Hamburg, MA 9.43
3. S. Czerkas, M. Justus, K. Rott, A. Thomas, H. Brückl, G. Reiss: *Dielectric breakdown in Al-O_x films on Co studied with a scanning tunneling microscope*, DPG Frühjahrstagung 2002 Regensburg, DS 2.3

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	3
2.1	Elektronentunneln	3
2.1.1	Tunneln durch eine rechteckige Barriere	3
2.1.2	Tunnelstromgleichungen	5
2.1.3	Einfluss der Bildkraft auf die Barriere und den Strom	7
2.2	Raster-Tunnel-Mikroskopie	10
2.2.1	Funktionsprinzip	10
2.2.2	Spektroskopische Methoden	13
2.2.3	Untersuchungen von Nichtmetallen	15
2.3	Tunnelmagnetowiderstand	17
3	Wachstum und Eigenschaften von Co/Al-O_x/Py Dreilager	21
3.1	Experimentelle Details	21
3.2	Ergebnisse und Diskussion	22
3.3	Zusammenfassung	30
4	Dielektrischer Durchbruch in Oxidschichten	33
4.1	Grundlagen	33
4.2	Experimente mit SiO ₂	36
4.3	Experimente mit Al ₂ O ₃	38
5	Bestimmung der Barrierenparameter der AlO_x Schichten mittels Raster-Tunnel-Mikroskopie	47
5.1	Experimentelle Details	47
5.1.1	Herstellung der Proben	47
5.1.2	Raster-Tunnel-Mikroskopie	48
5.1.3	Berechnung des Tunnelstroms	50
5.1.4	Berechnung der Bildkraft	59
5.2	Aufnahmen im Konstant-Strom-Modus	62
5.3	Strom-Spannung-Spektroskopie	65
5.4	Bestimmung der Oxiddicke	74
6	Zusammenfassung	81
	Literaturverzeichnis	83

Kapitel 1

Einleitung

Als vor wenigen Jahren der Tunnelmagnetowiderstand (TMR) bei Raumtemperatur entdeckt wurde [1], hat dies weltweit für Aufsehen gesorgt. Erstens ist dies aus Sicht der Grundlagenforschung sehr interessant und zweitens, was noch wichtiger ist, wurden schnell mehrere Anwendungsmöglichkeiten vorhergesagt [2, 3]. Das größte Potenzial wird hier im magnetischen Arbeitsspeicher (MRAM) gesehen. Diese Art Speicher verbindet die besten Eigenschaften von heutigen dynamischen Arbeitsspeicher (geringe Zugriffszeiten) und Festplatten (Nichtflüchtigkeit der Daten) [4]. Die MRAM-Markteinführung ist für 2005 vorgesehen [5]. Weiter kann man logische Schaltungen aus TMR-Elementen machen [6]. Im Gegensatz zu gewöhnlichen Halbleiterschaltungen, in denen nur die elektrische Ladung des Elektrons als Informationsträger benutzt wird, kommt in diesen sogenannten Spinelektronikschaltungen auch der Spin eines Elektrons als Informationsträger hinzu. Man kann die Tatsache, dass mit dem magnetischen Feld die Funktion eines TMR-Elementes verändert werden kann, für den Bau einer frei konfigurierbaren Architektur ausnutzen. Diese eröffnet neue aufregende Perspektiven für Elektronik und Programmierung.

Die größte Herausforderung bei der Herstellung von TMR-Elementen stellt eine gute homogene Isolatorschicht dar. Inzwischen haben sich ca. 1 - 2 nm dicke Aluminiumoxidschichten als diese Barriere etabliert. Deswegen bilden die Untersuchungen von solchen dünnen Aluminiumoxidbarrieren auf magnetischen Elektroden den Kern dieser Arbeit. Es soll erstens der Wachstum von Co/Al-O_x/Py-Schichtsystemen untersucht werden. Mittels Raster-Tunnel-Mikroskopie (STM) soll die Durchbruchfestigkeit des Aluminiumoxids in mikroskopischer Skala untersucht werden. Dabei wird der dielektrische Durchbruch gezielt lokal mithilfe der STM-Spitze induziert. Ausserdem soll lateral aufgelöst die Verteilung der Barrierenparameter bestimmt werden. Um diese Ziele realisieren zu können mussten unter anderem weitgehende Modifikationen der bestehenden UHV-Anlagen durchgeführt werden.

Das Kapitel 2 erklärt kurz die physikalischen Grundlagen des Elektronentunnelns, der Funktionweise eines STM und die Grundlagen des TMR. Die Leser, die über ein Fachwissen zu den obengenannten Gebieten verfügen, können die entsprechenden Abschnitte getrost überspringen. Im Kapitel 3 werden Ergebnisse der *in situ* Untersuchungen von hauptsächlich elektrischen und magneti-

schen Eigenschaften von aufgedampften Co/Al-O_x/Py-Dreilagern in Abhängigkeit von der Aluminiumdicke vorgestellt. Im Kapitel 4 sind zuerst die wenigen aus der Literatur bekannten STM-Untersuchungen des dielektrischen Durchbruchs in SiO₂ beschrieben und dann die analogen Experimente mit dem Aluminiumoxid, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden. Kapitel 5 enthält die Beschreibung des experimentellen Aufbaus, die Erklärung der benutzten Verfahren zur STM-Untersuchung von Oxidschichten und diskutiert die erzielten Ergebnisse der Bestimmung der Barrierenparameter des Aluminiumoxids anhand von Strom-Spannungs-Spektroskopie an den kombinierten Vakuum-Oxid-Barrieren. Kapitel 6 fasst alle in dieser Arbeit erzielten Ergebnisse zusammen und bespricht das Erreichen der gesetzten Ziele.

Kapitel 2

Grundlagen

It is very easy both to fabricate a tunnel junction and to perform an experiment.
(I. Giaever, Kap. 3, Tunneling Phenomena in Solids, 1968)

2.1 Elektronentunneln

In der klassischen Physik ist es verboten, dass ein Teilchen (z. B. ein Elektron), dessen Energie kleiner ist als die Höhe einer Potenzialbarriere, diese überquert. In der Quantenphysik dagegen besteht eine bestimmte endliche Wahrscheinlichkeit, dass ein Teilchen die Barriere doch überqueren kann. Dieser Prozess wird Tunneln genannt und ist seit Anfängen der Quantenphysik bekannt. Bereits 2 Jahre nach der Veröffentlichung der SCHRÖDINGERS Arbeit über Quantenphysik [7], benutzt OPPENHEIMER die Idee des Tunnelns zur Erklärung der Selbstionisation der Wasserstoffatome im elektrischen Feld. 1928 erklären FOWLER und NORDHEIM die kalte Elektronenemission im starken elektrischen Feld als Elektronentunneln durch eine verjüngte Potenzialbarriere [8]. Zu den nächsten großen Entdeckungen auf dem Gebiet des Elektronentunnelns zählen: ESAKIS Zwischenbandtunneln in Halbleitern [9], GIAEVERS Messungen der Energielücke im Supraleiter mittels Elektronentunneln zwischen Metall und Supraleiter [10], und Beobachtung inelastischer Verluste im Tunnelprozess aufgrund der molekularen Vibrationen durch JAKLEVIC und LAMBE [11]. In derselben Zeit, d. h. um 1960, werden Gleichungen zur Beschreibung von Elektronentunneln in Metall-Isolator-Metall-Systemen vorgeschlagen und die Bildkräfte eingeführt [12]. 1971 konstruieren YOUNG, WEIRD und SCIRE einen Vorfahren des Rastertunnelmikroskops (STM), in dem sie das Elektronentunneln durch eine Vakuumbarriere zwischen 2 Metallelektroden in Punkt-Fläche-Geometrie beobachten [13]. Ca. 10 Jahre später konnten BINNIG und ROHRER mit dem neu konstruierten STM mithilfe von Elektronentunneln durch eine genau kontrollierte Vakuumbarriere zum ersten mal atomare Stufen sichtbar machen [14].

2.1.1 Tunneln durch eine rechteckige Barriere

Es wird ein 1-dimensionaler Fall betrachtet mit einem Elektron mit Ladung e , Masse m und Energie E , das sich auf eine Potenzialbarriere der Höhe φ und

Breite d zu bewegt (Abb. 2.1). Klassisch betrachtet beträgt die Wahrschein-

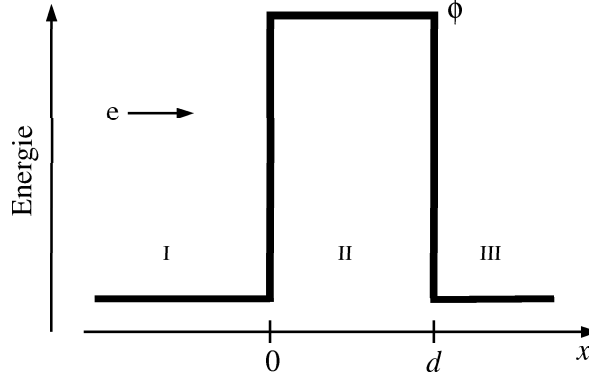


Abbildung 2.1: 1-D Potenzialbarriere der Höhe φ und Breite d und ein eintreffendes Elektron e mit Energie E .

lichkeit T , dass das Elektron die Barriere durchquert 1 für $E > \varphi$ und 0 für $E < \varphi$. Um diese Wahrscheinlichkeit T nach der Quantenphysik zu berechnen, stellt man die Wellenfunktion für alle 3 Bereiche des Systems auf:

$$\Psi(x) = \begin{cases} e^{ikx} + re^{-ikx} & : x \leq 0 \\ ae^{-\kappa x} + be^{\kappa x} & : 0 \leq x \leq d \\ te^{ikx} & : x \geq d \end{cases} \quad (2.1)$$

wobei $k = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} E}$ und $\kappa = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} (\varphi - E)}$. Um die Konstanten r , a , b und t zu berechnen, benutzt man die Bedingung, dass sowohl $\Psi(x)$ als auch $\Psi'(x)$ für $x = 0$ und $x = d$ stetig sein müssen. Daraus bekommt man folgenden Ausdruck für die Tunnelwahrscheinlichkeit T :

$$T = \left[1 + \frac{1}{4} \left(\frac{\kappa}{k} + \frac{k}{\kappa} \right)^2 \sinh^2(\kappa d) \right]^{-1} = |t|^2 \quad (2.2)$$

Für eine detaillierte Darstellung dieser Berechnungen siehe z. B. [15]. Diese Berechnungen lassen sich einfach auf 3 Dimensionen erweitern, vorausgesetzt das Potenzial bleibt von y und z unabhängig [16]. In diesem Falle gilt:

$$T(k_{\parallel}) = \left[1 + \frac{1}{4} \left(\frac{\kappa}{k_x} + \frac{k_x}{\kappa} \right)^2 \sinh^2(\kappa d) \right]^{-1} \quad (2.3)$$

mit

$$\kappa(k_{\parallel}) = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} \left(\varphi - E + \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m} \right)}, \quad k_x = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2} \left(E - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m} \right)} \quad (2.4)$$

wobei $k_{\parallel} = \{k_y, k_z\}$ die planare Komponente des Vektors \vec{k} ist. Wie in den obigen Gleichungen 2.3, 2.4 zu sehen, hängt T ausschließlich von dem Teil der

Energie ab, der für die Bewegung senkrecht zur Barriere (in x -Richtung) zur Verfügung steht $E_x = E - \frac{\hbar^2 k_{\parallel}^2}{2m} = \frac{\hbar^2 k_x^2}{2m}$. Deswegen muss für die bekannte Gesamtenergie E über alle k_{\parallel} integriert werden um den gesamten Transmissionskoeffizienten T_{ges} zu finden:

$$T_{\text{ges}} = \frac{1}{(2\pi)^2} \int T(k_{\parallel}) dk_{\parallel} \quad (2.5)$$

Im Falle von dicken und hohen Barrieren ($\kappa(0)d \gg 1$) tragen im Wesentlichen nur die (fast) senkrecht auf die Barriere aufkommenden Elektronen zur Tunnelwahrscheinlichkeit bei. Auf diese Weise vereinfacht sich 2.5 nach der Integration zu:

$$T_{\text{ges}} = T(0) \frac{\kappa(0)}{4\pi d} \quad (2.6)$$

2.1.2 Tunnelstromgleichungen

Im vorhergehenden Abschnitt wurde ein idealer Fall von einem Elektron und einer rechteckigen Barriere betrachtet und die Wahrscheinlichkeit ausgerechnet, dass dieses Elektron die Barriere überquert. Im realen Fall von 2 Metallelektroden getrennt durch eine isolierende Oxid- oder Vakuumbarriere, kann man die Anzahl der Elektronen pro Zeit berechnen, die die Barriere durchtunneln (d.h. den Tunnelstrom von einer zu der anderen Elektrode), wenn eine bestimmte Spannung V angelegt ist. Bereits 1933 haben SOMMERFELD und BETHE das Elektronentunneln in solchen Systemen theoretisch untersucht [17]. Die Abbildung 2.2 zeigt rechts 2 Metalle, die mit einer dünnen Potenzialbarriere voneinander getrennt sind, an die eine Spannung V angelegt ist. Hier findet ein

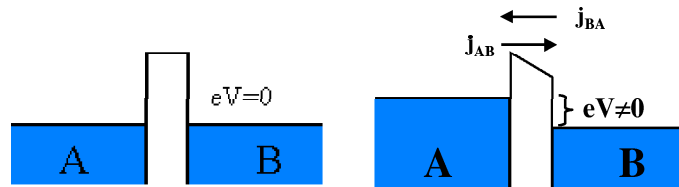


Abbildung 2.2: 2 Metalle, die mit einer Potenzialbarriere voneinander getrennt sind. Links und rechts entsprechend ohne und mit angelegter Spannung V .

Stromfluß $j = j_{AB} - j_{BA}$ statt. Der Strom (eigentlich Stromdichte) j_{BA} ist gegeben durch:

$$j_{AB} = \frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{K_t} \int_0^{\infty} \rho_A(E) f(E) P_{AB} \rho_B(E - eV) (1 - f(E - eV)) dE_x \quad (2.7)$$

wobei K_t der zur Barriere senkrecht Impuls des Elektrons ist, $\rho_A(E)$, $\rho_B(E - eV)$ sind die Zustandsdichten, $f(E)$ ist die Fermi Verteilungsfunktion, E_x ist die gesamte Energie des Elektrons in Richtung senkrecht zur Barriere. P_{AB} ist die

Wahrscheinlichkeit der Transmission vom Zustand A nach B. Dabei stellen die Produkte $\rho_A(E)f(E)$ und $\rho_B(E - eV)(1 - f(E - eV))$ entsprechend die Anzahl der besetzten Zustände in A, bzw. der freien Zustände in B. Der effektive Strom j ist dann gegeben durch [18]:

$$j = \frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{K_t} \int_0^{\infty} \rho_A(E) \rho_B(E - eV) P_{AB} (f(E) - f(E - eV)) dE_x \quad (2.8)$$

Das größte Problem bei der Berechnung des Tunnelstroms ist die Bestimmung der Tunnelwahrscheinlichkeit P . Sie lässt sich analytisch nur für wenige einfache Barrieren bestimmen. Am häufigsten wird die WKB-Näherung benutzt um P in komplizierteren Fällen zu berechnen. Die WKB-Näherung setzt voraus, dass das Potenzial sich nur sehr langsam im Vergleich zu der Elektronenwellenlänge ändert. In diesem Fall wird P beschrieben durch:

$$P = A \exp \left(\frac{-2}{\hbar} \int_0^d \sqrt{2m[\varphi(x', V) - E_x]} dx' \right) \quad (2.9)$$

wobei $\varphi(x', V)$ die Barrierenhöhe bei Spannung V an Stelle x' ist und d ist die Barrierendicke. A ist ein Faktor, der von der Energie abhängig ist. Von diesem Standpunkt aus gehen die beiden wohl populärsten Modelle von SIMMONS [12] und BRINKMAN et al. [19] aus. Da die Herleitung der beiden Modelle hervorragend in den Quellartikeln dargestellt ist, werden hier nur die wichtigsten Eigenschaften der beiden Modelle zusammengefasst. SIMMONS ersetzt eine beliebige Barriere durch die mittlere Barrierenhöhe $\bar{\varphi}$ und eine effektive Barrierendicke. Auf diese Weise kann er die Gleichung 2.8 annähernd berechnen. Für eine rechteckige Barriere ergibt sich dann bei kleinen Spannungen:

$$J = J_L \sqrt{\bar{\varphi}} V \exp(-A\sqrt{\bar{\varphi}}) \quad (2.10)$$

wobei

$$J_L = \frac{\sqrt{2m}}{d} \left(\frac{e}{\hbar} \right)^2 \quad (2.11)$$

$$A = \sqrt{2m} \frac{4\pi\beta d}{h} \quad (2.12)$$

β ist ein Korrekturfaktor und wird meistens als 1 angenommen. Die Formel 2.10 sagt eine lineare Abhängigkeit des Tunnelstroms von der Spannung im Bereich kleiner Spannungen und eine exponentielle Abhängigkeit von der Barrierendicke voraus. Der wohl größte Nachteil dieses Modells ist die Berücksichtigung von ausschließlich mittlerer Barrierenhöhe. Deswegen sind die Strom-Spannungskurven (I - U -Kurven) auch im Falle von trapezförmigen Barrieren symmetrisch für alle Spannungen kleiner als die Barrierenhöhe. Eine genauere Lösung für eine trapezförmige Barriere liefern BRINKMAN et al., die numerisch die Gleichung 2.8 für $T = 0$ berechnet haben. Nach der numerischen Differentiation des Ergebnisses haben sie den Ausdruck für die differentielle Leitfähigkeit, σ erhalten:

$$\frac{\sigma(V)}{\sigma(0)} = 1 - \left(\frac{A_o \Delta\varphi}{16 \bar{\varphi}^{\frac{3}{2}}} \right) eV + \left(\frac{9}{128} \frac{A_o^2}{\bar{\varphi}} \right) (eV)^2 \quad (2.13)$$

wobei $A_o = 4\sqrt{2m}\frac{d}{3\hbar}$, $\sigma(0) = \left(3.16 \cdot 10^{10} \frac{\sqrt{\bar{\varphi}}}{d}\right) \exp(-1.025 d\sqrt{\bar{\varphi}})$, und $\Delta\varphi = \varphi_1 - \varphi_2$, $\bar{\varphi} = \frac{\varphi_1 + \varphi_2}{2}$. φ_1 und φ_2 sind die Barrierenhöhen an den Rändern der Barriere. Die Zahlenwerte wurden ausgerechnet für Angaben von d in Ångstrom und φ in Elektronvolt. Aus der Gleichung 2.13 ist es deutlich, dass auch für kleine Spannungen der Verlauf unsymmetrisch ist. In beiden Modellen haben die Autoren den Einfluss der Bildkräfte untersucht. Es wurde dabei festgestellt, dass für eine homogene Trapezbarriere die Form der IU -Kennlinien sich nur unwesentlich ändert und die ganze Kurve sich in Richtung größerer Ströme verschiebt. Wie aber später in dieser Arbeit gezeigt wird, ist der Einfluss der Bildkräfte bei einer nicht homogenen Doppelbarriere nicht vernachlässigbar.

2.1.3 Einfluss der Bildkraft auf die Barriere und den Strom

Die im vorhergehenden Abschnitt gezeigten rechteckigen oder trapezförmigen Potenzialbarrieren stellen nur ein idealisiertes Bild dar. Eine sprunghafte Änderung des Potentials ist unphysikalisch, weil dazu unendlich große Felder benötigt werden [20]. In der Realität sorgt die Bildkraft für weiche Potenzialänderungen. Abb. 2.3 zeigt eine Punktladung q im Vakuum im Abstand a vor einer unendlichen Leiteroberfläche. Diese Leiteroberfläche stört das Feld der Ladung q

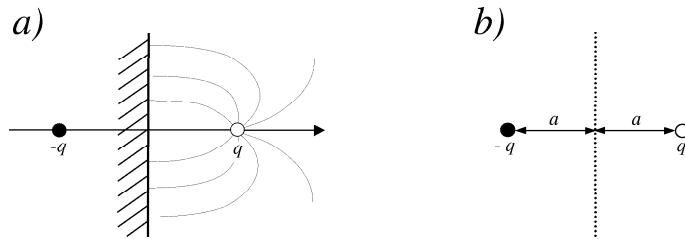


Abbildung 2.3: Eine Punktladung gegenüber einer leitenden Ebene a) und Visualisierung der Methode der Bildladungen für die Berechnung des Potentials b).

wesentlich. Diese Ladung q (z. B. ein Elektron) polarisiert die Leiteroberfläche und diese übt dann eine anziehende Kraft auf die Ladung aus. Für eine detaillierte Herleitung der hier gezeigten Formeln siehe z.B. [21], hier werden nur die wichtigsten Ergebnisse und Ideen zur Lösung des Problems gezeigt. Das Bildkraftpotenzial φ_i , das auf die Ladung q wirkt, beträgt:

$$\varphi_i = -\frac{1}{16\pi\epsilon_o} \frac{q^2}{a} \quad (2.14)$$

Der Verlauf des Feldes im Vakuum lässt sich als Überlagerung der Felder von Ladung q und einer Bildladung $-q$ darstellen, vorausgesetzt der ganze Raum wäre Vakuum (siehe Abb. 2.3 b). Im komplizierteren Fall einer Ladung vor einem dielektrischen Halbraum (Abb. 2.4 a) muß noch das Feld innerhalb des Isolators berücksichtigt werden. Analog zur obigen Betrachtungen kann man dieses Problem mit der Methode der Bildladungen lösen (s. Abb. 2.4 b, c).

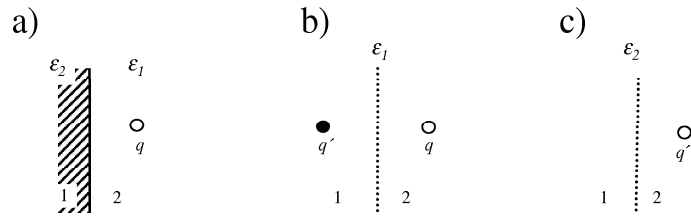


Abbildung 2.4: Eine Punktladung gegenüber einer dielektrischen Ebene a). Visualisierung der Methode der Bildladungen für die Berechnung des Potentials in Bereichen 1 (a) und 2 (b).

Analog zu 2.14 bekommen wir das Bildkraftpotential, das auf die Ladung q wirkt:

$$\varphi_i = -\frac{1}{16\pi\epsilon_1\epsilon_0} \frac{qq'}{a} \quad (2.15)$$

Das Feld im Dielektrikum 1 verhält sich so, als hätte der ganze Raum die dielektrische Konstante ϵ_1 und es 2 Ladungen gäbe: die Ladung q und die Bildladung q' :

$$q' = q \frac{\epsilon_2 - \epsilon_1}{\epsilon_2 + \epsilon_1} \quad (2.16)$$

Das Feld im Dielektrikum 2 verläuft so, als hätte der ganze Raum die dielektrische Konstante ϵ_2 und es an Stelle von q eine Ladung q'' gäbe:

$$q'' = q \frac{2\epsilon_2}{\epsilon_2 + \epsilon_1} \quad (2.17)$$

Mit Hilfe der hier gezeigten Methoden kann man das Bildkraftpotential berechnen, wenn sich ein Elektron im Vakuum oder Dielektrikum zwischen 2 Metallelektroden befindet (Abb. 2.5). In diesem Fall muss man unendlich viele

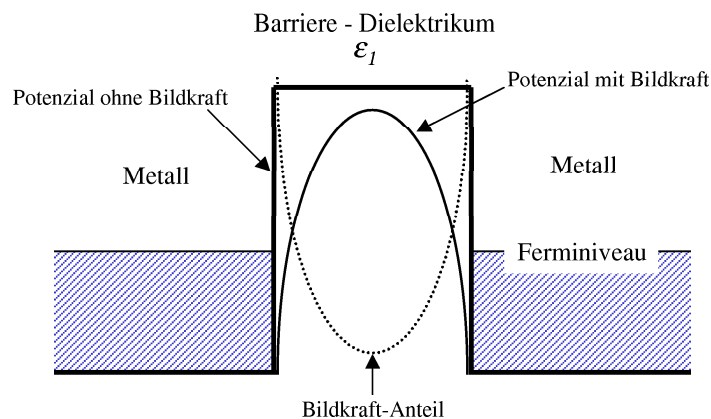


Abbildung 2.5: Eine Potenzialbarriere zwischen 2 Metallelektroden mit und ohne Berücksichtigung des Bildkraftpotentials.

Bildladungen berücksichtigen (analog zu unendlich vielen Bildern von einem Gegenstand in einem Raum mit 2 gegenüberliegenden Spiegeln) um das Bildkraftpotenzial auf das Elektron zu berechnen:

$$\varphi_i(x) = -\frac{q^2}{8\pi\epsilon_1\epsilon_o} \left[\frac{1}{2x} + \sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{nd}{(nd)^2 - x^2} - \frac{1}{nd} \right) \right] \quad (2.18)$$

x ist die Position im Dielektrikum. Die Abb. 2.5 zeigt auch eine rechteckige Potenzialbarriere φ mit Berücksichtigung der Bildkraft $\varphi + \varphi_i$. Die Kanten sind dann deutlich gerundet, und es gibt auch keine Sprünge im Potenzial mehr. Die Barriere ist deutlich niedriger und etwas dünner geworden. Die (Nicht-)Berücksichtigung der Bildkraftpotenzials beeinflusst selbstverständlich die berechneten Tunnelstrom-Spannung-Spektren. Wie von SIMMONS gezeigt [20] und auf der Abb. 2.6 zu sehen, werden die Kurven in Richtung größerer Ströme verschoben. Man kann beispielsweise die Tunnelspektren für die Potenzialbarriere mit

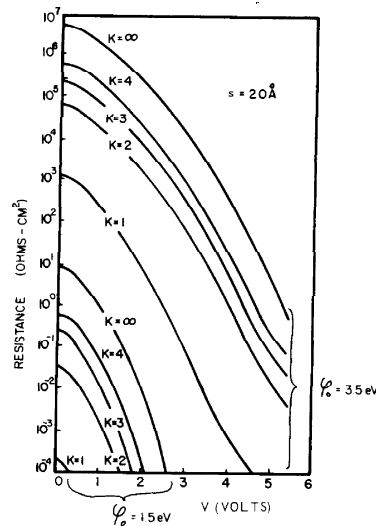


Abbildung 2.6: Berechnete Tunnelspektren für ein Tunnелеlement mit Barriere­dicke $d = 20 \text{ \AA}$ und 2 verschiedenen Barrierenhöhen $\varphi = 1.5 \text{ eV}$ und 3.5 eV . Die Dielektrizitätskonstante ϵ (im Bild als K bezeichnet) wird variiert. Aus [20].

$\varphi = 3.5 \text{ eV}$, $d = 20 \text{ \AA}$ und den Dielektrizitätskonstanten (auf dem Bild als K bezeichnet) gleich 1 (d. h. Vakuumbarriere) und ∞ (entspricht Nichtberücksichtigung der Bildkräfte) verglichen. Der Verlauf der beiden Kurven ist identisch für alle Spannungen kleiner als die Barrierenhöhe. Damit ist gezeigt, dass für einfache homogene Barrieren die Bildkraft lediglich eine Verschiebung des ganzen Tunnelspektrums in Richtung größerer Ströme verursacht. Deswegen ist die Berücksichtigung der Bildkräfte in solchen Tunnелеlementen nicht unbedingt notwendig. Wie aber im Kapitel 5.1 gezeigt wird, ist dies notwendig in Barrieren, die aus Materialien mit verschiedenen Dielektrizitätskonstanten bestehen, weil die Teilbarrieren unterschiedlich von der Bildkraft beeinflusst werden.

2.2 Raster-Tunnel-Mikroskopie

Dank der Kombination der Möglichkeiten, die ein Raster-Tunnel-Mikroskop (STM) bietet, 3-dimensionale Bilder der Oberflächentopographie plus Informationen über die elektronische Struktur, wurde unser Verständnis der Physik der Oberflächen in den letzten 20 Jahren enorm verbessert. Bereits wenige Monate nach der Einführung des STM [14] wurden Bilder mit atomaren Auflösung aufgenommen [22].

2.2.1 Funktionsprinzip

Die Funktionsweise eines STM erinnert an ein Profilometer. In beiden Fällen wird eine Sonde über der gesamten Probenoberfläche gescannt. Im Kontrast zu einem Profilometer befindet sich aber die STM-Spitze nicht im mechanischen Kontakt mit der Probe, sondern in einem Abstand von ca. 1 nm von der Probenoberfläche. Als Abstandssensor wird hier der Tunnelstrom benutzt. Weil der Abstand zwischen der Spitze und der Probe klein ist, kommt es zum Überlapp der Wellenfunktionen der Elektronen aus beiden Elektroden (STM-Spitze und Probe), und so kann ein Tunnelstrom zwischen ihnen über eine Luft-/Vakuumbarriere fließen. Weil der resultierende Tunnelstrom sehr stark (exponentiell) abhängig vom Abstand Spitze-Probe ist, kann das STM eine hervorragende Höhenauflösung unter 0.1 nm aufweisen.

Die Abb. 2.7 zeigt die Funktionsweise eines STM. Im Konstantstrom-Modus

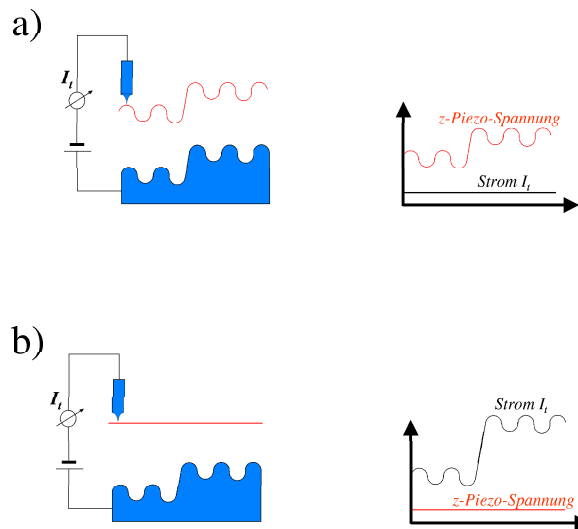


Abbildung 2.7: Funktionsweise eines STM: a) in CCM-Abbildung, b) in CHM-Abbildung. Links jeweils schematische Darstellung der Bildaufnahme (rote Linie stellt die Spitzenposition dar), rechts der resultierende Strom und Höhenposition der Spitze (Spannung auf dem z-Piezo) als Funktion der lateralen Position.

(CCM) hält bei konstanter Spannung die elektronische Regelung einen konstan-

ten Strom I_t dadurch, dass die Position der Spitze in der Höhe nachgeregelt wird und die Spitze der Topographie der Probe folgt und dadurch einen konstanten Abstand hält. Als Messsignal dient dann die Höhenänderung der Spitze (meistens die Spannung auf dem z-Piezo), die direkt der Topographie der Probe entspricht. Vorteile dieses Abbildungsmodus' sind die direkte Abbildung der Topographie und die Möglichkeit, Proben mit unbekanntem, auch sehr rauen Topographien zu untersuchen. Im Konstanthöhe-Modus (CHM) (Abb. 2.7 b) wird die STM-Spitze über der Oberfläche gescannt ohne die Höhenposition zu ändern, d.h. die Spitze folgt nicht der Topographie. In diesem Fall ist der resultierende variierende Strom das Messsignal. Der große Vorteil dieser Methode liegt in der möglichen großen Scangeschwindigkeit, weil der elektronische Regelkreis ausgeschaltet wird. Damit ist sogar möglich Diffusionsprozesse auf der Oberfläche fast in Echtzeit zu filmen.

Die Abb. 2.8 zeigt schematischen Aufbau eines STM. Wie dort zu sehen,

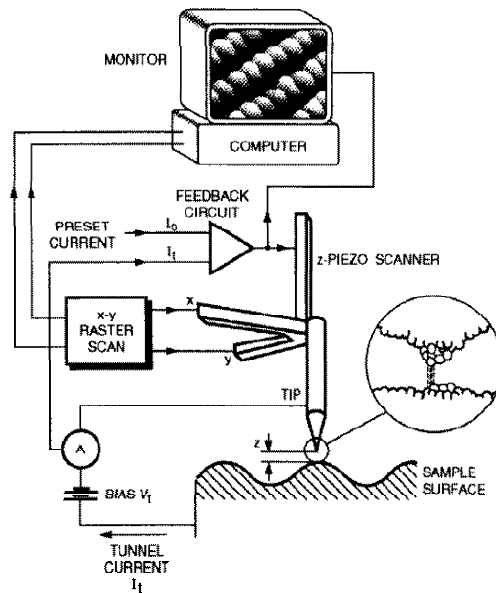


Abbildung 2.8: Schematischer Aufbau eines STM. Die Spitze bewegt sich zeilenweise über der Probenoberfläche gesteuert von Piezoelementen. Die Bewegungen der Spitze werden von einem Computer erfasst und dargestellt. Aus [23].

besteht ein STM im wesentlichen aus einer Scannereinheit (samt Spitze) und Regel- und Auswerteelektronik. Der Scanner besteht meistens entweder aus 3 orthogonalen piezoelektrischen Stäben (wie in Abb. 2.8 gezeigt) oder aus einem 4-Segmentpiezo. Ein 4-Segmentpiezo besteht aus einem Piezoröhrchen, das mit einer inneren und 4 äußerer Elektroden ausgestattet ist (Abb. 2.9). Zu Nachteilen eines 4-Segmentpiezos gehört der mögliche große Crosstalk (zwischen den 3 Achsen) und große Nichtlinearität in der ausgeführten Bewegung. Die Lösung wird aber trotzdem oft bevorzugt eingesetzt wegen ihrer Einfachheit und Kompaktheit und dadurch hoher Resonanzfrequenz. Eine hohe Resonanzfrequenz der Konstruktion ist vorteilhaft, weil dadurch der Aufbau weniger empfind-

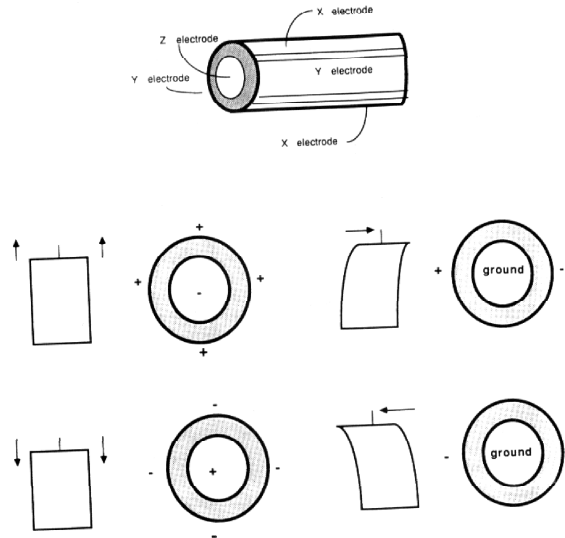


Abbildung 2.9: Schematische Darstellung der Funktionsweise eines 4-Segmentpiezos. Aus [24].

lich auf Vibrationen ist. Die Schwingungsisolierung ist bei einem STM enorm wichtig, weil kleinste (im Ångstrombereich) Änderungen des Abstandes Spitze-Probe zur Verfälschung der Ergebnisse führen können. Weil aber die STM-Konstruktion inzwischen zum Standard gehört, werden hier keine weiteren Details beschrieben. Eine Einführung in das Thema befindet sich in [24]. Beschreibungen von verschiedenen STM-Konstruktionen befinden sich beispielsweise in [25, 26, 27].

Der Tunnelprozess zwischen 2 planaren Elektroden wurde bereits in den 60er Jahren des XX Jahrhunderts intensiv geforscht. Aus dieser Zeit stammt auch das sehr populäre Modell von SIMMONS [12], das im Abschnitt 2.1.2 näher beschrieben wurde. Dieses Modell sieht vor, dass der Strom exponentiell von der Barrierendicke (im Falle vom STM ist das der Abstand Spitze-Probe) abhängt: $I \sim \exp(-1.025\sqrt{\varphi} d)$ (d in Å, φ in eV). Allerdings muss im STM-Experiment die Punkt-Fläche Geometrie berücksichtigt werden. Um den Tunnelstrom zu berechnen, müssen im Allgemeinen die Wellenfunktionen der Spitze und der Probe bekannt sein. Da aber die atomare Struktur der Spitze nicht bekannt ist (für eine der Ausnahmen s. [28]), und ausserdem die Geometrie der Spitze eine sehr niedrige Symmetrie aufweist, wird die genaue Wellenfunktion unbekannt bleiben. Deswegen wurden viele Modellsysteme angenommen, die den STM-Aufbau Spitze-Probe beschreiben. Das erste Modell wurde 1983 von TERSOFF und HAMANN entwickelt [29, 30]. Sie haben den Fall kleiner Spannungen V in 3 Dimensionen betrachtet und angenommen, dass die Kopplung zwischen Probe und Spitze so klein ist, dass man first-perturbation Theorie benutzen kann. Es wurde eine spherische Spitze mit Radius R angenommen. Deswegen konnten nur spherisch symmetrische s-Wellenfunktionen betrachtet werden. Damit wird

folgender Ausdruck für den Tunnelstrom gefunden:

$$I_t = 32\pi^3 \hbar^{-1} e^2 V \varphi^2 R^2 \kappa^{-4} e^{2\kappa R} D_t(E_F) \rho_P(r_o, E_F) \quad (2.19)$$

$\rho_P(r_o, E_F)$ ist die lokale Zustandsdichte der Probenoberfläche am Fermineiveau E_F , bestimmt im Zentrum der Krümmung der Spitze r_o . D_t ist die Zustandsdichte der Spitze und $\kappa = \hbar^{-1} \sqrt{2m\varphi}$. Für kleine Spannungen wird hier eine lineare Abhängigkeit des Stromes von der Spannung vorausgesagt. Wie aus der Gleichung 2.19 zu sehen, folgt die STM-Spitze (beim konstanten Tunnelstrom) der Fläche konstanter Zustandsdichte der Probe. Die Gleichung 2.19 kann man weiter vereinfachen zu:

$$I_t = AV e^{-1.025\sqrt{\varphi} d} \quad (2.20)$$

wobei A eine Konstante ist. Wie man daraus sieht, sind unter Annahme von konstanten Zustanddichten der Spitze und Probe das Modell von SIMMONS und das von TERSOFF und HAMANN vereinbar. In einem anderen Modell untersuchte LANG ein STM-System aus 2 planaren Metallelektroden mit adsorbierten einzelnen Atomen [31, 32, 33, 34]. Dieses Modell zeigt, wie sensitiv das STM auf Änderungen der chemischen Zusammensetzung des äußersten Endes der Spitze reagiert und damit auch auf kleinste Verunreinigungen. Es existiert eine ganze Reihe von anderen fortgeschrittenen Modellen, die teilweise auch die Wechselwirkung zwischen der Spitze und Probe berücksichtigen [35, 36, 37, 38], die aber für Auswertung der Messdaten in dieser Arbeit nicht benötigt wurden.

2.2.2 Spektroskopische Methoden

Mit der Gleichung 2.19 wurde gezeigt, dass der Tunnelstrom bei kleinen Spannungen von der Zustandsdichte der Probe (aber auch der Spitze) an der Fermikante abhängt. Für größere Spannungen kann man entweder die Resultate von TERSOFF und HAMANN [29, 30] um einen spannungsabhängigen Transmissionskoeffizienten erweitern [39], oder auch die WKB-Näherung für planare Elektroden (Resultate sind beschrieben im Abschnitt 2.1.2) benutzen [40]. Vereinfachend lässt sich sagen, dass bei endlichen Spannungen V die Zustände der Probe (besetzte oder unbesetzte - abhängig von V -Vorzeichen) untersucht werden, die eV über, bzw. unter dem Fermineiveau liegen. Der Hauptgrund dafür ist, dass die Tunnelwahrscheinlichkeit für Elektronen mit größtmöglichen Energien am größten ist (Abb. 2.10). Selbstverständlich stellen alle Ergebnisse eine Mischung aus den Zustandsdichten der Probe und der Spitze dar. Da man aber metallische Spitzen benutzt, bei den zumindest die s-Zustandsdichten über einige eV um die Fermikante annähernd konstant sind und ausserdem man experimentell durch Einsatz mehrerer Spitzen feststellen kann, ob dies zu Änderungen der Ergebnisse führt, kann man den Einfluss der Zustandsdichten der Spitze vernachlässigen.

Während die STM-Bilder von Metallen aufgenommen mit verschiedenen Biasspannungen keine Unterschiede aufweisen sollten, sind entsprechende Bilder auf Halbleitern sehr unterschiedlich. Bekannterweise variiert die Zustandsdichte in einem Halbleiter stark mit der Energie. Deswegen zeigt die Tatsache, dass

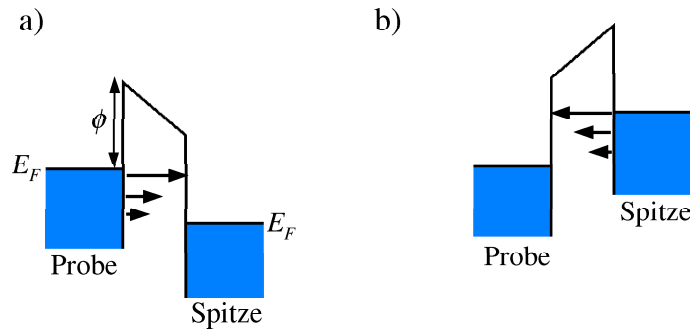


Abbildung 2.10: Schematisches Energiediagramm eines STM für a) negative und b) positive Probenspannung. Die Länge der Pfeile markiert die Tunnelwahrscheinlichkeit der Elektronen bei bestimmter Energie.

die Halbleiter STM-Bilder mit verschiedenen Biasspannungen relevante Unterschiede zeigen, die qualitative Richtigkeit der obigen Aussagen über der Spannungsabhängigkeit des Tunnelstroms. Für Beispiele solcher STM-Bilder siehe z.B. [41, 42] für Silizium und [43] für Graphit.

Eine andere Art der Spektroskopie ist bei konstantem Abstand die angelegte Spannung zu ändern und dann den resultierenden Tunnelstrom zu registrieren. Diese Methode ist äquivalent zu den IU -Spektren, aufgenommen auf planaren Tunnelementen. Auf diese Weise können Zustandsdichten in einem breiten Bereich der Energie untersucht werden. Für hohe Spannungen beeinflusst aber der spannungsabhängige Transmissionskoeffizient die IU -Spektren so, dass sie eine Zusammenstellung aus diesem und den Zustandsdichten bilden. Es konnte aber von FEENSTRA et al. gezeigt werden, dass der normalisierte differentielle Leitwert $\frac{dI_t}{dV} / \frac{I_t}{V}$ weitgehend von Beiträgen des Transmissionskoeffizienten befreit ist und dadurch gut dem Verlauf der lokalen Zustandsdichte entspricht [44]. Ausserdem wurde dort gezeigt, dass eine stumpfe Spitze weniger die IU -Spektren durch eigene Zustandsdichte beeinflusst als eine sehr scharfe. Diese Methode wurde weiterentwickelt, so dass an jedem Punkt eines STM-Bildes eine IU -Kurve aufgenommen wird. Diese Technik wird oft als CITS (current imaging tunneling spectroscopy) bezeichnet. Zum ersten mal wurde diese Technik für atomar aufgelöste Bilder/Spektren von HAMERS et al. benutzt [45]. Auf diese Weise konnte außer der Topographie (oder genauer: Fläche konstanter Zustandsdichte) auch die elektronische Struktur untersucht werden. Dank dieser Technik wurde es zum ersten Mal möglich, die elektronische Struktur von direkt benachbarten Stellen einer Oberfläche zu bestimmen, die sehr unterschiedlich sind, wie z.B. Defekte und deren Umgebung.

Eine andere Spektroskopiemethode mit dem STM wurde von BINNIG und ROHRER vorgestellt [46, 47]. In dieser Modulationstechnik wird auf die konstante Biasspannung U eine hochfrequente Sinusspannung mit kleiner Amplitude addiert. Die Sinuskomponente im resultierenden Tunnelstrom wird mit einem Lock-In Verstärker gemessen. Das entsprechende Signal mit Phasenverschiebung 0 gibt direkt den differentiellen Leitwert $\frac{dI_t}{dV}$ bei der angelegten Biasspan-

nung U . Auf diese Weise ist es möglich einen differentiellen Leitwert gleichzeitig mit der Topographie aufzunehmen ohne jegliche Verzögerung (im Gegensatz zu CITS). Die Frequenz der Sinusspannung muss so hoch sein dass der elektronische Regelkreis des STM den Tunnelstromänderungen nicht mehr folgen kann und dadurch nicht die z -Position der Spitze verändert.

Die oben beschriebenen verschiedenen Methoden der Spektroskopie mit dem STM (kurz: STS) mit der variierender Spannung sind sicherlich die populärsten, aber nicht die einzigen. Beispielsweise erlaubt die Strom-Abstands-Spektroskopie eine direkte Messung der effektiven Barrierenhöhe. Sie basiert auf der umgestellten Gleichung 2.20:

$$\varphi = \left(\frac{1}{-1.025} \frac{d\left(\frac{I}{U}\right)}{dz} \right)^2 \quad (2.21)$$

Wie aus der obigen Gleichung sichtbar, ist bei einer konstanten Biasspannung nur die Messung vom Strom und Abstand Spitze-Probe zur Berechnung der Barrierenhöhe nötig. Diese Methode kann auch zur Beurteilung des STM-Experimentes dienen, weil Oberflächenverschmutzungen oder mechanischer Kontakt zu stark veränderten Barrierenhöhen führen [48, 49]. Auch diese Spektroskopieart wird oft in der Modulationsvariante benutzt. Für andere STS-Arten, die aber außer Interesse dieser Arbeit sind, siehe z.B. [50, 51] für inelastisches Tunneln, oder [52] für Variationen der Strom-Spannungs-Spektroskopie.

2.2.3 Untersuchungen von Nichtmetallen

Das STM wurde von Anfang an nicht nur zur Untersuchung an Metallen benutzt. Besonders großes Interesse haben dabei Halbleiter angezogen, einerseits wegen ihrer relativ hoher Leitfähigkeit, andererseits wegen ihrer komplizierter und interessanter elektronischer Struktur und großer technologischer Bedeutung. Sehr schnell konnten dabei große Erfolge erzielt werden. Bereits 1983 konnte die (7x7) Rekonstruktion der (111) Siliziumoberfläche beobachtet werden [22]. Die Untersuchungen an Halbleitern haben auch die Entwicklungen von Modellen zur Auswertung der Spektren und Bestimmung der elektronischer Struktur stark mit angetrieben.

Dagegen sind die Untersuchungen von Oxiden eher selten. Eine gute Übersicht der STM-Untersuchungen von Oxiden mit relativ guter Leitfähigkeit wie TiO_2 oder NiO bietet [53]. Die ersten Experimente, in denen die ersten Stadien der Oxidation einer Metalloberfläche mit STM untersucht wurden, gehen auf BARO et al. zurück [54]. Die Interpretation von solchen Experimenten mit NiO auf Ni wurde von GARCIA et al. durchgeführt [55]. Sie haben ein 1-dimensionales Tunnelsystem simuliert, dass aus Metallelektroden (Probe und Spitze) und einer doppelten Barriere (Oxid und Vakuum) bestand. Das Oxid wurde durch ein periodisches Potenzial beschrieben. GARCIA et al. konnten damit zeigen, dass STM/STS-Messungen an dünnen Oxidschichten Informationen über die Bandstruktur, Zustandsdichte und elektrische Eigenschaften der ersten Stadien der Oxidation geben können [55]. Sie konnten auch die Anzahl der oxidierten atomaren Lagen anhand der IU -Spektren bestimmen.

STM-Untersuchungen von dicken perfekten Isolatoren sind selbstverständlich nicht möglich. Um die Topographie dort mit dem STM studieren zu können werden die Isolatoren mit dünnen Metallfilmen beschichtet [56]. Eine andere Möglichkeit ist, gleichzeitig mit der STM-Aufnahme Elektronen mit dem Elektronenstrahl eines Raster-Elektronen-Mikroskops in den Isolator zu injizieren [57]. Eine andere oft in realen Isolatoren benutzte Möglichkeit ist eine so hohe Spannung anzulegen, dass die Elektronen hochenergetisch genug sind um sich mit hoher Leitfähigkeit im Leitungsband des Isolators bewegen zu können. Solche Experimente auf dünnen SiO_2 -Schichten wurden von WATANABE et al. durchgeführt [58, 59]. Dort wurden 1 nm dicken SiO_2 -Schichten auf Si mit 5 V angelegter Spannung untersucht. Zusätzlich dazu wurde der dielektrische Durchbruch lokal untersucht. Diese Experimente sind im Abschnitt 4.2 näher beschrieben. Für diese Arbeit sind aber die Untersuchungen von Al_2O_3 -Schichten von besonderem Interesse. Atomar aufgelöste Messungen von Al_2O_3 auf NiAl (110), bzw. Ni_3Al (111) wurden von ADDEPALLI et al. [60], bzw. LIBUDA et al. [61] durchgeführt. ADDEPALLI et al. untersuchten 5 Å dicke Al_2O_3 -Schichten auf Ni_3Al (111). Weil die Isolatorschicht so dünn war, konnte eine sehr niedrige Biasspannung von 0.1 V bei 1 nA Referenzstrom benutzt werden, da die Elektronen in der Lage waren die Doppelbarriere Al_2O_3 -Vakuum zu durchtunneln. STM-Untersuchungen zum dielektrischen Durchbruch von 7 Å dicken Al_2O_3 ebenfalls auf Ni_3Al (111) wurden von MAGTOTO et al. durchgeführt [62]. Dort wurde der Durchbruch bei ca. 2.8 V angelegter Biasspannung beobachtet. Näheres zu diesem Experiment befindet sich im Kapitel 4.3. Im Falle von Al_2O_3 auf Nb konnten nicht nur topographische Bilder erzeugt werden, sondern es wurde auch mittels Strom-Abstand-Spektroskopie die Verteilung der Barrierenhöhen der gesamten Al_2O_3 -Vakuum-Barriere bestimmt [63]. Zu den wenigen STM-Studien von Al_2O_3 auf Co zählen [64] mit dem Erzeugen der Leckstellen in 0.7 bis 3.4 nm dicken Schichten und [65] mit kombinierten STM und BEEM (Ballistische-Elektronen-Emissions-Mikroskopie) Untersuchungen. Für eine Einführung in BEEM siehe z. B. [66, 67]. Auch Al_2O_3 -Barrieren, die in Metallelektroden eingebettet waren, wurden mit BEEM untersucht [68, 69].

2.3 Tunnelmagnetowiderstand

Der Tunnelmagnetowiderstand (kurz: TMR) ist nur einer von vielen bekannten Magnetowiderstandseffekten. Neben dem schon länger bekannten anisotropen Magnetowiderstand (kurz: AMR, für mehr Informationen siehe z.B. [70]), gibt es noch die erst vor kurzem entdeckten Riesenmagnetowiderstand (GMR) [71, 72] und kolossalen Magnetowiderstand (CMR) [73, 74]. Weil aber die anderen Effekte für diese Arbeit ohne Interesse sind, und deren physikalischen Ursachen mit denen des TMR nicht identisch sind, wird auf diese Effekte nicht mehr eingegangen. Ein interessierter Leser findet eine Übersicht aller Magnetowiderstandseffekte beispielsweise in [2, 75].

TMR-Elemente sind Ferromagnet-Isolator-Ferromagnet Strukturen, in den sich die Magnetisierung beider Ferromagnete getrennt steuern lässt und der elektrische Widerstand von relativer Magnetisierung beider Ferromagnete abhängt. Dieses wird schematisch in Abb. 2.11 dargestellt. Bei angelegter

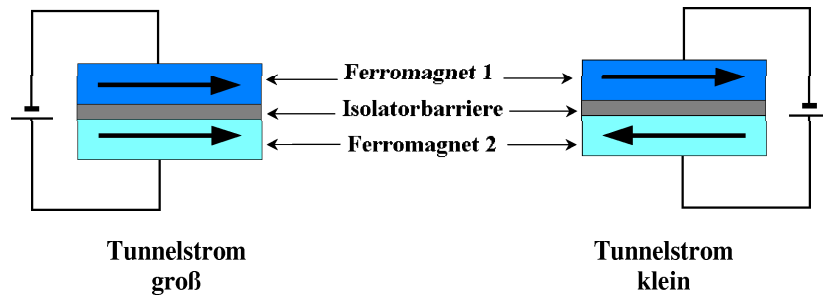


Abbildung 2.11: TMR-Elemente mit paralleler und antiparalleler Ausrichtung der Magnetisierungen (gedeutet durch Pfeile).

Spannung zwischen den beiden Ferromagneten ist im Falle des positiven TMR der Tunnelstrom bei paralleler Ausrichtung der Magnetisierungen (Abb. 2.11 links) größer als bei antiparalleler (Abb. 2.11 rechts). Typischerweise werden bei Raumtemperatur relative Widerstandsänderungen (auch TMR-Amplitude genannt) $TMR = \frac{R_P - R_A}{R_P}$ von bis zu 70 % gemessen [76, 77], wobei R_P und R_A die elektrischen Widerstände bei paralleler bzw. antiparalleler Orientierung der Magnetisierungen sind.

Die ersten Experimente mit spinpolarisiertem Tunnelstrom wurden 1970 von MESERVEY und TEDROW durchgeführt [78, 79]. Damit wurde gezeigt, dass die Leitungselektronen in Ferromagneten spinpolarisiert sind und der Spin beim Tunneln unter bestimmten Umständen erhalten bleibt. In diesem Experiment wurde der Tunnelprozess in einem Ferromagnet-Isolator-Supraleiter Element untersucht. Wenige Jahre später erkannte JULLIERE die Möglichkeit spinpolarisierten Tunnelns in einer Ferromagnet-Isolator-Ferromagnet Struktur und präsentierte ein Modell, welches große Magnetowiderstandseffekte in solchen Strukturen voraussagte [80]. In derselben Veröffentlichung berichtet JULLIERE von entsprechendem Experiment, in dem er ein Tunnelement mit Fe- und Co-Elektroden und oxidiertem amorphem Ge als Barriere untersuchte und eine

relative Widerstandsänderung von 14% bei 4.2 Kelvin messen konnte. Dieses Ergebniss bleibt aber bis heute umstritten, weil es bis heute nicht gelungen ist, es mit denselben Materialien zu wiederholen und bereits gezeigt wurde, dass die Spinerhaltung beim Tunneln durch amorphe Ge oder Si Barrieren extrem klein ist [81, 82, 83]. Ungeachtet dessen bleibt JULLIERES sehr einfaches Modell bis heute als die erste Näherung der Beschreibung des TMR anerkannt. JULLIERES Theorie nach beträgt die TMR-Amplitude [80]:

$$TMR = \frac{R_P - R_A}{R_P} = \frac{2P_1P_2}{1 - P_1P_2} \quad (2.22)$$

wobei P_1, P_2 Spinpolarisationen der beiden ferromagnetischen Elektroden sind. Wie aus der Gleichung 2.22 sichtbar, vernachlässigt dieses Modell unter anderem die Barrirenbreite und -höhe, die Rauigkeiten der Grenzschichten und den Einfluss der Barriere auf die Energiezustände im Metall.

Erst 20 Jahre nach der ersten Veröffentlichung von JULLIERE ist es gelungen, reproduzierbar einen TMR-Effekt bei Raumtemperatur zu erzielen [1, 84]¹. Die Tatsache, dass jahrelange Versuche mit TMR-Elementen erfolglos geblieben sind, liegt gerade an den von JULLIERES Modell vernachlässigten Effekten, wie Grenzflächenrauigkeit und falsche Wahl der Tunnelbarriere (z.B. NiO oder Gd₂O₃, bei denen der Spin nicht erhalten bleibt) [87, 88, 89, 90]. Die Publikationen von MOODERA et al. [1] haben weltweit für reges Interesse gesorgt, so dass erfolgreiche Versuche anderer Gruppen bald folgten. Und obwohl viele verschiedene Materialien für die Barrierenherstellung benutzt werden, z.B. BN, AlN [91], AlON [92], MgO, Ta₂O₅ [93], ist Al₂O₃ mit Abstand die populärste Barriere und gilt als Standard [86]. Nicht zuletzt aus diesem Grund wurde Al₂O₃ für diese Arbeit als Untersuchungsobjekt ausgesucht.

Üblicherweise wird zur Beschreibung von Strom-Spannungs-Tunnelcharakteristika der TMR-Elemente entweder das SIMMONS- [12] oder das BRINKMAN-Modell [19] (beide beschrieben im Abschnitt 2.1.2) benutzt. In diesen Modellen ist der Tunnelstrom unabhängig von den Zustandsdichten und dadurch auch von der Spinpolarisation. Die Unabhängigkeit von den Zustandsdichten ist offensichtlich falsch, weil sonst kein TMR möglich wäre. Hier sei nur bemerkt, dass dies an den sehr vereinfachenden Annahmen in diesen Modellen liegt [94, 95]. Die Beschreibung der genaueren Modelle ist jedoch ausserhalb der Interesse dieser Arbeit und der Leser sei auf Übersichten in [86, 96] und Literaturhinweise in diesen verwiesen.

Eine Besonderheit des TMR-Effektes ist, dass Co oder NiFe Elektroden eine positive Polarisation zeigen, obwohl in diesen 3d Metallen die Minoritätselektronen eine höhere Zustandsdichte am Fermi Niveau besitzen als die Majoritätselektronen (oder einfacher ausgedrückt: es gibt mehr Minoritäts- als Majoritätselektronen). Der Tunnelstrom wird jedoch durch Elektronen dominiert, deren effektive Masse klein ist [97]. Weil die d-Elektronen (die den größten Anteil in der Gesamtzustandsdichten haben) eine große effektive Masse haben, tragen die nur sehr wenig zum Tunnelstrom bei. Deswegen dominieren die an der Fermikante positiv spinpolarisierten s-Elektronen den Tunnelstrom [98, 99, 100]. Bei

¹Die TMR-Werte gezeigt in [84] sind durch geometrische Effekte verfälscht. Für korrigierte Werte s. [85, 86]

kleinsten Barrierendicken tragen aber auch die nicht so mobilen d-Elektronen zum Tunneln bei und dann kann die effektive Spinpolarisation doch negativ sein [101]. Für eine tiefe Einsicht in die Theorie des TMR und die Rolle der Zustandsdichten siehe [96]. Für mehr Informationen an technologisch relevanten Themen, wie die thermische, dielektrische, und magnetische Stabilität siehe [102].

Wie die neueren komplizierten TMR-Modelle (siehe z. B. [101, 103]) zeigen, hängt der TMR-Effekt von vielen Faktoren ab. Zu diesen zählen u.A. Barrierenhöhe, -breite und deren Homogenität. Auch experimentell stellt die Herstellung der Barriere den schwierigsten Schritt bei der Herstellung eines TMR-Elementes dar [96]. Deswegen sind mikroskopische Untersuchungen der Barrierenqualität auf diesem Gebiet enorm wichtig.

Kapitel 3

Wachstum und Eigenschaften von Co/Al-O_x/Py Dreilager

Magnetische Tunnелеlemente sind Ferromagnet-Isolator-Ferromagnet Strukturen, deren elektrischer Widerstand abhängig von relativen Magnetisierungsrichtungen der beiden Ferromagnete ist. Die Modelle von JULIERE [80] und SLONCZEWSKI [104] sagen voraus, dass die Höhe der Widerstandsänderung von den Polarisierungen der Leitungselektronen der Ferromagnete abhängt. Das TMR-Signal und Flächenwiderstand eines Elementes hängt allerdings kritisch von der Qualität der Barriere, Rauigkeit der unteren Elektrode, usw. ab. Das bedeutet, die Herstellungsbedingungen der Schichten und Oxidationsmethoden sind entscheidend für die Qualität von TMR-Elementen. Als Material für die Tunnelbarriere wird am häufigsten Aluminium benutzt, das nach der Deposition zu Al₂O₃ oxidiert wird [1, 84, 105, 106, 107, 108]. Die Oxidationsparameter dieser Barriere haben direkten Einfluss auf die Effizienz eines Tunnелеlementes. Wenn der Oxidationsprozess nicht perfekt kontrolliert ist, kann es dazu kommen, dass sich unterstöchiometrisches Al-O_x statt Al₂O₃ bildet [109, 110]. Genaue Beschreibung des TMR-Effektes befindet sich im Abschnitt 2.3.

In diesem Kapitel wird der Einfluss der Dicke der Aluminiumschicht auf das magnetische Verhalten der Dreilager Co/Al-O_x/Py (wobei Py = Ni₈₀Fe₂₀) vorgestellt. Die Dicke der Aluminiumschicht d_{Al} wird zwischen 0.5 nm und 5 nm variiert. Der ganze Depositionsprozess, einschließlich der Al-Oxidation, wird *in situ* kontrolliert mit Hilfe von Messungen des elektrischen Leitwertes und des magnetischen Momentes. Der Einfluss der Deposition und verschiedenen Pufferschichten auf den Magnetisierungsprozess, Mikrostruktur und Oberflächenrauigkeit wird diskutiert.

3.1 Experimentelle Details

Die Dreilager Co(25 nm)/Al(d_{Al})-O_x/Py(25 nm) mit verschiedenen d_{Al} Dicken wurden aufgedampft in einer UHV-Kammer mit Basisdruck $6 \cdot 10^{-7}$ mbar. Dabei wurde Al aus einem Wolframdraht und Co und Py aus Al₂O₃ Tiegeln direkt auf ein oxidiertes Siliziumwafer aufgedampft. In einigen Fällen wurden die Siliziumwafer mit einer Cu oder Au Pufferschicht bedeckt. Die Dicke der Al-Schicht

wurde im Bereich $0.5 \leq d_{Al} \leq 5$ nm variiert, von einer Quartz-Microwaage gemessen und mit Hilfe von Computer gesteuerten Blenden kontrolliert. Für Details der Methode der Messung der Schichtdicke mit der Quartz-Microwaage siehe z. B. [111]. Der Abstand zwischen den Aufdampfquellen und dem Substrat betrug ca. 50 cm. Die Aufdampfraten von Co und Py betrugen ca. 0.02 nm/s, und für Al ca. 0.1 nm/s. Zuerst wurde eine Co-Schicht aufgebracht und dann mit Al bedeckt. Danach wurde das Vakuum gebrochen und Al wurde an Luft bei normalem Druck und Raumtemperatur oxidiert. Anschliessend wurde Aluminiumoxid mit Py im Vakuum bedeckt. Magnetische Hystereseschleifen wurden mit Hilfe eines Alternating Gradient Magnetometers (kurz: AGM, für eine Einführung in AGM siehe z.B. [112]) gemessen, wobei das magnetische Feld parallel zur Probenebene angelegt wurde. Auf dem Substrat wurden elektrische Kontakte angebracht, die es ermöglicht haben, den elektrischen Leitwert G (definiert als $G = 1/R$, wobei R der elektrische Widerstand ist) der Probe sowohl während des Wachstums (Dickenabhängigkeit $G(d)$) als auch die Änderung während der Oxidation von Al (zeitliche Abhängigkeit $G(t)$) mit der pseudo-vier-Punkt Methode zu messen. Die Oberflächentopographie wurde *ex situ* nach jedem Schritt der Deposition untersucht mit Hilfe der Raster-Kraft-Mikroskopie (kurz: AFM, für eine Einführung in AFM siehe z. B. [113, 114]). Die Morphologie ausgewählter Proben wurde mit Hilfe Transmissions Elektronen Mikroskopie an Querschnitten (TEM-CS, für eine Einführung in TEM siehe z. B. [115]) untersucht.

3.2 Ergebnisse und Diskussion

Um einen Co/Al-O_x/Py Dreilager als ein TMR-Element benutzen zu können, wird eine antiparallele Konfiguration der benachbarten ferromagnetischen Schichten benötigt. Weil Co und Py verschiedene Koerzitivfelder haben, wird diese Bedingung erfüllt wenn die beiden Schichten magnetisch separiert sind, was es erlaubt die Ferromagnete unabhängig zu magnetisieren. Aus dem Grund ist es nötig die Aluminiumoxiddicke so groß zu wählen, dass eine direkte Kopplung zwischen Co und Py vermieden werden kann. Gleichzeitig muss aber die Aluminiumoxidschicht dünn genug sein um ein effizientes Tunneln von Elektronen zu ermöglichen. Abbildung 3.1 (erste Spalte) zeigt die Entwicklung der magnetischen Hystereseschleifen des Co/Al-O_x/Py Dreilagers für verschiedene Dicken der Al-Schicht $0.5 \leq d_{Al} \leq 5$ nm direkt nach der Herstellung. Wie in der Abbildung zu sehen, existiert eine kritische Al-Dicke $d_{CAI} = 1.2$ nm. Ein unabhängiger Magnetisierungsprozess von Co und Py findet statt für Dicken $d_{Al} \geq d_{CAI}$ und eine antiparallele Konfiguration existiert innerhalb eines Plateaus, das zwischen ± 12 und ± 25 Oe liegt (siehe auch Abbildung 3.2). Für dünnere Al-Dicken $d_{Al} < d_{CAI}$ ist nur eine Magnetisierungsschleife zu sehen, was bedeutet, dass die Co und Py Schichten nicht mehr als magnetisch unabhängig angesehen werden können. Für $d_{Al} < d_{CAI}$ sind die Aluminiumoxid-Schichten dünn genug (oder nicht flächendeckend) so, dass eine starke ferromagnetische Kopplung zwischen Co und Py existiert, was in nur einer Hystereschleife resultiert. Abbildung 3.2 zeigt ein Beispiel der Entwicklung des magnetischen Mo-

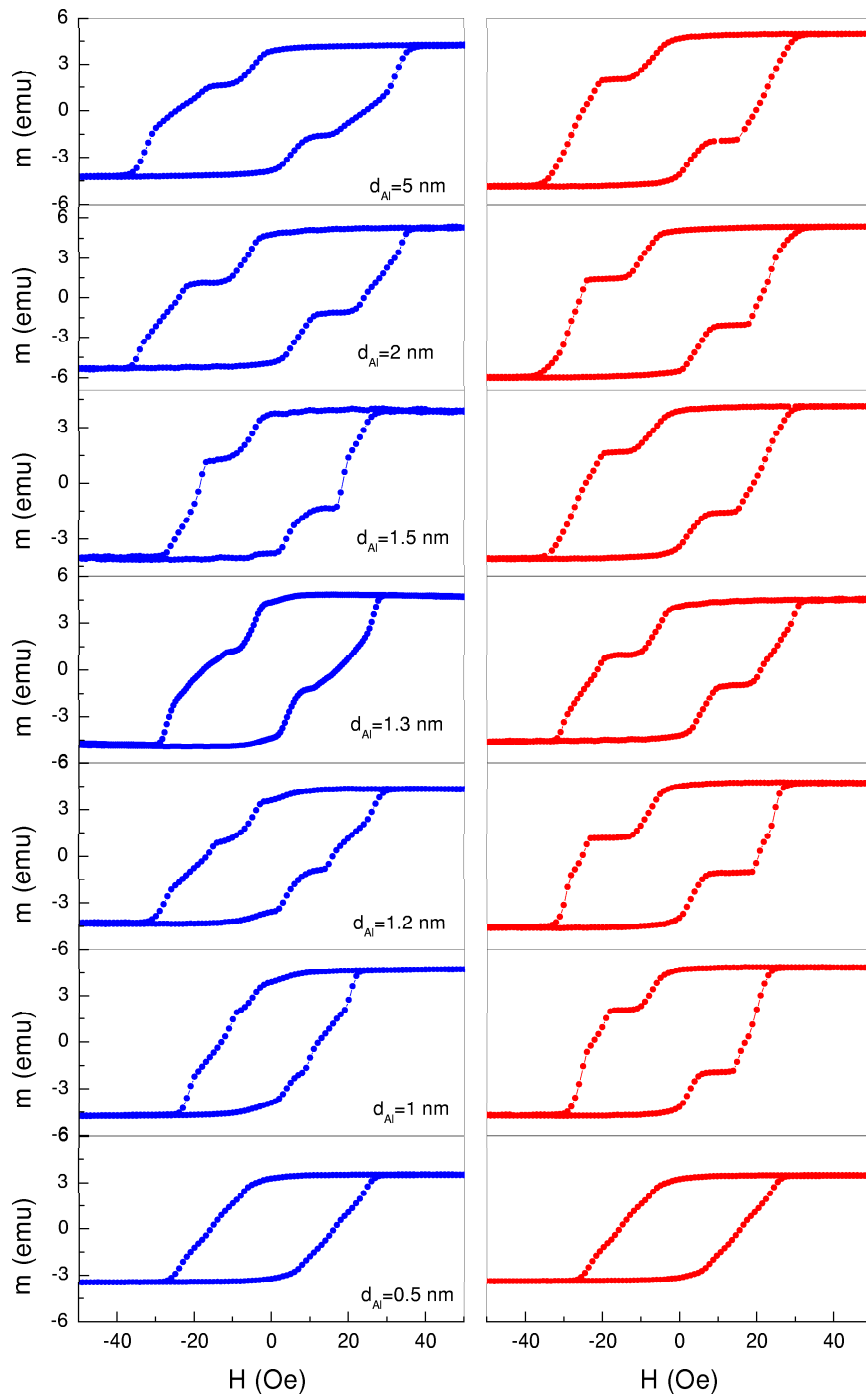


Abbildung 3.1: Die Entwicklung der magnetischen Hystereseschleifen von Co/Al-O_x/Py Dreilager für verschiedene Dicken der Al Schicht $0.5 \leq d_{Al} \leq 5$ nm direkt nach der Herstellung (erste Spalte) und nach 5 Tagen (zweite Spalte).

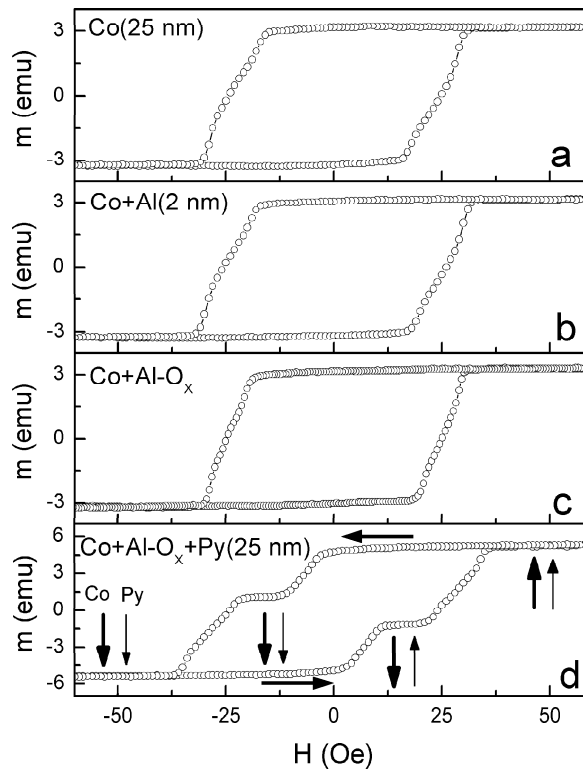


Abbildung 3.2: Beispiel von einem Herstellungsprozess eines kompletten Dreilagers beobachtet mit Hilfe einer *in situ* Messung des magnetischen Momentes für $d_{Al} = 2$ nm: a) magnetisches Moment gemessen nach der Deposition von Co, b) magnetisches Moment von Co/Al Zweilager gemessen nach der Deposition von 2 nm Al auf Co, c) magnetisches Moment von Co/Al Zweilager gemessen nach der Oxidation von Al, d) magnetisches Moment vom fertigen Co/Al-O_x/Py Dreilager gemessen nach der Deposition von 25 nm Py. Die fett und schmal gedruckten vertikalen Pfeile zeigen gegenseitige Konfigurationen der magnetischen Momente von entsprechend Co und Py. Die Richtung der Änderung des magnetischen Feldes wird von horizontalen Pfeilen gezeigt.

menten während der Herstellung des Dreilagern für die Al-Dicke $d_{Al} = 2$ nm. Wie auf dem Bild deutlich zu sehen, hat weder die Deposition von Al noch dessen Oxidation einen großen Einfluss auf die Hystereseschleife. Nach der Deposition von Py sind deutlich zwei getrennte Magnetisierungsprozesse zu sehen (Abb. 3.2 d). Die Sättigung des magnetischen Momentes des Py findet bei kleinen magnetischen Feldern statt ($\sim \pm 10$ Oe), wobei sich das magnetische Moment von Co erst bei höheren Feldern in Feldrichtung ausrichtet ($\sim \pm 35$ Oe). Daraus folgt, dass im Bereich zwischen 12 - 25 Oe eine antiparallele Konfiguration der magnetischen Momente von Py und Co existiert. Die zweite Spalte in Abb. 3.1 zeigt die Ergebnisse der Messung von magnetischen Momenten von Dreilagern nach 5 Tagen Lagerung an Luft bei Raumtemperatur (Proben entsprechend der ersten Spalte). Alle Elemente bis auf das mit $d_{Al} = 0.5$ nm zeigen getrennte Hystereseschleifen mit klar definierten Plateaus, wo die magnetischen Momente von Py und Co antiparallel ausgerichtet sind. Dieses Ergebnis bedeutet, dass die magnetische Separation von Co und Py auf Grund von Oxidation der Aluminiumschicht nach 24 Stunden noch nicht abgeschlossen ist. Dies deutet auch an, dass natürliche Oxidation nicht nur in chemisch stabilem Al_2O_3 resultiert, sondern es existiert eine Mischung aus Al_2O_3 und AlO_x . Die Diffusion von Sauerstoff innerhalb der Al-Schicht nach dem Abschluss der eigentlichen Oxidation führt zu zusätzlicher Oxidation und struktureller Reorganisation. Dieser Prozess kann zum Anstieg der Dicke der Aluminiumoxid-Schicht führen und deswegen auch zur verbesserten Separation von Co und Py. Dieses scheint bestätigt von BIRNEY [116], der Dickenabhängigkeit der Dielektrizitätszahl und des elektrischen Widerstands von Aluminiumoxid in Gold/Aluminiumoxid/Gold untersucht hat. BIRNEY zeigte, dass die Alterung der Proben in einem Anstieg der Dicke der Aluminiumoxid-Schicht resultiert auf Grund der zusätzlichen Oxidation. Falls die starke ferromagnetische Kopplung zwischen Co und Py durch die direkte Kopplung über magnetische Brücken verursacht ist, kann ihre nachträgliche Oxidation zu demselben Effekt führen.

Die *in situ* Messung des elektrischen Widerstandes ist eine der einfachsten Methoden der Beobachtung des Depositionsprozesses [117]. In den Arbeiten [117, 118, 119] wurde gezeigt, dass *in situ* Messungen des elektrischen Widerstandes zusammen mit gleichzeitigen Messungen des magnetischen Momentes eine sehr wertvolle Methode ist, die es ermöglicht, die Entwicklung der Eigenschaften während der Deposition zu beobachten. Der vollständige Depositionsprozess (mit Al-Oxidation) der Co/Al- O_x /Py Schichten ist in Abbildung 3.3 sichtbar gemacht. Dieses Experiment wurde ergänzt durch AFM Messungen der Oberflächentopographie, durchgeführt auf zusätzlichen Proben. Die AFM-Bilder wurden aufgenommen nach jedem Schritt des Depositionsprozesses und auch nach der Al-Oxidation (Abbildung 3.4). Im ersten Stadium der Co Deposition bilden sich auf der SiO_x Oberfläche isolierte Co-Inseln (Vollmer-Weber-Wachstum) und der Leitwert ist $G = 0$ (Abb. 3.3a). Dann steigt der Leitwert steil an, wenn eine kontinuierliche Schicht gebildet wird. Der Leitwert beginnt ab der Schwelldicke ca. 2.3 nm anzusteigen, was andeutet, dass die anfängliche mesoskopische Rauigkeit 2.3 nm übersteigt. Eine typische (fast lineare) Änderung $G(d)$ ist für die Dicken $d > 10$ nm zu sehen. Diese verschiedenen Stadien des Verhaltens von G suggerieren, dass die Kornstruktur der Co-Schicht für $d < 10$

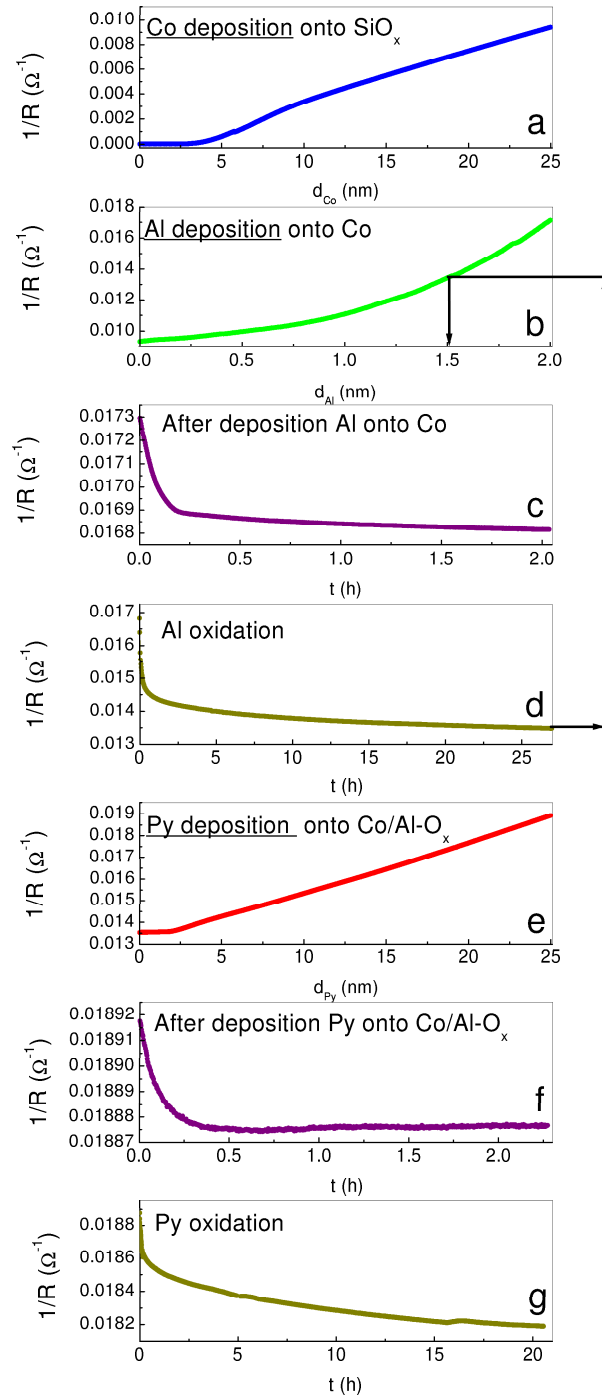


Abbildung 3.3: *In situ* Leitwert-Messungen an $\text{Co}/\text{Al}-\text{O}_x/\text{Py}$ Schichten. a) Leitwertänderung während der Deposition von 25 nm Co auf ein SiO_x Wafer, b) Leitwertänderung während der Deposition von 2 nm Al auf Co, c) Leitwertänderung der Co/Al Struktur vor dem Belüften der Vakuumkammer (zeitliche Abhängigkeit), d) Leitwertänderung der Co/Al Struktur während der Oxidation von Al, e) Leitwertänderung während der Deposition von 25 nm Py auf die Co/Al- O_x Struktur, f) Leitwertänderung der vollständigen Struktur vor dem Belüften der Vakuumkammer (zeitliche Abhängigkeit), g) Leitwertänderung der vollständigen Struktur beim Belüften der Vakuumkammer und Oxidation der oberen Py Schicht (zeitliche Abhängigkeit).

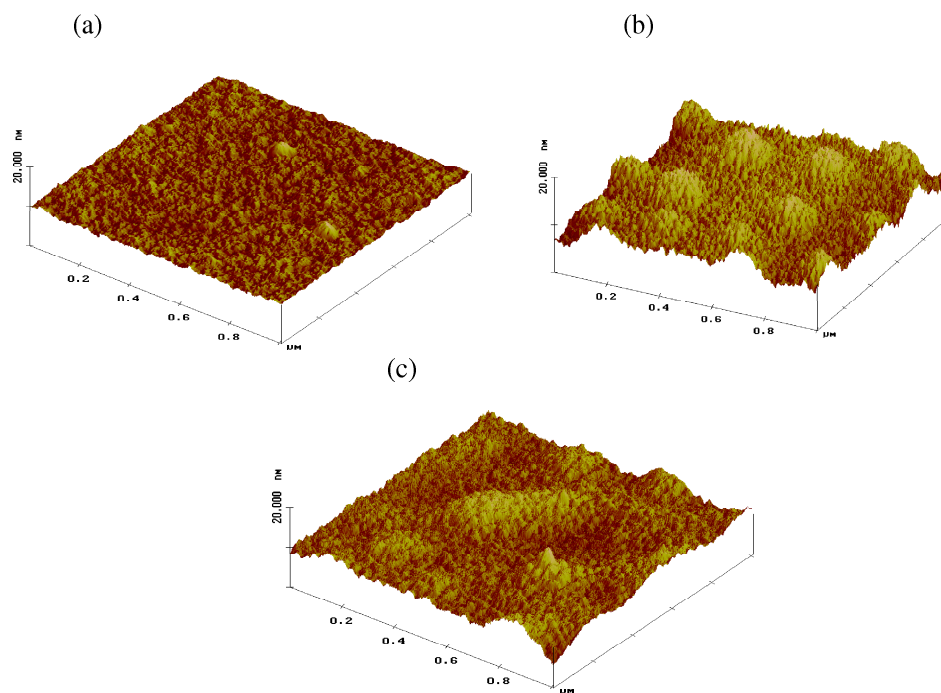


Abbildung 3.4: Die AFM-Oberflächenbilder aufgenommen nach einzelnen Schritten der Herstellung des Co/Al-O_x/Py Dreilagere. (a) das AFM-Bild der 25 nm dicken Co Schicht, (b) das AFM Bild aufgenommen nach der Oxidation von 2 nm Al angewachsen auf Co-Film (Co/Al-O_x), (c) das AFM-Bild der vollständigen Co/Al-O_x/Py Struktur (nach der Deposition von Py auf Co/Al-O_x).

nm nicht homogen ist. Die AFM-Messung einer $1 \mu\text{m}^2$ großen Fläche nach der Deposition der Co Schicht hat eine root-mean-square (RMS) Rauigkeit von ca. 0.5 nm ergeben (Abb. 3.4a). Daraus folgt, dass die Rauigkeit der Co Schicht im Laufe der Schichtabscheidung kleiner wird. Das Aufbringen von Al auf Co (Abb. 3.3b) verursacht keine Steigerung der Streuung der Leitungselektronen auf Oberflächen, da eine kontinuierliche Erhöhung des Leitwertes beobachtet wird. Allerdings bleibt die $G(d)$ Abhängigkeit bis zum Ende der Al-Deposition nicht linear. Die Steigung des Leitwertes ändert sich und weist damit auf ein raues Wachstum von Al Schicht hin. Nach der Deposition von Al wird die Vakuumkammer erst nach 2 Stunden belüftet um vorher ein thermodynamisches Gleichgewicht in der Probe zu erreichen (Abb. 3.3c). Die beobachtete Abnahme des Leitwertes der Probe wird wahrscheinlich von der Diffusion der Al-Atome in die Co-Schicht verursacht. Es kann aber auch eine schwache Oxidation nicht ausgeschlossen werden. Dieser Effekt ist zwar sehr klein (siehe die Skala), aber doch deutlich zu sehen.

Abb. 3.3d zeigt den Einfluss der Al Oxidation auf den Leitwert der Co/Al Struktur. Während der Al Oxidation nimmt die Leitfähigkeit des Co/Al Zweilaglers ab, da Teile der Al Schicht nicht leitend werden. Mit der Annahme, dass ausschließlich eine planare Oxidation statt findet, kann man durch Vergleich der Leitwerte von Abb. 3.3b und c (siehe Pfeile) feststellen, dass nominell nur 0.5 nm der Al Schicht oxidiert werden, weil der gesamte Leitwert auf einen Wert abgefallen ist, der dem Leitwert vom Co/Al Zweilager mit Al-Dicke 1.5 nm gleich ist. Die AFM-Oberflächenmessungen zeigen, dass nach der Oxidation die RMS Oberflächenrauigkeit auf 1.5 nm gestiegen ist (Abb. 3.4b). Dieser Wert liegt nah der kritischen Al Dicke $d_{CAI} = 1.2 \text{ nm}$ und weist auf die physikalische Ursache, dass eine dünnere Al-Schicht die Co und Py Schichten nicht trennt.

Abb. 3.3e zeigt die Änderung des Leitwertes während der Deposition von Py auf die Co/Al- O_x Struktur. Im ersten Stadium der Py Deposition, d.h. bis $d_{Py} < 1.7 \text{ nm}$, ändert sich der Leitwert nicht. Das bedeutet, auf Al- O_x entstehen isolierte Py Inseln. Um die raue Al- O_x Oberfläche zu benetzen braucht Py mindestens 1.7 nm nomineller Dicke. Das beobachtete anfängliche Inselwachstum von Py auf Al- O_x stimmt gut überein mit Ergebnissen von HANAMOTO et al. [120], der dasselbe Wachstum für Ni auf Al- O_x gesehen hat. Über dem Schwellwert $d_{Py} = 1.7 \text{ nm}$ steigt der Leitwert wieder rapide an. Für $d_{Py} > 1.7 \text{ nm}$ steigt G nahezu linear an. Die AFM-Oberflächenmessungen haben gezeigt, dass nach der Deposition der Py Schicht, die RMS Rauigkeit dieser Struktur auf 1.2 nm gesunken ist. Daraus folgt, dass die Py Deposition die anfangs raue Al- O_x Oberfläche glättet.

Abb. 3.3f zeigt eine sehr kleine Abnahme des Leitwertes nach der Deposition von Py und vor dem Belüften der Vakuumkammer. Dieser Effekt ist sehr klein und könnte durch Diffusion von Py Komponenten in die Al- O_x Schicht und/oder durch die Oxidation der Py Oberfläche verursacht werden. Diese beiden Prozesse verbrauchen eine kleine Menge von Py und führen zur Verringerung des Leitwertes. Die Abnahme des Leitwertes ist viel größer während des Belüftens der Vakuumkammer und ist durch die Oxidation der Py-Oberfläche zu erklären (Abb. 3.3g). Dieser Effekt ist nicht besonders groß, allerdings kann

eine solche Oxidation zur Bildung einer antiferromagnetischer Py-Oxid-Schicht führen. Dieses scheint durch eine Studie von MAY et al. [121] bestätigt zu sein. In ihrer Studie wird gezeigt, dass molekularer Sauerstoff bei Temperaturen größer 50 K auf einer Ni-Oberfläche chemisorbiert werden kann.

Auf der Abb. 3.5 ist ein Transmissions-Elektronen-Mikroskopie Querschnittsbild (TEM-CS) einer vollständigen Co/Al-O_x/Py Struktur zu sehen. Man kann eine kolumnare Mikrostruktur erkennen, sowohl für Co als auch für Py Schicht, allerdings besser hervorgehoben für Co. Die rauen Grenzflächen zwischen Co und Al, wie auch zwischen Al-O_x und Py mit einer Wellenlänge, die mit den kolumnaren Korngrenzen korreliert ist, sind gut sichtbar.

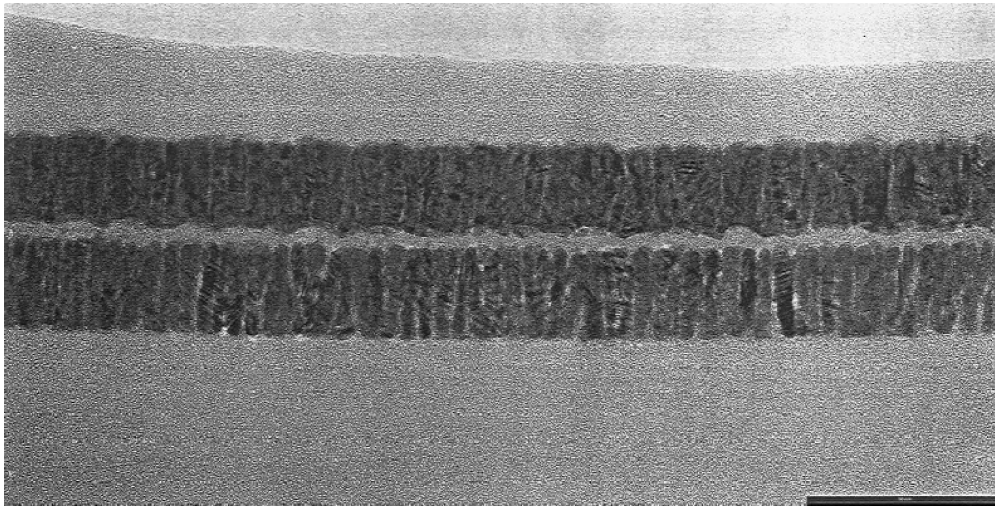


Abbildung 3.5: *Transmissions-Elektronen-Mikroskopie eines Querschnittes der vollständigen Co/Al-O_x/Py Struktur.*

Abb. 3.6 zeigt den Einfluss von Cu und Au Pufferschichten aufgetragen auf SiO_x Wafer auf den Magnetisierungsprozess des untersuchten Dreilagers. In der oberen Reihe sind die Magnetisierungsschleifen der Co-Schicht und in der unteren der vollständigen Dreilagerstrukturen zu sehen. Für Vergleichszwecke sind entsprechend in Abb. 3.6a und e auch die Magnetisierungskurven für Strukturen ohne Pufferschichten abgebildet. Wie in Abb. 3.6b und f zu sehen, beeinflusst die Cu Pufferschicht wesentlich die Magnetisierungsschleife weder der Co Schicht noch des vollständigen Dreilagers. Es ist lediglich ein Anstieg der Co Koerzitivität auf ca. 48 Oe zu sehen, was zur Verbreiterung des Plateaus mit antiparalleler Anordnung der magnetischen Momente von Co und Py führt (Abb. 3.6f). Eine sehr große Koerzitivität (130 Oe) der Co-Schicht wurde beobachtet wenn Co auf eine 50 nm dicke Au-Pufferschicht aufgebracht wurde (Abb. 3.6c, g). Die AFM-Messungen weisen auf ein sehr raues Wachstum von Au auf Siliziumoxid hin (Abb. 3.7a). Der gemessene RMS-Rauigkeitswert beträgt 6 nm (Abb. 3.7b). Nach Bedeckung von Au mit 25 nm Co wurde die anfängliche Rauigkeit auf 2.7 nm reduziert (Abb. 3.7b). Diese sehr große Co-Rauigkeit (vergleiche mit RMS = 0.5 nm für Co auf SiO_x - Abb. 3.4a) ist durch

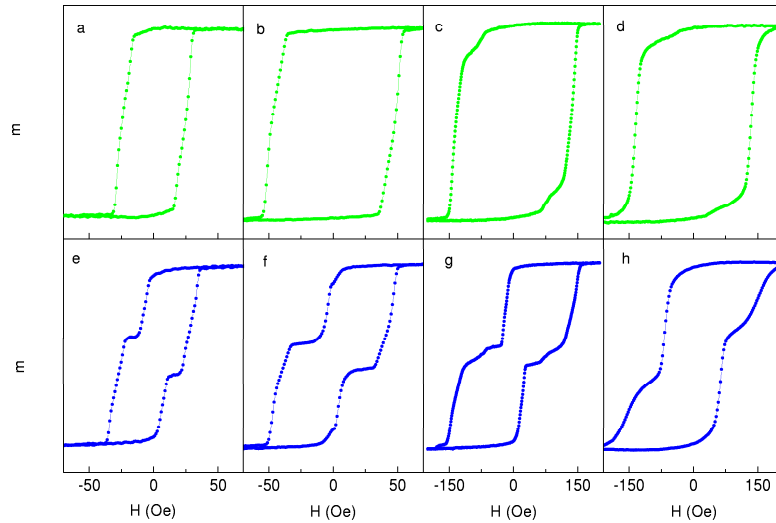


Abbildung 3.6: Einfluss der Cu und Au Pufferschichten deponiert auf SiO_x Wafer auf den Magnetisierungsprozess von Co (obere Reihe) und vom vollständigen Dreilager (untere Reihe) für $d_{\text{Al}} = 2$ nm. (a), (e) ohne Pufferschicht, (b), (f) Cu Pufferschicht, (c), (d), (g) Au Pufferschicht, (h) Magnetisierungsprozess des Dreilagere mit Co für beide ferromagnetische Elektroden.

die sehr raue Au-Unterlage verursacht, und scheint auch die Ursache für die große Co-Koerzitivität zu sein. Basierend auf diesen Ergebnissen ist es möglich, Co als Material für beide Elektroden zu benutzen - $\text{Co}/\text{Al-O}_x/\text{Co}$ (Abb. 3.6h). Auf Grund der verschiedenen Rauigkeiten des unteren und oberen Co, weisen diese Co Elektroden verschiedene Koerzitivitäten auf, entsprechend 130 und 70 Oe. Der größte Vorteil von Au als Pufferschicht ist die starke Verbreiterung des Plateaus mit antiparalleler Konfiguration der magnetischen Momente. Mit Au-Pufferschicht kann diese antiparallele Konfiguration sogar für das gleiche ferromagnetische Metall als die untere und obere Elektrode erreicht werden. Leider verursacht Au ein sehr raues Wachstum von Co und dann auch sehr raue Grenzflächen Ferromagnet - AlO_x , was eine unerwünschte spinunabhängige Streuung zur Folge hat.

3.3 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden Untersuchungen von aufgedampften $\text{Co}/\text{Al-O}_x/\text{Py}$ Dreilagerstrukturen mit verschiedenen Al-Schichtdicken vorgestellt. Es wurden *in situ* Messungen der magnetischen Hystereseschleifen und des elektrischen Leitwerts durchgeführt. Zusätzlich wurden auch AFM-Topographiemessungen und TEM-Querschnittsbilder gemacht. Es wurde gezeigt, dass für Al-Dicken von zirka 1.2 nm ein Übergang von stark ferromagnetisch gekoppelten Dreilagern mit nur einer Hystereseschleife zu getrennten Magnetisierungsschleifen charakteristisch für schwach gekoppelte Co und Py Schichten statt findet. Die

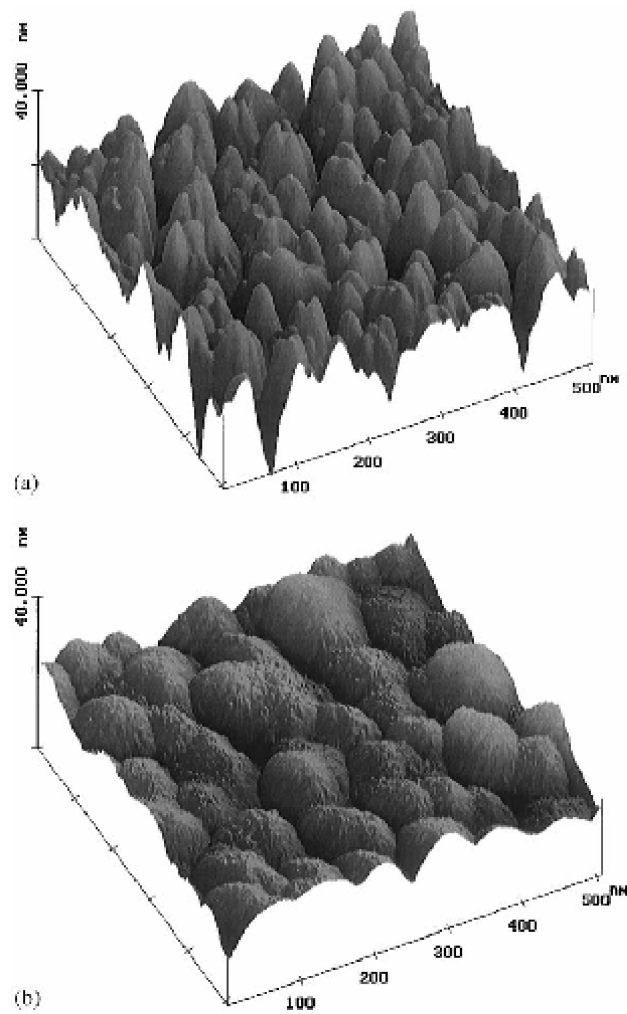


Abbildung 3.7: Die AFM-Oberflächenbilder von 50 nm dicken Au-Pufferschicht aufgebracht auf Siliziumoxidwafer vor (a) und nach der Bedeckung mit 25 nm Co (b).

Leitfähigkeitmessungen während des Aufdampfens und der Oxidation weisen darauf hin, dass unabhängig von der Al-Dicke nominell nur 0.5 nm der Al-Schicht oxidiert sind.

Magnetische Hystereseschleifen der gelagerten Proben zeigen, dass die magnetische Trennung von Co und Py nach 24 Stunden nicht vollständig ist. Es deutet darauf hin, dass die tatsächliche isolierende Barriere nicht ausschließlich aus Al_2O_3 besteht, sondern aus einer Mischung aus Al_2O_3 und AlO_x . Diffusion von Sauerstoff aus den Al Schichten und die nachfolgende Oxidation mit struktureller Reorganisation in der AlO_x Schicht kann zu der beobachteten Verbesserung der magnetischen Trennung von Co und Py führen.

Außerdem wurde der Einfluss verschiedener Pufferschichten (Au, Cu) auf den Magnetisierungsprozess untersucht. Die Cu-Pufferschicht zeigt keinen wesentlichen Einfluss auf die Magnetisierung des Co/Al- O_x /Py Dreilagere. Die Koerzitivität von Co gewachsen auf einer Au-Pufferschicht ist stark gestiegen aufgrund des sehr rauen Wachstums von Au auf SiO_x Wafern. Auf diese Weise wurde der Bereich, in dem die magnetischen Momente von Co und Py antiparallel ausgerichtet sind, deutlich erhöht.

Kapitel 4

Dielektrischer Durchbruch in Oxidschichten

4.1 Grundlagen

Seit einigen Jahrzehnten wird der dielektrische Durchbruch in Oxiden intensiv erforscht. Der Schwerpunkt liegt bei den SiO_2 -Schichten wegen ihrer Schlüsselrolle in der Halbleiterindustrie. Der Durchbruch bei kleinen Feldern [122] ist auf makroskopische Defekte zurückzuführen und kann heutzutage sehr gut mit verbesserten Technologien vermieden werden. Leider sind die mikroskopischen Mechanismen für den sogenannten intrinsischen Durchbruch bei hohen Feldern noch nicht eindeutig geklärt. Die existierenden Modelle beschränken sich auf bestimmte Oxiddicken und Stärken des elektrischen Feldes. Die dicken Oxidschichten sind am besten erforscht, und im Folgenden gibt es einen kurzen Überblick über die mikroskopischen Prozesse, die zum Durchbruch in solchen Schichten führen.

Es wird meistens angenommen, dass ein intrinsischer Durchbruch aufgrund der Degradation des Oxids passiert. Zu dieser Degradation können Defekte an der Grenzschicht Si/SiO_2 [123, 124] beitragen, sowie Defekte im Oxid selbst [125, 126]. Für die Bildung von Defekten wird der Transport von heißen Elektronen im Oxid verantwortlich gemacht. Ein injiziertes Elektron gewinnt im elektrischen Feld kinetische Energie, die teilweise im Folge von unelastischen Streuprozessen im Oxid und an der Grenzfläche zur Anode abgegeben wird. Diese abgegebene Energie kann zur Entstehung von sogenannten Traps (elektronischen Energiezuständen) im Oxid und an der Grenzfläche führen (s. Abb. 4.1). Wenn eine kritische Dichte von den Traps erreicht wird, kommt es zu dem Durchbruch [128, 129, 130]. Es entsteht ein leitfähiger Pfad zwischen der Anode und der Katode basierend auf den Defekten deren Größe im Nanometerbereich liegt [131, 132]. Der intrinsische dielektrische Durchbruch besteht aus 3 Phasen [133, 134, 135]. Zuerst die Degradation, dann der eigentliche Durchbruch (die Entstehung eines leitfähigen Pfades) und dann eventuell der thermische Schaden. Wenn es zu einem thermischen Schaden nicht kommt, spricht man vom weichen Durchbruch (soft dielectric breakdown). Wenn der thermische Schaden vorhanden ist, wird der Durchbruch als hart (hard dielectric breakdown)

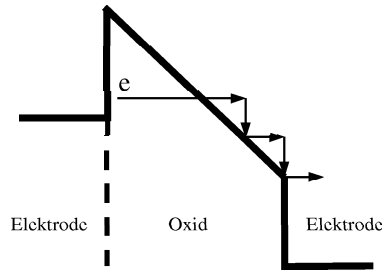


Abbildung 4.1: Die Entstehung von Traps unter elektrischem Stress. Das Elektron e verliert in Folge von Zusammenstößen mit Atomen die im elektrischen Feld gewonnene kinetische Energie. Aus [127].

bezeichnet. Meistens bleibt es beim weichen Durchbruch im Falle von dünnen SiO_2 Schichten bis ca. 10 nm [136, 137, 138] oder wenn der Strom begrenzt ist [134]. Zum harten Durchbruch kommt es, wenn eine ausreichende Anzahl von Elektronen zur Verfügung steht [133, 136]. Die Abb. 4.2 zeigt eine Übersicht über alle Phasen des Durchbruchs. Für TMR Elemente mit Al_2O_3 Barriere

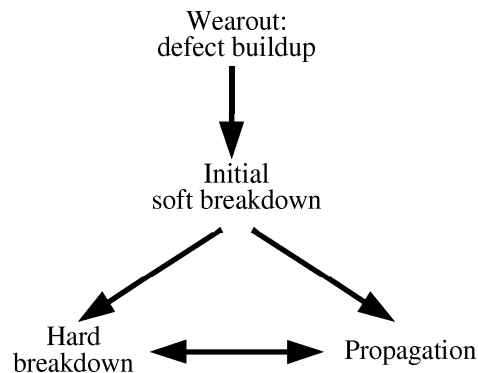


Abbildung 4.2: Das Schema der wichtigsten Schritte in der Entstehung vom dielektrischen Durchbruch, aus [133].

haben SCHMALHORST et al. auf eine sehr einfache Weise gezeigt, dass der harte dielektrische Durchbruch ein thermischer Prozess ist und der elektrische Widerstand danach von der Anzahl der während des Durchbruchs zur Verfügung stehenden Elektronen abhängt [139].

Für diese Arbeit interessant sind sehr dünne Oxidschichten. Bereits 1968 wurde der dielektrische Durchbruch in Kondensatoren mit verschiedenen Dicken von plasmaoxidierten Al-Schichten untersucht [140]. Für 1.5 nm Aluminiumoxid wurden $1 \cdot 10^9$ V/m für den Durchbruch benötigt. Die Durchbruchmechanismen in solchen dünnen Oxiden sind anders und noch nicht so gut erforscht wie in dicken Schichten. Für Oxiddicken unter 5 nm sind die Entstehungsraten von Traps erheblich kleiner [127, 141]. WEN et al. haben mit der BEEM-Technik dünne

(2.8 und 7.1 nm) SiO₂ Schichten untersucht [142]. Während für die dickeren Schichten Elektronentraps beobachtet wurden, war für 2.8 nm ausschließlich das Ausbilden von positiven Ladungen im Oxid zu sehen. Schon sehr kleine Mengen von Ladungen im Oxid können die Transporteigenschaften dünner Oxide sehr stark beeinträchtigen [143, 144]. Ein Durchbruch in SiO₂, dünner als 3 nm, wurde untersucht unter anderem durch DEPAS et al. [145]. Diese Untersuchungen ergaben, dass der Durchbruch in diesen sehr dünnen Oxiden weder durch die Elektronenenergie noch durch Injektionsmechanismus (direktes Tunneln für die dünnsten und Fowler-Nordheim-Tunneln für die etwas dickeren Schichten) determiniert ist. Diese Tatsache unterstützt das Modell der Trapentstehung im hohen Feld [146]. Im Rahmen dieses Modelles (genannt auch E-Modell) wird angenommen, dass die Traps in Folge von Emissionsprozessen im hohen Feld entstehen, wie Bindungsbruch mit Elektronenemission und Bewegung der Atome innerhalb des Oxids. Dieses E-Modell wurde von SCHMALHORST et al. angewandt, um den Durchbruch in TMR Elementen mit Al₂O₃ Barriere zu erklären [139].

Eine ausführliche Analyse von verschiedenen Durchbruchmodellen, die für ca. 2 nm dünnes Aluminiumoxid in Frage kämen, wurde von OEPTS et al. [147] durchgeführt. Die wichtigsten Erkenntnisse dieser Analyse werden hier dargestellt. Die experimentellen Ergebnisse wurden erstens mit den Aussagen des klassischen Q^{DB} Modells verglichen. Im Rahmen dieses Modells verursachen die tunnelnden Elektronen, die Energie im Oxid verlieren, die sukzessive Entstehung eines leitfähigen Pfades, beginnend an der Anode bis zur Kathode [148]. Die gesamte Elektronenladung Q^{DB} , die für einen Durchbruch benötigt wird, bleibt konstant, unabhängig von der Art des elektrischen Stresses (konstanter Strom, konstante Spannung, verschiedene Steigungsraten von Strom oder Spannung). Allerdings weisen die experimentellen Daten von OEPTS et al. eine ausgeprägte Abhängigkeit des Q^{DB} von der Spannungsänderungsrate dU/dt auf. Damit kann das Q^{DB} Modell nicht für die Erklärung des Durchbruchs in dünnem Aluminiumoxid benutzt werden. Für dünne SiO₂ Schichten wird der dielektrische Durchbruch oft erfolgreich mit einem anderem Modell erklärt, bei dem angenommen wird, dass die Elektronen, die an der Anode ankommen, dortige Elektronen aus tiefen Valenzbändern zu Zuständen über Fermi-Energie anregen. Das führt zur Entstehung von Löchern in der Anode, die dann ins Oxid tunneln können [149]. Dadurch können im Oxid Elektronentraps entstehen. In diesem Modell wird für den Durchbruch (bei einer bestimmten Oxiddicke) eine konstante Löchergesamtladung erwartet (die gesamte Elektronenladung variiert aber). Unter gewissen Bedingungen ist die Entstehung von nur einem Elektronentrap ausreichend für die Auslösung des Durchbruchs. DEGRAEVE et al. konnten das experimentell für Siliziumoxid, dünner als 2 nm, bestätigen. Für dickere Oxide müsste zuerst eine kritische Anzahl von Traps entstehen [150]. Nach DIMARIA et al. gibt es eine Schwellspannung $U \approx 5$ V für das Tunneln von Löchern aus der Anode [151]. In sehr dünnen Isolatoren werden solche Spannungen nicht erreicht. Deswegen kann dieses Modell (bekannt auch als $1/E$ Modell) für dünne Aluminiumoxide nicht angewandt werden (im Falle von dünnem SiO₂ kann dieses Modell doch benutzt werden aufgrund des Auftretens von Wasserstoff an den Grenzflächen [152]). Das sogenannte E-Modell verbin-

det den dielektrischen Durchbruch mit der Verzerrung der atomaren Bindungen [153]. Es basiert auf der Berücksichtigung der thermodynamischen freien Energie. Im SiO_2 (sowohl kristallin als auch amorph) ist ein Si Atom umgeben von 4 Sauerstoffatomen, die ein Tetrahedron bilden. Ein externes elektrisches Feld kann aber die Si-O Bindungswinkeln verändern. Wenn ein kritischer Winkel überschritten wird, kommt es zu der Bewegung des Sauerstoffatoms und zur Formung einer Si-Si Bindung. So ein Defekt kann als Anfang des Durchbruchs gesehen werden. Obwohl es einige relevante Unterschiede zwischen SiO_2 und Al_2O_3 gibt (Dielektrizitätskonstante von Al_2O_3 ist ca. 2 mal größer als von SiO_2 , die Bindungen in Al_2O_3 sind mehr ionisch und die Struktur ist komplizierter), beschreibt dieses E-Modell am besten den dielektrischen Durchbruch in dünnen Al_2O_3 -Schichten.

4.2 Experimente mit SiO_2

Dieser Abschnitt gibt einen kurzen Überblick über STM-Experimente durchgeführt auf dünnen SiO_2 Schichten. Solche Experimente wurden erst in letzter Zeit gemacht, weil das STM nur sehr dünne Isolatorschichten mit Dicken von höchstens ca. 2 nm untersuchen kann und diese Dicken von SiO_2 erst in den letzten Jahren in das direkte Interessenfeld der Halbleiterindustrie gelangt sind. Diese mikroskopische Untersuchungen des dielektrischen Durchbruchs konnten aber bereits zur Aufklärung seiner Ursachen beitragen.

Berichte über STM-Untersuchungen der SiO_2 Topographie finden sich beispielsweise in [154, 155, 156]. Auch eine modifizierte STM-Technik, nämlich BEEM, wurde zur Untersuchung von isolierendem SiO_2 benutzt [157, 158]. Mit Hilfe der BEEM-Technik ist es möglich, heiße Elektronen mit praktisch beliebigen Energien zu benutzen.

Erste Experimente mit der Beobachtung und Erzeugung von Leckstellen (weicher dielektrischer Durchbruch) mit dem STM in SiO_2 auf Si wurden durchgeführt durch WATANABE et al. [58, 59]. Sie waren in der Lage, stabile CCM Bilder aufzunehmen, wenn sie mit hoher Biasspannung $U = 5$ V auf der Probe bei einem Strom $I = 0.5$ nA gearbeitet haben (Elektronen tunneln von der STM-Spitze zur Probe). Die 1 nm dicken SiO_2 -Schichten werden degradiert durch Scannen mit 6 nA bei angelegten 10 V. Danach werden statistisch verteilte Dots gefunden (s. Abb. 4.3). Die durchschnittliche (virtuelle) Höhe beträgt 1.2 nm. Der Durchmesser der Dots variiert zwischen ca. 1 und 6 nm. An diesen Stellen werden Strom-Spannungs-Kurven aufgenommen und diese Stellen sind nach dem elektrischen Stress geringfügig besser leitend (s. Abb. 4.4). Ausserdem sind diese Durchbruchstellen in der Regel an solchen Stellen entstanden, die sich schon vor dem elektrischen Stress von dem Umfeld unterscheiden (intrinsische Defekte). Es wurde auch der Einfluss der Rauigkeit auf atomarer Skala auf die Entstehung der Leckbereiche untersucht. Es kann keine Korrelation zwischen der Entstehung der Leckbereiche und dem Auftreten atomarer Stufen festgestellt werden. Die Tatsache, dass es nicht gelungen ist, den Durchbruch bei der umgekehrten Polarisierung, d.h. bei -10 V zu erzeugen spricht dafür, dass der absolute Wert des elektrischen Feldes nicht alleine für

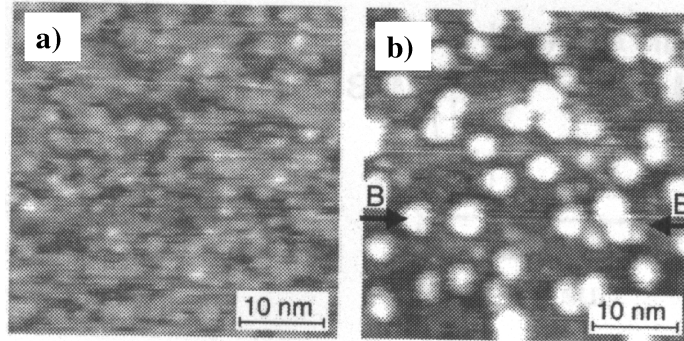


Abbildung 4.3: Die STM Bilder vor und nach dem elektrischen Stress. Probe: SiO_2 ; Spitze: PtIr; Spannung 5 V, Strom 0.5 nA, aus [59].

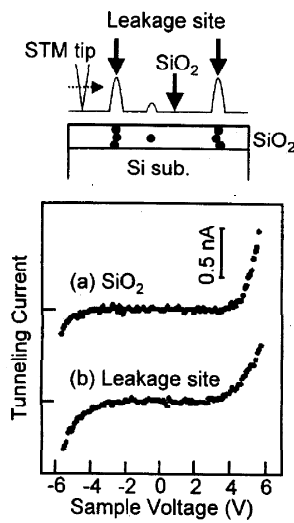


Abbildung 4.4: Einfluss des elektrischen Stresses auf STM/STS; oben schematisch dargestellt die Entstehung des falschen Topographiekontrastes an den defekten Stellen, unten die STS Spektren nach dem elektrischen Stress an einer unbeschädigten Stelle (a), und an einer Leckstelle (b). Probe: SiO_2 ; Spitze: PtIr, aus [59].

das Erzeugen des Durchbruchs verantwortlich ist und heisse Elektronen eine große Rolle spielen.

4.3 Experimente mit Al_2O_3

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der experimentellen STM-Untersuchungen des dielektrischen Durchbruchs in Aluminiumoxid präsentiert, die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden. Die Beschreibung der Herstellung der Proben und Details zum experimentellen Aufbau befinden sich im Abschnitt 5.1. Alle hier beschriebene Proben werden komplett *in situ* hergestellt und untersucht. Aluminium wird in Sauerstoffatmosphäre 10 Minuten lang oxidiert. Weil das technologische Interesse an Verwendung von sehr dünnen Al_2O_3 -Barrieren in elektronischen Bauelementen erst seit wenigen Jahren besteht, gibt es nur ausgesprochen wenig STM-Untersuchungen an solchen Schichten und insbesondere des dielektrischen Durchbruchs. Zu diesen wenigen Arbeiten zählen die Untersuchungen von Al_2O_3 auf $\text{Ni}_3\text{Al}(111)$ von MAGTOTO et al. [62] und Al_2O_3 auf Co von KURNOSIKOV et al. [64]. Diese letztere Publikation ist vom besonderen Interesse für diese Arbeit, weil dort Al_2O_3 auf derselben Unterlage (d. h. Co) untersucht wurde.

Im Folgenden wird die benutzte experimentelle Methode kurz erklärt. Die angelegte Spannung zwischen der STM-Spitze und der Probe wird solange vergrößert bis ein dielektrischer Durchbruch bei einer bestimmten Spannung U_{DB} stattfindet. Die angelegte Spannung wird unter Bedingung des konstanten Stromes vergrößert. Weil dadurch der elektrische Widerstand größer wird (größere Spannung bei demselben Strom), müssen sich auch entsprechend die Barrierenparameter ändern. Der elektronische Regelkreis vergrößert den Abstand Probe-Spitze, d.h. die Barrierenbreite wird größer. Wenn die Probe metallisch ist, wird der Abstand kontinuierlich größer und es findet hier natürlich kein Durchbruch statt. Im Falle einer isolierenden AlO_x Schicht (Abb. 4.5) wird der Abstand Probe-Spitze mit der Spannung auch kontinuierlich größer, bis die Spannung den Wert erreicht, der den dielektrischen Durchbruch erzeugt. In diesem Moment verbessert sich die Leitfähigkeit des Aluminiumoxids sprunghaft um Größenordnungen. Deswegen muß sich auch der Abstand Spitze-Probe sprunghaft vergrößern um den vorgegebenen Gesamtwiderstand wiederherzustellen. In Abb. 4.5 findet ein Sprung um etwa 0.5 nm bei ca. 3 V statt. Der Strom wurde in dem Fall auf 0.1 nA konstant gehalten. Ein CCM-Bild nach einem so durchgeführten Durchbruch ist in Abb. 4.6 a) zu sehen für eine Co/ AlO_x Probe mit $d_{Al} = 0.9$ nm. In der unteren rechten Ecke des Bildes befindet sich die Durchbruchstelle. Diese Durchbruchstelle hat eine scheinbare Höhe von ca. 1.6 nm. Diese scheinbare Höhe ist aber zumindest größtenteils auf die bessere Leitfähigkeit der Durchbruchstelle im Vergleich zu der Umgebung zurück zu führen. Ein Querschnitt durch diesen scheinbaren Hügel ist in Abb. 4.6 b) zu sehen. Die elektrischen Eigenschaften dieser Durchbruchstelle sind auf der nächsten Abbildung (Abb. 4.7) zu sehen. Die rote Kurve wurde vor dem Durchbruch aufgenommen und die blaue danach. Die Kennlinie für die intakte Oxidbarriere besitzt ein typisches Plateau, wo der Leitwert nahezu null ist. Diese Kennlinie

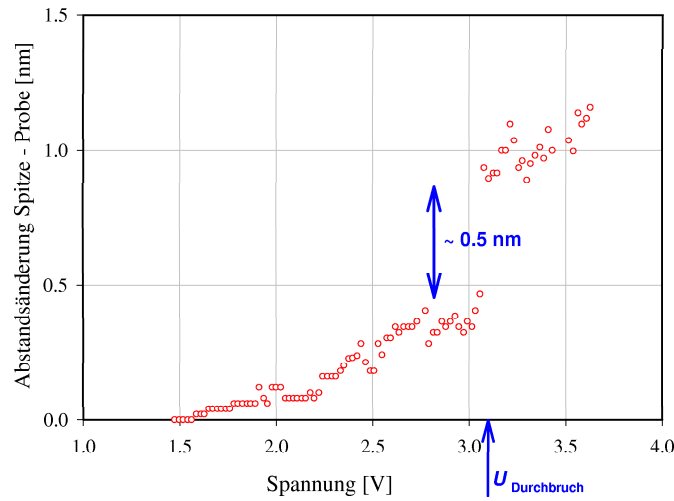


Abbildung 4.5: Die Abstandsänderung Spitze-Probe als Funktion der angelegten Spannung. Probe: $CoAlO_x$; Aluminiumdicke: 0.3 nm; Spitze: Co beschichteter W-Draht. Strom -0.1 nA.

ist charakteristisch für eine niedrige, breite Barriere. Die Kurve mit fast ohmschem Verhalten, die nach dem Durchbruch aufgenommen wurde ist dagegen typisch für metallische Materialien getrennt durch eine sehr hohe, dünne Vakuumbarriere. Die Anpassung der Brinkmangleichung an diese Kurve ergibt 3 eV für Barrierenhöhe und 0.9 nm für die Barrierenbreite. Auch diese Werte sind typisch für STM-Untersuchung einer metallischen Probe.

Für die Untersuchungen des dielektrischen Durchbruchs im Aluminiumoxid ist nur die Spannung von Interesse, die tatsächlich im Aluminiumoxid abfällt. Da aber die angelegte Gesamtspannung sowohl im Vakuum als auch in der Oxidschicht abfällt, wird nur ein Teil der angelegten Spannung durch den Durchbruch in dem Oxid verbraucht. Um zu berechnen welcher Teil der Spannung in dem Oxid abfällt, wird in der Literatur beispielsweise angenommen, dass die Spannung linear in beiden Bereichen gleich abfällt [62]. Im Rahmen dieser Arbeit wird angenommen, dass das untersuchte Tunnelsystem einem Vakuumkondensator entspricht, der teilweise mit dielektrischem Aluminiumoxid gefüllt ist. Es wird auch angenommen, dass die Spitze am Ende einen großen Krümmungsradius hat, so dass man das Tunnelsystem mit einem einfachen Plattenkondensator annähern kann (Abb. 4.8). Wieviel von der gesamten Spannung in der dielektrischen Schicht dieses Plattenkondensators abfällt, hängt ausschließlich von der Dielektrizitätskonstante ϵ_r und der relativen Dicke des Oxids ab. Wie in Abb.4.8d zu sehen, fällt der Großteil der Spannung im Vakuum ab, obwohl die Oxidschicht viel dicker ist. Dieses Verhalten ist durch die hohe Dielektrizitätskonstante des Aluminiumoxids $\epsilon_r = 8$ verursacht. Ein elektrisches Feld E_D im Dielektrikum ist um Faktor ϵ_r kleiner als das Feld E_V im Vakuum:

$$E_D = \frac{E_V}{\epsilon_r} \quad (4.1)$$

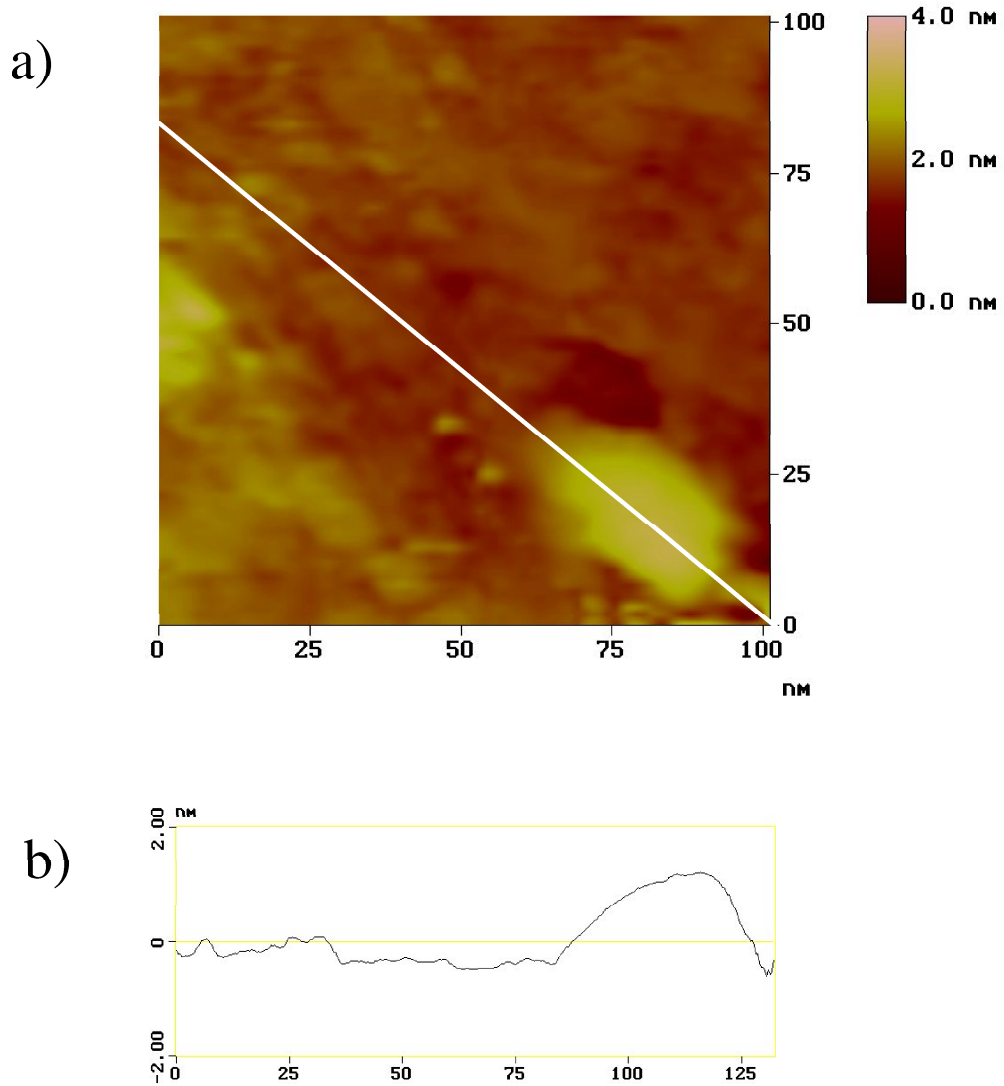


Abbildung 4.6: Die Co/AlO_x Probe nach dem Erzeugen des dielektrischen Durchbruchs, Aluminiumdicke: 0.9 nm; a) ein STM-Konstantstrombild der Probe aufgenommen mit einer Co-beschichteter W-Spitze, $U = -1500$ mV, $I = -0.1$ nA, b) ein Höhenprofil des Bildes an der Durchbruchstelle (gekennzeichnet durch die weiße Linie in a).

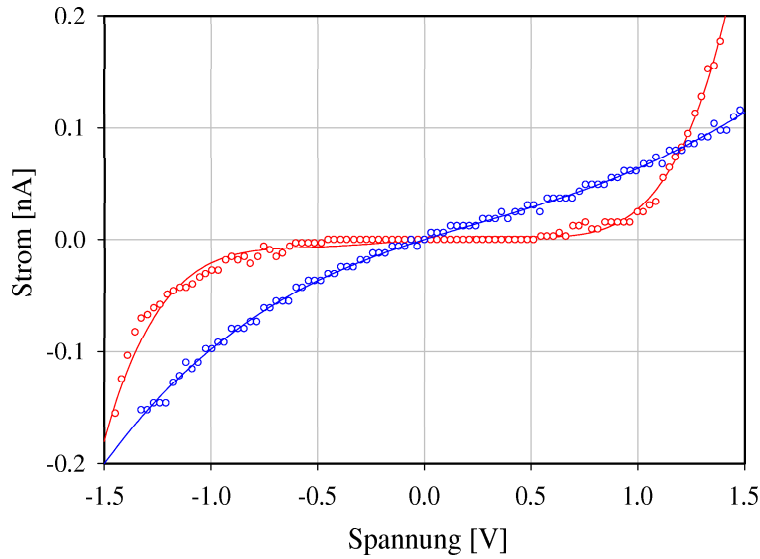


Abbildung 4.7: Die Strom-Spannungskurven vor (rot) und nach (blau) dem Durchbruch für eine Co/AlO_x Probe aufgenommen mit einer Co -beschichteter W -Spitze. Ein CCM-Bild der Durchbruchstelle ist in Abb. 4.6 zu sehen. Die Linien dienen einer besseren Übersicht.

Im Plattenkondensator ist das elektrische Feld E konstant innerhalb eines Materials mit der Dicke d und deswegen gilt für den Spannungsabfall U die einfache Gleichung:

$$U = Ed \quad (4.2)$$

und der gesamte Spannungsabfall U_{ges} im Kondensator ist gleich:

$$U_{ges} = U_V + U_D \quad (4.3)$$

wobei U_V und U_D die Spannungsabfälle entsprechend im Vakuum und Dielektrikum bedeuten. Mit der Annahme, dass im Dielektrikum das elektrische Feld E^{DB} herrscht, das den dielektrischen Durchbruch erzeugt, erhalten wir nach trivialem Umformen von Gleichungen 4.1, 4.2 und 4.3:

$$U_{ges}^{DB} = \varepsilon_r E^{DB} d_V + E^{DB} d_D \quad (4.4)$$

wobei d_V und d_D die Dicken des Vakuum- und Dielektrikumteils des Kondensators bedeuten. Dabei ist U_D^{DB} die Spannung, die direkt im Dielektrikum abfällt und den dielektrischen Durchbruch erzeugt:

$$U_D^{DB} = E^{DB} d_D \quad (4.5)$$

Um festzustellen, welche Auswirkungen verschiedene AlO_x -Dicken auf die gemessene gesamte Durchbruchspannung haben, wurden verschiedene Strom-Spannungskurven simuliert. In der Abb. 4.9 sind 2 Tunnelsysteme dargestellt,

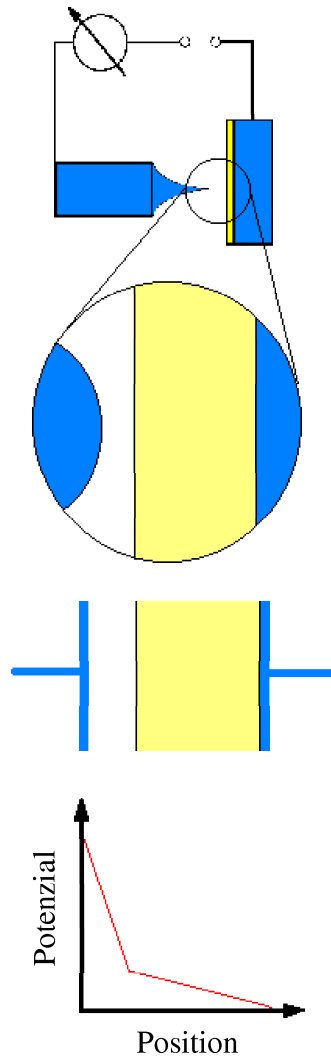


Abbildung 4.8: Die Sichtbarmachung des benutzten Modells für die Berechnung vom Potentialabfall im untersuchten Tunnelsystem; a) schematischer experimenteller Aufbau, b) Vergrößerung des eigentlichen Tunnelsystems (links in blau die metallische Spitze, rechts in gelb die Aluminiumoxidschicht und in blau die metallische Unterlage), c) entsprechender Plattenkondensator, d) schematischer Potentialverlauf in dem Kondensator.

für die Strom-Spannungskurven simuliert und die Durchbruchspannungen berechnet wurden. Die grundlegenden Gleichungen für den Stromfluss in Tunnellelementen befinden sich im Abschnitt 2.1.2. Details zum benutzten Simulationsverfahren von Strom-Spannungskurven in Tunnellelementen befinden sich im Abschnitt 5.1.3. In der Abb. 4.9a links ist ein vereinfachtes Energiediagramm

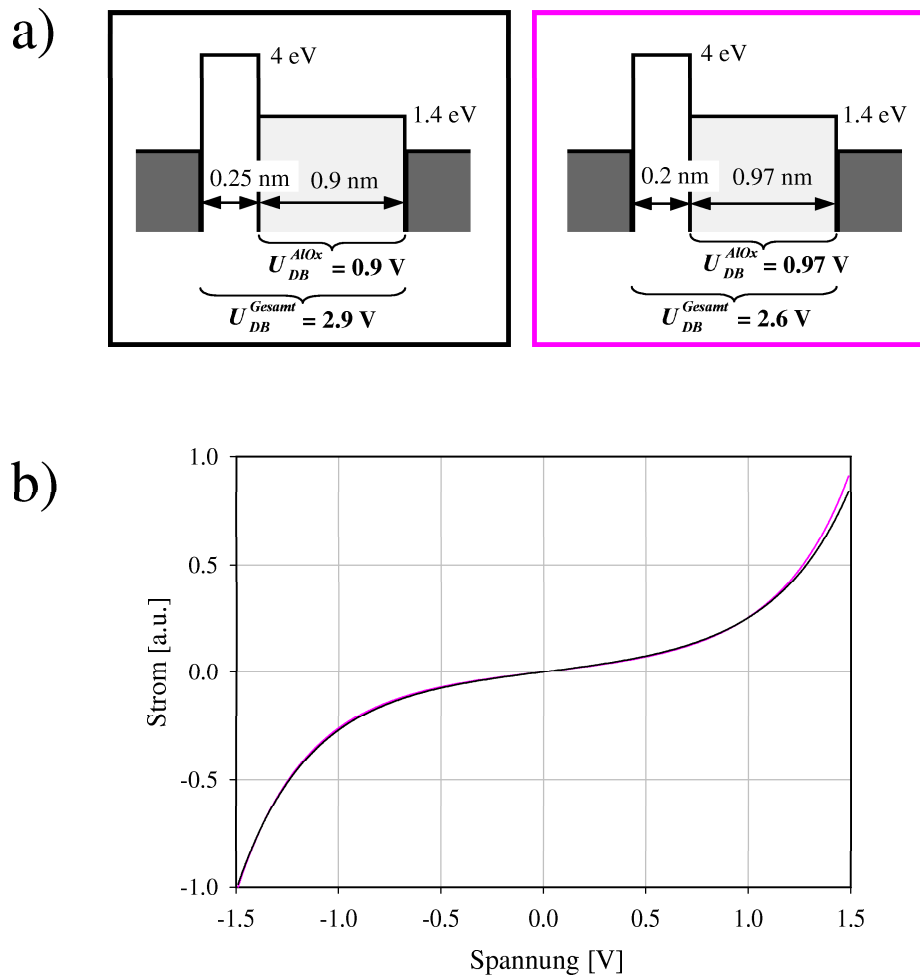


Abbildung 4.9: Beispiel der Berechnung der Durchbruchspannung und der Strom-Spannungskennlinie; a) schematische Darstellung von 2 Tunnelsystemen (nähere Beschreibung, siehe Text), b) simulierte Strom-Spannungskurven für die zwei in a) gezeigten Tunnelsysteme (entsprechend in schwarz und rosa).

ogramm für ein Tunnelsystem bestehend aus einer Co-Spitze und einer Co/AlO_x Probe zu sehen. Als Barrierenhöhen werden hier für Vakuum 4 eV und für Aluminiumoxid 1.4 eV angenommen. Die in diesem Beispiel angenommenen Barrierenhöhen sind anders als sonst in dieser Arbeit, allerdings sind die genauen Werte der Barrierenhöhen für die Richtigkeit der Aussagen in diesem Fall ohne größere Bedeutung. Die Dicke der Aluminiumoxidschicht beträgt 0.9

nm und die der Vakuumbarrriere 0.25 nm. Um den dielektrischen Durchbruch im Aluminiumoxid zu erzeugen wird eine Stärke des elektrischen Feldes von ca. 1 V/nm benötigt [140]. Das heisst, dass für 0.9 nm Al_2O_3 laut Gleichung 4.5 0.9 V Potenzialdifferenz nötig sind. Mit Hilfe der Gleichung 4.4 ist es möglich die gesamte für den Durchbruch benötigte Spannung zu berechnen (das ist die Spannung die tatsächlich experimentell zwischen der Spitze und der Probe angelegt wird). Diese U_{ges}^{DB} beträgt 2.9 V. Auf der rechten Seite der Abb. 4.9 a) ist ein etwas modifiziertes Tunnelsystem vorgestellt. Das Aluminiumoxid ist mit 0.97 nm um 0.07 nm dicker als links. Die Vakuumbarrriere ist aber mit 0.20 nm um 0.05 nm dünner als links. Das führt dazu das in beiden Tunnelementen (rechts und links) der gleiche Strom bei -1.5 V fließt (s. Simulationsergebniss in der Abb. 4.9 b). Das STM liefert dabei die falsche Topographieinformation. Wenn man auch für das rechte System die gesamte Durchbruchspannung berechnet, stellt man fest, dass sie mit 2.6 V signifikant kleiner ist als 2.9 V für das andere System. Erstaunlicherweise ist die Gesamtdurchbruchspannung U_{ges}^{DB} für das dickere Oxid kleiner. Außerdem bleibt festzustellen, dass bereits die kleinsten Änderungen der Oxiddicke (im obigen Beispiel 0.07 nm) zu signifikanten und leicht messbaren Änderungen der Durchbruchgesamtspannung U_{ges}^{DB} führen. Auf diese Weise kann man sehr große Schwankungen der U_{ges}^{DB} gemessen innerhalb einer Probe mit nominell überall gleichen Dicke der Aluminiumoxidschicht erklären. Beispielsweise wurden auf der Probe $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3$ (mit $d_{\text{Al}} = 0.9$ nm) U_{ges}^{DB} Werte zwischen 2 und 3 Volt gemessen. Das entspricht einer Schwankung der Oxiddicke in der Größenordnung von ± 0.2 nm.

Die erzielten Ergebnisse stimmen gut mit den Untersuchungen von KURNOSIKOV et al. [64]. Dort wird ebenfalls Aluminiumoxid auf Kobalt mit dem STM untersucht. Allerdings wird dort nicht nur der harte Durchbruch erzeugt (wie in dieser Arbeit), sondern auch der weiche (reversible) Durchbruch. In Experimenten von KURNOSIKOV et al. zieht sich die STM-Spitze im Moment des Durchbruchs um ca. 0.5 - 1 nm zurück. Dieses entspricht den in dieser Arbeit erzielten Werten. Im Gegensatz dazu haben MAGTOTO et al. [62] für Al_2O_3 auf $\text{Ni}_3\text{Al}[111]$ beobachtet, dass im Moment, wenn der Durchbruch statt findet, die Spitze sich um mehr als 10 nm zurückzieht. Dieses Ergebniss steht im klaren Widerspruch zu anderen, da sowohl bei MAGTOTO et al. als auch bei KURNOSIKOV et al. derselbe Wert des Referenzstroms von 1 nA ausgewählt wurde. Die Distanz von 10 nm weist darauf hin, dass es sich hier bereits um Feldemission handelt, was aber bei der noch relativ kleiner Spannung von 3 V bei MAGTOTO et al. nicht wahrscheinlich ist.

Der Durchmesser der Durchbruchstelle soll nach OEPTS et al. ca. 1 nm betragen [147]. Dieses bestätigen die Ergebnisse von KURNOSIKOV et al. mit Spots von 1 - 2 nm Durchmesser. In dieser Arbeit beträgt der Durchmesser der Durchbruchstelle meistens ca. 25 nm. Dieser Wert stimmt offensichtlich mit den oben erwähnten Literaturwerten nicht überein. Allerdings hat OLBRICH mit einem c-AFM nach dem Durchbruch im Aluminiumoxid Leckbereiche mit Ausdehnungen von 20 - 150 nm beobachtet [159]. Diese Werte stimmen also mit den Ergebnissen dieser Arbeit überein.

Es wurde keine Korrelation zwischen der Spannungsänderungsrate dU/dt

und der resultierenden Durchbruchspannung U^{DB} festgestellt. Damit gab es auch keine Abhängigkeit des U^{DB} von der Gesamtzeit des elektrischen Stresses und der Gesamtladung Q^{DB} , die durch das Oxid geflossen ist. Da die Bedingung des konstanten Q^{DB} nicht eingehalten ist, scheidet damit das gleichnamige Modell als Erklärung der mikroskopischen Prozesse aus (für mehr Details zu mikroskopischen Ursachen des Durchbruchs s. Abschnitt 4.1). Auch das $1/E$ Modell kann hier nicht angewandt werden, weil es nach DIMARIA et al. eine Schwellspannung $U \approx 5$ V für das Tunneln von den Löchern aus der Anode gibt [151]. Wie bereits in anderen Arbeiten über den Durchbruch in sehr dünnem Aluminiumoxid [139, 147], wird auch hier angenommen, dass die wahrscheinlichsten mikroskopischen Prozesse von dem sogenannten E-Modell beschrieben werden.

In diesem Abschnitt wurden die STM-Untersuchungen des dielektrischen Durchbruchs in dünnen Aluminiumoxidschichten auf Kobalt vorgestellt. Zusammenfassend lässt sich feststellen:

- dielektrischer Durchbruch wurde erfolgreich gezielt lokal induziert,
- die Untersuchungen der Durchbruchstelle haben ergeben, dass die Strom-Spannungskennlinien einen typischen Verlauf für isolierende (vor dem Durchbruch) und metallische (nach dem Durchbruch) Schichten haben,
- der Durchmesser einer Durchbruchstelle beträgt typischerweise ca. 25 nm und die virtuelle Höhe ca. 1 nm,
- mit Hilfe eines einfachen 1D Modelles wurde gezeigt, dass die verschiedenen Durchbruchspannungen innerhalb einer Probe (mit nominell gleicher Schichtdicke) auf lokale Schwankungen der Oxiddicke zurückzuführen sind.
- die Analyse der erzielten Ergebnisse hat die so genannten Q^{DB} und $1/E$ Durchbruchmodelle als Erklärung der experimentellen Ergebnisse ausgeschlossen. Im Einklang mit anderen Literaturberichten wurde festgestellt, dass das E-Modell den Durchbruchprozess in dünnem Aluminiumoxid beschreiben kann.

Kapitel 5

Bestimmung der Barrierenparameter der AlO_x Schichten mittels Raster-Tunnel-Mikroskopie

5.1 Experimentelle Details

5.1.1 Herstellung der Proben

Die meisten Proben wurden komplett *in situ* hergestellt und untersucht (in der UHV-Kammer befindet sich auch das STM). Die oxidierten Siliziumwaferstücke wurden in der Hauptkammer des UHV-Systems beschichtet. Die Substrate wurden mit Leitsilber auf den Probenhalter geklebt. Auch mit Leitsilber wurde eine leitende Verbindung zwischen der Substratoberfläche (bzw. den aufgetragenen Schichten) und dem Probenhalter hergestellt. Der Basisdruck in der Hauptkammer war kleiner als $2 \cdot 10^{-8}$ mbar. Vor dem Bedampfen wurden die Substrate ca. 10 Minuten lang bei ca. 100 Grad Celsius ausgeheizt um eventuell vorhandenes Wasser zu verdampfen. Sowohl Al als auch Co wurden aufgedampft aus BN-Tiegeln, die resistiv beheizt wurden. Die Dicken der aufgetragenen Schicht wurden von einer Quartz-Microwaage gemessen und mit Hilfe computergesteuerter Blenden kontrolliert. Für Details der Methode siehe z. B. [111]. Der Abstand zwischen den Aufdampfquellen und dem Substrat betrug ca. 50 cm. Die Aufdampfraten betragen typischerweise für Co ca. 0.08 nm/s und für Al ca. 0.05 nm/s. Zuerst wurde Co aufgetragen und dann sofort mit Al bedeckt. Danach wurde die Probe in die Oxidationskammer transportiert (ohne einen Vakuumbruch). Der Basisdruck war dort kleiner als $5 \cdot 10^{-6}$ mbar. Dort wurden die Proben in einer Sauerstoffatmosphäre typischerweise bei einem Druck von 1 mbar 5 Minuten lang oxidiert. Danach wurden die Proben zurück in die Hauptkammer transportiert, wo sie mit dem STM untersucht wurden. Abb. 5.1 zeigt den Aufbau einer fertig hergestellten Probe.

Einige wenige Proben wurden in einer anderen UHV-Beschichtungsanlage hergestellt und anschließend in der oben beschriebenen UHV STM Anlage *ex*

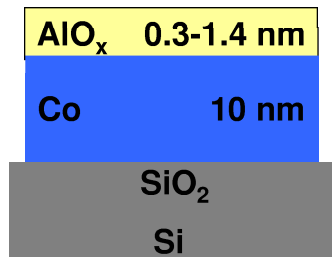


Abbildung 5.1: Aufbau einer typischen Probe. Die angegebenen Dicken beziehen sich auf die Filmdicken vor der Oxidation.

situ untersucht. Es wurde das Gerät CLAB 600 der Firma Leybold GmbH benutzt. Es ist ausgestattet u.a. mit einer Beschichtungskammer für Sputtern (Kathodenzerstäubung) und einer Oxidationskammer für die RF-Plasmaoxidation. Die Sputterkammer ist mit 6 Quellen ausgestattet. Der Basisdruck beträgt $3.5 \cdot 10^{-6}$ mbar. Während der Beschichtung wird Argon eingelassen, so dass der Druck während der Schichtherstellung $1 \cdot 10^{-3}$ mbar beträgt. Für Details der Schichtherstellung in dieser Anlage s. [76]. Für die Grundlagen der Schichtherstellung mittels Sputtern siehe z. B. [160].

5.1.2 Raster-Tunnel-Mikroskopie

Falls nicht anders vermerkt, wurden naßchemisch geätzte W-Drähte als STM-Spitzen benutzt. Für Details der Methode und der benutzten Ätzanlage siehe [161]. Alle geätzten Tips wurden direkt nach der Herstellung im Raster-Elektronen-Mikroskop (REM) untersucht. Es wurden nur die Spitzen mit kleinsten Endradii benutzt. Die besten Spitzen hatten Radii kleiner als 10 nm (s. Abb. 5.2). Unverzüglich nach der REM-Untersuchung wurden die ausgewählten Tips in die UHV-Anlage eingeschleust. Die naßchemisch geätzten Spitzen gelten im allgemeinen als nicht geeignet für Spektroskopie [162]. Um solche Spitzen doch geeignet für Spektroskopie zu machen, wurden sie nach dem Einschleusen in die UHV-Anlage zuerst bei ca. 100 Grad Celsius 10 Minuten lang ausgeheizt und anschließend mit ca. 20 nm Co bedampft. Ein ähnliches Verfahren wird auch beim spinabhängigen STM benutzt [163]. In einigen Fällen wurden PtIr-Spitzen benutzt, die durch Abkneifen eines PtIr-Drahtes hergestellt wurden (siehe Abb. 5.2). Solche Spitzen wurden ebenfalls ausgeheizt und mit Kobalt bedampft.

Jedesmal bevor die STM-Bilder aufgenommen wurden, wurden die mechanischen Pumpen an der Schleuse ausgeschaltet und die Schleuse belüftet, so dass während der Messung nur eine Ionengetterpumpe aktiv war, die keine Vibrationen verursacht. Um das STM von äußeren Vibrationen zu isolieren, wurde die ganze STM-Einheit innerhalb der UHV-Kammer an 3 Federn aufgehängt. Zusätzlich wurde die STM-Plattform mit Hilfe von fest in der UHV-Kammer eingebrachten Dauermagneten durch Wirbelströme gedämpft. Ausserdem wurde die ganze UHV-Anlage auf Gummifüße gestellt.

Alle CCM-Bilder wurden durch Ebenenabzug bearbeitet um die nicht per-

fekt orthogonale Anordnung von Spitze zu Probenoberfläche zu beheben. Alle Leitwertbilder wurden lediglich gefiltert um hochfrequentes Rauschen zu unterdrücken.

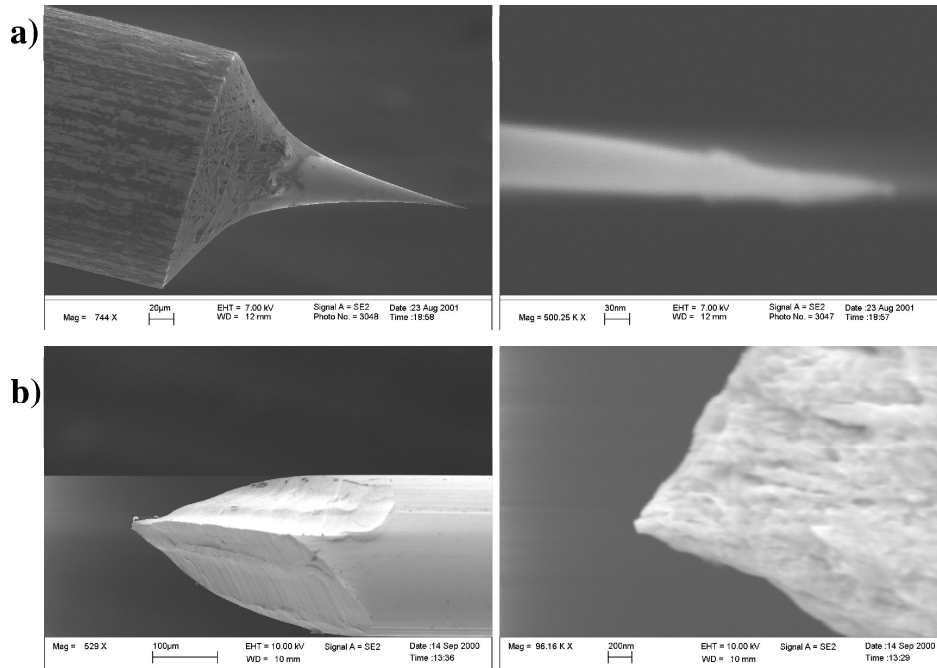


Abbildung 5.2: *REM Aufnahmen von naßchemisch hergestellten W-Spitzen (a) und von mechanisch abgeschnittenen PtIr-Spitzen (b). Alle Aufnahmen wurden direkt nach der Herstellung gemacht, bevor die Spitzen mit Kobalt beschichtet wurden.*

Für ein vereinfachtes elektronisches Schema der Strommessung im STM siehe Abb. 5.3. Wie aus dieser Abbildung sichtbar, wird hier im Gegensatz zu den meisten STMs die Probe auf Masse und die Bias-Spannung auf die STM-Spitze gelegt. Deswegen (falls nicht anders vermerkt) beziehen sich alle in dieser Arbeit angegebene Spannungswerte auf die STM-Spitze und nicht wie üblich auf die Probe.

Die Vakuumkammer und das STM wurden im Institut für Festkörper- und Werkstoffforschung in Dresden konstruiert und gebaut. Im Rahmen dieser Doktorarbeit wurden zahlreiche weitgehende Modifikationen an dieser Anlage durchgeführt. Es wurden beispielweise realisiert: Spitzenwechsel ohne Vakuumbruch, Bedampfung der STM-Spitzen vor dem Einsatz, *in situ* Probenoxidation, dI/dU Messung mit der Lock-In Technik. Ausserdem wurden große Teile der Software neu geschrieben.

Wie im Kapitel 2.2 beschrieben, wird ein STM-Experiment typischerweise so durchgeführt, dass eine metallische Spitze und eine metallische Probe über eine wenige Ångstrom breite Luft-/Vakuumbarrriere voneinander getrennt sind. Die Elektronen tunneln dann durch diese Barriere von der Spitze zu der Probe (oder umgekehrt). Falls allerdings auf die metallische Probe zusätzlich noch eine dicke

ren auch simuliert werden können. In dieser Arbeit werden für die Berechnung des Tunnelstroms zwei unterschiedliche Methoden benutzt, die im Folgenden beschrieben sind. Bereits im Abschnitt 2.1.2 wurde das BRINKMAN-Modell beschrieben. Aus diesem Modell geht hervor, dass die Funktion $dj/dU=f(U)$ eine Parabel bildet. Falls es also möglich ist, eine experimentelle $dj/dU=f(U)$ Kurve mit einer Parabel anzupassen, dann kann man aus den angepassten Parabelparameter die Eigenschaften der Barriere (Höhe φ , Dicke d , Asymmetrie $\Delta\varphi$) ausrechnen. Für die Einzelheiten dieser Methode s. [164]. Zusätzlich zum Strom und der Spannung müssen auch die Tunnelfläche und die effektiven Massen bekannt sein. In dieser Arbeit wurde die effektive Masse von 1 angenommen. Ein großer Nachteil der BRINKMAN-Methode ist, dass hier nur eine einfache trapezförmige Barriere berücksichtigt wird. BRINKMAN präsentiert auch keine Gleichungen für den Fall, dass Bildkräfte berücksichtigt werden. Tunnelgleichungen mit der Berücksichtigung der Bildkräfte werden von SIMMONS veröffentlicht [12]. Leider vereinfacht dieses Modell den Verlauf des Barrierenpotenzials zu einem Mittelwert, so dass die Benutzung im Falle von komplizierten Doppelbarrieren fraglich erscheint. Deswegen war es für diese Arbeit notwendig, eine andere Methode zu benutzen, die es ermöglicht, doppelte Barrieren zu untersuchen.

Die numerische Methode der Berechnung des Transmissionskoeffizienten von MENDEZ und DOMINGUEZ-ADAME [165] stellt keine Forderungen bezüglich der Form der Barriere. Diese Methode basiert auf der diskreten Form der eindimensionalen Schrödinger-Gleichung. Weil die Berechnungen des Tunnelstroms von grundlegender Bedeutung in dieser Arbeit sind, wird im Folgenden diese Methode näher erklärt. Ein Elektron mit Energie E und der effektiven Masse m^* bewegt sich in die x -Richtung auf eine Barriere der Breite d und Höhe $\varphi(x)$. Die effektive Masse des Elektrons bleibt konstant im ganzen Raum. Das Potenzial außerhalb der Barriere ist rechts 0 und links $-eV$, wenn eine Bias-Spannung V angelegt ist. In diesem Fall sieht die Schrödinger-Gleichung wie folgt aus:

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*} \cdot \frac{d^2\Psi(x)}{dx^2} + \varphi(x)\Psi(x) = E\Psi(x) \quad (5.1)$$

Es wird ein Integrationsschritt $s = d/N$ definiert, wobei N positiv und ganzzahlig ist. Es werden Punkte $x_n = ns$ definiert, wo n ganzzahlig ist. Die Taylor Entwicklung um die Punkte x_{n+1} und x_{n-1} ergibt:

$$\Psi(x_{n\pm 1}) = \Psi(x_n) \pm s \frac{d\Psi(x_n)}{dx} + \frac{s^2}{2} \frac{d^2\Psi(x_n)}{dx^2} \pm \frac{s^3}{6} \frac{d^3\Psi(x_n)}{dx^3} + O(s^4) \quad (5.2)$$

Nach der Addition von $\Psi(x_{n+1})$ und $\Psi(x_{n-1})$ bekommt man:

$$\frac{d^2\Psi(x_n)}{dx^2} = \frac{1}{s^2} [\Psi(x_{n+1}) + \Psi(x_{n-1}) - 2\Psi(x_n)] + O(s^4) \quad (5.3)$$

Wenn s klein genug ist, kann man das letzte Glied in Gleichung 5.3 vernachlässigen. Nach dem Einsetzen der Gleichung 5.3 in die Gleichung 5.1 und trivialer Umstellung bekommen wir die diskrete Form der Schrödinger-Gleichung für jeden Punkt:

$$\Psi(x_{n+1}) + \Psi(x_{n-1}) = \alpha_n \Psi(x_n) \quad (5.4)$$

wobei

$$\alpha_n \equiv 2 + \frac{2m^*}{\hbar^2} [\varphi(x_n) - E] s^2 \quad (5.5)$$

Für ein von links kommendes Elektron sieht die Wellenfunktion außerhalb der Barriere wie folgt aus:

$$\Psi(x_n) = \begin{cases} e^{iqn} + r e^{-iqn}, & n \leq 0 \\ t e^{iq'n}, & n \geq N \end{cases} \quad (5.6)$$

wobei für kleine s gilt:

$$q \equiv \sqrt{\frac{2m^* E s^2}{\hbar^2}}, \quad q' \equiv \sqrt{\frac{2m^* (E + V) s^2}{\hbar^2}} \quad (5.7)$$

In den obigen Gleichungen sind r und t entsprechend die Reflektions- und Transmissionsamplitude. Die Reflektions- und Transmissionswahrscheinlichkeit sind durch $\rho = |r|^2$ und $\tau = |t|^2 \frac{\sin q'}{\sin q}$ entsprechend beschrieben. Damit die Teilchenzahl beim Tunneln bzw. der Reflektion erhalten bleibt, muss $\rho + \tau = 1$ gelten. Die diskrete Schrödinger-Gleichung 5.4 kann man auch in einer Matrixform schreiben:

$$\begin{pmatrix} \Psi(x_{n+1}) \\ \Psi(x_n) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \alpha_n & -1 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Psi(x_n) \\ \Psi(x_{n-1}) \end{pmatrix} \equiv P_n \begin{pmatrix} \Psi(x_n) \\ \Psi(x_{n-1}) \end{pmatrix} \quad (5.8)$$

Iteration dieser Gleichung führt zu:

$$\begin{pmatrix} \Psi(x_{N+1}) \\ \Psi(x_N) \end{pmatrix} = P_N \cdots P_0 \begin{pmatrix} \Psi(x_0) \\ \Psi(x_{-1}) \end{pmatrix} \equiv T(N) \begin{pmatrix} \Psi(x_0) \\ \Psi(x_{-1}) \end{pmatrix} \quad (5.9)$$

$T(N)$ ist die Transmissionsmatrix des ganzen Systems und verbindet die Wellenfunktionen an beiden Enden der Barriere. Aus den Gleichungen 5.6, 5.7, 5.8, 5.9 bekommt man nach einigen Berechnungen den Ausdruck für die Transmissionswahrscheinlichkeit:

$$\tau = \tau(E) = \frac{4 \sin q \sin q'}{D(E)} \quad (5.10)$$

wobei D ist definiert als:

$$\begin{aligned} D(E) &= T_{11}^2 + T_{12}^2 + T_{21}^2 + T_{22}^2 + 2(T_{11}T_{12} + T_{21}T_{22}) \cos q \\ &\quad - 2(T_{11}T_{21} + T_{12}T_{22}) \cos q' \\ &\quad - 2(T_{11}T_{22} + T_{12}T_{21}) \cos q \cos q' \\ &\quad + 2 \sin q \sin q' \end{aligned} \quad (5.11)$$

Daraus folgt, dass τ rekursiv aus den Matrixelementen von $T(N)$ berechnet wird. Wenn man berücksichtigt, dass $T(N) = P_N T(N-1)$ und $T(0) = P_0$, findet man folgende rekursive Formeln:

$$\begin{aligned} T_{11}(N) &= \alpha_N T_{11}(N-1) - T_{11}(N-2) \\ T_{12}(N) &= \alpha_N T_{12}(N-1) - T_{12}(N-2) \\ T_{21}(N) &= T_{11}(N-1) \\ T_{22}(N) &= T_{12}(N-1) \end{aligned} \quad (5.12)$$

wobei: $T_{ij}(-1) = \delta_{ij}$, $T_{11} = \alpha_1$, $T_{12}(0) = -1$, $T_{21}(0) = 1$, $T_{22}(0) = 0$. In obigen Formeln werden ausschließlich reale Parameter benutzt. Für diese Arbeit ist von größter Bedeutung, dass beliebige Barrierenformen (d.h. beliebige Verläufe von φ) sich mit gleichem Aufwand berechnen lassen, wie die einfachsten symmetrischen Barrieren. Diese Methode wurde bereits erfolgreich angewendet um die Eigenschaften einer TMR-Barriere zu erklären [139]. Die Autoren der Methode liefern in ihrer Veröffentlichung [165] auch den Nachweis einer sehr guten Genauigkeit der Berechnung der Transmissionswahrscheinlichkeit (s. Tab. 5.1). Es wurde hier die Transmissionswahrscheinlichkeit für eine einfache symmetri-

N=10	N=100	N=500	Analytisch	WKB
7.0278	6.7780	6.7756	6.7755	2.6506

Tabelle 5.1: Vergleich der Transmissionskoeffizienten berechnet mit verschiedenen Anzahlen der Integrationsschritte nach der Methode von MENDEZ et al. mit dem analytischen Wert und der WKB-Näherung. Für Details der Barriere s. Text. Alle Werte $\cdot 10^{-3}$. Aus [165]

sche rechteckige Barriere mit 0.25 eV Höhe und 5 nm Breite für ein Elektron mit 50 meV Energie betrachtet. In diesem einfachen Fall ist es sogar möglich, τ analytisch zu berechnen. Es ist erstaunlich, dass bereits 10 Unterteilungen der Barriere ein Ergebniss liefern, was sich lediglich um weniger als 5% vom analytischen Wert unterscheidet. Bei 500 Unterteilungen der Barriere ist der Wert auf 4 Stellen genau und unterscheidet sich damit um weniger als 0.002 % vom analytisch berechneten Wert. Im starken Kontrast dazu steht der mittels der WKB-Näherung berechnete Wert, wo lediglich die Größenordnung stimmt.

Die Berechnung der Tunnelwahrscheinlichkeit ist nur ein Teil der Tunnelstromberechnung. Wenn zwei Metalle A und B durch eine Potenzialbarriere voneinander getrennt sind findet ein Stromfluß $j = j_{AB} - j_{BA}$ statt (s. Abb. 2.2 in Abschnitt 2.1.2). Wie bereits im Abschnitt 2.1.2 beschrieben, ist der Strom j_{AB} gegeben durch:

$$j_{AB} = \frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{K_t} \int_0^{\infty} \rho_A(E) f(E) P_{AB} \rho_B(E - eV) (1 - f(E - eV)) dE_x \quad (5.13)$$

wobei K_t der zur Barriere senkrechte Impuls des Elektrons ist, $\rho_A(E)$, $\rho_B(E - eV)$ sind die Zustandsdichten, $f(E)$ ist die Fermi Verteilungsfunktion, E_x ist die gesamte Energie des Elektrons in Richtung senkrecht zur Barriere. P_{AB} ist die Wahrscheinlichkeit der Transmission vom Zustand A nach B und wird mit der eben beschriebenen Methode ausgerechnet, d.h. $\tau = P_{AB}$. Dabei stellen die Produkte $\rho_A(E) f(E)$ und $\rho_B(E - eV) (1 - f(E - eV))$ entsprechend die Anzahl der besetzten Zustände in A, bzw. der freien Zustände in B dar.

In dieser Arbeit wurden viele Annahmen gemacht, die die Berechnungen des Tunnelstroms sehr stark vereinfacht haben, ohne jedoch entscheidend die Qualität der Aussagen zu verschlechtern. So wird die Temperatur von 0 Kelvin angenommen. Dadurch wird die Fermi Verteilungsfunktion zu einer einfachen

Stufenfunktion mit Werten 1 und 0. Dies hat zu Folge, dass jetzt (entsprechend der Abb. 2.2) der Strom j_{AB} fließt und j_{BA} gleich null ist, weil die Zustände immer bis zur Fermi Energie voll besetzt sind. Weiterhin werden in dieser Arbeit nur Tunnелеlemente mit Co-Elektroden untersucht und dadurch wird $\rho_A(E) = \rho_B(E) = \rho(E)$. Die totale Zustandsdichte von Kobalt ist nach PAPANASTANTOPOULOS [166] sehr stark von der Energie abhängig (s. Abb. 5.5). Allerdings dominieren im Tunnelprozess die s-Elektronen [29, 30, 167, 168, 169].

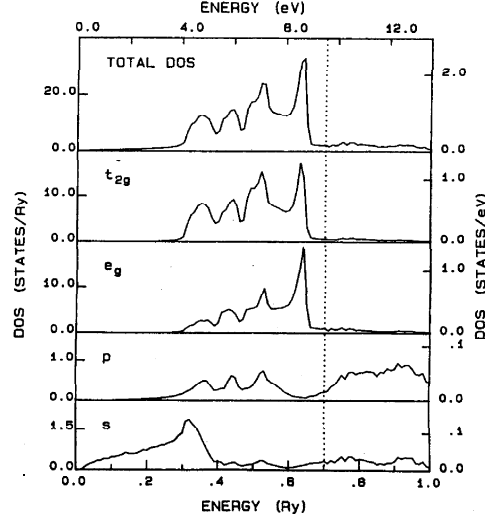


Abbildung 5.5: Zustandsdichten der spin up Elektronen für hcp Kobalt. Ganz oben die totale Zustandsdichte und ganz unten die Zustandsdichte der s-Elektronen. Die Fermi Energie ist durch eine gepunktete Linie gekennzeichnet (aus [166]).

Wie in der Abb. 5.5 zu sehen ist die Zustandsdichte der s-Elektronen in der Nähe (± 2 eV) der Fermi Energie annähernd konstant. Ein großer Sprung in der Zustandsdichte findet ca. 4 eV unter der Fermi Kante statt. Weil in dieser Arbeit die maximale angelegte Spannung nie 2 V übersteigt, wird angenommen, dass die Zustandsdichte in Kobalt konstant sei. Auf diese Weise vereinfacht sich die Gleichung 5.13 zu:

$$j = j_{AB} = \rho^2 \frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{K_t} \int_{E_F - eV}^{E_F} P_{AB}(E) dE_x \quad (5.14)$$

Außerdem wird Tunneln nur im 1-dimensionalen Raum betrachtet. In diesem Fall ist die gesamte Energie des Elektrons senkrecht zur Barriere. Wie in [16] gezeigt und im Kapitel 2.1.1 beschrieben, ist im Falle einer hohen breiten Barriere nur ein Vorfaktor nötig um das 3-dimensionale Tunneln mit 1-dimensionalen Modell zu beschreiben. Letztendlich wird für die Berechnung des Tunnelstroms

folgende diskrete Gleichung benutzt:

$$j = A \sum_{E=E_F-eV}^{E_F} P(E) \Delta E \quad (5.15)$$

Die Konstante A beinhaltet alle Größen aus der Gleichung 5.14, die im relevanten Energiebereich von der Energie unabhängig sind: Zustandsdichten, Besetzungsverteilung und übrige Konstanten. Der Vorfaktor A wird experimentell gefunden. Dazu wird ein Tunnелеlement $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ mit einer genau bekannten Fläche strukturiert. Die aufgenommene IU -Kurve wird zuerst mit dem BRINKMAN-Modell angefitet (Abb. 5.6). Die gefundenen Barrierenpara-

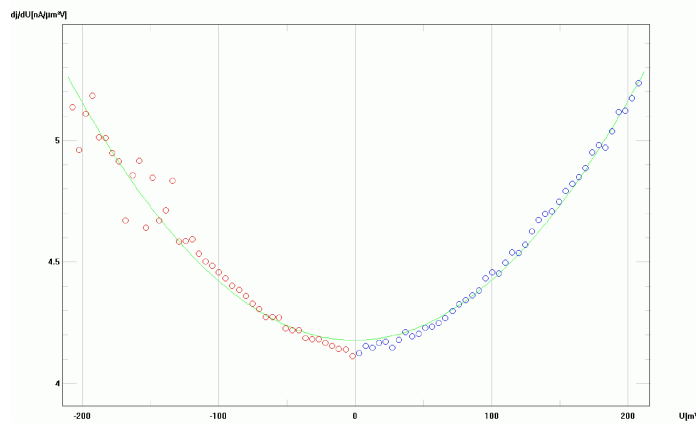


Abbildung 5.6: Die Abhängigkeit des differentiellen Leitwertes von der Spannung für ein planares $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ Tunnелеlement. Punkte: experimentelle Werte, Linie: Fit nach Brinkmann.

meter werden in die Berechnung des Tunnelstroms mit der Matrix-Methode eingegeben. Der Wert des Vorfaktors A wird so angepasst, dass die Stromwerte der simulierten Kurve mit der experimentellen übereinstimmen. Weil es sich um eine einfache symmetrische rechteckige Barriere handelt, wird die Bildkraft nicht berücksichtigt ohne Einfluss auf die Richtigkeit des gefundenen Wertes von A .

Für die Fermienergie von Kobalt werden 9.53 eV angenommen, wie von PAPACONSTANTOPOULOS errechnet [166]. Die Abb. 5.7 zeigt die Abhängigkeit des errechneten Tunnelstroms bei -1.5 V von der Fermi Energie der Elektroden. Es ist sichtbar, dass für die Fermienergie um 9.5 eV (d.h. Fermienergie von Kobalt) sehr große Schwankungen in der Energie, z.B. um ± 2.5 eV, eine relativ kleine Änderung des absoluten Stromwertes um $\pm 10\%$ zu Folge haben.

Für die Höhe der Vakuumbarriere wird die Austrittsarbeit für Kobalt von 5 eV angenommen [170]. Es werden sehr verschiedene Werte der Barrierenhöhe von Al_2O_3 in der Literatur angegeben. Die Energielücke in Al_2O_3 beträgt ca. 8.7 eV [62]. In dünnen Schichten werden aber viel kleinere Werte für Barrierenhöhen gemessen, so beispielsweise 1.2 eV mittels BEEM [68]. Die meisten Arbeiten, in denen TMR-Elemente mit Al_2O_3 Barrieren untersucht werden, berichten von

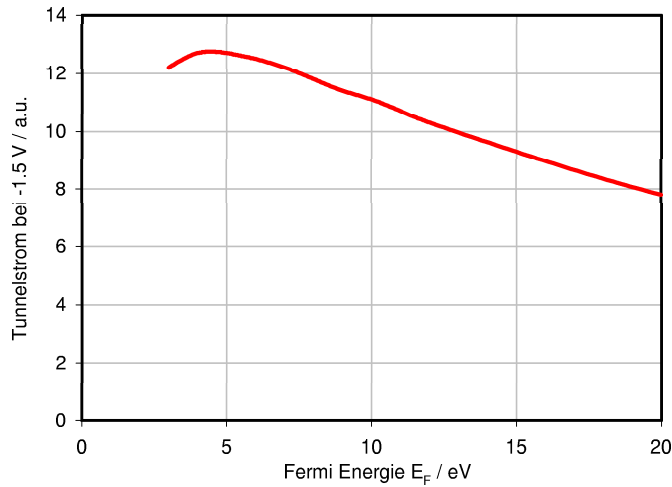


Abbildung 5.7: Errechnete Abhängigkeit des Tunnelstroms bei -1.5 V von der Fermi Energie des Metalls für eine symmetrische rechteckige Barriere mit Höhe 5 eV und Breite 10 \AA ohne Berücksichtigung der Bildkraft.

Barrierrhöhen zwischen $1.0 - 3.0\text{ eV}$ [76, 147, 171, 172, 173]. In diesen Arbeiten wird jedoch die Bildkraft nicht berücksichtigt. Um die Höhe der Al_2O_3 Barriere mit Berücksichtigung der Bildkraft zu bestimmen wird wieder eine experimentelle IU -Kurve eines planaren $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ TMR-Elementes benutzt. Die simulierte IU -Kurve wurde an die experimentelle angepasst, wobei die Barrierrhöhe und Breite die einzigen freien Parameter sind. Die Barrierrhöhe von 1.58 eV mit der besten Übereinstimmung mit der experimentellen Kurve wurde als Standardwert übernommen und in allen weiteren IU Berechnungen benutzt (Abb. 5.8).

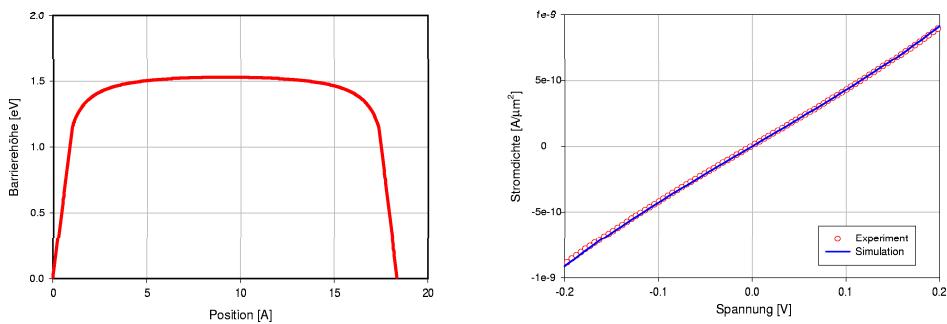


Abbildung 5.8: Die Bestimmung der Barrierrhöhe von Al_2O_3 . Links die Barrierrform für die Barrierrparameter mit der besten Übereinstimmung der simulierten mit der experimentellen IU Kurve (rechts). Tunnelelement: $\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$.

Um die berechneten Strom-Spannungskurven mit den experimentellen ver-

gleiches zu können, muss im Experiment die Tunnelfläche bekannt sein. Unglücklicherweise ist in einem STM-Experiment die Tunnelfläche nicht direkt messbar. Man kann sie jedoch abschätzen, z.B. mit Hilfe der bekannten Spitzengeometrie oder der erzielten Auflösung im STM-Bild. Die effektive Tunnelfläche variiert auch während der Messung auf Grund von verschiedenen Geometrien an verschiedenen Stellen der Probe. In dieser Arbeit wird die effektive Tunnelfläche von 1 nm^2 angenommen. Es wird auch überprüft, wie kritisch die Flächenänderungen für die ausgerechneten Barrierenparameter sind. Zu diesem Zweck wird angenommen, dass in einem STM-Experiment im Vakuum ein Tunnelstrom von 0.5 nA bei -1.5 V zwischen Kobaltprobe und Kobaltspitze gemessen wurde. Es sollte jetzt mit der numerischen Berechnung des Stromes die Breite der Vakuumbarriere mit $\varphi = 5.0 \text{ eV}$ gefunden werden. Als Tunnelfläche werden 1 und 10 nm^2 angenommen. Abb. 5.9 zeigt die IU -Kurven berechnet für diese beiden angenommenen Flächen. Die beiden Kurven unterscheiden sich

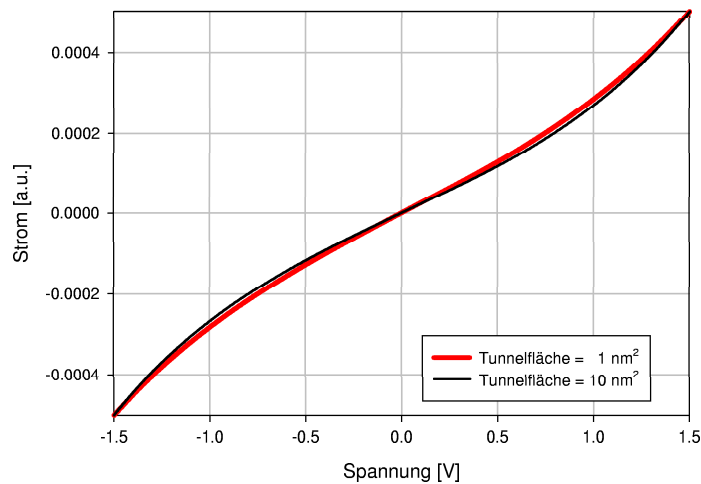


Abbildung 5.9: Einfluss der angenommenen Tunnelfläche auf die simulierten Strom-Spannungskurven.

nur geringfügig. Der Einfluss der angenommenen Tunnelfläche kann deswegen vernachlässigt werden. Bei der angenommenen Fläche von 1 nm^2 beträgt die gefundene Barrierenbreite $d = 0.69 \text{ nm}$ und bei 10 nm^2 Fläche ist $d = 0.81 \text{ nm}$. Bei der analogen Simulation mit einer Al_2O_3 Barriere betragen die gefundenen Barrierenbreiten entsprechend 1.05 und 1.29 nm . Da die eingesetzte Fläche um Faktor 10 variiert wurde und die gefundenen Barrierenbreiten sich lediglich um 17% (bzw. 23%) unterscheiden, folgt daraus, dass die angenommene effektive Tunnelfläche kein kritischer Faktor für die Simulation ist. Die Ursache hierfür ist die nur lineare Abhängigkeit des Stroms von der Fläche, die mit sehr kleinen Änderungen der exponentiell eingehenden Breite der Barriere kompensiert werden kann.

Das STM wurde im Rahmen dieser Arbeit erweitert, um während einer CCM-Messung auch den differentiellen Leitwert mittels Lock-In Technik zu messen. Auf die normale konstante Bias-Spannung während der Messung wird

ein Sinus-Signal addiert mit einer Peak-to-Peak Amplitude von 300 mV und einer Frequenz von 1.9 kHz. Es wurde die niedrigstmögliche Frequenz ausgewählt, die schon zu hoch für den elektronischen Regelkreis des STM war. Dadurch wird verhindert, dass der Abstand Spitze-Probe ständig nachgeregelt wird. Mit einem Lock-In Verstärker wird die Amplitude des Sinus im resultierenden Tunnelstrom gemessen. Um das gemessene Lock-In Signal auf absolute Werte des differentiellen Leitwertes umzurechnen, ist es nötig alle Verstärkungs- bzw. Dämpfungsfaktoren in der Auswerteelektronik für die benutzte Frequenz zu kennen. In dieser Arbeit wird der Umrechnungsfaktor auf experimentelle Weise gefunden. Dazu wird auf jeder Probe eine Strom-Spannungskurve aufgenommen. Zusätzlich zur Messung von Strom und Spannung wird auch das Lock-In Signal aufgenommen. Nachfolgend wird die experimentelle IU Kurve numerisch abgeleitet und dieser absolute differentielle Leitwert wird mit dem Lock-In Signal verglichen (s. Abb. 5.10). Auf diese Weise wird der Umrechnungsfaktor gefunden, mit

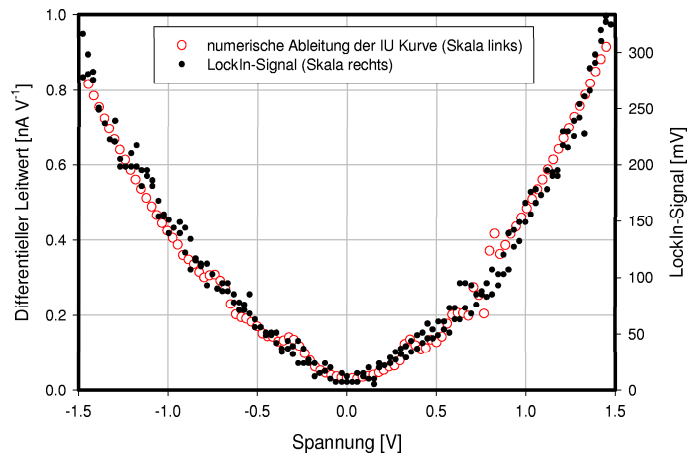


Abbildung 5.10: Umrechnung vom Lock-In Signal. Für jede Probe wurde aus einer experimenteller IU -Kurve numerisch berechneter differentieller Leitwert (rote Kreise) mit dem gleichzeitig aufgenommenen Lock-In Signal verglichen (schwarze Punkte). In dem oben gezeigten Fall musste das Lock-In Signal (in mV) mit 0.003 multipliziert werden um den differentiellen Leitwert (in nA/V) zu bekommen.

dem das Lock-In Signal auf absolute Werte des differentiellen Leitwertes umgerechnet werden kann. In dem in der Abb. 5.10 gezeigten Beispiel muss das Lock-In Signal (in mV) mit 0.003 multipliziert werden um den absoluten Wert des differentiellen Leitwertes (in nA/V) zu bekommen. Mit diesem Faktor kann dann auch das Lock-In Signal umgerechnet werden, das gleichzeitig mit dem CCM-Bild aufgenommen wird.

5.1.4 Berechnung der Bildkraft

Im Falle einer symmetrischen rechteckigen Barriere beeinflusst das Bildkraftpotenzial nicht die Form einer Strom-Spannungs-Kurve. Es bewirkt nur eine Verschiebung der Kurve in Richtung größerer Ströme [19] (s. dazu auch Abschnitt 2.1.3). Im Gegensatz dazu ist die Berücksichtigung des Bildkraftpotenzials in einer Doppelbarriere aus 2 verschiedenen Materialien von großer Bedeutung. Die (Nicht-)Berücksichtigung der Bildkraft führt zu eindeutig anderen Formen der IU -Kurven. Es liegt daran, dass die beiden Teile der Barriere unterschiedlich beeinflusst werden können (aufgrund von verschiedenen Dielektrizitätskonstanten ε und Teilbreiten d_i). Weil in dieser Arbeit gerade solche komplizierten Doppelbarrieren untersucht werden, muss der Einfluss des Bildkraftpotenzials berücksichtigt werden. Im Folgenden wird erklärt, mit welcher Methode das Bildkraftpotenzial in dieser Arbeit berechnet wird.

Im Abschnitt 2.1.3 wurde gezeigt, dass auf eine Ladung im Vakuum vor einem metallischen Halbraum (Abb. 2.3 im Abschnitt 2.1.3) ein Bildkraftpotenzial $V_i = \frac{1}{16\pi\varepsilon_0} \frac{q^2}{x}$ wirkt, das seine Ursache in der Polarisation der Materie hat. Wenn sich ein Elektron zwischen 2 metallischen Elektroden befindet (wie in einem STM-Experiment) ist die Beschreibung leider komplizierter. Hier wird das Bildkraftpotenzial durch eine unendliche Reihe beschrieben [20]:

$$V_i = -\frac{e^2}{8\pi\varepsilon\varepsilon_0} \left\{ \frac{1}{2x} + \sum_{n=1}^{\infty} \left(\frac{ns}{n^2s^2 - x^2} - \frac{1}{ns} \right) \right\} \quad (5.16)$$

Diese Formel kann man aus der Gleichung für einfache Bildkraftpotenziale herleiten, unter Berücksichtigung unendlich vieler Bildladungen. Der Fall einer kombinierten Dielektrikum-Vakuum-Barriere ist leider noch komplizierter. Deswegen wurde in dieser Arbeit eine vereinfachte Formel hergeleitet, in der nur die Bildladungen bis zum zweiten Grad (d.h. die Bildladungen der eigentlichen Ladung und deren Bildladungen) berücksichtigt werden. Zuerst wird hier diese Formel für den einfacheren Fall einer symmetrischen einfachen Barriere zwischen 2 Metallelektroden hergeleitet und verglichen mit den Ergebnissen nach der analytischen Formel 5.16 und der vereinfachter Formel von SIMMONS [20]:

$$\varphi_i = -\frac{0.795}{16\pi\varepsilon_1\varepsilon_0} \frac{dq^2}{x(d-x)} \quad (5.17)$$

In der Abb. 5.11 ganz oben ist ein Elektron im Dielektrikum zwischen 2 Elektroden gezeigt. Links darunter ist ein Ersatzbild zu sehen, als wäre der ganze linke Halbraum auch ein Dielektrikum mit ε_1 . In dieser Situation befinden sich im Raum zwei Ladungen q und die Bild-/Polarisationsladung $q'_L = -q$. Aber die Bildladung q'_L polarisiert den Leiter auf der rechten Seite. Dort entsteht die nächste Bildladung $q'_{L2} = -q'_L = q$. Dies ist weiter unten in der Abb. 5.11 dargestellt. Auch diese Bildladung polarisiert wieder die linke Elektrode und dieser Prozess geht unendlich weiter. Hier wurden aber nur die ersten beiden Bildladungen berücksichtigt und die Bildladungen der höheren Ordnungen vernachlässigt. Die rechte Spalte der Abb. 5.11 ist analog zu der linken, zeigt jedoch die Bildladung auf der rechten Elektrode. Ganz unten sind alle Ladungen

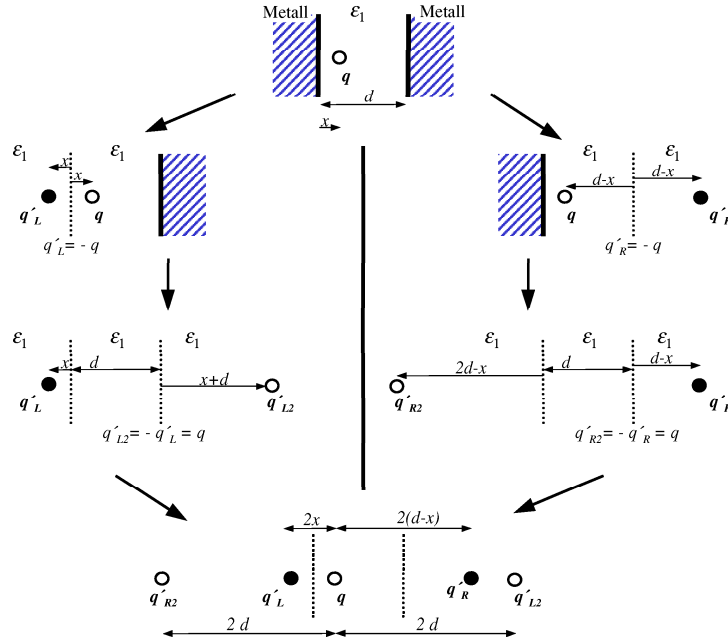


Abbildung 5.11: Die Verdeutlichung der Berechnung des Bildkraftpotenzials mit Berücksichtigung von Bildladungen der maximal 2. Ordnung. Für nähere Informationen s. Text.

gezeigt, die hier berücksichtigt werden. Die Bildkraftpotenziale der einzelnen Bildladungen sind entsprechend gleich:

$$\varphi_L = -\frac{1}{16\pi\epsilon_1\epsilon_0} \frac{q'_L q}{x} \quad (5.18)$$

$$\varphi_R = -\frac{1}{16\pi\epsilon_1\epsilon_0} \frac{q'_R q}{(d-x)} \quad (5.19)$$

$$\varphi_{L2} = \frac{1}{16\pi\epsilon_1\epsilon_0} \frac{q'_{L2} q}{d} \quad (5.20)$$

$$\varphi_{R2} = \frac{1}{16\pi\epsilon_1\epsilon_0} \frac{q'_{R2} q}{d} \quad (5.21)$$

Daraus folgt ein Gesamtbildkraftpotenzial, das auf ein Elektron zwischen 2 Elektroden wirkt:

$$\varphi_i = \varphi_L + \varphi_R + \varphi_{L2} + \varphi_{R2} \quad (5.22)$$

$$\varphi_i = -\frac{1}{16\pi\epsilon_1\epsilon_0} q^2 \left(\frac{1}{x} + \frac{1}{(d-x)} - \frac{1}{d} - \frac{1}{d} \right) \quad (5.23)$$

Das Bildkraftpotenzial berechnet mittels der obigen Gleichung 5.23 wurde verglichen in der Abb. 5.12 mit der analytischen Gleichung 5.16 und der vereinfachten Gleichung 5.17 nach SIMMONS [20]. In Abb. 5.12 ist der Verlauf der

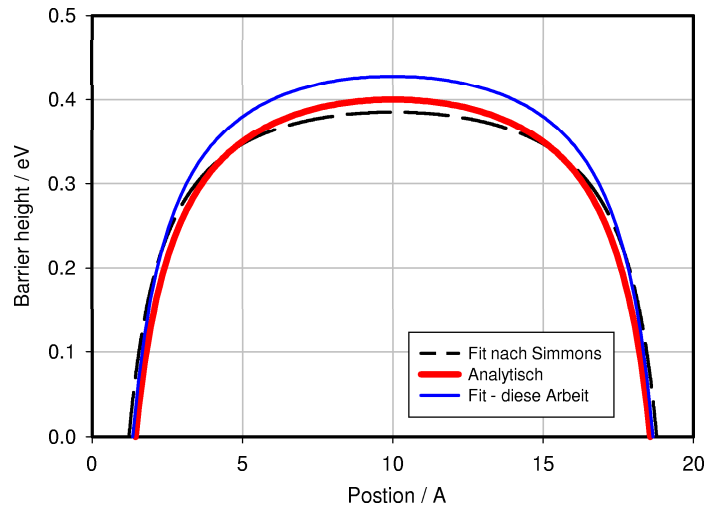


Abbildung 5.12: Effektive Barriere berechnet für Parameter: Höhe 0.5 eV, Breite 2 nm. Die rote Linie wurde analytisch berechnet, die schwarze nach der Anpassung von SIMMONS [20] und die blaue mit der in dieser Arbeit verwendeten Methode.

effektiven Barriere dargestellt für eine Vakuumbarriere mit Höhe $\varphi_B = 0.5$ eV und Breite $d = 2$ nm gemäß der Gleichung:

$$\varphi = \varphi_B + \varphi_i \quad (5.24)$$

Wie in Abb. 5.12 zu sehen, stimmt die Form der Barriere berechnet mit der Gleichung 5.23 sehr gut mit der analytisch berechneten Barriere (Gl. 5.16) überein. Allerdings ist die analytisch berechnete Kurve im ganzen Verlauf um ca. 0.02 eV kleiner. Im Gegensatz dazu gibt der Fit von SIMMONS (Gl. 5.17) den Verlauf der analytischen Barriere nicht so gut wieder. Dafür wird aber der resultierende Strom sehr gut übereinstimmen, weil diese Barriere etwas niedriger und etwas breiter ist. Der resultierende Tunnelstrom für die Barriere berechnet mit der in dieser Arbeit verwendeten Methode wird kleiner sein, weil die Barriere höher und etwas breiter ist als die analytisch berechnete. Der Fehler wird jedoch im Vergleich zu einer Barriere ohne Berücksichtigung der Bildkraft wesentlich reduziert.

Das Bildkraftpotenzial im Falle der Dielektrikum-Vakuum-Barrieren wird in dieser Arbeit auch mit der oben vorgestellten Methode der Begrenzung auf die Bildladungen der maximal 2. Ordnung berechnet. Dabei werden zwei Fälle getrennt betrachtet (s. Abb. 5.13): Elektron im Dielektrikum, Elektron im Vakuum. Mit den Annahmen von $\varepsilon_{\text{Dielektrikum}} = \varepsilon$ und $\varepsilon_{\text{Vakuum}} = 1$ kann man auf dieselbe Weise wie in der Abb. 5.11 gezeigt für einfache Barrieren das Bildkraftpotenzial berechnen. Nach einigen Operationen erhält man für das Elektron im Dielektrikum:

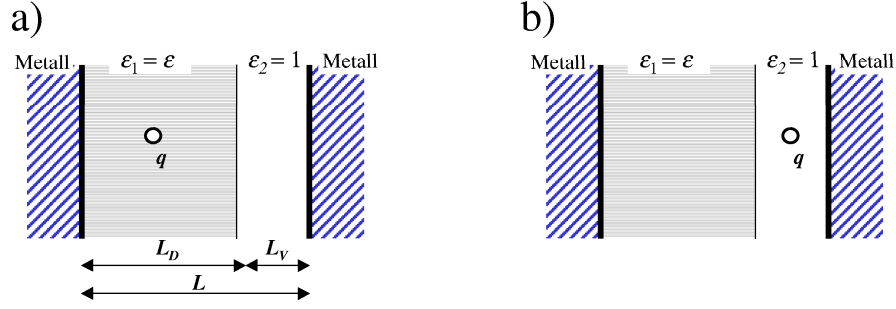


Abbildung 5.13: Zwei Fälle für die Berechnung des Bildkraftpotenzials: a) Elektron im Dielektrikum, b) Elektron im Vakuum.

$$\varphi_i = -\frac{1}{16\pi\epsilon_0} \left[\left(\frac{1}{\epsilon} \frac{1}{x} \right) + \left(\frac{1(\epsilon-1)}{\epsilon(\epsilon+1)} \frac{1}{(L_D-x)} \right) - \left(\frac{4}{(\epsilon+1)^2} \frac{1}{(L-x)} \right) + \left(\frac{2(\epsilon-1)}{\epsilon(\epsilon+1)} \frac{1}{L_D} \right) - \left(\frac{8}{(\epsilon+1)^2} \frac{1}{L} \right) \right] \quad (5.25)$$

und für das Elektron im Vakuum:

$$\varphi_i = -\frac{1}{16\pi\epsilon_0} \left[\left(\frac{(\epsilon-1)}{(\epsilon+1)} \frac{1}{(x-L_D)} \right) + \left(\frac{4}{(\epsilon+1)^2} \frac{1}{x} \right) + \left(\frac{1}{(L-x)} \right) + \left(\frac{2(\epsilon-1)}{(\epsilon+1)} \frac{1}{L_V} \right) - \left(\frac{8}{(\epsilon+1)^2} \frac{1}{L} \right) \right] \quad (5.26)$$

In der Abb. 5.14 ist eine Al_2O_3 -Vakuum-Barriere gezeigt. Dort sind die Barrierenverläufe mit und ohne der Berücksichtigung des Bildkraftpotenzials miteinander verglichen. Es ist auffallend, dass der Al_2O_3 -Teil der Barriere sich nur sehr geringfügig ändert (aufgrund des hohen $\epsilon = 8$), während der Vakuumteil der Barriere ca. 2 mal niedriger wird nach Berücksichtigung der Bildkraft. Es ist offensichtlich, dass dies die Form einer Strom-Spannung-Kurve stark verändern wird. Ein Problem bei der Berechnung des Bildkraftpotenzials ist, dass das errechnete Potenzial in der Nähe der Elektrode $-\infty$ erreicht. Diese Anomalie wird umgegangen durch die Beschränkung der Gültigkeit des Bildkraftpotenzials für die Abstände von den Grenzflächen größer als ein gesetzter Schwellwert von ca. 0.1 nm. Für Abstände kleiner als der Schwellwert wird angenommen, dass das Potenzial der Barriere linear bis zum Fermi-niveau abfällt, bzw. linear den Barrierenwert auf der anderen Seite der Grenzfläche erreicht. Diese Annahme ist ähnlich der Methode, die bereits 1914 von SCHOTTKY benutzt wurde um das Problem des unendlichen Potenzials umzugehen [174] und umgeht die Benutzung von Austausch-Korrelationspotenzialen.

5.2 Aufnahmen im Konstant-Strom-Modus

Wie bereits im Abschnitt 2.2.1 erklärt, folgt die STM-Spitze im CCM-Modus nicht direkt der Topographie, sondern eher einem bestimmten Wert der Zustandsdichte in der Probe. Soweit man jedoch mit metallischen Proben arbeitet,

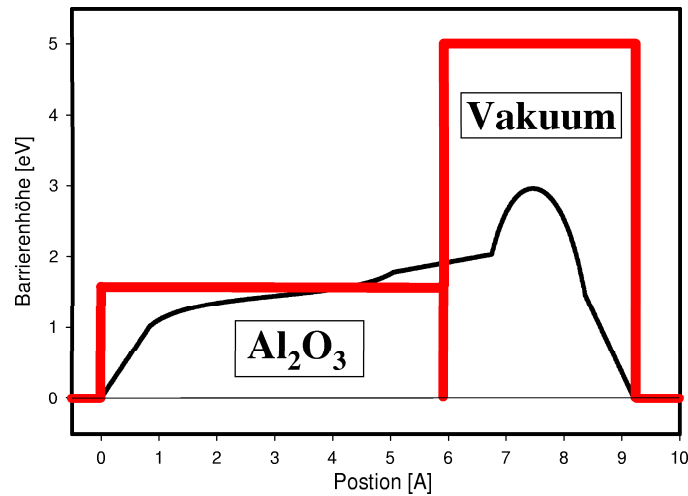


Abbildung 5.14: Vergleich einer Barrierenform mit (dünne schwarze Linie) und ohne (dicke rote Linie) Bildkraftberücksichtigung. Barrierenparameter für Co-Elektroden mit Fermienergie 9.5 eV: für Al_2O_3 Höhe 1.6 eV, Breite 5.9 Å für Vakuum Höhe 5 eV, Breite 3.3 Å.

ist dieses mit der Topographie gleichzustellen. Es ist aber viel komplizierter im Falle von (teilweise) isolierenden Proben. Hier ist die Gefahr groß, die Topographieänderung mit der Änderung der elektrischen Eigenschaften der Barriere zu verwechseln. Abb. 5.15 zeigt mögliche Vermischungen von Topographie und elektrischen Eigenschaften im Falle einer dünnen Isolatorschicht auf einem Metall. Weil sich hier um eine kombinierte Vakuum-Dielektrikum-Barriere mit 2

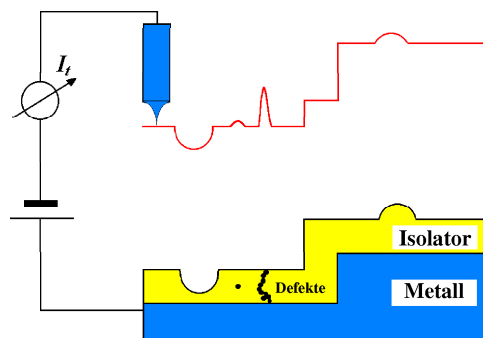


Abbildung 5.15: Die Beobachtung von dünnen Isolatorschichten mit STM. Die rote Linie zeigt die verfälschte Topographieinformation im CCM-Modus.

Barrierenhöhen handelt, ist dies sehr kompliziert. Wie in Abb. 5.15 zu sehen, folgt die STM-Spitze den Veränderungen der Dicke der Oxidschicht, allerdings entspricht im Allgemeinen die Änderung des Abstands Spitze-Probe nicht genau der Dickenänderung des Isolators aufgrund der auch veränderten effektiven

Barrierrhöhe der gesamten Barriere (abhängig von relativen Barrierebreiten von Vakuum und Oxid). Ein anderes Problem stellen Defekte in der Isolatorschicht dar, die zwar topographisch nicht unbedingt von anderen Stellen zu unterscheiden sind, die aber die elektrischen Eigenschaften der Isolatorschicht verändern.

Die nächsten Abbildungen 5.16 und 5.17 stellen CCM-Aufnahmen von Kobalt und Al_2O_3 auf Kobalt entsprechend dar. In beiden Fällen ist eine deutliche

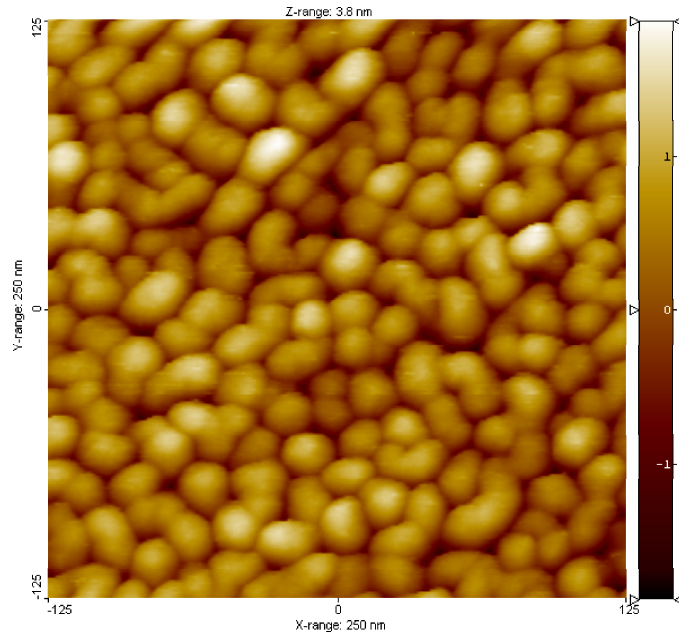


Abbildung 5.16: Ein CCM STM Bild. Probe: $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Co}(10 \text{ nm})$, untersucht *in situ*. $I = -1 \text{ nA}$, $U = -1.5 \text{ V}$.

Kornstruktur zu erkennen. Die Aufnahme der Kobaltschicht zeigt eine typische Struktur, die auch auf den AFM-Aufnahmen dieser Proben zu sehen ist. Der Korndurchmesser der Kobaltschicht beträgt ca. 18 nm. Nach der Bedampfung mit Aluminium und anschließender Oxidation sind keine grundlegenden Unterschiede zum ersten STM-Bild zu sehen. Wie bereits oben beschrieben, wird hier die Topographieinformation mit den elektrischen Eigenschaften der Probe zu einem quasi-Topographie Bild gemischt. Es ist beispielsweise nicht sichtbar ob die Korngrenzen stärker oxidiert sind als der Rest. Es ist auch möglich, dass das Aluminium die Kobaltoberfläche nicht gleichmässig bedeckt hat und nach der Oxidation auf der Oberfläche Stellen mit Aluminiumoxid und metallischem Kobalt (oder auch Kobaltoxid) zusammen existieren. Leider ist es mit Hilfe eines CCM-Bildes nicht möglich, solche Fragen zu beantworten. Hier ist es auch nicht möglich zu bestimmen ob eine bestimmte Stelle oxidiert ist oder nicht, und zu entscheiden, ob eine Erhöhung auf dem CCM-Bild in Wirklichkeit eine topographische Erhöhung ist, oder eher eine Stelle im Oxid mit besserer elektrischen Leitfähigkeit. Um solche Fragen beantworten zu können, kann man,

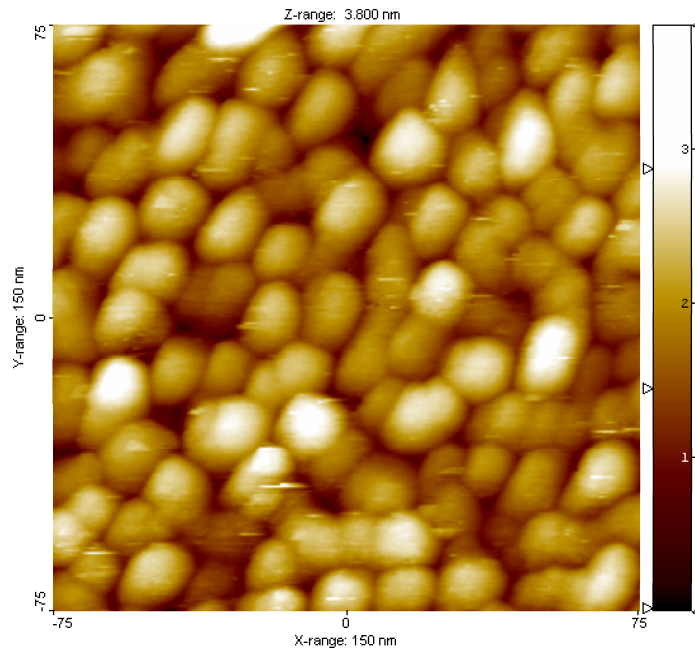


Abbildung 5.17: Ein CCM STM Bild. Probe: $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Co}(10 \text{ nm})/\text{AlO}_x(0.8 \text{ nm})$, untersucht *in situ*. $I = -0.1 \text{ nA}$, $U = -1.5 \text{ V}$.

z. B. mehrere Bilder mit verschiedenen Bias-Spannungen an derselben Stelle aufnehmen und dann feststellen, ob die relativen Höhenunterschiede konstant bleiben. Im nächsten Abschnitt wird vorgestellt, welche Möglichkeiten die spektroskopischen Methoden bieten.

5.3 Strom-Spannung-Spektroskopie

Unter den Spektroskopiemethoden, die ein STM ermöglicht (und die kurz im Abschnitt 2.2.2 beschrieben wurden), wird in dieser Arbeit nur die Strom-Spannungs-Spektroskopie intensiv benutzt. In der Abb. 5.18 ist aber auch ein Beispiel von Strom-Abstands-Spektroskopie vorgestellt. Hier wird die Änderung im Tunnelstrom für sehr feine Änderungen des Abstandes Spitze-Probe registriert. Es ist auf dem Diagramm zu sehen, dass die Abhängigkeit einen exponentiellen Charakter hat, was mit der Formel $I \sim \exp(\sqrt{\varphi} d)$ übereinstimmt. Der Strom ändert sich bis zu einem Faktor 10 bei einer Abstandsänderung von ca. 0.1 nm. Diese Tatsache kann als Nachweis der richtigen Funktion des STM gelten. Im Falle von verschmutzten Spitzen oder Proben ändert sich die Strom-Abstands-Kurve drastisch, so dass die Abhängigkeit viel schwächer ist. Es ist auch möglich, dass die Spitze und Probe sich im mechanischen Kontakt befinden und dann die angelegte Spannung auf den z-Piezo nicht mehr zu gewünschten Längenänderungen des Piezoröhrchens führen kann. All diese Artefakte können durch Strom-Abstands-Spektroskopie ausgeschlossen werden.

Im Abschnitt 5.2 wurde festgestellt, dass es nicht möglich ist, anhand von

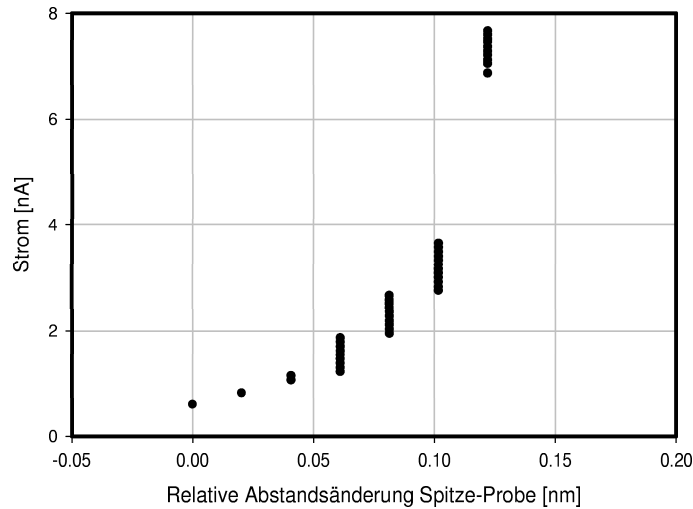


Abbildung 5.18: *In situ* Strom-Abstandspektroskopie. Probe: Si/SiO₂/Co(10 nm). Spitze: PtIr, Biasspannung: -0.2 V. Einer Abstandsänderung von knapp über 1 Å entspricht Stromänderung bis zu einem Faktor 10. Dies kann auch als Nachweis der STM-Funktion gelten

CCM-Bildern metallische Stellen von isolierenden zu unterscheiden. Die Abb. 5.19 zeigt zwei Strom-Spannungs-Kurven, einmal für eine metallische und einmal für eine isolierende Probe. Der Verlauf dieser Kurven ist sehr unterschiedlich und erlaubt eine einfache eindeutige Zuordnung. Die Kurve für Kobalt hat einen nahezu ohmschen Verlauf, was im Allgemeinen eine hohe und dünne Barriere auszeichnet. Dagegen besitzt die Kurve, aufgenommen auf einer Aluminiumoxid-Probe, einen Bereich (± 500 mV), wo der Strom fast null ist, und erst dann ist ein rapider Anstieg des Stromes sichtbar. Dieses Verhalten ist typisch für eine breite, niedrige Barriere. Diese Messungen sind im Einklang mit den aus der Literatur bekannten Kurven für Metalle und Oxide [23, 62, 63, 64].

In der nächsten Abb. 5.20 werden Strom-Spannungs-Spektren einer *in situ* untersuchten Probe (Aluminium wurde aufgedampft und anschließend in O₂-Atmosphäre unter ca. 1 mbar 10 Minuten lang oxidiert) und zwei *ex situ* untersuchten miteinander verglichen. Bei diesen Proben wurden 1.4 nm Aluminium aufgesputtert. Sie wurden dann an Luft 10 Minuten, bzw. 6 Tage lang oxidiert. Die aufgedampfte Probe und gesputterte, die 6 Tage lang an Luft oxidiert wurde, zeigen fast identisches Verhalten. Dagegen zeigt die gesputterte nur 10 Minuten lang an Luft oxidierte Probe ein etwas anderes Verhalten, das vermuten lässt, dass Aluminium nur schwach oxidiert ist. Die Differenzen zwischen den einzelnen Kurven sind nicht sehr groß. Allerdings ist deutlich sichtbar, dass mit Hilfe der Strom-Spannungs-Spektroskopie sehr einfach ist, zumindest qualitative Vergleiche durchzuführen. Es bleibt aber anzumerken, dass die *IU*-Spektren aufgenommen auf verschiedenen Stellen innerhalb einer jeden Probe sich etwas unterscheiden können. Deswegen müssten ganze Sätze von *IU*-Spektren

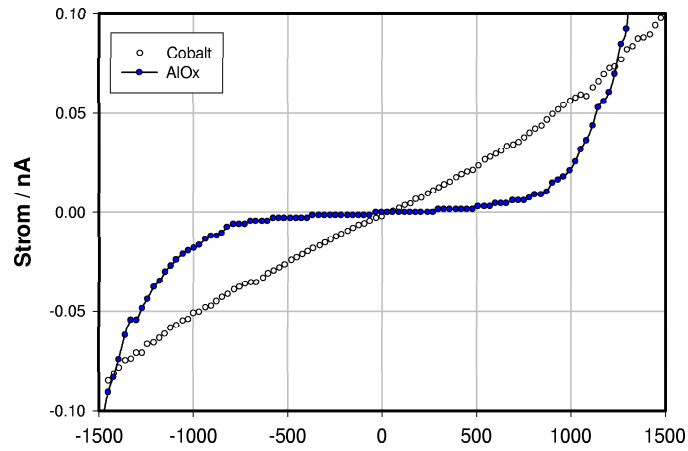


Abbildung 5.19: *In situ* Strom-Spannungsspektroskopie. Die gefüllten Kreise: $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Co}(10\text{ nm})/\text{AlO}_x(0.8\text{ nm})$, die leeren Kreise: $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Co}(10\text{ nm})$. Die Linien dienen einer besseren Übersicht.

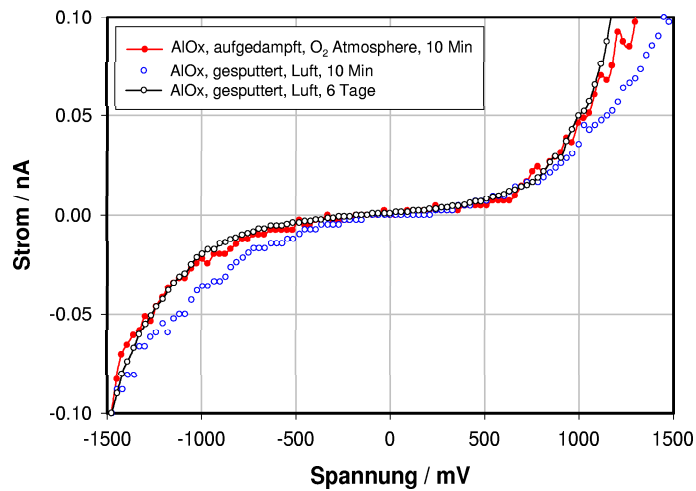


Abbildung 5.20: Strom-Spannungsspektroskopie. Vergleich verschiedener Al-Herstellungsmethoden und Oxidations Methoden. Zuordnung der Kurven: s. das Bild. Die Linien dienen einer besseren Übersicht.

verglichen werden um verschiedene Proben vergleichen zu können.

Es ist weiterhin auch möglich, die IU -Kurven mit einem Modell anzupassen und so an quantitative Informationen, wie Barrierenhöhen, oder Breiten zu gelangen. Hier bietet sich beispielweise das Modell von BRINKMAN an [19]. Leider wird in diesem einfachen Modell nur eine trapezförmige Barriere berücksichtigt, und es ist nicht möglich eine Barriere, bestehend aus 2 Materialien, mit diesem einfachen Modell anzupassen. Ausserdem wird die Bildkraft nicht berücksichtigt, was im Falle einer kombinierten Vakuum-Oxid-Barriere die Ergebnisse deutlich verfälscht. Aus diesen Gründen wird hier für die quantitative Analyse der Transmissionskoeffizient mit der numerischen Transfermatrix-Methode von MENDEZ et al. [165] berechnet. Daraus wird der Tunnelstrom berechnet, wie im Abschnitt 5.1 beschrieben. Mit Hilfe dieser Methode ist es problemlos möglich, den Tunnelstrom durch eine beliebige (auch komplizierte Vakuum-Oxid) Barriere zu berechnen. In der Literatur wurde allerdings auch von der Benutzung eines modifizierten BRINKMAN-Modells für die Stromberechnung einer Doppelbarriere berichtet [175, 176, 177]. Dort wurden Aluminiumoxid-Barrieren untersucht, die mit aromatischen Verbindungen dotiert waren. Ein Problem bei der Untersuchung von solch komplizierten Barrieren ist die große Anzahl von Barrierenparameter. KORMAN et al. haben versucht dieses Problem umzugehen, indem sie zuerst nur einige Parameter variiert, und dann die gefundenen Werte als Startwerte für die eigentliche Anpassung mit allen Parametern benutzt haben [175]. Im Rahmen dieser Dissertation werden feste Werte für Barrierenhöhen angenommen und in der Anpassungsprozedur nur die Barrierenbreiten angepasst. Wie im Abschnitt 5.1 beschrieben wurden für Vakuum 5 eV und für Al_2O_3 1.53 eV Barrierenhöhe ermittelt. Außerdem wird hier auch die Bildkraft berücksichtigt, was wegen der verschiedenen Dielektrizitätskonstanten von Aluminiumoxid und Vakuum wichtig ist. Dies hat zur Folge, dass sich die effektiven Höhen der Barrieren stark ändern. Bereits in der Abb. 5.14 wurde dies gezeigt. Während sich die effektive Höhe der Al_2O_3 -Barriere nach der Einführung der Bildkräfte nur unwesentlich ändert, wird der Vakuumteil der Barriere fast halbiert. Deswegen werden alle Berechnungen in dieser Arbeit mit Berücksichtigung der Bildkräfte durchgeführt.

Links in der Abb. 5.21 sind zwei simulierte Strom-Spannungs-Kurven gezeigt für je 2 Kobaltelektroden getrennt durch Vakuum, bzw. Aluminiumoxid. Die Barrierenbreiten für beide Kurven sind so ausgewählt, dass bei -1.5 V Spannung ein Strom -0.5 nA fließt. Rechts ist der differentielle Leitwert gezeigt. Während für Vakuumbarriere der differentielle Leitwert bei -1.5 V lediglich ca. doppelt so groß ist als bei 0 V, ist er für die Oxid-Barriere entsprechend ca. 12 mal größer. Aus diesem sieht man, dass sich der differentielle Leitwert hervorragend dazu eignet, die verschiedenen Barrieren zu unterscheiden. Wie im letzten Abschnitt festgestellt, ist es nicht möglich mit Hilfe von CCM-Bildern die verschiedenen Materialien an der Probenoberfläche zu unterscheiden. Falls es jedoch möglich wäre gleichzeitig mit dem CCM-Signal auch den differentiellen Leitwert aufzunehmen, würde das die Tunnelbarriere identifizieren und dadurch auch das Material auf der Probenoberfläche. Die Möglichkeit auf jedem Punkt des CCM-Bildes zusätzlich noch eine IU -Kurve aufzunehmen ist nicht neu und wird als CITS bezeichnet (s. Abschnitt 2.2.2). In dieser Arbeit

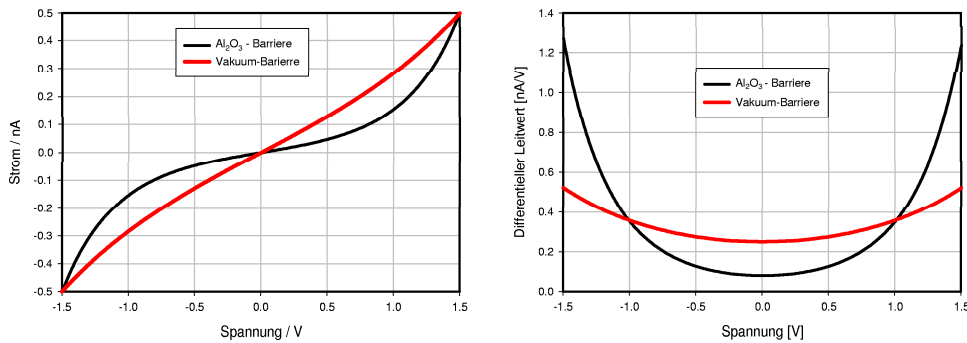


Abbildung 5.21: Links simulierte Strom-Spannungskurven, rechts differentieller Leitwert errechnet durch numerische Ableitung der Kurven auf dem linken Bild. Zuordnung der Kurven: s. oben

wird aber eine andere Methode benutzt, die es ermöglicht den differentiellen Leitwert für lediglich einen Spannungswert mit der Lock-In Technik zu messen. Näheres zu diesem Verfahren befindet sich ebenfalls im Abschnitt 2.2.2. Zu der konstanten Bias-Spannung wird eine Sinusspannung mit Frequenz 1.9 kHz und Peak-to-Peak Amplitude 300 mV addiert. Die Komponente des Tunnelstroms mit 1.9 kHz ist dann proportional zum differentiellen Leitwert. Es bleibt dabei zu beachten, welche Bias-Spannung man wählt. Wie man in der Abb. 5.21 rechts sieht, bei ca. ± 1 V ist der Leitwert für Oxid- und Vakuumbarriere gleich. Deswegen würde die Messung bei ± 1 V zu keinen Erkenntnissen bezüglich der Barriere führen. Aus diesem Grund werden die meisten CCM-Messungen in dieser Arbeit bei -1.5 V durchgeführt, wo der Leitwert für die Oxidbarriere mehr als zwei mal größer ist als für eine reine Vakuumbarriere.

Wie nützlich die Auswertung des zusätzlichen Leitwert-Signals ist, zeigt die nächste Abb. 5.22. Unter a) ist links ein CCM-Bild für eine Aluminiumoxid-schicht auf Kobalt zu sehen. Etwa in der Mitte des Bildes ist ein scharfer Sprung zu sehen. Die Details sind auf dem Linienprofil rechts zu sehen. Dass es sich hier nicht (zumindest nicht ausschließlich) um eine Topographieänderung handelt, beweist das Bild des differentiellen Leitwertes in b). Auf dem Linienprofil rechts ist deutlich zu sehen, dass die scheinbare Topographieerhöhung mit einer starken Senkung des differentiellen Leitwertes korreliert ist. In der Abb. 5.21 wird gezeigt, dass bei -1.5 V ein kleinerer differentieller Leitwert der metallischen Probe und Vakuumbarriere entspricht. Vereinfachend bedeutet dies, je kleiner der Leitwert desto dünner die isolierende Oxidschicht (es ist wichtig hier nicht zu vergessen, dass es sich hier um Doppelbarrieren handelt, die bei -1.5 V denselben Strom aufweisen). Deswegen kann man die Situation in Abb. 5.22 so interpretieren, dass die STM-Spitze sich zurückgezogen hat, weil im Oxid plötzlich ein Kanal mit hoher Leitfähigkeit eröffnet wurde. Auch in der Literatur wurde von STM-Experimenten gemeldet, wo es zu spontaner oder auch kontrollierter reversibler Leitfähigkeitsänderungen im Oxid gekommen ist [58, 64].

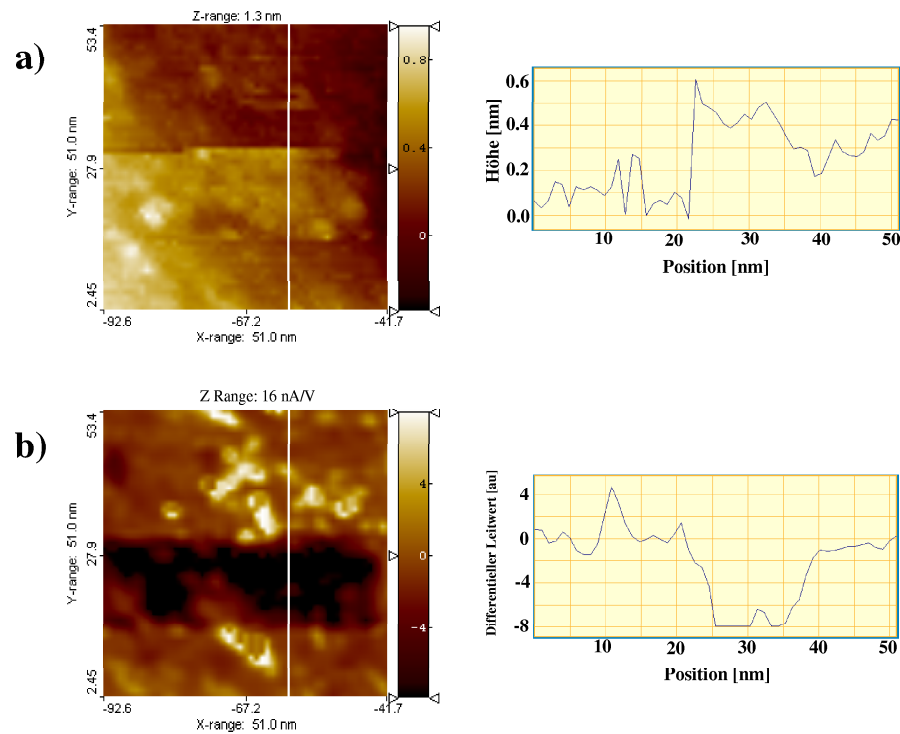


Abbildung 5.22: Eine scheinbare Topographieänderung im STM-Bild. Probe: $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Co}(10 \text{ nm})/\text{AlO}_x(1.4 \text{ nm})$, untersucht *ex situ*, Al 10 Minuten lang an Luft oxidiert. Spannung -1.5 V , Strom: -0.5 nA . Links das Bild und rechts ein Profil an derselben Stelle, wie jeweils von der weißen Linie gekennzeichnet; a) scheinbare Topographie im CCM-Bild, b) differentieller Leitwert. Der Vergleich beider Profile zeigt, dass die scheinbare Topographieerhöhung mit einer starken Senkung des differentiellen Leitwertes verbunden ist. Das bedeutet, dass sich die STM-Spitze zurückgezogen hat, weil plötzlich im Oxid ein Kanal mit hoher Leitfähigkeit eröffnet wurde. Für ein Beispiel von differentiellen Leitwerten für einen Isolator und Metall im STM s. Abb. 5.21.

Die Abb. 5.23, 5.24 beweisen, wie gut sich die experimentell aufgenommene Strom-Spannungs-Kurven mit dem gewählten Modell beschreiben lassen. In

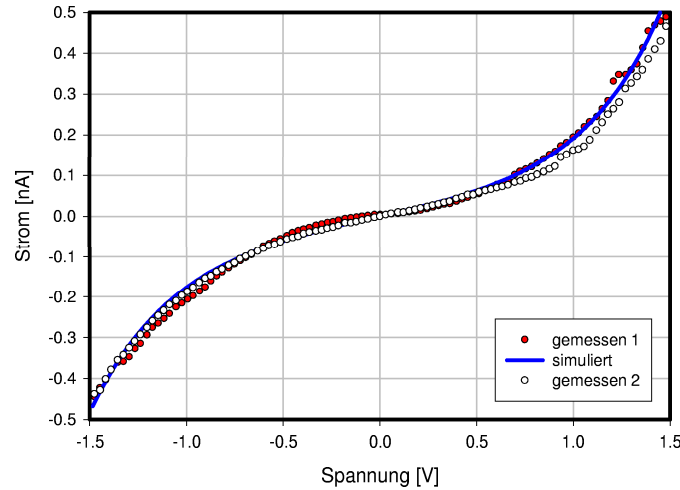


Abbildung 5.23: Zwei an verschiedenen Stellen aufgenommene experimentelle IU Kurven (Punkte und Kreise). Probe: $Si/SiO_2/Co(10\text{ nm})/AlO_x(1.4\text{ nm})$, untersucht *ex situ*, Aluminium 10 Tage lang an Luft oxidiert. Eine simulierte Kurve (Linie) mit Barrierenparametern: Dicke der AlO_x -Schicht 0.75 nm , Höhe 1.58 eV , Dicke der Vakuumbarriere 0.24 nm , Höhe 5 eV . Effektive Tunnelfläche für die simulierte Kurve $1 \times 1\text{ nm}^2$.

der Abb. 5.23 sind zwei experimentelle Kurven zu sehen, die auf verschiedenen Stellen einer Aluminiumoxidschicht auf Kobalt aufgenommen wurden. Auf dem Graph ist auch eine simulierte IU -Kurve dargestellt. Die simulierte Kurve wurde für eine Doppelbarriere berechnet: Al_2O_3 mit 0.75 nm Breite, 1.58 eV Höhe und Vakuum entsprechend 0.24 nm und 5 eV . Die Breiten der beiden Teilbarrieren wurden variiert, um die beste Anpassung zu bekommen. Die Barrierenhöhen wurden dagegen konstant gehalten (s. Abschnitt 5.1). Für die Berechnung der Strom-Spannungs-Charakteristik wurde eine Tunnelfläche von 1 nm^2 angenommen. Die beiden experimentellen Spektren stimmen sehr gut mit den simulierten überein. Auch im Falle einer reinen Vakuumbarriere ist eine sehr gute Übereinstimmung sichtbar (Abb. 5.24). Die beste Anpassung wurde hier für 0.69 nm Breite gefunden. Diese Spektren zeigen ein für hohe und dünne Barriere typisches fast ohmsches Verhalten. Die in Abb. 5.23, 5.24 gezeigten IU -Spektren sind typisch entsprechend für die hier untersuchten Aluminiumoxid oder Kobalt Proben. Allerdings wurden im Falle von Aluminiumoxid auch einige wenige IU -Spektren beobachtet, deren Form sich von den typischen Spektren unterschied. Ein Beispiel für so eine Kurve ist in Abb. 5.25 gezeigt. Dieses Spektrum wurde auf einer plasmaoxidierten Al-Probe aufgenommen. Die Kurve lässt sich mit dem hier angenommenen Wert 1.58 eV der Barrierenhöhe für Aluminiumoxid nicht anfitten. Die einzige Lösung in dem Fall war auch die Barrierenhöhe anzupassen. Als Ergebniss der besten Anpassung wurde eine Doppelbarriere mit

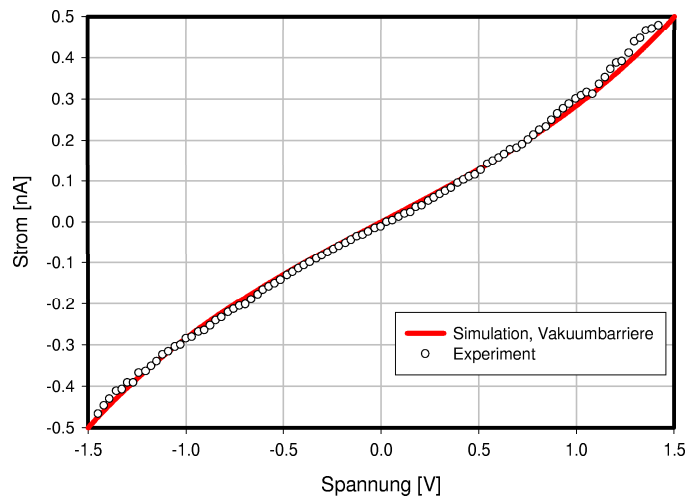


Abbildung 5.24: Eine experimentelle (Kreise) und eine simulierte (Linie) IU-Kurve. Probe: $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Co}(10 \text{ nm})$, untersucht *in situ*. Effektive Tunnelfläche für die simulierte Kurve $1 \times 1 \text{ nm}^2$, Barriere: Vakuum mit 0.69 nm Dicke und 5 eV Höhe.

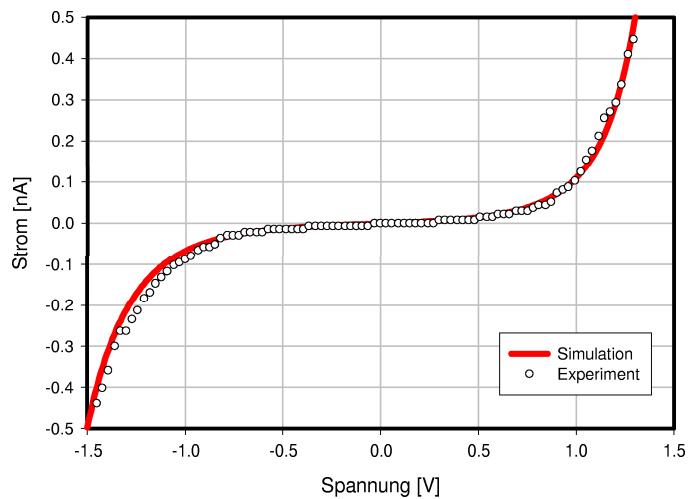


Abbildung 5.25: Eine experimentelle (Kreise) und eine simulierte (Linie) IU-Kurve. Probe: $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Co}(10 \text{ nm})/\text{AlO}_x(1.4 \text{ nm})$, untersucht *ex situ*, Al plasmaoxidiert. Effektive Tunnelfläche für die simulierte Kurve $1 \times 1 \text{ nm}^2$, Barriere: AlO_x mit 0.9 eV Höhe und 1.06 nm Dicke, Vakuum mit 5 eV Höhe und 0.29 nm Dicke. Diese experimentelle Kurve lässt sich nur mit veränderten Barriereparametern anfitzen.

folgenden Parametern erhalten: für Aluminiumoxid-Teilbarriere 0.9 eV Höhe und 1.06 nm Breite, für die Vakuumteilbarriere entsprechend 5 eV und 0.29 nm. Die gefundene Barrierenhöhe ist um ca. 50 % kleiner als sonst in dieser Arbeit angenommen. Es weist daraufhin, dass sich nicht nur Al_2O_3 , sondern auch nichtstöchiometrisches AlO_x gebildet hat.

Es wurde untersucht, ob es Variationen des Leitwertes auf einer metallischen Probe gibt. Dazu wurden Kobalt-Schichten aufgedampft. Auch die STM-Spitzen wurden *in situ* mit Kobalt bedampft. Da alle Vorgänge im UHV stattfanden kann die Bildung von Oxiden ausgeschlossen werden. In Abb. 5.26 a) ist ein typisches CCM-Bild einer Kobalt-Schicht zu sehen. Direkt darunter (Abb.

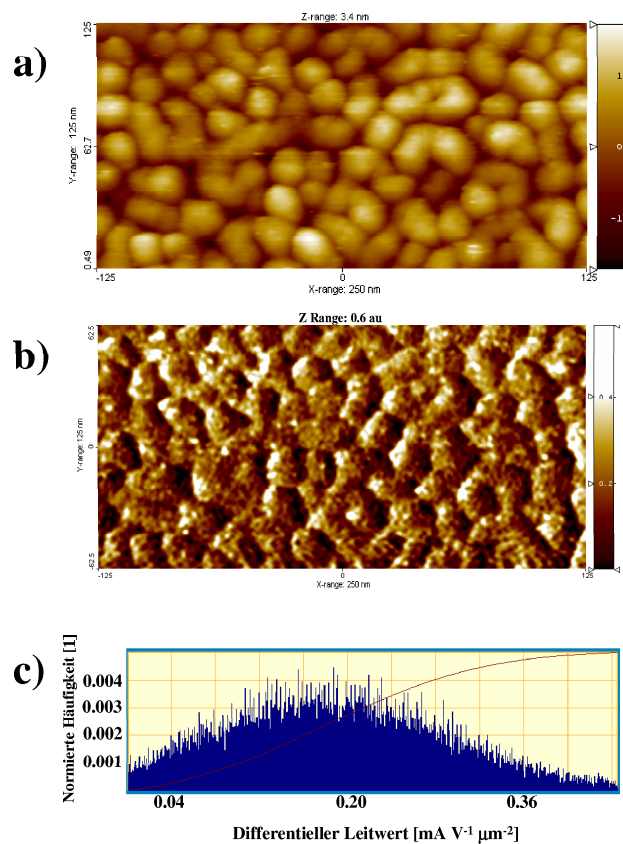


Abbildung 5.26: $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Co}(10 \text{ nm})$, untersucht *in situ*; a) ein CCM-Bild, Strom -0.1 nA , Spannung -1.5 V , b) dazugehöriges Bild des differentiellen Leitwertes aufgenommen mit der Lock-In Technik, c) Histogramm vom differentiellen Leitwert. Die rote Linie ist die integrale Kurve. Wie auf dem Histogramm zu sehen beträgt der mittlere Leitwert ca. $0.2 \text{ mA}/(\text{V} \mu\text{m}^2)$. Variationen des Leitwertes sind mit der Topographie korreliert und könnten durch verschiedene Stromflussgeometrien verursacht werden. Für eine AlO_x -Probe ist (bei denselben Messparametern) der mittlere Leitwert mehrfach größer, was auch von den Berechnungen vorausgesagt wird.

5.26b) ist der differentielle Leitwert bei -1.5 V zu sehen. Es ist auffallend, dass erstens der Leitwert nicht konstant ist und zweitens sehr stark mit der Topographie korreliert ist. Dieses kann durch die verschiedenen Stromflussgeometrien verursacht werden. In Abb. 5.26c ist ein Histogramm des Leitwertes zu sehen. Der mittlere Leitwert beträgt ca. $0.2\text{ mA}/(\mu\text{m}^2\text{V})$. Für die Proben mit Aluminiumoxid ist der mittlere Leitwert größer, was auch von den Berechnungen der IU -Spektren für Vakuum und Doppelbarrieren vorausgesagt wird.

5.4 Bestimmung der Oxiddicke

Wie im vorhergehenden Abschnitt gezeigt, lassen sich die Kobalt- und Aluminiumoxid-Stellen auf der Probenoberfläche anhand des differentiellen Leitwertes unterscheiden. Es stellt sich dann auch die Frage, ob es möglich ist, zwischen Stellen verschiedener Dicke der Oxidschicht zu unterscheiden. Um diese Frage zu beantworten wird die Abhängigkeit des differentiellen Leitwertes bei -1.5 V von der Dicke der Oxid-Teilbarriere ausgerechnet, bei der Bedingung, dass bei -1.5 V immer -0.5 nA fließen (Abb. 5.27). Tatsächlich ist

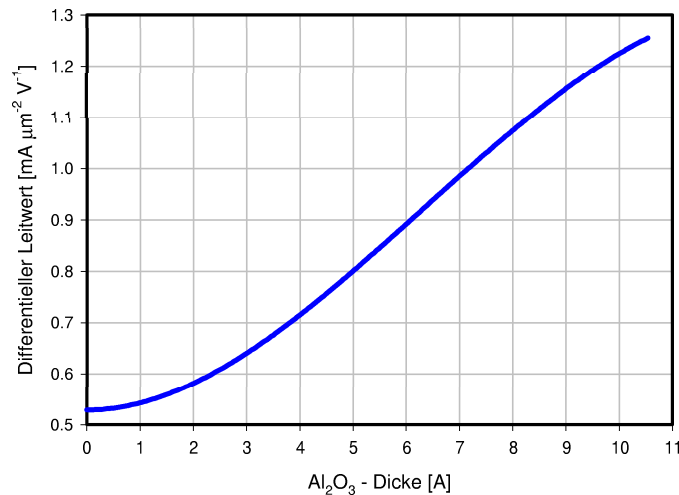


Abbildung 5.27: Berechneter differentieller Leitwert in Abhängigkeit von der Dicke der Aluminiumoxidschicht. Effektive Tunnelfläche $1 \times 1\text{ nm}$, Tunnelstrom bei -1.5 V gleich -0.5 nA .

jeder Dicke der Oxidschicht eindeutig ein Wert des differentiellen Leitwertes zugeordnet. Es ist auch erwähnenswert, dass diese Abhängigkeit einen nahezu linearen Verlauf in der Mitte des Diagramms hat, wo die Teilbarrieren Vakuum und Oxid annähernd die gleichen Breiten haben. Eine starke Abweichung von der Linearität ist dagegen für kleine und große Dicken des Oxids zu sehen. Für die Dicke der Oxidschicht gleich 0 Å besteht die ganze Barriere aus Vakuum, und für ca. 10.5 Å besteht die ganze Barriere ausschließlich aus Aluminiumoxid. Für größere Dicken des Aluminiumoxids, bzw. Vakuumbarriere fließt bei -1.5 V ein Tunnelstrom, der kleiner ist als 0.5 nA . Mit Hilfe der Messung des

differentiellen Leitwertes ist es also möglich, nicht nur die relative Differenz der Dicken der Aluminiumoxid-Schicht zu bestimmen, sondern auch den absoluten Wert der Dicke der Oxidschicht, wenn die Tunnelfläche bekannt ist. Während der Aufnahme eines CCM-Bildes wird mit Lock-In auch der differentielle Leitwert gemessen. Dieser Leitwert kann dann direkt anhand der in der Abb. 5.27 gezeigten Abhängigkeit in die Dicke der Aluminiumoxid-Schicht umgerechnet werden. Es ist prinzipiell auch möglich, an jeder Stelle des Bildes eine ganze IU -Kurve aufzunehmen. Das würde aber viel Zeit in Anspruch nehmen, und außerdem muss die Abstandsregelung für die Zeit der Spektrenaufnahme ausgeschaltet werden. Dadurch wäre die Gefahr groß, dass es an irgendeinem Punkt des Bildes zum Tipcrash kommt. Obwohl eine IU -Kurve an jeder Stelle des Bildes viel mehr Informationen liefern würde, wurde aus oben genannten Gründen das Experiment doch auf die Lock-In Technik beschränkt. Eine sehr wichtige Annahme ist dabei, dass die Barrierenhöhe der Oxidschicht überall gleich sei. Nur auf diese Weise kann eine eindeutige Zuweisung der Oxiddicke zu einem bestimmten Leitwert erfolgen. Sollte doch eine andere Barrierenhöhe als die angenommene vorkommen, würde die Auswertung zu einer falschen Barrierendicke führen. Dieses Problem ist in der Literatur bekannt, und deswegen wird oft von der effektiven elektrischen Dicke gesprochen an Stelle der physikalischen Dicke [159, 178]. Dass es Stellen mit verschiedenen Barrierenhöhen gibt, wurde bereits in der Abb. 5.25 gezeigt. In diesem Fall ist aber der differentielle Leitwert bei -1.5 V größer als der Grenzwert von ca. $1.25 \text{ mA}/(\mu\text{m}^2\text{V})$. Dadurch können solche Stellen sofort erkannt werden, als eine Stelle mit einer nicht physikalischen Dicke des Oxids (für die angenommenen 1.58 eV Barrierenhöhe). Dies bedeutet, dass obwohl die Messung des Leitwertes für nur eine bestimmte Bias-Spannung keine Möglichkeit bietet, gleichzeitig Barrierenhöhe und Breite zu bestimmen, es doch möglich ist zu beurteilen, ob die Barrierenhöhe stark variiert. Es bestehen also mindestens zwei Möglichkeiten zu prüfen, ob eine bestimmte Probe eine breite Verteilung der Barrierenhöhe aufweist. Erstens können an einigen ausgewählten Stellen IU -Spektren aufgenommen und ausgewertet, d.h. die Barrierenparameter bestimmt werden. Zweitens, wie bereits erwähnt, kann man den Anteil der Stellen mit unphysikalischen (für die angenommene Barrierenhöhe) Leitwerten im Leitwertbild bestimmen.

Im Kontrast zu dem so stark mit der Topographie korrelierten Leitwert, gemessen auf einer metallischen Probe (s. Abb. 5.26), stehen die Messungen auf Oxiden. In der Abb. 5.28 ist eine typische CCM-Aufnahme und ein Histogramm einer Aluminiumoxidschicht auf Kobalt zu sehen. Es ist leicht zu erkennen, dass während der Bildaufnahme noch Drift vorhanden ist, was die Verzerrung des Bildes verursacht. Diese Tatsache bleibt aber ohne nennenswerte Folgen für die Auswertung und Vergleich der Topographie- und Leitwertbilder. In der nächsten Abb. 5.29 ist das Bild des differentiellen Leitwertes vorgestellt, welches zusammen mit dem CCM-Bild aus der Abb. 5.28 aufgenommen wurde. Es ist auf den ersten Blick erkennbar, dass die so starke Korrelation mit der Topographie hier nicht mehr vorhanden ist. Der Leitwert ist jetzt nur teilweise mit der Topographie korreliert. Das bedeutet, dass an den Stellen ohne Korrelation die elektrischen Eigenschaften der Oxidschicht dominieren. Der Vergleich der beiden Histogramme (Abb. 5.28b und 5.29b) zeigt, dass die Werteverteilung

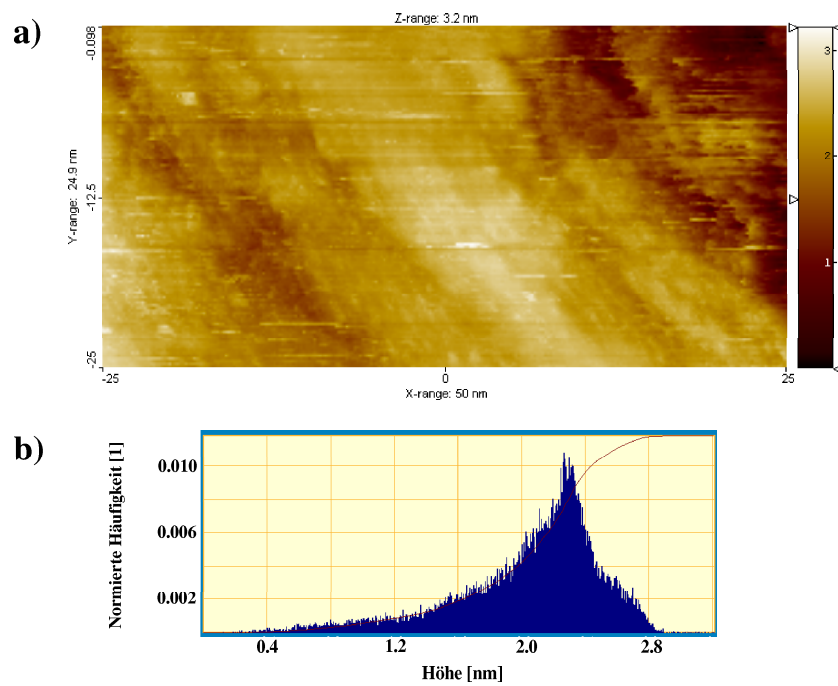


Abbildung 5.28: $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Co}(10 \text{ nm})/\text{AlO}_x(1.4 \text{ nm})$, untersucht *ex situ*, Al 10 Minuten lang an Luft oxidiert; a) ein CCM-Bild, Strom -0.1 nA , Spannung -1.5 V , b) dazugehöriges Histogramm. Die rote Linie ist die integrale Kurve.

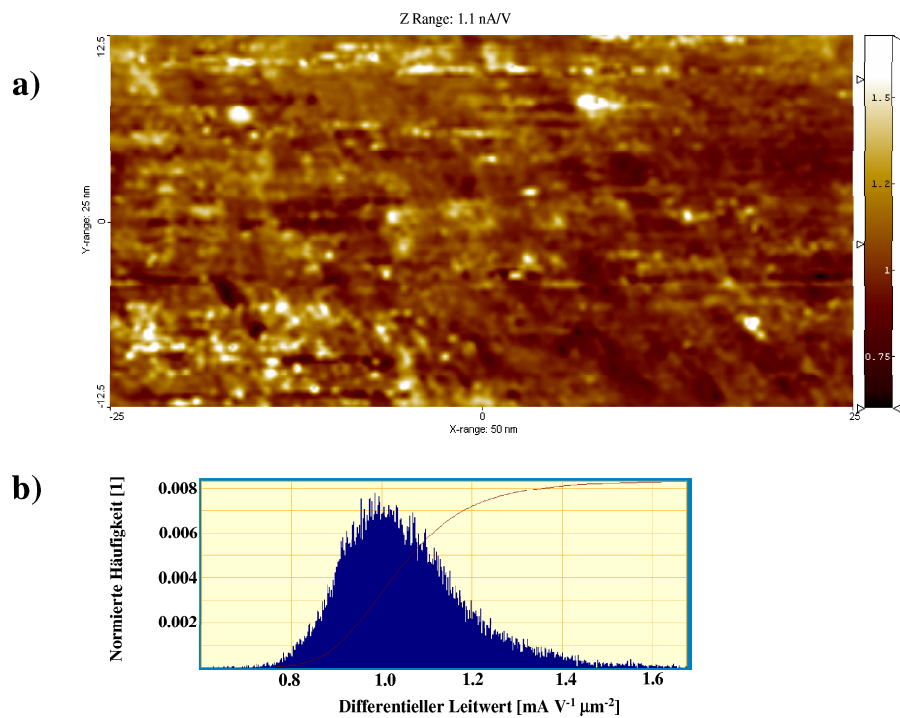


Abbildung 5.29: $\text{Si}/\text{SiO}_2/\text{Co}(10 \text{ nm})/\text{AlO}_x(1.4 \text{ nm})$, untersucht *ex situ*, Al 10 Minuten lang an Luft oxidiert; a) Differenzieller Leitwert, mitaufgenommen mit dem CCM-Bild gezeigt in der Abb.5.28, b) dazugehöriges Histogramm. Die rote Linie ist die integrale Kurve.

der Topographie und des Leitwertes tatsächlich einen eindeutig anderen Verlauf haben. Mit Hilfe dieses Histogramms ist es auch möglich, den Anteil der Stellen zu bestimmen, deren Leitwert größer ist als der maximale berechnete (s. Abb. 5.27). Das sind dann die Stellen, wo das Oxid eine andere Barrierenhöhe aufweist als die angenommenen 1.58 eV. Damit kommt man zum Ergebnis dass 91 % aller gemessenen Leitwerte in dem Bereich liegen, der mit Rechnungen vorausgesagt wird, und nur 9 % außerhalb. Dieses Ergebnis berechtigt die Nutzung der hier angewendeten Methode der Messung nur eines Wertes des differentiellen Leitwertes und bestätigt gleichzeitig die Plausibilität der ausgerechneten Barrierenhöhe für Aluminiumoxid.

Alle Leitwerte aus der Abb. 5.29 wurden in die Dicken des Aluminiumoxids umgerechnet (für die entsprechende Abhängigkeit s. Abb. 5.27) und in der Abb. 5.30 vorgestellt. Unter b) ist ein Histogramm dargestellt, das es ermöglicht, auf

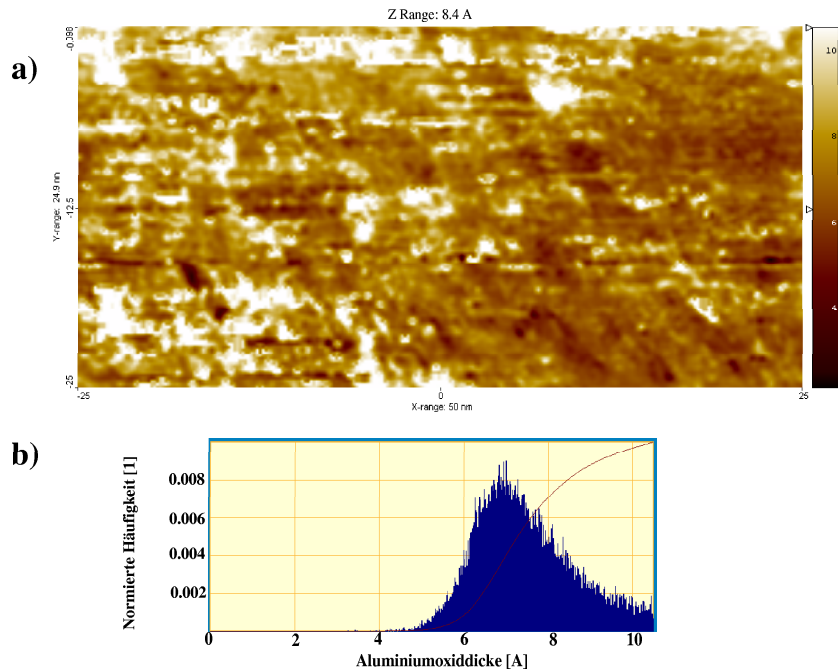


Abbildung 5.30: $Si/SiO_2/Co(10\text{ nm})/AlO_x(1.4\text{ nm})$, untersucht *ex situ*, Al 10 Minuten lang an Luft oxidiert; a) die Dicke der Aluminiumoxidschicht umgerechnet aus dem differentiellen Leitwert gezeigt in der Abb. 5.29, b) dazugehöriges Histogramm. Die rote Linie ist die integrale Kurve.

einfache Weise die Verteilung der Dicken der oxidierten Aluminiumschicht zu beurteilen. Es ist beispielsweise sehr gut zu sehen, dass es keine nicht oxidierten Stellen gibt. Ein starker Anstieg der kumulierten Kurve beginnt bei ca. 5 Å. Der wahrscheinlichste Wert der Oxiddicke beträgt ca. 7 Å. Der Mittelwert ist etwas größer aufgrund der Asymmetrie der Dickenverteilung. Da die aufgetragene Aluminiumschicht 1.4 nm dick war, ist es offensichtlich, dass sie nicht ganz durchoxidiert wurde. Nimmt man den Multiplikationsfaktor von 1.4 für die

Dicke der Aluminiumschicht nach der Oxidation, ergibt das, dass im Schnitt nur ca. 5 Å reines Al oxidiert wurden. Auch im Kapitel 3 wurde (im Falle von aufgedampften und anschließend natürlich oxidierten Aluminiumschichten) mittels makroskopischer *in situ* Messung des elektrischen Leitwertes festgestellt, dass unabhängig von der Al-Dicke nominell nur 0.5 nm oxidieren. Die meisten (ca. 85 %) Oxiddicken liegen zwischen 6 und 10 Å. Auf dem Leitwertbild ist auch sichtbar, dass die meisten Stellen mit den größten Oxiddicken nicht getrennt (d.h. als Peaks) auftreten, sondern größere Flecken bilden.

Darüber hinaus wurde ausgerechnet, welchen Anteil des Gesamtstromes die Teilen der Oberfläche mit bestimmten Dicken des Aluminiumoxids liefern (Abb. 5.31), vorausgesetzt die untersuchte Barriere würde in einem planaren Tunnel-element (z. B. Co/Al₂O₃/Co) eingesetzt. Da sich in diesem Falle um eine

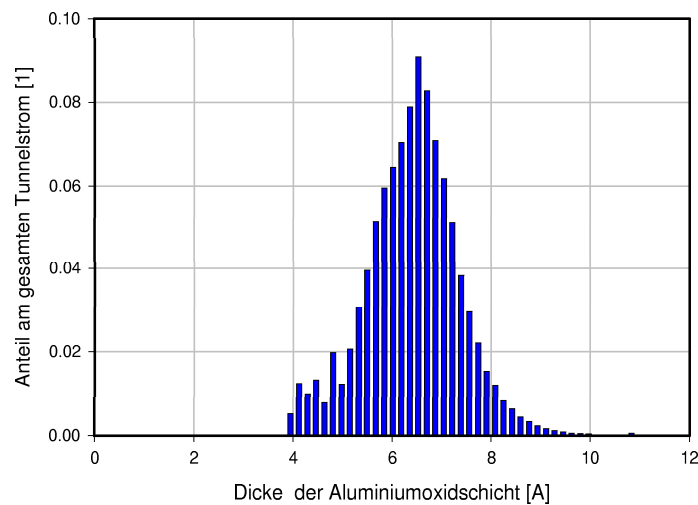


Abbildung 5.31: Anteil der Stellen der Barriere mit bestimmten Al₂O₃-Dicken am gesamten Tunnelstrom (s. dazu auch Abb. 5.30). Der Tunnelstrom ist normiert, d. h. der Strom durch die ganze Fläche beträgt 1.

einfache Barriere handelt und nur die relativen Werte vom Interesse waren, wurde hier die vereinfachte Gl. 2.10 $I \sim \exp(-1.025 d\sqrt{\varphi})$ benutzt. Die starke exponentielle Abhängigkeit des Stromes von der Barrierendicke verursacht gravierende Unterschiede in beiden Histogrammen 5.30, 5.31. Es fällt beispielsweise auf, dass die Maxima verschoben sind. Die Stellen der Barriere mit der Dicke des Aluminiumoxids kleiner als 6 Å stellen nur ca. 4 % der gesamten Fläche dar. Sie können jedoch auf keinen Fall vernachlässigt werden, weil sie zum großen Teil den Tunnelstrom bestimmen. Durch diese wenige Stellen fließen nämlich ca. 35 % vom Gesamtstrom. Im starken Kontrast dazu stehen die Stellen der Barriere, wo das Aluminiumoxid dicker ist als 8 Å. Obwohl diese Stellen ca. 40 % der gesamten Fläche ausmachen, nehmen sie mit nur 4 % vom Gesamtstrom am Tunnelprozess so gut wie nicht teil.

DA COSTA et al. [179] haben mit einem leitfähigen AFM (c-AFM) Kobaltoxid auf Kobalt untersucht. Auch sie haben festgestellt, dass die Dicke der

CoO_x-Barriere nicht überall gleich ist und mit Standardabweichung $\sigma = 1 \text{ \AA}$ variiert. Die experimentelle Verteilung der Tunnelströme wurde dort erfolgreich mit einem statistischen Modell [180] angepasst. Die Analyse der experimentellen Daten hat ergeben, dass nur einige wenige Stellen den Tunnelstrom bestimmen (50 % des Stromes fließen durch 9 % der Fläche). In einer späteren Arbeit untersuchten DA COSTA et al. [181] auch Al₂O₃-Barrieren auf Co. Sie konnten Unterschiede in der lateralen Stromverteilung von 2 unterschiedlich oxidierten Proben feststellen. Ebenfalls Al₂O₃ auf Co mit dem c-AFM hat OLBRICH untersucht [159]. Auch dort wurden sehr große Variationen des Tunnelstromes für gute homogene Barrieren festgestellt. OLBRICH hat auch eine ausführliche Analyse der möglichen Unsicherheiten bei der Bestimmung der absoluten und relativen Oxiddicken anhand von *IU*-Spektren und Strombildern durchgeführt.

Die Messungen der elektrischen Eigenschaften der Barriere und Bestimmung der Barrierendicke mittels STM/STS (wie in dieser Arbeit) haben einen großen Vorteil gegenüber dem c-AFM (wie z. B. in [159, 179, 181, 182]), da im STM/STS-Experiment kein mechanischer Kontakt zwischen Probe und Sonde besteht. Dies hat beispielweise zu Folge, dass man als Sonde beliebige leitfähige Materialien benutzen kann. Beim AFM dagegen werden viele Beschichtungen einfach abgerieben. So konnte in dieser Arbeit die Sonde mit Co beschichtet werden so, dass ein Tunnelement mit zwei Co-Elektroden entstand (analog zu vielen planaren TMR-Elementen). In c-AFM-Experimenten werden dagegen z.B. stark dotierte Diamantsonden [159] benutzt. Ein Nachteil der STM/STS-Methode ist, dass sie aufwändiger ist. Sowohl die experimentelle Durchführung, als auch die Auswertung der Messergebnisse sind (aufgrund der doppelten Oxid-Vakuum-Barriere) schwieriger.

In diesem Kapitel wurde gezeigt, dass die experimentellen *IU*-Spektren sehr gut mit den anhand eines einfachen 1D Modelles berechneten Spektren übereinstimmen. Mit Hilfe von *IU*-Spektren konnten die Barrierenparameter (Höhe und Breite von jeweils Oxid und Vakuum) ermittelt werden. Es wurde gezeigt, dass es unter bestimmten Annahmen möglich ist, die absolute Dicke der Oxidschicht anhand nur eines Wertes des differentiellen Leitwertes zu bestimmen. Durch die Berücksichtigung der Bildkraft konnten auch im Falle von komplizierten Vakuum-Oxid-Barrieren realitätsnahe Barrierenparameter bestimmt werden. Zur Berechnung des Tunnelstromes wurde eine numerische Methode benutzt, die es ermöglicht, mit gleichem Aufwand beliebige Formen der Einfach- und Doppelbarrieren zu simulieren. Es wurde die Einsatzfähigkeit der vorgestellten Methode der lokalen Untersuchung von dünnen Oxidschichten bewiesen. Es konnte sowohl die mittlere Dicke der oxidierten (und nicht oxidierten) Aluminiumschicht ermittelt werden, als auch die absolute laterale Verteilung der Oxiddicke.

Kapitel 6

Zusammenfassung

In den letzten Jahren sind die Anforderungen an die Qualität dünner Isolatorschichten enorm gestiegen. Deswegen wurden in dieser Arbeit Methoden zur Untersuchung von wichtigen Eigenschaften solcher AlO_x -Tunnelbarrieren auf der Nanometerskala analysiert. Insbesondere konnte mittels STM/STS der dielektrische Durchbruch lokal untersucht und die Verteilung der Barrierendicke lateral aufgelöst bestimmt werden. Auch mittels makroskopischer *in situ* Leitfähigkeitsmessungen konnte die mittlere Dicke der oxidierten Schicht bestimmt werden. Für natürlich oxidiertes Aluminium wurde in beiden Fällen eine mittlere Dicke von ca. 5 Å Al bestimmt, die oxidiert wurde. Nachfolgend sind die erzielten Ergebnisse nochmal detailliert beschrieben.

In situ Messungen von elektrischen und magnetischen Eigenschaften der thermisch aufgedampften Co/ AlO_x /Py-Dreilager wurden durchgeführt. Es wurde gezeigt, dass für eine Al-Dicke von 1.2 nm ein Übergang vom stark ferromagnetisch gekoppelten Dreilager mit nur einer Hystereseschleife zu zwei getrennten Hystereseschleifen charakteristisch für schwach gekoppelte Co und Py Schichten stattfindet. Die Leitfähigkeitsmessungen während des Aufdampf- und Oxidationsvorgangs weisen darauf hin, dass unabhängig von der Al-Dicke nominell nur 0.5 nm Al oxidieren. Magnetische Hystereseschleifen der gelagerten Proben zeigen, dass die magnetische Trennung von Co und Py nach 24 Stunden nicht vollständig ist. Es deutet darauf hin, dass die tatsächliche isolierende Barriere nicht ausschließlich aus Al_2O_3 besteht, sondern aus einer Mischung aus Al_2O_3 und AlO_x . Diffusion von Sauerstoff aus den Al-Schichten und die nachfolgende Oxidation mit struktureller Reorganisation in der AlO_x Schicht kann zu der beobachteten Verbesserung der magnetischen Trennung von Co und Py führen.

Mittels STM wurde der dielektrische Durchbruch in AlO_x -Schichten auf Co untersucht. Der dielektrische Durchbruch wurde erfolgreich gezielt lokal induziert. Die Untersuchungen der Durchbruchstelle haben ergeben, dass die Strom-Spannungskennlinien einen typischen Verlauf für isolierende (vor dem Durchbruch) und metallische (nach dem Durchbruch) Schichten haben. Der Durchmesser einer Durchbruchstelle beträgt typischerweise ca. 25 nm und die virtuelle Höhe ca. 1 nm. Mit Hilfe eines einfachen 1D Modelles wurde gezeigt, dass die verschiedenen Durchbruchspannungen innerhalb einer Probe (mit nominell

gleicher Schichtdicke) auf lokale Schwankungen der Oxiddicke zurückzuführen sind.

Es wurde gezeigt, dass die experimentellen IU -Spektren, die mit dem STM aufgenommen wurden, sehr gut mit den anhand eines einfachen 1D Modelles berechneten Spektren übereinstimmen. Mit Hilfe von IU -Spektren konnten die Barrierenparameter (Höhe und Breite von jeweils Oxid und Vakuum) ermittelt werden. Es wurde gezeigt, dass es unter bestimmten Annahmen möglich ist, die absolute Dicke der Oxidschicht anhand nur eines Wertes des differentiellen Leitwertes zu bestimmen. Durch die Berücksichtigung der Bildkraft konnten auch im Falle von komplizierten Vakuum-Oxid-Barrieren realitätsnahe Barrierenparameter bestimmt werden. Zur Berechnung des Tunnelstromes wurde eine numerische Methode benutzt, die es ermöglicht, mit gleichem Aufwand beliebige Formen der Einfach- und Doppelbarrieren zu simulieren. Es wurde die Einsatzfähigkeit der vorgestellten Methode der lokalen Untersuchung von dünnen Oxidschichten bewiesen. Es konnte sowohl die mittlere Dicke der oxidierten (und nicht oxidierten) Aluminiumschicht ermittelt werden, als auch die absolute laterale Verteilung der Oxiddicke. Mit Hilfe dieser Methode ist es möglich, die Homogenität der Oxidschicht zu beurteilen und so z. B. verschiedene Herstellungsverfahren miteinander zu vergleichen. Die Messungen der elektrischen Eigenschaften der Barriere und Bestimmung der Barrierendicke mittels STM/STS haben einen großen Vorteil gegenüber dem c-AFM, da es im STM/STS-Experiment keinen mechanischen Kontakt zwischen Probe und Sonde gibt. Dies hat zu Folge, dass man als Sonde beliebige leitfähige Materialien benutzen kann. Deswegen konnte in dieser Arbeit die Sonde mit Co beschichtet werden, so dass ein Tunnелеlement mit zwei Co-Elektroden entstand (analog zu planaren TMR-Elementen).

Literaturverzeichnis

- [1] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, and R. Meservey, Phys. Rev. Lett. **74**, 3273 (1995).
- [2] S. Mengel, *XMR-Technologien* (VDI-Technologiezentrum, 1997).
- [3] G. A. Prinz, J. Magn. Magn. Mater. **200**, 57 (1999).
- [4] J. Wecker and J. Bangert, Nichtflüchtige Datenspeicherung mit magnetischen Tunnелеlementen: Das Magnetic Random Access Memory (MRAM), in *Magnetische Schichtsysteme*, Forschungszentrum Jülich, 1999.
- [5] Motorola, Inc., Pressemitteilung, www.motorola.com.
- [6] G. Bayreuther and S. Mengel, *Magnetoelektronik, Grundlagenforschung-Zukunftstechnologie?* (VDI-Technologiezentrum, 1998).
- [7] E. Schrödinger, Annalen der Physik **79**, 361 (1926).
- [8] R. H. Fowler and L. Nordheim, Proc. Roy. Soc. **A119**, 173 (1928).
- [9] L. Esaki, Phys. Rev. **109**, 603 (1958).
- [10] I. Giaever, Phys. Rev. Lett. **5**, 147 (1960).
- [11] R. C. Jaklevic and J. Lambe, Phys. Rev. Lett. **17**, 1139 (1966).
- [12] J. G. Simmons, J. Appl. Phys. **34**, 238 u. 1793 (1963).
- [13] R. Young, J. Weird, and R. Scire, Rev. Sci. Instrum. **34**, 999 (1972).
- [14] G. Binnig and H. Rohrer, Helv. Phys. Acta **55**, 726 (1982).
- [15] E. H. Wichmann, *Quantum Physics - Berkeley Physics Course - Volume 4* (mcgraw-hill book company, New York, 1971).
- [16] P. H. Dederichs, Spinabhängiges Tunneln, in *Magnetische Schichtsysteme*, Forschungszentrum Jülich, 1999.
- [17] A. Sommerfeld and H. Bethe, *Handbuch der Physik*, ed. by H. Geiger, K. Schell (Julius Springer Verlag, Berlin, 1933).
- [18] W. A. Harrison, Phys. Rev. **123**, 85 (1961).

- [19] W. F. Brinkman, R. C. Dynes, and J. M. Rowell, *J. Appl. Phys.* **41**, 1915 (1970).
- [20] J. G. Simmons, Image Force in Metal-Oxide-Metal Tunnel Junctions, in *Tunneling Phenomena in Solids*, Plenum Press New York, 1969.
- [21] R. Becker and F. Sauter, *Theorie der Elektrizität* (B. G. Teubner, Stuttgart, 1973).
- [22] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, and E. Weibel, *Phys. Rev. Lett.* **50**, 120 (1983).
- [23] F. Besenbacher, *Rep. Prog. Phys.* **59**, 1737 (1996).
- [24] D. A. Bonnell, Microscope Design and Operation, in *Scanning Tunneling Microscopy and Spectroscopy. Theory, Techniques, and Applications*, VCH Publishers, Inc., New York, 1993.
- [25] D. W. Pohl, *IBM J. Res. Dev.* **30**, 417 (1986).
- [26] Y. Kuk and P. J. Silverman, *Rev. Sci. Instrum.* **60**, 165 (1989).
- [27] R. Wiesendanger, *Scanning Probe Microscopy and Spectroscopy* (Cambridge University Press, Cambridge, 1994).
- [28] Y. Kuk, P. J. Silverman, and H. Q. Nguyen, *J. Vac. Sci. Technol. A* **6**, 524 (1988).
- [29] J. Tersoff and D. R. Hamann, *Phys. Rev. Lett.* **50**, 1998 (1983).
- [30] J. Tersoff and D. R. Hamann, *Phys. Rev. B* **31**, 805 (1985).
- [31] N. D. Lang, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 230 (1985).
- [32] N. D. Lang, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 1164 (1986).
- [33] N. D. Lang, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 45 (1987).
- [34] N. D. Lang, *Phys. Rev. B* **37**, 10395 (1988).
- [35] M. Tsukada, K. Kobayashi, N. Isshiki, and H. Kageshima, *Surf. Sci. Rep.* **13**, 265 (1991).
- [36] M. Tsukada, T. Shimizu, S. Watanabe, N. Isshiki, and K. Kobayashi, *Jpn. J. Appl. Phys.* **32**, 1352 (1993).
- [37] P. Sautet and C. Joachim, *Chem. Phys.* **135**, 99 (1989).
- [38] G. Doyen, D. Drakova, and M. Scheffler, *Phys. Rev. B* **47**, 9778 (1993).
- [39] A. Selloni, P. Carnevali, E. Tosatti, and C. D. Chen, *Phys. Rev. B* **31**, 2602 (1985).

- [40] R. J. Hamers, *Methods of Tunneling Spectroscopy with the STM*, in *Scanning Tunneling Microscopy and Spectroscopy. Theory, Techniques, and Applications*, VCH Publishers, Inc., New York, 1993.
- [41] R. Hamers, P. Avouris, and F. Bozso, *Phys. Rev. Lett.* **59**, 2071 (1987).
- [42] J. Stroscio, R. Feenstra, and A. Fein, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2579 (1986).
- [43] B. Reihl, J. Gimzewski, J. Nicholls, and E. Tosatti, *Phys. Rev. B* **33**, 5770 (1986).
- [44] R. Feenstra, J. Stroscio, and A. Fein, *Surf. Sci* **181**, 295 (1987).
- [45] R. Hamers, R. Tromp, and J. Demuth, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 1972 (1986).
- [46] G. Binnig and H. Rohrer, *Surf. Sci.* **157**, L373 (1985).
- [47] G. Binnig, K. Frank, H. Fuchs, N. Garcia, B. Reihl, H. Rohrer, F. Salvan, and A. Williams, *Phys. Rev. Lett.* **55**, 991 (1985).
- [48] J. H. Coombs and J. B. Pethica, *IBM J. Res. Dev.* **30**, 455 (1986).
- [49] G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, and E. Weibel, *Appl. Phys. Lett.* **40**, 178 (1982).
- [50] D. Smith, G. Binnig, and C. Quate, *Appl. Phys. Lett.* **49**, 1641 (1986).
- [51] D. Smith, M. Kirk, and C. Quate, *J. Chem. Phys.* **86**, 6034 (1987).
- [52] R. Feenstra and J. Stroscio, *J. Vac. Sci. Technol. B* **5**, 923 (1987).
- [53] D. A. Bonnell, *Prog. Surf. Sci.* **57**, 187 (1998).
- [54] A. M. Baro, G. Binnig, H. Rohrer, C. Gerber, E. Stoll, A. Baratoff, and F. Salvan, *Phys. Rev. Lett.* **52**, 1304 (1984).
- [55] R. Garcia, J. J. Saenz, and N. Garcia, *Phys. Rev. B* **33**, 4439 (1986).
- [56] R. C. Jaklevic, L. Elie, W. Shan, and J. T. Chen, *J. Vac. Sci. Technol. A* **6**, 448 (1988).
- [57] S. Heike, Y. Wada, S. Kondo, M. Lutwyche, K. Murayama, and H. Kuroda, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 1100 (1994).
- [58] H. Watanabe, K. Fujita, and M. Ichikawa, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 1987 (1998).
- [59] H. Watanabe, T. Baba, and M. Ichikawa, *J. Appl. Phys.* **85**, 6704 (1999).
- [60] S. Addepalli, B. Ekstrom, N. Magtoto, J. S. Lin, and J. Kelber, *Surf. Sci.* **442**, 385 (1999).
- [61] J. Libuda, F. Winkelmann, M. Bäumer, H.-J. Freund, T. Bertrams, H. Neddermeyer, and K. Müller, *Surf. Sci.* **318**, 61 (1994).

- [62] N. Magtoto, C. Niu, B. Ekstrom, S. Addepalli, and J. Kelber, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2228 (2000).
- [63] C. Dietrich, H.-G. Boyen, and B. Koslowski, *J. Appl. Phys.* **94**, 1478 (2003).
- [64] O. Kurnosikov, F. de Nooij, P. LeClair, J. Kohlhepp, B. Koopmans, H. Swagten, and W. de Jonge, *Phys. Rev. B* **64**, 153407 (2001).
- [65] A. C. Perrella, W. H. Rippard, P. G. Mather, M. J. Plisch, and R. A. Buhrmann, *Phys. Rev. B* **65**, 201403(R) (2002).
- [66] W. J. Kaiser, L. D. Bell, M. H. Hecht, and L. C. Davis, BEEM and the Characterization of Buried Interfaces, in *Scanning Tunneling Microscopy and Spectroscopy. Theory, Techniques, and Applications*, VCH Publishers, Inc., New York, 1993.
- [67] M. Prietsch, *Phys. Reports* **253**, 163 (1995).
- [68] W. Rippard, A. C. Perrella, and R. A. Buhrmann, *Appl. Phys. Lett.* **78**, 1601 (2001).
- [69] O. Kurnosikov, J. E. A. de Jong, H. Swagten, and W. de Jonge, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 1076 (2002).
- [70] Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (Oldenbourg, 1996).
- [71] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn, *Phys. Rev. B* **39**, 4828 (1989).
- [72] G. Reiss, H. Brückl, and A. Hütten, GMR Experimente, in *Magnetische Schichtsysteme*, Forschungszentrum Jülich, 1999.
- [73] K. Chahara, T. Ohno, M. Kasai, Y. Kanke, and Y. Kozono, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 780 (1993).
- [74] R. von Helmolt, J. Wecker, B. Holzapfel, L. Schultz, and K. Samwer, *Phys. Rev. Lett.* **71**, 2331 (1993).
- [75] A. Fert and C. Vouille, Magnetoresistance Overview: AMR, GMR, TMR, CMR, in *Magnetische Schichtsysteme*, Forschungszentrum Jülich, 1999.
- [76] A. Thomas, Dissertation, Universität Bielefeld, 2003.
- [77] D. Wang, C. Nordmann, J. M. Daughton, Z. Qian, and J. Fink, in Vorbereitung.
- [78] R. Meservey, P. M. Tedrow, and P. Fulde, *Phys. Rev. Lett.* **25**, 1270 (1970).
- [79] P. M. Tedrow and R. Meservey, *Phys. Rev. Lett.* **26**, 192 (1971).
- [80] M. Jullière, *Phys. Lett.* **54A**, 225f (1975).

- [81] R. Meservey, P. M. Tedrow, and J. S. Brooks, *J. Appl. Phys.* **53**, 1563 (1982).
- [82] G. A. Gibson and R. Meservey, *J. Appl. Phys.* **58**, 1584 (1985).
- [83] R. Meservey and R. Tedrow, *Phys. Rep.* **238**, 173 (1994).
- [84] T. Miyazaki and N. Tezuka, *J. Magn. Magn. Mater.* **139**, L231 (1995).
- [85] S. Kamugai, T. Yaoi, and T. Miyazaki, *J. Magn. Magn. Mater.* **166**, 71 (1997).
- [86] J. S. Moodera and G. Mathon, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 248 (1999).
- [87] Y. Suezawa, F. Takahashi, and Y. Gondo, *Jpn. J. Appl. Phys.* **31**, L1415 (1992).
- [88] R. Kabani, J. S. Moodera, and P. M. Tedrow, *Mater. Res. Soc. Ext. Abstr. EA* (1990).
- [89] J. Nowak and J. Rauluszkiewicz, *J. Magn. Magn. Mater.* **109**, 79 (1992).
- [90] P. LeClair, J. S. Moodera, and R. Meservey, *J. Appl. Phys.* **76**, 6546 (1994).
- [91] R. A. Lukaszew, Y. Sheng, C. Uher, and R. Clarke, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1941 (1999).
- [92] M. Sharma, J. H. Nickel, T. C. Anthony, and S. X. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2219 (2000).
- [93] C. L. Platt, B. Dieny, and A. E. Berkowitz, *J. Appl. Phys.* **81**, 5523 (1997).
- [94] J. Bardeen, *Phys. Rev. Lett.* **6**, 57 (1961).
- [95] S. Zhang and P. M. Levy, *Eur. Phys. J. B* **10**, 599 (1999).
- [96] P. R. LeClair, Dissertation, Universiteit Eindhoven, 2002.
- [97] M. B. Stearns, *J. Magn. Magn. Mater.* **5**, 167 (1977).
- [98] I. I. Mazin, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 1427 (1999).
- [99] I. I. Oleinik, E. Y. Tsymbal, and D. G. Pettifor, *Phys. Rev. B* **62**, 3952 (2000).
- [100] W. H. Butler, X. G. Zhang, and T. C. Schulthess, *Phys. Rev. B* **63**, 092402 (2001).
- [101] J. Mathon, *Phys. Rev. B* **56**, 11810 (1997).
- [102] J. M. Schmalhorst, Dissertation, Universität Bielefeld, 2001.

- [103] J. M. MacLaren, X.-G. Zhang, and W. H. Butler, *Phys. Rev. B* **56**, 11827 (1997).
- [104] J. C. Slonczewski, *Phys. Rev. B* **39**, 6995 (1989).
- [105] Y. Suezawa and Y. Gondo, *J. Magn. Magn. Mater.* **126**, 524 (1993).
- [106] J. S. Moodera, L. Kinder, J. Nowak, P. LeClair, and R. Meservey, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 708 (1996).
- [107] M. Sato and K. Kobayashi, *IEEE Trans. Magn.* **33**, 3553 (1997).
- [108] J. Sun, R. Sousa, T. Galvao, V. Soares, T. Plasket, and P. Freitas, *J. Appl. Phys.* **33**, 3553 (1998).
- [109] T. Miyazaki and N. Tezuka, *J. Magn. Magn. Mater.* **151**, 403 (1995).
- [110] T. Miyazaki and N. Tezuka, *J. Appl. Phys.* **79**, 6262 (1996).
- [111] G. Kienel, *Vakuumbeschichtung 3. Anlagenautomatisierung - Meß- und Analysetechnik* (Springer Verlag, 1994).
- [112] A. Oleś, *Metody doświadczalne fizyki ciała stałego* (Wydawnictwa Naukowo-Techniczne, Warszawa, 1998).
- [113] G. Doyen and D. Drakova, *The Physical Principles of STM and AFM Operation* (Wiley-Vch, 2002).
- [114] N. A. Burnham and R. J. Colton, Force Microscopy, in *Scanning Tunneling Microscopy and Spectroscopy. Theory, Techniques, and Applications*, VCH Publishers, Inc., New York, 1993.
- [115] S. L. Flegler, J. W. Heckman, and K. L. Klomparens, *Elektronenmikroskopie: Grundlagen, Methoden, Anwendungen* (Spektrum Akad. Verl., 1995).
- [116] H. Birney, *J. Appl. Phys.* **48**, 5209 (1977).
- [117] T. Lucinski, G. Reiss, and H. Brückl, *J. Magn. Magn. Mater.* **193**, 484 (1999).
- [118] H. Eckl, G. Reiss, H. Brückl, and H. Hoffman, *J. Appl. Phys.* **62**, 3694 (1994).
- [119] T. Lucinski, G. Reiss, and H. Brückl, *J. Magn. Magn. Mater.* **189**, 39 (1998).
- [120] K. Hanamoto, A. Shinya, M. Kuwahara, T. Okamoto, M. Haraguchi, M. Fukui, and K. Kato, *Surf. Sci.* **409**, 413 (1998).
- [121] F. May, M. Tischer, D. Arvanitis, M. Russo, J. H. Dunn, H. Henneken, H. Wende, R. Chauvistre, and N. Moretensson, *Phys. Rev. B* **53**, 1076 (1996).

- [122] R. Degraeve, J. Ogier, R. Bellens, P. Roussel, G. Groeseneken, and H. Maes, *IEEE Trans. Electron. Devices* **45**, 472 (1998).
- [123] M. Heyns, D. K. Rao, and R. D. Keersmaecker, *Appl. Surf. Sci.* **39**, 327 (1989).
- [124] D. DiMaria and J. Stasiak, *J. Appl. Phys.* **65**, 2342 (1989).
- [125] E. Harari, *J. Appl. Phys.* **49**, 2478 (1978).
- [126] M. Heyns and R. D. Keersmaecker, *Mater. Res. Soc. Symp. Proc.* **105**, 205 (1988).
- [127] A. Chou, K. Lai, K. Kumar, P. Chowdhury, and J. Lee, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 3407 (1997).
- [128] E. A. und Shappir, *J. Appl. Phys.* **64**, 743 (1988).
- [129] J. Sune, I. Placencia, N. Barniol, E. Farres, F. Marin, and X. Aymerich, *Thin Solid Films* **185**, 347 (1990).
- [130] D. Dumin, J. Maddux, R. Scott, and R. Subramoniam, *IEEE Trans. Electron. Devices* **41**, 1570 (1994).
- [131] R. Degraeve, G. Groeseneken, R. Bellens, M. Depas, and H. Maes, *IEDM Tech. Dig.* , 863 (1995).
- [132] D. J. DiMaria and J. Stathis, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 3230 (1997).
- [133] S. Lombardo, A. L. Magna, and C. Spinella, *J. Appl. Phys.* **86**, 6382 (1999).
- [134] M. Nafria, J. Surie, and X. Aymerich, *J. Appl. Phys.* **73**, 205 (1993).
- [135] H. Depas, T. Nigam, and M. Heyns, *IEEE Trans. Electron. Devices* **43**, 13499 (1996).
- [136] S. Lombardo, C. Gerardi, M. Alessandri, F. Crupi, and A. L. Magna, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1161 (1999).
- [137] T. Sakura, H. Utsunomiya, Y. Kamakura, and K. Taniguchi, *IEDM Tech. Dig.* , 183 (1998).
- [138] S. Lee, B. Cho, J. Kim, and S. Choi, *IEDM Tech. Dig.* , 605 (1994).
- [139] J. Schmalhorst, H. Brückl, M. Justus, A. Thomas, G. Reiss, J. Vieth, G. Gieres, and J. Wecker, *J. Appl. Phys.* **89**, 586 (2001).
- [140] W. Nicol, *Proc. IEEE* **56**, 109 (1968).
- [141] K. Lai, W. Chen, M. Hao, J. Lee, M. Gardner, and J. Fulford, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 673 (1995).
- [142] H. Wen and R. Ludeke, *J. Vac. Sci Technol. A* **16**, 1735 (1998).

- [143] R. Ludeke, *J. Vac. Sci. Technol. B* **18**, 2153 (2000).
- [144] J. Kolodzye, *IEEE Trans. Electron Devices* **47**, 121 (2000).
- [145] M. Depas, R. Degraeve, T. Nigam, G. Groeseneken, and M. Heyns, *Jpn. J. Appl. Phys.* **36**, 1602 (1997).
- [146] D. Dumin, S. Mopuri, S. Vanchinathan, R. Scott, R. Subramoniam, and T. Lewis, *IEEE Trans. Electron. Devices* **42**, 760 (1995).
- [147] W. Oepts, H. J. Verhagen, R. Coehoorn, and W. J. M. de Jonge, *J. Appl. Phys.* **86**, 3863 (1999).
- [148] D. Wolters and J. van der Schoot, *Philips J. Res.* **40**, 137 (1985).
- [149] K. Schuegraf and C. Hu, *J. Appl. Phys.* **76**, 3695 (1994).
- [150] R. Degraeve, P. Roussel, G. Groeseneken, and H. Maes, *Microelectron. Reliab.* **36**, 1639 (1996).
- [151] D. DiMaria, E. Cartier, and D. Buchanan, *J. Appl. Phys.* **80**, 304 (1996).
- [152] E. Cartier, *Microelectron. Reliab.* **38**, 201 (1998).
- [153] J. W. McPherson and H. C. Mogul, *J. Appl. Phys.* **84**, 1513 (1998).
- [154] K. Johnson and T. Engel, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 339 (1992).
- [155] Y. Wei, R. Wallace, and A. Seabaugh, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 1270 (1996).
- [156] K. Fujita, H. Watanabe, and M. Ichikawa, *Appl. Phys. Lett.* **70**, 2807 (1997).
- [157] H. Wen and R. Ludeke, *J. Vac. Sci. Technol. B* **15**, 1080 (1997).
- [158] B. Kaczer, Z. Meng, and J. Plez, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 91 (1996).
- [159] A. Olbrich, *Charakterisierung dünner Dielektrika mittels modifizierter Rasterkraftmikroskopie*, Dissertation, Universität Regensburg, 1999.
- [160] M. Wutz, H. Adam, and W. Walcher, *Theorie und Praxis der Vakuumtechnik* (Friedr. Vieweg und Sohn Braunschweig Wiesbaden, 1982).
- [161] H. Kleine, Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 2001.
- [162] H. Brückl, Dissertation, Universität Regensburg, 1992.
- [163] O. Pietsch, A. Kubetzka, M. Bode, and R. Wiesendanger, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 5212 (2000).
- [164] A. Thomas, Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 2000.
- [165] B. Mendéz and F. Dominguez-Adame, *Am. J. Phys.* **62**, 143 (1994).

- [166] D. A. Papaconstantopoulos, *Handbook of the band structure of elemental solids* (Plenum Press New York, 1986).
- [167] J. Tersoff, Theory of Scanning Tunneling Microscopy, in *Scanning Tunneling Microscopy and Spectroscopy. Theory, Techniques, and Applications*, VCH Publishers, Inc., New York, 1993.
- [168] J. Tersoff, Phys. Rev. B **41**, 1235 (1990).
- [169] J. Tersoff and N. D. Lang, Phys. Rev. Lett. **65**, 1132 (1990).
- [170] H. B. Michelson, J. Appl. Phys. **48**, 4729 (1977).
- [171] H. Brückl, J. Schmalhorst, G. Reiss, G. Gieres, and J. Wecker, Appl. Phys. Lett. **78**, 1113 (2001).
- [172] Y. Ando, H. Kubota, M. Hayashi, M. Kamijo, K. Yaoita, A. C. C. Yu, X.-F. Han, and T. Miyazaki, Jpn. J. Appl. Phys. **39**, 5832 (2000).
- [173] N. Tezuka and T. Miyazaki, J. Magn. Magn. Mater. **177-181**, 1283 (1998).
- [174] W. Schottky, Physik Z. **15**, 872 (1914).
- [175] C. S. Korman, J. C. Lau, A. M. Johnson, and R. V. Coleman, Phys. Rev. B **19**, 994 (1979).
- [176] M. F. Muldoon, R. Dragoset, and R. V. Coleman, Phys. Rev. B **20**, 416 (1979).
- [177] R. V. Coleman, L. D. Bell, R. Dragoset, A. M. Johnson, H.-A. Lu, and E. Philips, Phys. Rev. B **29**, 4246 (1984).
- [178] M. Porti, M. Nafria, X. Aymerich, A. Olbrich, and B. Ebersberger, J. Appl. Phys. **91**, 2071 (2002).
- [179] V. da Costa, F. Bardou, C. Beal, Y. Henry, J. P. Bucher, and K. Ounadjela, J. Appl. Phys. **83**, 6703 (1998).
- [180] F. Bardou, Europhys. Lett. **39**, 239 (1997).
- [181] V. da Costa, C. Tiusan, T. Dimopoulos, and K. Ounadjela, Phys. Rev. Lett. **85**, 876 (2000).
- [182] A. Olbrich, B. Ebersberger, C. Boit, J. Vancea, and H. Hoffmann, Microelectronics Reliability **39**, 941 (1999).

Danksagung

Mein Dank gilt all denen, die mir durch ihre hilfreiche Unterstützung die Erstellung dieser Doktorarbeit ermöglicht haben. Insbesondere danke ich meinem Betreuer PROF. DR. GÜNTER REISS, der stets für die Diskussion von Fragen und Problemen ansprechbar war. Ich danke auch meinen anderen Betreuern DR. HUBERT BRÜCKL, DR. ANDREAS HÜTTEN, DR. TADEUSZ LUCIŃSKI und DR. WILLI SCHEPPER.

Vielen Dank auch an DIRK MEYNERS (AFM), MARC SACHER (Auger), die Messungen für mich durchgeführt haben.

Allen Kollegen der Etage D2 möchte ich für die einzigartige Arbeitsatmosphäre danken. Ich habe meine 4 Jahre an der Uni Bielefeld richtig genossen.

Mein besonderer Dank für vielfache Hilfe und psychologische Betreuung gilt JAN BORNEMEIER (insbesondere für ca. 150 Nachtische, den entscheidenden Ansporn und nicht zuletzt das Korrekturlesen), DR. MAIK JUSTUS, DR. KARSTEN ROTT, DR. JAN SCHMALHORST und DR. ANDY THOMAS (insbesondere für unzählige Leitkulturunterrichtsstunden).

Der Mechanikwerkstatt danke ich für die schnelle und zuverlässige Durchführung meiner Aufträge. Ich danke auch Herrn GOLLAY aus der Elektronikwerkstatt, der sich erstaunlicherweise um so mehr über einen Auftrag freut, je anspruchsvoller er ist.

Mein größter Dank gilt aber meiner lieben Frau ANIA und meiner Tochter JULIA für ihr stetes Verständnis und ihre niemals ermüdende Unterstützung.