



universität
wien

DIPLOMARBEIT

Titel der Diplomarbeit

Elektrische Eigenschaften von $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Grenzschichten nach
Bestrahlung mit He^+ -Ionen

angestrebter akademischer Grad

Magister der Naturwissenschaften (Mag. rer.nat.)

Verfasser:	Markus Sauer
Matrikel-Nummer:	0403545
Studienrichtung (lt. Studienblatt):	411 Diplomstudium Physik UniStG
Betreuer:	Ao. Univ.-Prof. Dr. Wolfgang Lang

Wien, am

22. 03. 2010

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die elektrischen Eigenschaften von $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Oxidgrenzschichten untersucht. Zwischen diesen beiden Isolatoren existiert eine metallisch leitende Schicht. Diese wird, je nach Präparation der Proben, durch elektronische Rekonstruktion an der Grenzschicht, oder durch Sauerstoff-Leerstellen im SrTiO_3 erzeugt. Dabei sind die Ladungsträger im ersten Fall in einem schmalen Bereich an der Grenzfläche lokalisiert, oder reichen im zweiten Fall einige 10 nm bis 100 nm in das SrTiO_3 hinein.

Diese Arbeit zeigt die Auswirkungen von Bestrahlungen mit kleinen Dosen leichter Ionen auf die Oxid-Heterostruktur. Untersucht wurden zwei Proben mit unterschiedlicher LaAlO_3 -Dicke, wobei bei der Herstellung darauf geachtet wurde, dass diese Proben nahezu keine Sauerstoff-Leerstellen enthalten.

Die Probe mit 3 Einheitszellen LaAlO_3 zeigte halbleitendes Verhalten mit einem Widerstand von mehr als $1 \text{ G}\Omega/\square$ bei Temperaturen unter 150 K. Die Probe mit 4 Einheitszellen LaAlO_3 zeigte hingegen metallische Leitfähigkeit mit einem Schichtwiderstand zwischen $60 \text{ k}\Omega/\square$ bei 300 K und $500 \Omega/\square$ bei 30 K. Dies stimmt mit Ergebnissen aus der Literatur prinzipiell überein und zeigt, dass es eine Mindestdicke für metallische Leitfähigkeit von 4 Einheitszellen gibt.

Nach der theoretischen Untersuchung der Bestrahlung mittels Computersimulation, wurden He^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von 75 keV für die Bestrahlung ausgewählt. Weiters konnte gezeigt werden, dass die Bestrahlung keine strukturellen Schäden in der Probe verursacht und nur sehr wenige Atome von der Oberfläche abgesputtert werden. Die Probe mit 4 Einheitszellen LaAlO_3 wurde mit einer Dosis von $2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ und danach mit insgesamt $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ bestrahlt. Die kleinere Bestrahlungsdosis führt zu einer Verringerung des Schichtwiderstandes bei Raumtemperatur um etwa ein Drittel. Gleichzeitig steigt die Ladungsträgerdichte um 50 % an. Die größere Bestrahlungsdosis führt jedoch wieder zu einer Reduktion der Ladungsträgerdichte und damit verbunden zu einem Ansteigen des Schichtwiderstandes.

Es konnte mittels Simulationsrechnungen gezeigt werden, dass erwartungsgemäß vor allem Sauerstoff-Defekte erzeugt werden. Diese können theoretisch jeweils zwei Elektronen für die Leitung zur Verfügung stellen. Abschätzungen zeigen, dass die erhöhte Ladungsträgerdichte damit prinzipiell erklärt werden kann. Eine Erhöhung der Leitfähigkeit in der Oxid-Heterostruktur mittels Ionenbestrahlung ist somit möglich, aber der Effekt wird bei höheren Ionendosen vermutlich durch die hohe Zahl von Defekten kompensiert und die Leitfähigkeit nimmt wieder ab.

Abstract

The goal of this work was the investigation of the electrical properties of LaAlO₃/SrTiO₃-heterostructures. A conducting interface exists between these two wide band gap insulators. This behaviour is caused, depending on the sample preparation, either by electronic reconstruction, where the charge carriers are localized near the interface or by oxygen vacancies where the charge carriers are distributed over several 10 nm to 100 nm inside the SrTiO₃.

This work focuses on the effects of irradiation of the oxide-heterostructure with small doses of light ions. Two samples with different LaAlO₃-layer thickness were investigated. The preparation method that was used guarantees samples which are almost free of oxygen vacancies.

The sample with 3 uc (unit cell) LaAlO₃ showed semiconducting behaviour with a resistance of more than 1 GΩ/□ below 150 K. The 4 uc sample showed metallic behaviour over the whole investigated temperature region with sheet resistance between 60 kΩ/□ at 300 K and 500 Ω/□ at 30 K, respectively. These results confirm those found in the literature and furthermore that there is a critical density $d_c = 4$ uc of the LaAlO₃-layer which has to be exceeded so that metallic conductivity can be observed.

After theoretical investigation of the ion irradiation via computersimulations, He⁺ ions with a kinetic energy of 75 keV were chosen for irradiation. Furthermore it was shown that the irradiation did not cause any structural damage and that only few atoms were sputtered from the surface. The 4 uc sample was irradiated with cumulative ion doses of $2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ and $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. Irradiation with the smaller ion dose led to a decrease of the sheet resistance of about 30 % and an increase of the carrier density of about 50 % at room temperature. In contrast the higher irradiation dose led to a decrease of the carrier density and an increase of the sheet resistance.

Irradiation simulations showed that mainly oxygen defects are created. Every oxygen vacancy theoretically produces two electrons which can contribute to conduction. This could give a principal explanation for the higher charge carrier density after irradiation. It is possible to increase the conductivity of the oxide-heterostructure by light ion irradiation but higher irradiation doses lead to a decrease of carrier density and conductivity which could be caused by a large number of point defects which compensate many of the charge carriers.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Die Kristallstrukturen von LaAlO_3 und SrTiO_3	5
2.1	Die Perowskite	5
2.1.1	Die Kristallstruktur von LaAlO_3	6
2.1.2	Die Kristallstruktur von SrTiO_3	7
2.2	Kommentare zur Oxid-Heterostruktur	8
2.3	Verwendung der Oxide als Substratmaterialien	9
3	Elektrische Transporteigenschaften	10
3.1	Allgemeine Bemerkungen zu elektrischen Messgrößen	10
3.1.1	Spezifischer Widerstand und Leitfähigkeit	10
3.1.2	Der Hall-Effekt	11
3.2	Transporteigenschaften der Oxide	12
3.2.1	Elektrische Eigenschaften von SrTiO_3	12
3.2.2	Elektrische Eigenschaften von LaAlO_3	15
3.3	Transporteigenschaften der Heterostrukturen	17
3.3.1	Metallische Leitfähigkeit in $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$	17
3.3.2	Transportmechanismus und Ladungsträgerverteilung	18
3.3.3	Weitere Eigenschaften der Oxidstrukturen	26
4	Supraleitung	30
4.1	Historischer Abriss	30
4.1.1	Konventionelle Supraleitung	30
4.1.2	Hochtemperatursupraleitung	31
4.2	Supraleitung in den Oxiden	31
4.2.1	Supraleitung in SrTiO_3	31
4.2.2	Supraleitung in $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ Strukturen	32
5	Computersimulation der Ionenbestrahlung	35
5.1	Simulationsprogramm und theoretische Grundlagen	35
5.1.1	Das Simulationsprogramm SRIM/TRIM	35
5.2	Ergebnisse der Computersimulation	39

6 Die Proben	48
6.1 Probenherstellung	48
6.1.1 Das PLD-Verfahren	49
6.1.2 Das RHEED-Verfahren	50
6.2 Probencharakteristik	51
6.2.1 Probendaten	51
6.2.2 Die Van der Pauw Methode	52
6.3 Probenbestrahlung	54
7 Die Messapparatur und das Messverfahren	55
7.1 Das Messverfahren	55
7.2 Kühlung, Temperaturregelung und Einbau der Probe	57
7.2.1 Der Kryostat und der Probenhalter	57
7.2.2 Temperaturregelung	58
7.3 Messablauf	58
7.3.1 Verwendete Geräte	58
7.3.2 Durchführung der Messungen	59
7.4 Messgenauigkeit	61
8 Ergebnisse und Diskussion	63
8.1 Messungen an der 4 uc Probe L204	63
8.1.1 Unbestrahlter Zustand	63
8.1.2 Bestrahlter Zustand	67
8.1.3 Schlussfolgerungen	72
8.2 Messungen an der 3 uc Probe L203	72
9 Ausblick	74
A SRIM/TRIM Ein- und Ausgabe	76
B Die Messprogramme	80
Literaturverzeichnis	83
Danksagung	89
Curriculum Vitae	90

Kapitel 1

Einleitung

Oxidmaterialien sind zumeist Isolatoren, so auch die Perowskite SrTiO_3 und LaAlO_3 . Somit sind diese für den Einsatz in elektronischen Bauteilen meist nur als Dielektrika geeignet. Der Band-Isolator SrTiO_3 wurde schon in den zwanziger Jahren des vorigen Jahrhunderts eingehender untersucht. Später entdeckte man, dass Strontiumtitanat auch supraleitende Eigenschaften aufweist, jedoch bei sehr geringen Temperaturen, sodass sich keine kommerziellen Anwendungsmöglichkeiten dadurch ergaben. LaAlO_3 wurde weniger erforscht und für Anwendungen herangezogen.

Es waren meist andere Oxidmaterialien, welche innerhalb der letzten zwanzig Jahre große Aufmerksamkeit erregten. Zum einen sind dies natürlich die Kuprat-Supraleiter, die sich durch ihre, von keinem anderen Material bis dahin erreichte, Supraleitungssprungtemperatur auszeichnen, wie zum Beispiel $\text{Y} - \text{Ba} - \text{Cu} - \text{O}$ [1] oder $\text{Bi} - \text{Sr} - \text{Ca} - \text{Cu} - \text{O}$ [2]. Eine weitere interessante Materialgruppe sind manganbasierte Oxide, wie $\text{La} - \text{Ba} - \text{Mn} - \text{O}$ [3] und $\text{La} - \text{Ca} - \text{Mn} - \text{O}$ [4], welche die Eigenschaft des kolossalen Magnetowiderstandes zeigen.

Durch die Entdeckung dieser Materialien ergaben sich weitere Anwendungsmöglichkeiten für die hier diskutierten Oxide. Aufgrund der ähnlichen kristallinen Eigenschaften der Kuprate und des SrTiO_3 wurde dieses als Substratmaterial für die Erzeugung von Hochtemperatursupraleiter-Dünnschichten verwendet. Später erkannte man, dass sich neben der Verwendung weiterer Materialien wie MgO oder YSZ (*Yttrium Stabilized Zirconia*) vor allem LaAlO_3 sehr gut als Substratmaterial für die Hochtemperatursupraleiter eignet.

Die beiden Oxide SrTiO_3 und LaAlO_3 stehen seit der Entdeckung einer leitenden Schicht an der $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Grenzfläche (siehe Abb. 1.1) im Jahre 2004 durch Ohtomo et al. [5] wieder im Blickpunkt von Forschungsarbeiten. Seitdem wurde eine Fülle von wissenschaftlichen Arbeiten zu diesem Thema publiziert. Besonders bemerkenswert ist die Tatsache, dass es sich bei diesen Heterostrukturen wahrscheinlich um quasi zweidimensionale Leiter handelt. Zwei Theorien wurden aufgestellt, welche den Ursprung der metallischen Leitfähigkeit zu erklären versuchen (siehe Kapitel 3). Weiters wurde auch Supraleitung an der Oxidstruktur gemessen und weitere interessante Eigenschaften, zum Beispiel die Möglichkeit die Leitfähigkeit mit elektrischen Feldern zu steuern, gefunden. Im Rahmen dieser Arbeit sollte das Verhalten dieser Heterostrukturen vor und nach der

Bestrahlung mit geringen Dosen von leichten Ionen ermittelt werden. Der Widerstand, die Ladungsträgerdichte, sowie die Beweglichkeit wurden in Abhängigkeit von der Bestrahlungsdosis untersucht, um weitere grundlegende Aussagen über den Ursprung und das Verhalten der leitenden Schicht zu erhalten. Weiters sollten, mittels Bestrahlungssimulation mit dem Programm SRIM, die Effekte, welche durch eine Bestrahlung mit Ionen hervorgerufen werden, näher betrachtet werden.

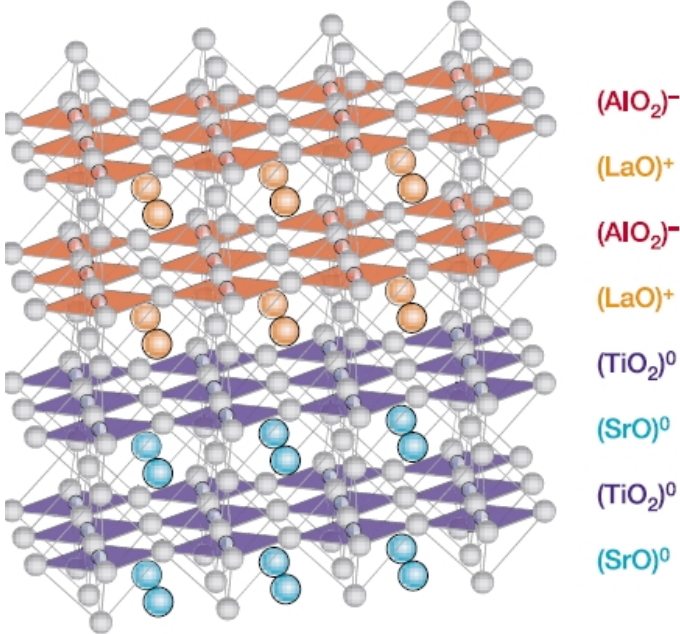


Abbildung 1.1: Schematische Darstellung der LaAlO₃/SrTiO₃-Heterostruktur. Mit freundlicher Genehmigung von McMillan Publishers Ltd.: Aus [5], Copyright (2004).

Kapitel 2

Die Kristallstrukturen von LaAlO_3 und SrTiO_3

Im Folgenden soll auf die Kristallstrukturen der beiden Oxide genauer eingegangen werden. Die Gitterkonstanten und Raumgruppen der Materialien werden beschrieben und verglichen. Auch Bemerkungen zur Erzeugung und den kristallinen Eigenschaften der Schichtstruktur werden gemacht. Schließlich soll die Eignung der Oxide als Substratmaterialien diskutiert werden.

2.1 Die Perowskite

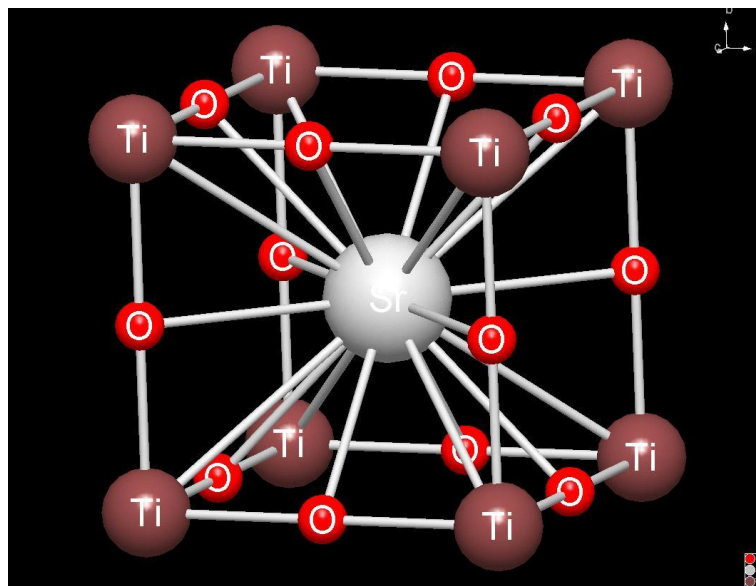


Abbildung 2.1: Die kubische Phase von SrTiO_3 bei Raumtemperatur [6]. Mit freundlicher Genehmigung von ASM International®. Alle Rechte vorbehalten. www.asminternational.com

Als Perowskite werden alle Materialien bezeichnet, die eine ähnliche Kristallstruktur aufweisen wie CaTiO_3 . Der charakteristische Aufbau der Materialien ist also ABO_3 . Dabei gilt, dass die ideale Struktur eine kubische ist. Es kann jedoch bei den verschiedenen Materialien zu einer, meist geringen, Verzerrung dieser idealen Struktur kommen. So existieren tetragonal (PbTiO_3), orthorhombisch (CaTiO_3) oder rhomboedrisch (BaTiO_3) verzerrte Perowskitstrukturen [7], aber natürlich auch Materialien, welche bei Raumtemperatur kubisch sind, wie das im Folgenden diskutierte SrTiO_3 . In der idealen Perowskitstruktur liegt das A Atom raumzentriert im Inneren der Einheitszelle. Das B Atom liegt an einem der Eckpunkte und die Sauerstoffatome an den Seitenmitten. Die bekanntesten Materialien, welche eine perowskitartige Struktur aufweisen (oder besser, aus mehreren übereinander angeordneten perowskitartigen Zellen bestehen), sind die Kuprat-Hochtemperatursupraleiter, wie zum Beispiel $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$.

2.1.1 Die Kristallstruktur von LaAlO_3

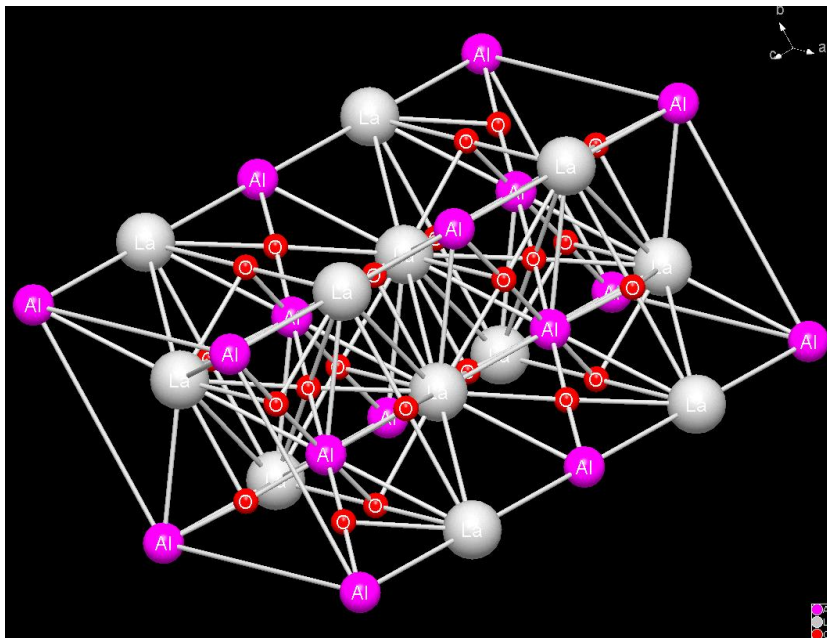


Abbildung 2.2: Die Kristallstruktur von LaAlO_3 bei Raumtemperatur [6]. Mit freundlicher Genehmigung von ASM International®. Alle Rechte vorbehalten. www.asminternational.com

LaAlO_3 weist bei Raumtemperatur eine rhomboedrisch verzerrte perowskitartige Kristallstruktur auf. Innerhalb dieser Struktur sind jeweils La und Al Atome abwechselnd an den Eckpunkten der ab -Ebene angeordnet. Zwischen diesen Ebenen liegen dezentral jeweils weitere La und Al Atome und die leichteren Sauerstoffatome, die in, zur ab -Ebene verkippten, Doppeloktaedern angeordnet sind. Wie in Abb. 2.2 veranschaulicht, weist die Einheitszelle zwei rechte Winkel auf und die Öffnung des dritten Winkels beträgt etwa 120° . Die Abmessungen der dargestellten Einheitszelle wurden

mittels Röntgenstreuungs-Analyse untersucht und betragen: $a = b = 0.53655$ nm und $c = 1.3112$ nm, womit sich ein typisches Achsenverhältnis von $c/a = 2.444$ und eine theoretische Dichte von 6.52 g/cm³ ergibt [8].

Bei einer Temperatur von etwa 800 K findet in LaAlO₃ ein Phasenübergang zweiter Ordnung statt und die Kristallstruktur geht über in eine rein kubische Perowskitstruktur. Als zugehöriger Ordnungsparameter wird die Verdrehung des Sauerstoff-Doppeloktaeders angenommen [9], der Verdrehungswinkel ist jedoch i.A. auch bei Raumtemperatur relativ gering. Die Abmessungen dieser kubischen Einheitszelle wurden ebenfalls mittels Analyse der Röntgenstreuung ermittelt und betragen $a = b = c = 0.3788$ nm, womit sich die theoretische Dichte als 6.53 g/cm³ ergibt [10]. Ergänzend sei erwähnt, dass die Hochtemperatur-Phase der Raumstruktur Pm-3m und die Niedrigtemperatur-Phase der Raumstruktur R-3ch zugeordnet wird.

Aufgrund der geringen strukturellen Abweichungen der Raumtemperaturphase von einer kubischen Struktur wird in der Literatur zumeist von einer pseudokubischen Struktur mit einer Gitterkonstante von $a = b = c = 0.3791$ nm [11] gesprochen. Dies soll auch in dieser Arbeit Eingang finden und ist von besonderer Bedeutung, da im Folgenden die Dicke der LaAlO₃-Schicht zumeist in Einheitszellen (*unit cell = uc*) angegeben wird.

2.1.2 Die Kristallstruktur von SrTiO₃

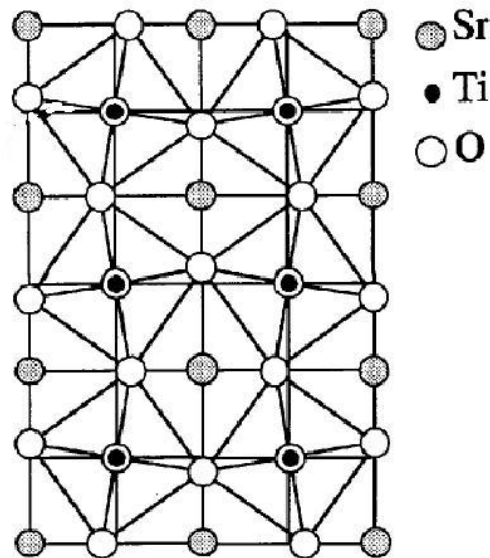


Abbildung 2.3: Die Kristallstruktur von SrTiO₃ bei Temperaturen unter 105 K [12]. Mit freundlicher Genehmigung von IUCr Journals.

Die Kristallstruktur von SrTiO₃ ist perowskitartig kubisch bei Raumtemperatur (Raumgruppe Pm-3m, siehe Abb. 2.1). Die Gitterkonstante wurde u.a. 1946 von Me-

gew bestimmt als $a = b = c = 0.3897 \text{ nm}$ [7]. Zwei weitere aktuellere Messungen der Gitterkonstante sind in Tabelle 2.1 zusammengefasst.

Gitterkonstante [\AA]	Dichte [g/cm^3]	Referenz (Jahr)
3.9052	5.12	[13] (1999)
3.9051	5.12	[14] (2002)

Tabelle 2.1: Die Gitterkonstante und Dichte von SrTiO_3 . Die Messungen wurden mittels Analyse der Röntgenstreuung und i.A. bei Raumtemperatur durchgeführt.

SrTiO_3 weist einen Phasenübergang zweiter Ordnung bei einer Temperatur von 105 K auf. Unterhalb dieser Temperatur ist die Struktur weiterhin perowskitartig, aber, wie in Abb. 2.3 gezeigt, sind die Sauerstoffatome jeweils aus ihren Positionen, die sie in der kubischen Phase einnehmen, verschoben. Damit ergibt sich eine tetragonal verzerrte Kristallstruktur. Der Winkel, um welchen die Sauerstoffebenen verkippt sind, beträgt $\phi = 1.12^\circ$. Die Dimensionen der Einheitszelle sind $a = b = 0.5511 \text{ nm}$ und $c = 0.7796 \text{ nm}$ [12]. Diese Phase wird der Raumgruppe $I4/mcm$ zugeordnet.

2.2 Kommentare zur Oxid-Heterostruktur

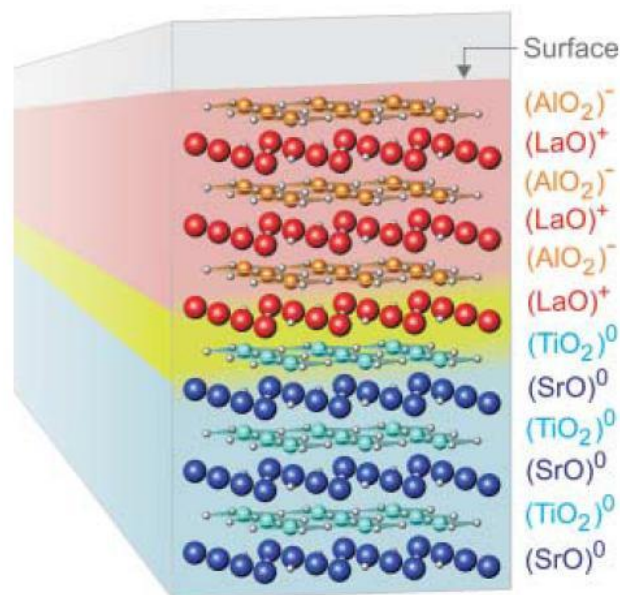


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung, der $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostruktur. Aus [15], mit freundlicher Genehmigung von AAAS.

Wie in den obigen Kapiteln zu sehen ist, sind die Gitterkonstanten der beiden Oxide in ihren „Hochtemperatur“-Phasen sehr ähnlich, was eine exakte Deposition des

LaAlO₃ auf ein SrTiO₃-Substrat natürlich begünstigt. Beim Aufbringen des LaAlO₃ auf das SrTiO₃-Substrat wird die Einheitszelle des LaAlO₃ gering verzerrt und die Gitterkonstante in ab-Richtung entspricht dann etwa jener von SrTiO₃. Das bedeutet eine Verzerrung der Einheitszelle des LaAlO₃ um etwa 3%. Auch eine Verkleinerung der Gitterkonstante von LaAlO₃ in c-Richtung (normal auf die Grenzebene) konnte beobachtet werden. Diese Verzerrungen führen zu Spannungen in den Proben, die aber bis zu einer gewissen Dicke der LaAlO₃-Schicht unproblematisch sind. Proben, die mit demselben Verfahren hergestellt wurden, wie jene, die im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurden, zeigten bei Dicken des LaAlO₃ von mehr als 25 Einheitszellen nicht mehr die zu erwartende hohe Leitfähigkeit. Dies kann man auf die eben erwähnten Spannungen zurückführen, die ab einer gewissen Schichtdicke zu Versetzungen im LaAlO₃ führen [16].

Allgemein können kubische Perowskite idealisiert als Abfolge von AO und BO₂-Ebenen angesehen werden. SrTiO₃ kann man also als Stapel von (SrO)⁰ und (TiO₂)⁰-Ebenen ansehen. Dasselbe gilt für LaAlO₃, allerdings sind die (LaO)⁺ und (AlO₂)⁻ Ebenen polar, wodurch man zwei Möglichkeiten erhält das Interface zu bilden. Entweder besteht die Grenzfläche aus einem (SrO)⁰/(AlO₂)⁻ oder aus einem (TiO₂)⁰/(LaO)⁺ Interface (siehe Abb. 2.4). Wie in Kapitel 3 beschrieben, ist das (SrO)⁰/(AlO₂)⁻ Interface isolierend, das (TiO₂)⁰/(LaO)⁺ Interface weist hingegen metallische Leitfähigkeit auf.

2.3 Verwendung der Oxide als Substratmaterialien

LaAlO₃ und SrTiO₃ werden häufig als Substratmaterialien (vor allem für Hochtemperatursupraleiter) verwendet. Der wichtigste Grund dafür ist, dass SrTiO₃ leicht als massiver, stabiler Einkristall herzustellen ist. Meist wird ein (001) orientiertes Substrat verwendet, wobei es auch gelungen ist, akzeptable Ergebnisse mit (110) orientierten Substraten zu erzielen [17]. Da die Filme mit meist ungestörten Oberflächen hergestellt werden können, ist es möglich mit verschiedenen Techniken Dünnschichten unterschiedlicher Substanzen auf das Substrat aufzubringen. Wenn die aufgebrachte Substanz in ihren kristallinen Eigenschaften mit der des Substrats nahezu übereinstimmt, ist es möglich ungestörte epitaxiale Filmstrukturen herzustellen, die sonst nur durch aufwändigere Prozesse erreicht werden könnten. Diese Tatsache macht die Oxide mit perowskitartiger Struktur zu idealen Substraten für die Kuprat-Hochtemperatursupraleiter. Hinzukommt, dass die Gitterkonstanten von YBa₂Cu₃O_{7-x} mit $a = 0.38872$ nm und $b = 0.38227$ nm [18] den Werten von SrTiO₃ und LaAlO₃ sehr ähnlich sind.

Weiters werden SrTiO₃ und LaAlO₃ auch als Substratmaterial für Materialien benutzt, welche die Eigenschaft des so genannten kolossalen Magnetowiderstandes zeigen, genauso wie für Ferroelektrika.

Kapitel 3

Elektrische Transporteigenschaften

Im folgenden Kapitel werden die elektrischen Eigenschaften, wie Widerstand und Hall-Effekt vorgestellt. Beschreibungen der elektrischen und dielektrischen Eigenschaften von SrTiO_3 und LaAlO_3 werden gegeben. Dabei wird vor allem auf die unterschiedlichen Möglichkeiten der Leitfähigkeitserhöhung eingegangen. Weiters werden die elektrischen Eigenschaften der Oxidheterostrukturen ausführlich diskutiert und Modelle zur Beschreibung der metallischen Leitfähigkeit vorgestellt.

3.1 Allgemeine Bemerkungen zu elektrischen Messgrößen

3.1.1 Spezifischer Widerstand und Leitfähigkeit

Für einen nicht homogenen Körper, welcher von einem Strom \vec{j} durchflossen wird, gilt für das erzeugte elektrische Feld \vec{E} :

$$\vec{E} = \hat{\rho} \vec{j} \quad (3.1)$$

wobei $\hat{\rho}$ den spezifischen Widerstandstensor bezeichnet. Dies ist ein Tensor zweiter Stufe mit der Gestalt in Matrixform:

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} \rho_{xx} & \rho_{xy} & \rho_{xz} \\ \rho_{yx} & \rho_{yy} & \rho_{yz} \\ \rho_{zx} & \rho_{zy} & \rho_{zz} \end{pmatrix} \quad (3.2)$$

Da der Stromfluss und damit auch der Spannungsabfall in der xy -Ebene angenommen wird, können meist nur einige wenige dieser Komponenten ermittelt werden. Durch Vierpunkt-Messungen werden ρ_{xx} , sowie ρ_{yy} ermittelt. Dabei werden die Stromstärke $I = Aj$ (mit A : Querschnittsfläche der Probe) und Spannung U gemessen und daraus ρ berechnet [19], [20].

3.1.2 Der Hall-Effekt

Der Hall-Effekt ist ein transversaler magnetoelektrischer Effekt, der an einer Probe auftritt, wenn normal zu einem elektrischen Feld, welches einen Strom verursacht, zusätzlich ein magnetisches Feld angelegt wird. Dies verursacht eine Lorentzkraft, welche normal auf elektrisches wie magnetisches Feld steht. Diese Lorentzkraft führt zu einem Spannungsabfall normal zur Stromrichtung (siehe Abb. 3.1). Diese Spannung wird Hall-Spannung U_H genannt und ergibt sich als:

$$U_H = \frac{R_H I B}{d} \quad (3.3)$$

mit I : Strom von dem die Probe durchflossen wird, B : Angelegtes Magnetfeld, d : Dicke der Probe, R_H Hall-Koeffizient, wobei für diesen gilt:

$$R_H = \frac{1}{ne} \quad (3.4)$$

mit e : Elementarladung, n : Ladungsträgerdichte

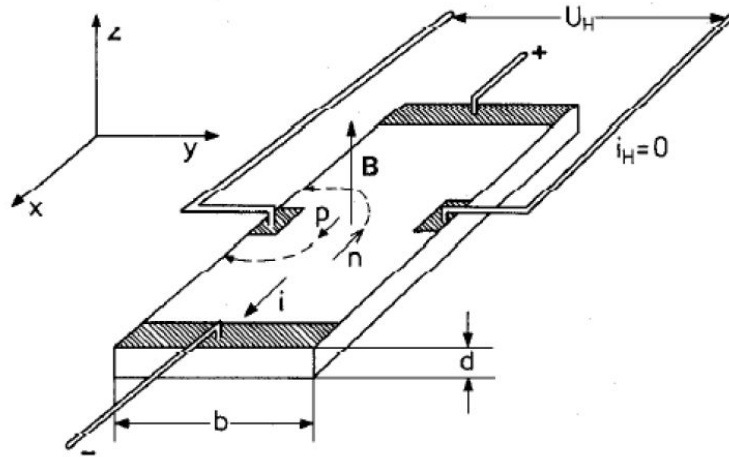


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Aufbaus einer Hall-Effekt-Messung [21].

Werden Magnetfeld, Probenstrom, Probendicke und die Hall-Spannung gemessen, so kann die Ladungsträgerdichte bestimmt werden. Aus dem Vorzeichen des Hall-Koeffizienten kann die Art der Ladungsträger ermittelt werden und aus dem Absolutwert die Ladungsträgerdichte.

Über den Hall-Koeffizienten und das Magnetfeld ist auch der Hallwiderstand ρ_H (Dimension eines spezifischen Widerstandes) definiert als:

$$\rho_H = \rho_{yx} = R_H B \quad (3.5)$$

Weiters erhält man aus Messungen des Hall-Effektes den so genannten Hall-Winkel Θ_H und die Beweglichkeit der Ladungsträger μ_H [20], für die gilt:

$$\tan \Theta = \mu_H B = \frac{R_H B}{\rho_{xx}} = \frac{\rho_{yx}}{\rho_{xx}} \quad (3.6)$$

Ladungsträgerdichte n_S und Beweglichkeit der Ladungsträger μ_H sind Materialkonstanten, da sie magnetfeldunabhängig sind. Hall-Widerstand und Hall-Winkel sind hingegen vom angelegten Magnetfeld B abhängig.

3.2 Transporteigenschaften der Oxide

3.2.1 Elektrische Eigenschaften von SrTiO₃

Widerstand und Hall-Effekt

Die Leitfähigkeit von SrTiO₃ wurde 1953 von Weise und Lesk eingehender untersucht. Es konnte festgestellt werden, dass SrTiO₃ ein Band-Isolator mit einer Gap-Energie von etwa 3.27 eV ist (Aktuellere Messungen zeigen eine Gap-Energie von etwa 3.2 eV [22]). Dabei wird das leere Leitungsband vorwiegend von den 3d Zuständen des Titans und das gefüllte Valenzband von den 2p Orbitalen des Sauerstoffs gebildet [23], [24]. Wie in Abb. 3.2 dargestellt, zeigen Proben mit stöchiometrischer Zusammensetzung bei allen Temperaturen höhere Widerstandswerte als Proben, welche sauerstoffreduziert wurden. Ebenfalls ersichtlich ist, dass diese Kurve (in Abb. 3.2 mit 1 bezeichnet) mit sinkender Temperatur ein ansteigendes Verhalten zeigt, wie es von Halbleitern zu erwarten wäre. Die Kurven folgen also prinzipiell der Steinhart-Hart Gleichung [25]:

$$1/T = A + B \ln \rho + C(\ln \rho)^3 \quad (3.7)$$

wobei T : Temperatur, ρ : spezifischer Widerstand, A, B, C : Steinhart-Hart Koeffizienten. Diese Gleichung stellt eine Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse für Halbleiter da. Der Koeffizient C müsste, um die vorliegenden Kurven erklären zu können, relativ klein sein. Die Abweichungen der Kurven im eigentlich linearen Bereich (des vorliegenden Plots) sind wohl eher auf Defekte zurückzuführen.

Die Aktivierungsenergie wird bei steigender Sauerstoff-Reduzierung stark herabgesetzt (Probe Nr. 6: 0.087 eV) [23]. Als Erklärung für dieses Verhalten kann man annehmen, dass aufgrund des geringeren Sauerstoffgehaltes Donatoren entstehen (im Falle der Reduzierung sind dies Sauerstoff-Leerstellen), d.h. es gibt Elektronen, die zur Leitung beitragen können. Diese können aber durch das Einbringen von Akzeptoren, wie positiv geladenen Ionen, anderen Leerstellen, Zwischengitteratomen oder andere Defekten kompensiert werden.

Erklärungen für die auftretenden Effekte durch Sauerstoff-Reduzierung oder Dotierung mit La und Nb wurden ebenfalls von Frederikse et al. gegeben. Vor allem wurden die Ursachen für den elektrischen Widerstand in SrTiO₃ erforscht. Es wird angenommen, dass im Bereich kleiner Temperaturen (also < 10 K) die Streuung an Defekten den Widerstand verursacht. Damit ist klar, dass in diesem Temperaturbereich der Widerstand stark von der Defektkonzentration abhängt. Es wurden für die reduzierten Proben bei 4.2 K Ladungsträgerdichten von bis zu $1.25 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ und einer Beweglichkeit von bis zu $13000 \text{ cm}^2/\text{Vs}$ ermittelt.

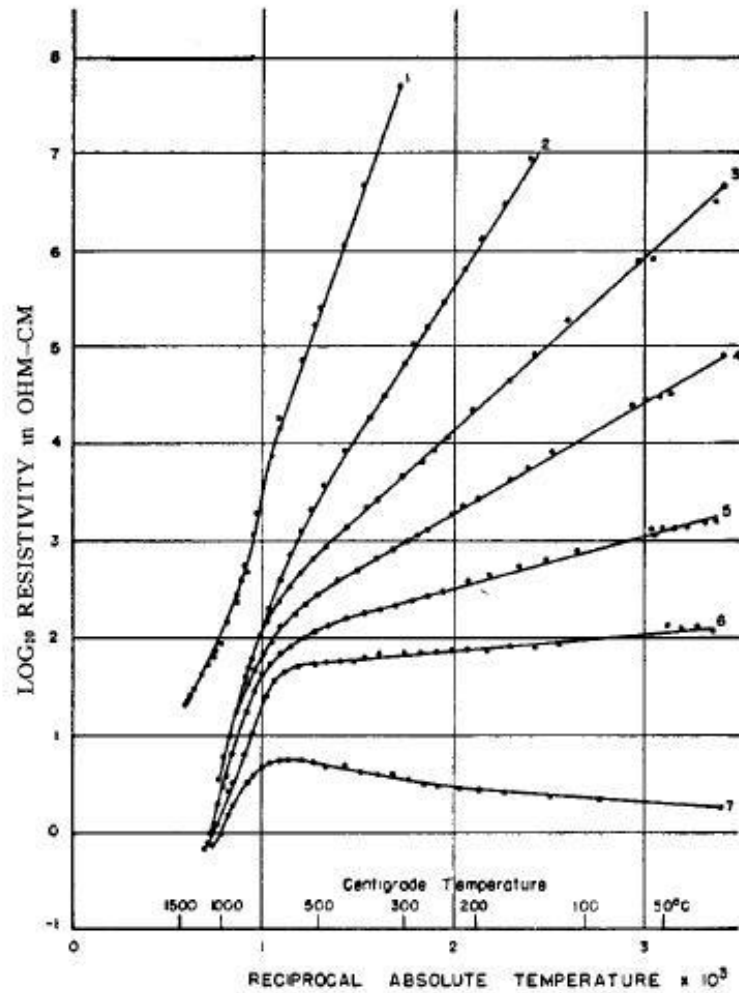


Abbildung 3.2: Spezifischer Widerstand (logarithmisch) von SrTiO_3 aufgetragen gegen die inverse Temperatur. Die einzelnen Messkurven beschreiben Proben von 1=exakte Stöchiometrie bis 7=stark sauerstoffreduziertes SrTiO_3 . Mit freundlicher Genehmigung von [23]. Copyright 1953, American Institute of Physics.

Bei Temperaturen um 300 K wird die Beweglichkeit der Elektronen durch Streuung an longitudinalen optischen Phononen eingeschränkt. Die Abhängigkeit der Beweglichkeit von der Temperatur (im Bereich 100 K bis 300 K) verläuft wie $T^{(-2.5)}$ bis $T^{(-3.2)}$, was darauf hindeutet, dass Phononen in die Streuprozesse involviert sind. Dieses Verhalten ist auch typisch für kovalente Vieltalhalbleiter und die Streuung erfolgt hierbei zwischen den einzelnen energetischen Tälern (allerdings sind hier akustische Phononen für die Streuprozesse verantwortlich) [24], [26]. Diese Ergebnisse wurden von Moos et al. durch Messungen an undotiertem n-Typ (sauerstoffreduziertem) SrTiO₃ bestätigt. Es wurde der Temperaturbereich von etwa 20 K bis über 1300 K untersucht und festgestellt, dass sich die Beweglichkeit der Ladungsträger bei hohen Temperaturen wie $T^{-1.5}$ verhält, was auf Ein-Phononen-Streuung schließen lässt. Bei geringen Temperaturen dominiert die Defektstreuung. Bei Temperaturen zwischen 200 K und Raumtemperatur zeigt die Beweglichkeit die Abhängigkeit $\mu_H \propto T^{-2.7}$, was auf den selben Streumechanismus hindeutet, wie in [26]. Es konnte bei Temperaturen über 200 K auch keine Abhängigkeit der Beweglichkeit von der Ladungsträgerdichte (proportional zur Anzahl der Sauerstoff-Defekte) festgestellt werden, was ebenfalls auf Phononenstreuung schließen lässt. Der Streumechanismus bei Temperaturen von etwa 10 K bis 200 K scheint nicht vollständig geklärt, es gibt aber je nach Präparation der Proben bei unterschiedlichen Temperaturen jeweils den Übergang von Defektstreuung zu Phononenstreuung [27].

Dielektrische Eigenschaften

Es wurde bereits in den sechziger Jahren vermutet, dass SrTiO₃ außer dem bereits erwähnten strukturellen Phasenübergang bei 108 K einen weiteren Phasenübergang bei unter 40 K, was etwa der Curie Temperatur entspricht, besitzt. Unterhalb dieser Temperatur geht SrTiO₃ von einem paraelektrischen in einen ferroelektrischen Zustand über [24]. Dies gilt allerdings nicht für das bekannte SrTi¹⁶O₃, sondern nur für die Zusammensetzung mit dem schwereren Sauerstoffisotop ¹⁸O, was erst später festgestellt werden konnte. Dabei gilt, dass für die Zusammensetzung SrTi(¹⁶O_{1-x}¹⁸O_x) Ferroelektrizität zu beobachten ist mit einer Übergangstemperatur $T_c = 30.4(x - 0.33)^{1/2}$ K. Das bedeutet, dass zumindest ein Drittel des gesamten Sauerstoffgehaltes von dem schwereren Sauerstoffatom gebildet werden muss, damit der Effekt sichtbar wird. Die maximale Übergangstemperatur beträgt $T_{c,max} = 24.9$ K, wenn nur das schwere Sauerstoffatom vorhanden ist [28]. Die davor gemessenen Übergänge in den ferroelektrischen Zustand wurden durch im SrTiO₃ vorhandene Fremdatome und andere Defekte verursacht. Neuere Forschungsarbeiten haben gezeigt, dass auch SrTi¹⁶O₃ ferroelektrisch gemacht werden kann, zum Beispiel durch das Hinzufügen von Barium. Durch das biaxiale Dehnen des Materials (erzielt durch geeignete Wahl des Substratmaterials) kann man sogar Ferroelektrizität bei Raumtemperatur erreichen [29].

Die Dielektrizitätskonstante (genauer der Realteil) von SrTiO₃ ist im Vergleich zu anderen Oxiden sehr hoch und kann Werte von über 10000 (bei Temperaturen unter 5 K) erreichen. Außerdem ist die Temperaturabhängigkeit sehr stark, besonders im Temperaturbereich unterhalb von 150 K. Das Temperaturverhalten kann auch Abb. 3.3 entnommen werden. Aktuelle Messungen an SrTiO₃-Pulver ergeben einen Wert von $\epsilon = (232 \pm 3)$

für die Dielektrizitätskonstante bei Raumtemperatur [30]. Durch Bestrahlung mit UV-Licht und gleichzeitiges Anlegen eines schwachen Gleichstrom-Feldes sind Dielektrizitätskonstanten in $\text{SrTi}^{16}\text{O}_3$ mit Werten bis zu $\epsilon_{\text{UV,DC}} = 1.9 \times 10^6$ möglich. Dieser Effekt tritt erst unterhalb von 100 K auf und die exakten mikroskopischen Ursachen scheinen noch weitgehend ungeklärt [31].

3.2.2 Elektrische Eigenschaften von LaAlO_3

LaAlO_3 ist wie SrTiO_3 ein Bandisolator. Das Band-Gap von LaAlO_3 beträgt etwa 6.2 eV [32].

Dielektrische Eigenschaften

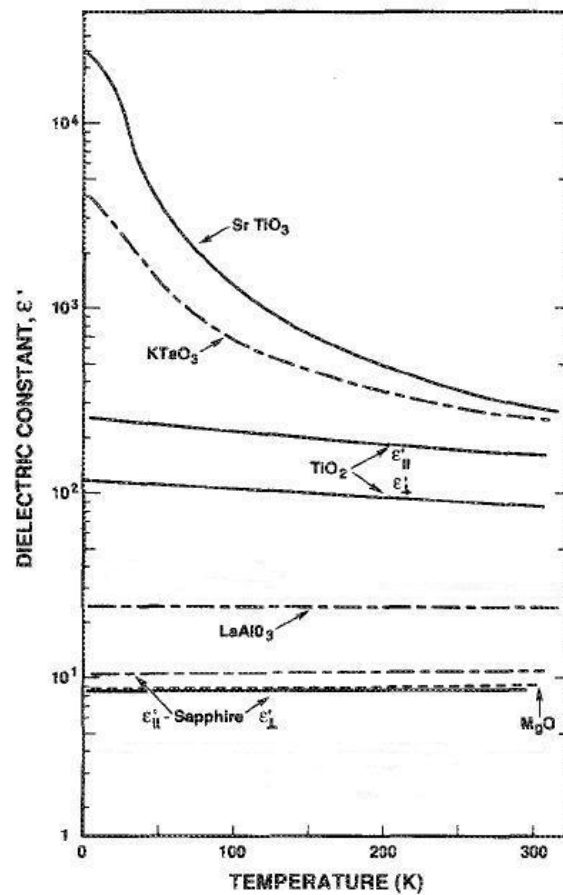
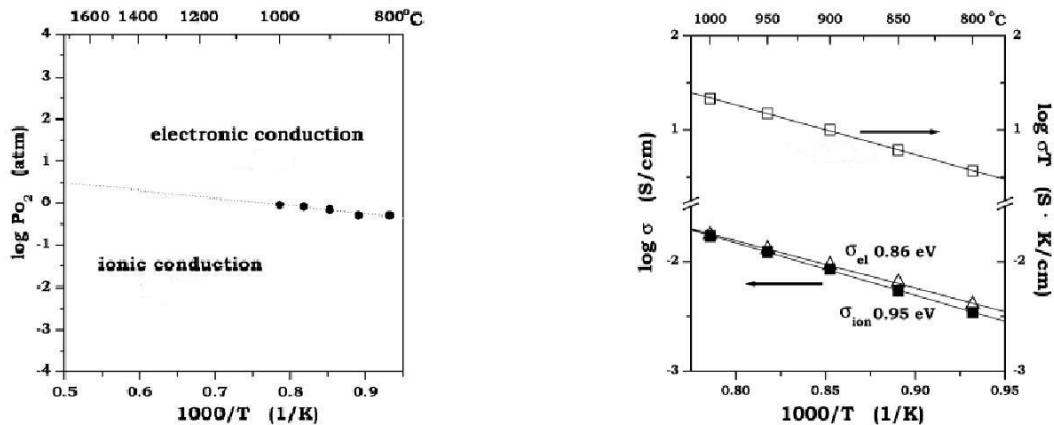


Abbildung 3.3: Temperaturabhängigkeit der Dielektrizitätskonstante einiger ausgewählter Oxidmaterialien. Mit freundlicher Genehmigung von [32]. Copyright 1993, American Institute of Physics.

Die Dielektrizitätskonstante von LaAlO_3 ist im Verhältnis zu jener von SrTiO_3 relativ gering und beträgt je nach Probenpräparation etwa 24.5 bei einer Temperatur von 300 K. Weiters zeigt die Dielektrizitätskonstante nur kleine Änderungen mit veränderlicher Temperatur (Veränderung über 300 K von etwa 2%). Abb. 3.3 zeigt die Temperaturabhängigkeit der Dielektrizitätskonstanten verschiedener Oxide. Besonders zu beachten ist dabei der große Unterschied zwischen SrTiO_3 und LaAlO_3 [32]. Seine dielektrischen Eigenschaften machen LaAlO_3 neben anderen Materialien zu einem idealen Kandidaten für Verwendung in MOSFETs (*metal oxide semiconductor field effect transistor* = Metall-Oxid-Halbleiter-Feldeffekttransistor), wo es als isolierende Schicht zwischen den Kontakten und dem darunterliegenden Halbleitermaterial (Silizium) dient und damit konventionelle Materialien (zumeist SiO_2) ersetzen könnte [33]. Der Vorteil gegenüber SiO_2 liegt dabei vor allem in der höheren Dielektrizitätskonstante und damit in einer höheren Polarisierbarkeit des Materials, was vor allem bei sehr dünnen Schichten entscheidend ist, um Verlustströme zu vermeiden (*high-k*-Materialien).

Elektrische Leitfähigkeit

Aufgrund der geringen Leitfähigkeit der meisten Oxide wurde versucht, diese durch das Dotieren mit verschiedenen Fremdatomen oder Ionen zu erhöhen. Dabei wurde festgestellt, dass, mit SrO dotiertes, Bi_2O_3 bei geringem Sauerstoff-Partialdruck ein fast reiner O_2 -Ionenleiter ist. Ähnliche Ergebnisse wurden auch durch das Dotieren mit La_2O_3 erreicht [34]. Es wurden auch einige weitere Systeme und Dotierungsvarianten komplexerer Oxide untersucht, wie z.B. das System NdAlO_3 . Die höchste ionische Leitfähigkeit ergibt sich hier bei Dotierung mit Ca für Nd und Ga für Al im System $\text{Nd}_{0.9}\text{Ca}_{0.1}\text{Al}_{0.5}\text{Ga}_{0.5}\text{O}_3$ [35].



(a) Halblogarithmische Auftragung O_2 - Partialdruck über inverser Temperatur, Teilung in ionischen und elektronischen Leitungsbereich.

(b) Aktivierungsenergien für ionische (leere Rechtecke) und elektronische (gefüllte Rechtecke, Dreiecke) Leitung.

Abbildung 3.4: Elektrische Eigenschaften von $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Al}_{0.9}\text{Mg}_{0.1}\text{O}_3$ [36]

Auch mit Sr bzw. Mg dotiertes LaAlO_3 weist ähnliche Eigenschaften auf. An $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{AlO}_3$ wurde die höchste Leitfähigkeit in Sauerstoff-Partialdruck Atmosphäre

bei 900°C gemessen (Werte bis etwa $1.3 \times 10^{-2} (\Omega \text{ cm})^{-1}$) [37]. Bei sehr kleinem Sauerstoff-Partialdruck und Temperaturen über 800°C tragen auch in, mit Ti dotiertem, $\text{La}_{0.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Al}_{0.9}\text{Mg}_{0.1}\text{O}_3$ praktisch nur die Ionen zur Leitung bei. Mit steigendem O_2 -Partialdruck wird das Material ein gemischter Elektronen-Ionen Leiter, bis der ionische Anteil völlig verschwindet. Die Temperatur spielt eine große Rolle für die Art der Leitfähigkeit (siehe Abb. 3.4(a)). Da die Aktivierungsenergie für die Ionenleitung i.A. höher ist als jene für die Elektronenleitung, wird die Ionenleitung erst bei höheren Temperaturen aktiviert (siehe Abb. 3.4(b)) [36]. Die elektronische Leitung wird auch in diesen Systemen durch die zusätzlichen Elektronen aus Donatoratomen verursacht.

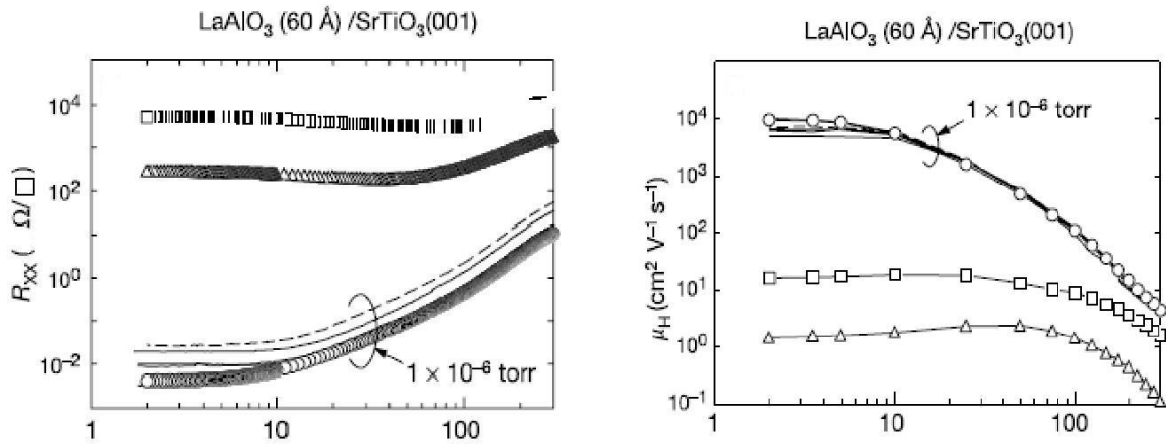
3.3 Transporteigenschaften der Heterostrukturen

3.3.1 Metallische Leitfähigkeit in $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$

Ausgangspunkt für die Entdeckung der hier diskutierten leitfähigen Oxidgrenzschicht war das Bestreben die Leitfähigkeit von SrTiO_3 mit unterschiedlichen Methoden zu vergrößern. Von Hwang wurden drei Möglichkeiten vorgestellt, um die Leitfähigkeit von SrTiO_3 zu erhöhen, welche eine Zusammenfassung der momentan eingesetzten Techniken darstellen [38]. Diese sind:

1. **Delta Doping:** Dies ist das abwechselnde Aufbringen von fünf Einheitszellen SrTiO_3 und einer Einheitszelle LaTiO_3 , was zu einem metallischen Verhalten führt. Durch veränderte Dicken der einzelnen Schichten kann dieses Verhalten gezielt variiert werden. Die SrTiO_3 -Schicht muss eine Dicke von fünf Einheitszellen aufweisen, damit innerhalb dieser Schicht das SrTiO_3 Bulk-Verhalten (Bulk bezeichnet den massiven Einkristall) beobachtet werden kann, was auf die kurze Reichweite dieses Effektes schließen lässt.
2. **Dotieren, Reduzieren:** Das Erzeugen von Sauerstoff-Leerstellen durch Reduzieren oder Einbringen von anderen Stoffen wie Nb für Ti und La für Sr erlaubt es die Leitfähigkeit in SrTiO_3 zu erhöhen, da die Sauerstoff-Leerstellen als Elektronendonatoren fungieren. Diese Technik wurde bereits in den vorigen Kapiteln diskutiert und wird seit Jahrzehnten angewandt.
3. **Polare/Non-Polare Grenzschichten:** An der Grenzschicht zwischen polaren Oxiden (wie LaAlO_3) und nicht polaren Oxiden (wie SrTiO_3) konnte eine erhöhte Leitfähigkeit festgestellt werden mit theoretischen Schicht-Ladungsträgerdichten (*sheet carrier density*) von bis zu $3.3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$.

Genaue Messungen an diesen $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ Heterostrukturen ergaben, dass, wenn das aufgebrachte LaAlO_3 an der Kontaktseite $(\text{AlO}_2)^-$ terminiert ist, ein isolierendes Verhalten zu beobachten ist. Hingegen, bei — zum Kontakt hin — $(\text{LaO})^+$ terminiertem LaAlO_3 stellt sich ein metallisches Verhalten ein (das SrTiO_3 war $(\text{SrO})^0$ bzw. $(\text{TiO}_2)^0$ terminiert). Es liegt also ein n-Typ Leiter vor. Das p-Typ Interface ist hingegen ein Isolator. Für Proben mit LaAlO_3 Schichten der Dicke 6 nm und 26 nm wurden gleichermaßen



(a) Temperaturabhängigkeit des Schicht-Widerstandes für einen O_2 -Partialdruck (bei der Herstellung) von 1×10^{-6} Torr (Kreise), 1×10^{-5} Torr (Dreiecke) und 1×10^{-4} Torr (Rechtecke)

(b) Temperaturabhängigkeit der Ladungsträgerbeweglichkeit, Partialdruck wie in (a)

Abbildung 3.5: Elektrische Eigenschaften von $LaAlO_3(60\text{\AA})/SrTiO_3$ Filmen. Mit freundlicher Genehmigung von McMillan Publishers Ltd.: Aus [5], Copyright (2004).

Schicht-Widerstände von weit unter $1 \Omega/\square$ und Ladungsträgerbeweglichkeiten von bis zu $10^4 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ bei etwa 10 K gemessen (siehe Abb. 3.5). Da die Proben auch einem Ausheiz-Prozess in Sauerstoff-Atmosphäre unterzogen wurden und dabei nur geringfügige Änderungen der Leitfähigkeit festgestellt werden konnten, nahmen Ohtomo et al. zu Beginn an, dass der Mechanismus, der das metallische Verhalten ermöglicht, nicht in Sauerstoff-Fehlstellen, sondern durch die Polaritätsdiskontinuität die Elektronen in die obersten Schichten des $SrTiO_3$ einbringt, begründet ist [5]. Beide theoretischen Ansätze sollen im Folgenden vorgestellt werden.

3.3.2 Transportmechanismus und Ladungsträgerverteilung

Die Ursache der Ladungsträger und deren Verteilung in der Heterostruktur ist noch nicht vollständig geklärt. Dennoch lassen sich zwei Ansätze für Art, Entstehung und Verteilung der Ladungsträger finden, die beide schlüssige Argumente bieten, für die experimentelle Nachweise vorhanden sind und Modellrechnungen durchgeführt wurden.

Die Polaritätsdiskontinuität und das zweidimensionale Elektronengas

Aufgrund der Tatsache, dass an der Grenzschicht zwischen den beiden Oxiden eine so genannte Polaritätsdiskontinuität besteht, also ein Material nicht polar ($SrTiO_3$) und ein Material polar ($LaAlO_3$) ist, käme es mit steigender Dicke des polaren Materials zur so genannten „Polarkatastrophe“. Diese wird in Halbleitern oft durch ionische Rekombination vermieden. Das bedeutet, die einzelnen Ionen werden durch Diffusion so umgeordnet, dass sich der energetisch günstigste Zustand ergibt. In den hier verwendeten

Materialien kommen einfache Modelle aber zu dem Schluss, dass elektronische Rekonstruktion vorliegt. Dabei werden Elektronen aus dem LaAlO_3 in das SrTiO_3 eingebracht. Im Idealfall ist dies ein halbes Elektron pro Elementarzelle, was der bereits erwähnten Schicht-Ladungsträgerdichte von $3.3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ entsprechen würde. Diese Elektronen kommen vorwiegend aus den d-Bändern des Al und gehen in das Leitungsband des SrTiO_3 , vorwiegend gebildet von den d Orbitalen der Ti Atome. Die entstehende leitende Schicht hätte nur eine Dicke von wenigen nm und man spricht deshalb von einem zweidimensionalen Elektronengas [5], [15].

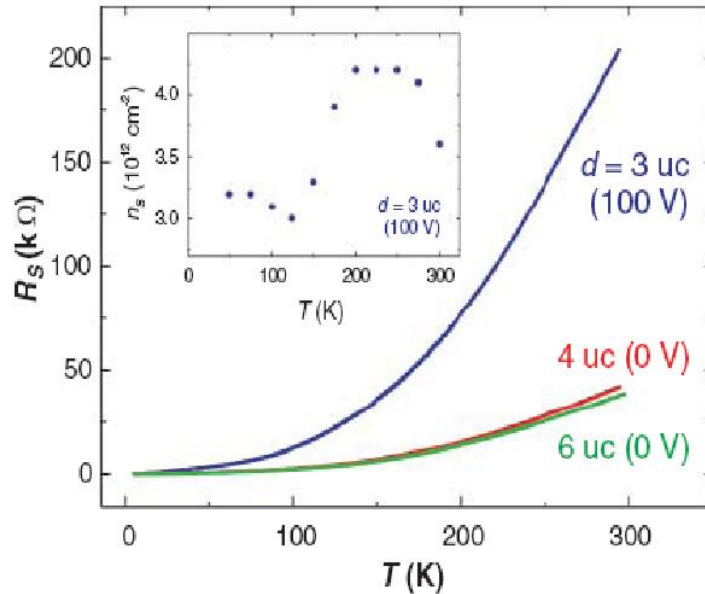


Abbildung 3.6: Temperaturabhängigkeit des Schicht-Widerstandes von $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ - Heterostrukturen mit unterschiedlichen LaAlO_3 Schichtdicken. An die Probe mit 3 Einheitszellen LaAlO_3 wurde eine Gate -Spannung von 100 V angelegt und sie wurde von einem Strom von $1 \mu\text{A}$ durchflossen. (Kleines Bild) Temperaturabhängigkeit der Ladungsträgerdichte der 3 uc Probe. Aus [15], mit freundlicher Genehmigung von AAAS.

Wenn nun das n-Typ Interface leitend ist, gibt es keinen offensichtlichen Grund warum das p-Typ Interface nicht ebenfalls metallische Leitfähigkeit zeigen sollte. Dazu wurden von Pentcheva und Pickett Modellrechnungen unter Anwendung der Dichtefunktionaltheorie durchgeführt und festgestellt, dass sich eine Erklärung für dieses Problem finden lässt, wenn man davon ausgeht, dass die beim p-Typ Interface erzeugten Löcher bevorzugt Sauerstoff Orbitale besetzen. Unter der Annahme einer starken repulsiven Coulombwechselwirkung zwischen den Löchern und dass sich bei dieser Besetzung antiferromagnetische Ordnung einstellt, kann man zeigen, dass sich ein isolierendes Verhalten einstellen muss, weil dies zu einer starken Lokalisierung der Löcher führt [39].

Bei Berechnungen zum n-Typ Interface (ebenfalls mittels Dichtefunktionaltheorie) wurde festgestellt, dass etwa ein halbes Elektron pro Elementarzelle vom LaAlO_3 in das d-Band des Titan übergeht. Man erhält somit einen gemischten Valenzzustand, also eine

Mischung von Ti^{3+} , mit einem zusätzlichen Elektron und Ti^{4+} ohne das Elektron. Nach [40] tritt auch eine Jahn-Teller Verzerrung der Gitterstruktur auf. Es kommt zu einer Verzerrung der c-Achse (normal zur Interfaceebene) des TiO_6 -Oktaeders direkt an der Grenzfläche und damit zu einer Aufspaltung der Energieniveaus des d-Bandes des Titan, was bei der Besetzung durch die zusätzlichen Elektronen insgesamt einen energetisch niedrigeren Zustand für das System zur Folge hat. Spätere Arbeiten zeigen aber, dass wahrscheinlich keine echte Jahn-Teller-Verzerrung des Gitters vorliegt. Allerdings ergaben weitere Berechnungen, dass es zu einer Verschiebung der Atome an der Grenzfläche, oder sogar zur kurzreichweitigen Interdiffusion der Atome in das jeweils andere Material kommt. Von Willmot et al. wurde eine Theorie vorgeschlagen, in welcher sich La und Sr Ionen in der Nähe der Oxidgrenzfläche mischen. Dabei würde eine 2 Einheitszellen dicke $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{TiO}_3$ -Schicht entstehen, in der die Fermi Energie über das Minimum des Leitungsbandes angehoben wird, die damit die Oxidstruktur metallisch leitend macht [41]. Diese Theorie wurde aber stark in Frage gestellt. Mehrere Gruppen erklären die Effekte mit einer Verzerrung der Atomstruktur in der Nähe der Grenzfläche. Dabei kommt es zu ionischer Relaxation, die für Anionen und Kationen unterschiedlich ist, was zu einer Polarisierung des Gitters führt [42]. Es wurden weitere Aufspaltungen der Energieniveaus des d-Bandes beobachtet, welche auf einen Pseudo-Jahn-Teller-Effekt (durch Verzerrung des TiO_6 -Oktaeders) hindeuten und auch der Kristallfeld-Effekt, welcher ebenfalls zu einer Symmetrieverringung und damit zur Aufspaltung der Energieniveaus im Ti führt, wurde nachgewiesen [43].

Dies erklärt auch die Entdeckung von Thiel et al., dass es eine Mindestdicke LaAlO_3 gibt, die überschritten werden muss, um die metallische Leitfähigkeit zu erzeugen. Erst ab 4 Einheitszellen LaAlO_3 zeigte das Material diese metallische Leitfähigkeit. Bei 3 Einheitszellen LaAlO_3 auf SrTiO_3 kann man die Leitfähigkeit nur durch das gezielte Anlegen einer Gate-Spannung (also einer Spannung normal zum Interface, ähnlich wie bei einem Feldeffekttransistor) erreichen und auch dabei bleibt die Leitfähigkeit weit unter den Werten die Strukturen mit mehr LaAlO_3 Elementarzellen aufweisen (siehe Abb. 3.6). Hall-Effekt Messungen ergaben, dass auch die Schicht-Ladungsträgerdichte im Interface mit dem Sprung von 3 auf 4 Elementarzellen LaAlO_3 stark ansteigt und Werte um $2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ erreicht (siehe Abb. 3.7), dann aber mit wachsender Schichtdicke (größenordnungsmäßig) konstant bleibt [16], [15]. Dies kann dadurch erklärt werden, dass die Polarität groß genug sein muss, um das Band-Gap des SrTiO_3 zu überwinden und die Elektronen in dessen Leitungsband zu bringen. Da die Wirkung dieser Polaritätsdiskontinuität teilweise durch die ungeordneten Ionen und das dadurch entstehende elektrische Feld an der Grenzfläche kompensiert wird, muss den Elektronen weitere Energie durch Anlegen eines elektrischen Feldes zugeführt werden. Erst bei 4 oder mehr Elementarzellen LaAlO_3 ist diese Kompensation nicht mehr ausreichend und die Elektronen werden durch die Polaritätsdiskontinuität in das Interface eingebracht. Es kommt zu einer graduellen Reduzierung des Band-Gaps zwischen den O 2p (im LaAlO_3) Zuständen und den Ti 3d Orbitalen mit steigender LaAlO_3 -Schichtdicke, bis die Elektronen bei einer Dicke von 4 bis 5 Einheitszellen LaAlO_3 zur Leitung beitragen können [44].

Weitere Bestätigung für diese Annahmen lieferte die Entdeckung von metallischer Leitfähigkeit an einem weiteren Oxidinterface, nämlich an der Grenzfläche zwischen

LaVO₃/SrTiO₃. Dieses zeigt ebenfalls nur die metallischen Eigenschaften wenn die LaVO₃ Schicht dicker als 5 Einheitszellen ist, wobei mit zunehmender Dicke Ladungsträgerdichten von bis zu 10¹⁴ cm⁻² erreicht werden konnten. Bei Dicken größer als 10 Einheitszellen ist diese Ladungsträgerdichte nahezu konstant [45].

Weiters liefert dieser Ansatz auch eine Erklärung für die Tatsache, dass bei den Proben, für welche elektronische Rekonstruktion als Ursache der Leitung vermutet wird, die Ladungsträgerdichten meist Werte von nicht mehr als 3x10¹³ cm⁻² aufweisen. Es wird der theoretisch mögliche Wert von 3.3x10¹⁴ cm⁻² nicht erreicht. Dies ist verständlich, wenn man bedenkt, dass die Wirkung der Polaritätsdiskontinuität teilweise von der ionischen Relaxation kompensiert wird. Modellrechnungen ergeben dazu theoretische Ladungsträgerdichten von 1.2x10¹³ cm⁻² [43] bis 1.8x10¹⁴ cm⁻² [42].

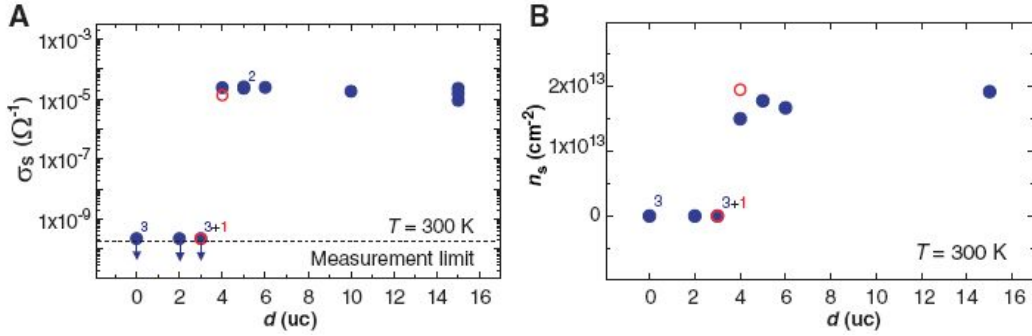


Abbildung 3.7: Leitfähigkeit (A) und Ladungsträgerdichte (B) der LaAlO₃/SrTiO₃ Heterostruktur in Abhängigkeit der LaAlO₃ Schichtdicke. Aus [15], mit freundlicher Genehmigung von AAAS.

Je nach Ansatz der für die jeweilige Modellrechnung verwendet wird, geht man von unterschiedlicher Ausdehnung der Ladungsträger aus. Zu Beginn nahmen Thiel et al. eine Ausdehnung von unter 2 nm an [15]. Theoretische Überlegungen (allerdings zum Interface zwischen einem Band und einem Mott-Isolator) ergaben eine Dicke der leitenden Schicht von unter 10 nm [46]. Weitere Experimente gehen ebenfalls von einer starken Lokalisierung der Elektronen um die Oxidgrenzschicht aus, wobei die leitende Schicht dann nur einige wenige Einheitszellen (unter 1 nm) dick wäre [47]. Allerdings erhält man mit diesen Berechnungen teils noch wesentlich größere Ladungsträgerdichten als in den Experimenten gefunden wurden. Außerdem wurde der Anteil der Ti³⁺ Ionen mittels Röntgenabsorptionsspektroskopie (XAS) bzw. Raster-Transmissionselektronenmikroskopie (STEM) bestimmt und diese machen zumeist nicht mehr als 10% bis 20% des gesamten Ti Anteils am Interface aus [48], wobei das auch von den Herstellungsbedingungen abhängig ist. Proben, die unter niedrigem Sauerstoff-Partialdruck hergestellt wurden, zeigten dabei höhere Anteile an Ti³⁺ als jene, die unter höherem Druck hergestellt wurden [49]. Popovic et al. nehmen daher an, dass es zwei Sorten von Ladungsträgern gibt. Jene, die an der Grenzschicht lokalisiert sind und weitere, die delokalisiert sind und über gewisse Distanzen in das SrTiO₃ eindringen können [50]. Weitere Messungen von Fix et al. ergaben ebenfalls, dass die Mehrheit der Ladungsträger am Interface lokalisiert sind,

aber nur geringe Beweglichkeit aufweisen. Weitere Ladungsträger befinden sich weiter im Inneren des SrTiO_3 und weisen eine wesentlich höhere Beweglichkeit auf, allerdings scheint der Ursprung dieser Ladungsträger noch ungeklärt und Sauerstoff-Leerstellen sind als Ursache nicht auszuschließen [51].

Anhand der verschiedenen Modellrechnungen und Experimente kann man klar erkennen, dass eine endgültige Erklärung für die mikroskopischen Prozesse, die für die Leitung in Proben mit eher geringen Ladungsträgerdichten verantwortlich sind, noch nicht gefunden wurde. Besonders anzumerken ist die Tatsache, dass die verschiedenen Modellrechnungen zumeist von unterschiedlichen Randbedingungen ausgehen und deswegen Vergleichbarkeit oder allgemeine Gültigkeit nicht zwingend gegeben sein muss. Einigkeit besteht darüber, dass die Polaritätsdiskontinuität die Hauptursache für das Einbringen von Elektronen in die Grenzschicht ist. Zur Ausdehnung der Ladungsträger und den exakten Prozessen an der Grenzschicht bedarf es wohl noch weiterer Forschungsarbeiten, um allgemein gültige Erklärungen zu erhalten.

Leitfähigkeitserhöhung aufgrund von Sauerstoff-Leerstellen

Diese Theorie zum Ursprung der hohen Leitfähigkeit am $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ Interface besagt, dass das metallische Verhalten von Sauerstoff-Leerstellen verursacht wird. Diese werden bereits beim Herstellungsprozess in die Heterostruktur eingebracht. Weil zur Herstellung der Proben vorwiegend das PLD-Verfahren verwendet wird (PLD = *Pulsed Laser Deposition*) nimmt man an, dass während des Aufbringens des LaAlO_3 Sauerstoffatome vorwiegend in Oberflächennähe aus dem Atomverband des SrTiO_3 gelöst werden können. Experimente liefern durchwegs Schicht-Ladungsträgerdichten von mehr als 10^{16} cm^{-2} und die Beweglichkeit der Ladungsträger liegt im Bereich von $10^4 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ bei 4.2 K [52].

Siemons et al. schließen daraus, dass die Sauerstoff-Leerstellen die Quelle der Ladungsträger darstellen. Es werden zwei Elektronen pro Leerstelle in das Interface eingebracht. Bestes Indiz hierfür ist, dass die untersuchten Proben nach dem Auslagern in Sauerstoff-Atmosphäre nur mehr wesentlich geringere Leitfähigkeit zeigten und dass zum jetzigen Zeitpunkt keine Proben bekannt sind, die in Atmosphären mit einem Sauerstoff Partialdruck von mehr als 10^{-4} mbar hergestellt wurden und metallische Leitfähigkeit aufweisen. Da es praktisch unmöglich ist, die Leerstellen uniform im Bulk- SrTiO_3 zu verteilen, (und weil dann die Beweglichkeit der Ladungsträger viel geringer sein müsste) wird angenommen, dass sich die eingebrachten Elektronen weg bewegen von den Leerstellen und sich in einem schmalen Bereich um das Interface befinden (siehe Abb. 3.8). Dieser Bereich könnte, aufgrund der stark temperaturabhängigen Dielektrizitätskonstante von SrTiO_3 ebenfalls stark temperaturabhängig sein und eine Dicke von 50 nm bei tiefen Temperaturen, bis hin zu wenigen nm bei Raumtemperatur, aufweisen [53], [54].

Eine andere Sichtweise ist, dass die Sauerstoff-Leerstellen während der Herstellung des LaAlO_3 -Dünnsfilms innerhalb von wenigen Sekunden bis zu $500 \mu\text{m}$ weit in das SrTiO_3 hinein diffundieren können. Damit würde sich die Ladungsträgerschicht weit in das Substratmaterial hinein erstrecken und man könnte davon ausgehen, dass die Sauerstoff-

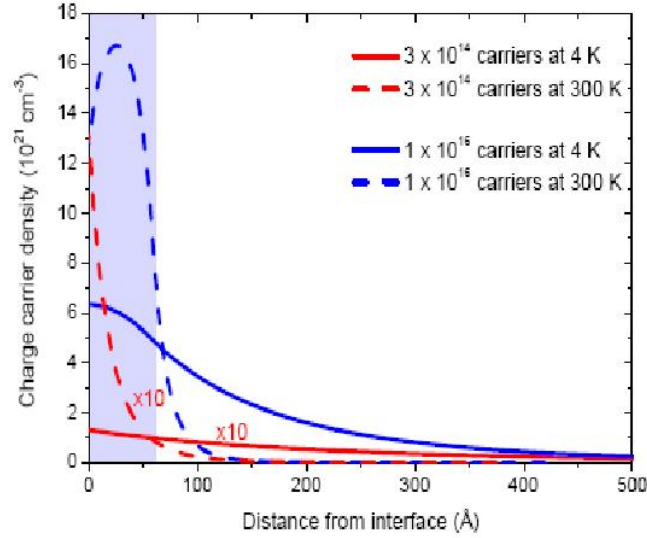


Abbildung 3.8: Berechnete Ladungsträgerverteilung in Abhängigkeit von der Temperatur einer $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ Heterostruktur mit Elektronendichten von $3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ und $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ [53].

Leerstellen gleichmäßig in diesem Bereich verteilt sind. Beweis dafür sind richtungsunabhängige Shubnikov-de Haas Oszillationen (Oszillationen des Widerstandes in äußerem Magnetfeld bei tiefen Temperaturen aufgrund der quantisierten Energie der Elektronen), welche bei Feldern von 6 T unter 1.5 K beobachtet werden konnten und somit auf eine dreidimensionale Anordnung der Ladungsträger hindeuten. Es könnte weiters angenommen werden, dass aufgrund des ähnlichen elektrischen Verhaltens der Leitungsmechanismus der Heterostruktur derselbe ist wie in reduziertem Bulk- SrTiO_3 [55].

Weitere Beweise für die Annahme, dass die Sauerstoff-Leerstellen als Ladungsträgerlieferanten fungieren, liefern Studien des Systems $\text{KTaO}_3/\text{SrTiO}_3$. Am Interface zwischen diesen beiden Oxiden sollte unter der Annahme, dass die Polaritätsdiskontinuität für die metallische Leitfähigkeit verantwortlich ist, eigentlich Löcherleitung vorliegen. Es wurden aber Ladungsträger mit negativer Ladung beobachtet und die Eigenschaften sind vergleichbar mit denen der $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ Heterostruktur (siehe Abb. 3.9), was wiederum auf die Sauerstoff-Leerstellen als Ladungsträger schließen lässt, da diese immer negative Ladungsträger liefern [56].

Yoshimatsu et al. gehen, analog zur Annahme im vorigem Kapitel, davon aus, dass die Polaritätsdiskontinuität in Interfacenähe durch eingebrachte Elektronen kompensiert wird. Allerdings ergaben Photoemissionsspektroskopie (PES) Experimente an der Heterostruktur, dass die Ladungsträger aus dem SrTiO_3 stammen. Diese könnten dort durch Sauerstoff-Leerstellen erzeugt werden [57].

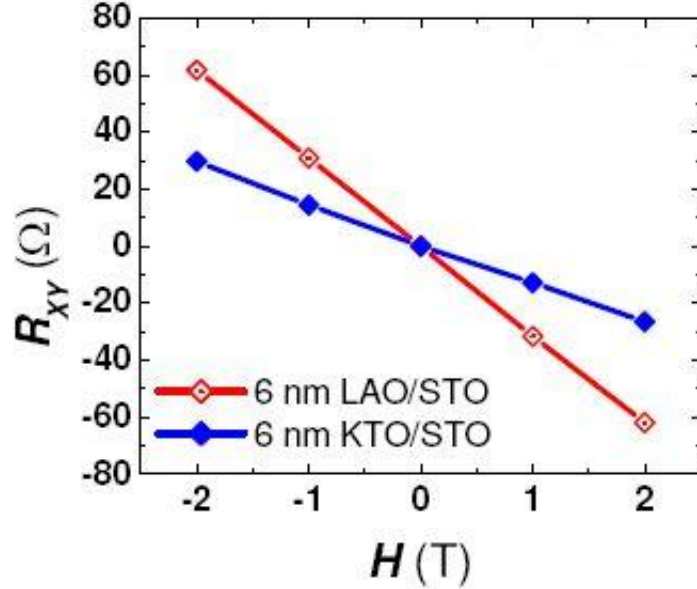
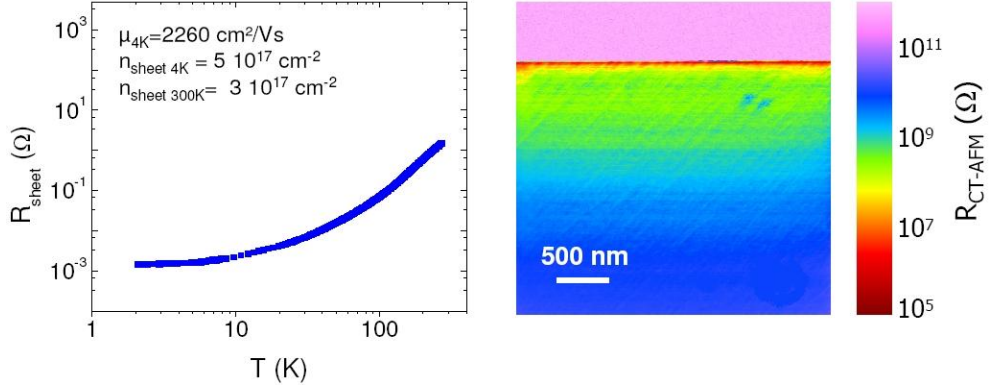


Abbildung 3.9: Magnetfeldabhängigkeit des Hall-Widerstandes von $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ im Vergleich zu $\text{KTaO}_3/\text{SrTiO}_3$ bei Raumtemperatur (gemessen in rechteckiger Van der Pauw Konfiguration) [56].

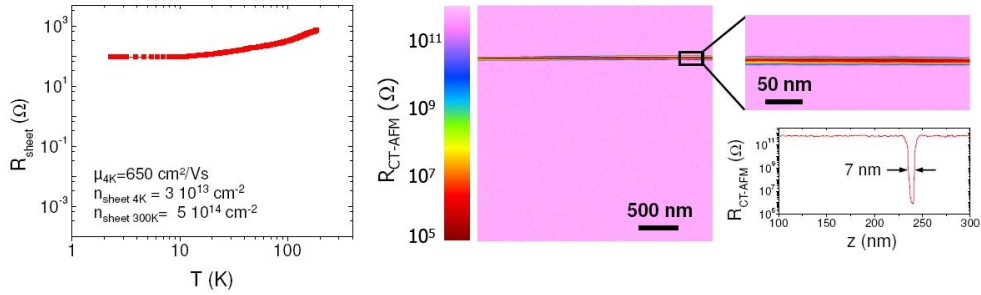
Vereinbarkeit der beiden Modelle

Nach der Entdeckung der metallischen Leitfähigkeit am $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ gab es heftige Diskussionen über den Ursprung und die Verteilung der Ladungsträger am Interface oder im Inneren des SrTiO_3 . Mittlerweile scheint sich herausgestellt zu haben, dass beide diskutierten Ansätze für gewisse Konfigurationen richtig sind. Auffällig ist vor allem der Unterschied zwischen den gefundenen Ladungsträgerdichten. Diese sind für Proben in denen man die Sauerstoff-Leerstellen als Verursacher der Leitfähigkeit annimmt (10^{16} cm^{-2}) um Größenordnungen höher als in jenen, wo die Polaritätsdiskontinuität als Ursache angenommen wird ($2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, aber es sollte ohnehin die theoretische Grenze von $3.3 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ gelten). Damit ist klar, dass die Ursache der Leitfähigkeit stark davon abhängt, wie die Proben hergestellt wurden, vor allem vom O_2 -Partialdruck der beim Herstellungsprozess herrscht. Sind sehr viele Sauerstoff-Leerstellen im Material vorhanden, so wird der Effekt, der durch die Polaritätsdiskontinuität entsteht, von dem Effekt der Leerstellen nahezu völlig überdeckt. Durch bestimmte Herstellungsverfahren (wie sie auch bei den hier untersuchten Proben angewendet wurden) oder das Auslagern bei hohen Temperaturen kann das Einbringen von Leerstellen jedoch minimiert werden bzw. die Leerstellen aus dem Material entfernt werden. Dennoch ist auch bei diesen Proben nie auszuschließen, dass Sauerstoff-Leerstellen einen Einfluss auf die Leitfähigkeit des Materials haben. Auch die Ausdehnung der Ladungsträger ist offensichtlich stark von der Probenpräparation abhängig. Basletic et al. benutzten Rasterkraftmikroskopie (CT-AFM) um die Leitfähigkeiten der einzelnen Schichten zu untersuchen. Dabei fanden sie heraus, dass die Ladungsträger über einen weiten Bereich im SrTiO_3 verteilt sind, wenn

die Herstellung bei geringem Partialdruck stattfand und die Probe nicht nachträglich in Sauerstoff-Atmosphäre ausgeheizt wurde. Bei den analog, zu den hier verwendeten, hergestellten Proben wurde jedoch eine starke Lokalisierung der Ladungsträger um das Interface (Obergrenze von 7 nm, siehe Abb. 3.10) gefunden [58]. Außerdem sind die Leitfähigkeiten der ersten Proben um Zehnerpotenzen größer und auch die Beweglichkeit ist um mehr als eine Faktor 4 erhöht.



(a) Probe erzeugt unter Sauerstoff-Partialdruck von 1×10^{-6} mbar



(b) Probe erzeugt unter Sauerstoff-Partialdruck von 1×10^{-5} mbar, zusätzlich in Sauerstoff-Atmosphäre ausgeheizt.

Abbildung 3.10: Schichtwiderstand und tiefenabhängiger Widerstand gemessen mit CT-AFM (*conducting tip atomic force microscope*) an $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ Strukturen. Mit freundlicher Genehmigung von McMillan Publishers Ltd.: Aus [58], Copyright (2008).

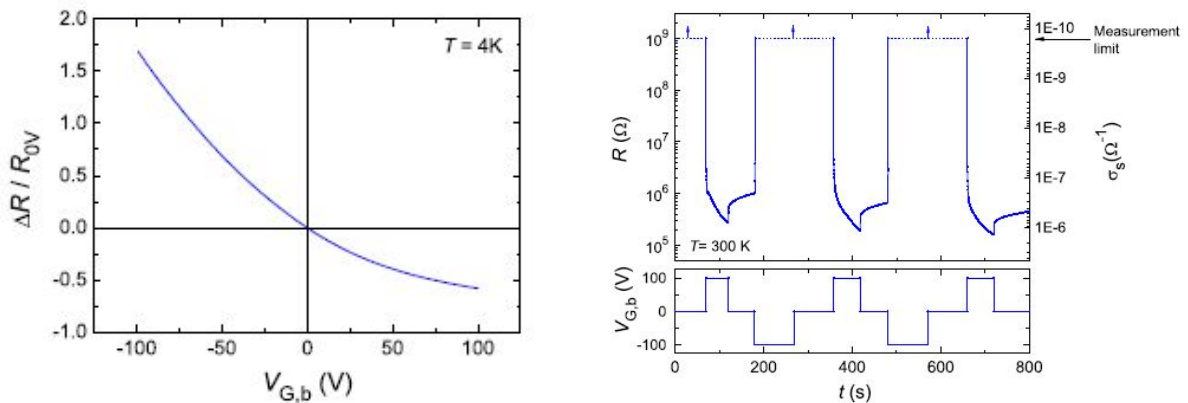
Zusammenfassend kann man also sagen, dass die Präparation der Proben eine immense Bedeutung für die elektrischen Eigenschaften hat. Je nach Verfahren wird das metallische Verhalten von den Sauerstoff-Leerstellen oder von der elektronischen Rekonstruktion bestimmt. Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben wurden analog zu jenen in [16] hergestellt und damit sollten Sauerstoff-Leerstellen wenn überhaupt nur eine untergeordnete Rolle spielen und die Ladungsträger sich in einem dünnen Interface mit einer Dicke von nicht mehr als 10 nm befinden.

3.3.3 Weitere Eigenschaften der Oxidstrukturen

Steuerung der Eigenschaften mit elektrischen Feldern

Die Entdeckung einer kritischen Dicke ($d_c = 4 \text{ uc}$) der LaAlO_3 -Schicht führte zu der Annahme, dass sich die Ladungsträgerzahl bei dünnen LaAlO_3 -Schichten mittels elektrischen Feldern steuern lässt. Experimente wurden an Proben mit 2, 3 und 4 Einheitszellen LaAlO_3 durchgeführt. Dabei wurden die Spannungen mittels Kontakten an den Probenrückseiten (so genannte Gate-Spannungen) normal zum Interface angelegt. Die Proben mit 2 Einheitszellen waren bei Gate-Spannungen von 100 V durchwegs isolierend.

Bei einer Dicke des LaAlO_3 von 3 Einheitszellen stellte man je nach angelegter Spannung unterschiedliche Leitfähigkeiten fest, die jedoch nie die Werte jener Proben mit 4 Einheitszellen erreichten (siehe Abb. 3.6). Die Ladungsträgerdichten erreichten bei den 3 uc Proben Werte von mehreren 10^{12} cm^{-2} , was darauf schließen lässt, dass mit elektrischen Feldern nahezu alle theoretisch zur Verfügung stehenden Ladungsträger in das Interface eingebracht werden können. Weiters wurde auch ein ausgeprägter „Memory Effect“ festgestellt. Dies bedeutet, dass beim Wechsel der Polarität des elektrischen Feldes der Widerstand nur zeitverzögert reagiert (siehe Abb. 3.11b) mit Zeitkonstanten von Minuten oder sogar Stunden. Dies könnte man zum Beispiel in der Elektronik zum kurzzeitigen Speichern von Schaltimpulsen nützen. Bei Proben mit 4 oder mehr Schichten LaAlO_3 ist ebenfalls eine Zu- bzw. Abnahme (je nach Polarität des Feldes) des Widerstandes gemessen worden. Dieser Effekt ist bei geringen Temperaturen stärker ausgeprägt als bei Raumtemperatur (Abb. 3.11a).



(a) Widerstandsänderung ausgelöst durch Gate-Spannungen von -100 V bis $+100 \text{ V}$ bei 4.2 K in einem $\text{LaAlO}_3(4\text{uc})/\text{SrTiO}_3$ Film.

(b) Memory Effekt in einem LaAlO_3 (3 uc)/ SrTiO_3 Film.

Abbildung 3.11: Elektrische Eigenschaften von $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ Filmen unter Einfluss eines normal zum Interface angelegten elektrischen Feldes [16].

Wurde der Gate-Kontakt an der Front aufgebracht, so konnten die selben Effekte bei wesentlich geringeren Gate-Spannungen beobachtet werden. Diese Eigenschaften machen die Heterostruktur besonders interessant für die Verwendung in Feldeffekttransistoren (FET). FETs finden sich in fast allen elektronischen Geräten des täglichen Gebrauchs,

wie Computern oder Mobiltelefonen. Die Oxidstrukturen bieten gegenüber den üblichen Halbleiter-FETs den Vorteil geringerer Schaltzeiten und höherer Durchbruchspannungen (und damit höherer Polarisierbarkeit). Allerdings ist weitere Entwicklungsarbeit nötig bis die Oxid-Heterostrukturen kommerzielle Anwendung finden können [15], [16].

Magnetismus in der Oxid-Heterostruktur

Proben, welche unter Sauerstoff-Partialdruck von 10^{-3} mbar hergestellt wurden, zeigten großen negativen Magnetowiderstand und gleichzeitig ein logarithmisches Ansteigen des Schichtwiderstandes unterhalb von 70 K. Brinkman und Huijben führen dies auf Streuung an lokalisierten magnetischen Momenten zurück. Unter Temperaturen von 300 mK wurde ein Ordnungszustand zwischen den einzelnen magnetischen Momenten, sowie ein Curie-Weiss-Verhalten nachgewiesen, was auf Ferromagnetismus hindeuten könnte. Ein weiterer Hinweis auf Ferromagnetismus ist eine Hysterese des Magnetowiderstandes unter 300 mK [59], [60].

Thiel fand hingegen (in Proben, welche unter einem Sauerstoff-Partialdruck von 10^{-5} mbar hergestellt wurden) positiven Magnetowiderstand (10 % für 8 Tesla bei 4 K), wenn das Magnetfeld normal zur Interfaceebene orientiert war. Für parallel zum Interface orientiertes Magnetfeld wurde hingegen negativer Magnetowiderstand gemessen, abhängig von der Stromrichtung (-1.5% für I parallel zu B und -5% für I normal B , siehe Abb. 3.12) [16].

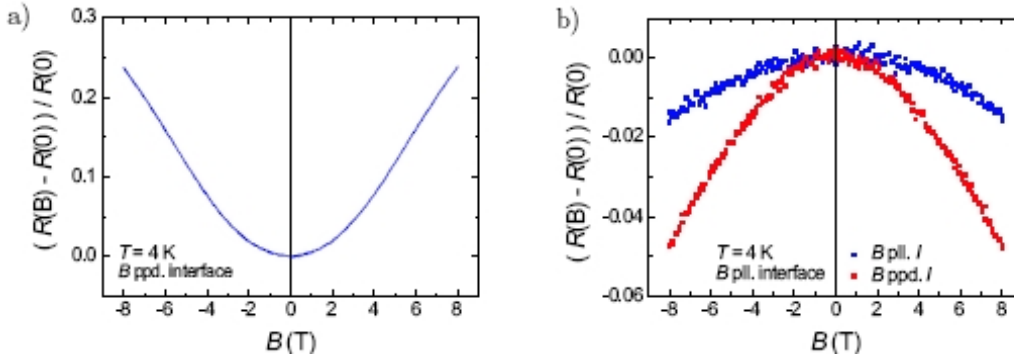


Abbildung 3.12: Magnetowiderstand einer $\text{LaAlO}_3(10 \text{ uc})/\text{SrTiO}_3$ -Struktur. a, $B \perp$ Interface; b, $B \parallel$ Interface. Für Details zur Probenpräparation siehe [16].

Bemerkenswerte Eigenschaften weiterer Oxid-Heterostrukturen

Nicht nur die hier untersuchte Oxid-Heterostruktur zeigt außergewöhnliche Eigenschaften. Bemerkenswert ist auch die Entdeckung metallischer Leitfähigkeit in $\text{LaVO}_3/\text{SrTiO}_3$ [45] genauso wie in mehrlagigen $\text{LaTiO}_3/\text{SrTiO}_3$ [61] Strukturen. Supraleitfähigkeit am Interface zwischen zwei nicht supraleitenden Materialien konnte am System $\text{BaCuO}_2/\text{SrCuO}_2$ [62] festgestellt werden. Zwischen den beiden antiferromagnetischen Stoffen LaMnO_3 und SrMnO_3 gibt es ein ferromagnetisches Interface [63] und zwischen

den beiden Oxiden SrZrO_3 und SrTiO_3 (welche beide nicht ferromagnetisch sind) hat man Ferroelektrizität festgestellt [64].

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass viele dieser Oxide für sich genommen Isolatoren sind, die durch Dotierung oder Reduktion leitend gemacht werden können. Werden zwei dieser Oxide aufeinander aufgebracht, können jedoch interessante elektrische oder magnetische Eigenschaften entstehen.

Strukturierung von $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ mittels Nanolithographie

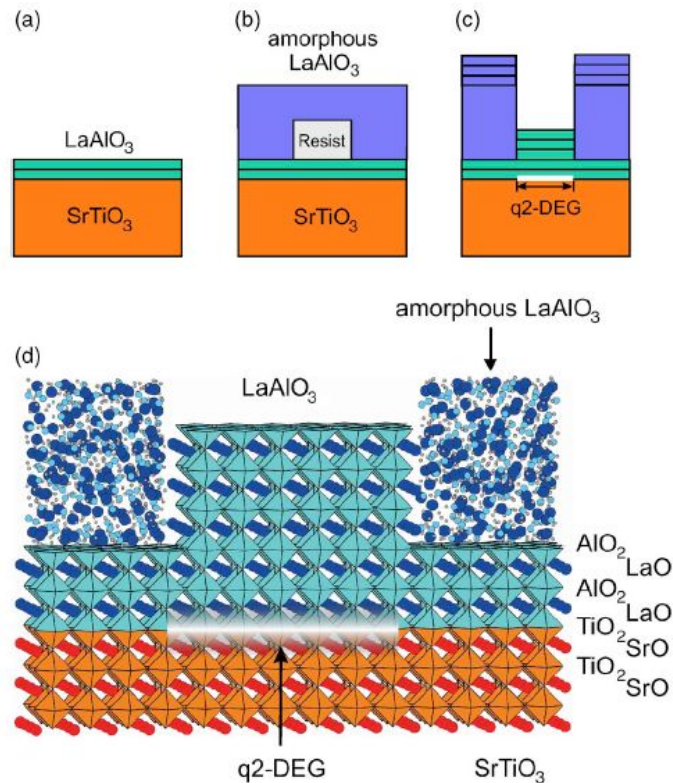


Abbildung 3.13: Schematische Darstellung des Herstellungsprozesses einer $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ Heterostruktur mittels Nanolithographie. (a) Aufbringen der LaAlO_3 Schicht (Dicke: 2 uc), (b) Deposition einer 15 uc dicken amorphen LaAlO_3 Schicht, (c) Deposition von 4 uc-13 uc kristallinen LaAlO_3 , (d) Schematischer Querschnitt der präparierten Probe. Mit freundlicher Genehmigung von [65]. Copyright (2006), American Institute of Physics.

Da sich diese Arbeit vorwiegend mit der Steuerung der elektrischen Eigenschaften des $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ beschäftigt, soll die Möglichkeit diese Filme mittels Nanolithographie zu strukturieren nicht unerwähnt bleiben. Bei diesem Verfahren werden zuerst zwei Einheitszellen LaAlO_3 auf das Substrat aufgebracht. Danach werden die Bereiche, die metallische Leitfähigkeit zeigen sollen, mit einer Schutzstruktur abgedeckt. Diese wird mittels einer, durch konventionelle Elektronenstrahl-Lithographie hergestellten, Maske

aufgebracht. Darauf werden etwa 15 Schichten amorphes LaAlO_3 aufgetragen. Nach dem Entfernen der Schutzschicht werden weitere Schichten kristallines LaAlO_3 mit Dicken von 4 bis 13 Einheitszellen aufgetragen (siehe Abb. 3.13). Die so erhaltenen Strukturen, mit einer Breite von $100\ \mu\text{m}$ bis $200\ \text{nm}$, weisen im leitenden Bereich durchwegs Schicht-Leitfähigkeiten von $5 \times 10^{-3}\ \Omega^{-1}$ bei $4.2\ \text{K}$ auf. Die Bereiche, auf die amorphes LaAlO_3 aufgebracht wurde, zeigen hingegen stark isolierendes Verhalten, mit Widerständen von mehr als $10\ \text{G}\Omega$. Dies lässt darauf schließen, dass dieses Verfahren für die Herstellung von elektronischen Anwendungen sehr gut einsetzbar sein könnte [16] [65].

Kapitel 4

Supraleitung

Auch wenn die Oxid-Heterostruktur selbst Supraleitung nur bei geringen Temperaturen zeigt, so soll hier ein kurzer Einblick in die Historie der Supraleitung und die elektrischen Eigenschaften des supraleitenden Zustands der Oxid-Heterostruktur gegeben werden. Weiters werden auch die supraleitenden Eigenschaften von SrTiO_3 und verwandten Materialien diskutiert.

4.1 Historischer Abriss

4.1.1 Konventionelle Supraleitung

Mit der Möglichkeit der Heliumverflüssigung konnte Heike Kammerlingh-Onnes das Verhalten von Metallen bei einer Temperatur von 4.2 K studieren. Dabei machte er 1911 die Entdeckung, dass Quecksilber einen starken Abfall des elektrischen Widerstandes knapp über dieser Temperatur zeigt [66]. Da kein Restwiderstand messbar war, nannte er dieses Phänomen Supraleitung. Wurde zu Beginn die Supraleitung nur durch den unmessbar kleinen Widerstand charakterisiert, so stellten Meissner und Ochsenfeld 1933 fest, dass beim Übergang in den supraleitenden Zustand ein Magnetfeld vollständig aus dem Inneren des supraleitenden Körpers verdrängt wird (der Meissner-Ochsenfeld-Effekt), dieser also ein perfekter Diamagnet ist [67]. 1935 lieferten die Brüder F. und H. London die erste phänomenologische Theorie, die zumindest die grundlegenden Eigenschaften der Supraleitung erklären konnte [68].

Ginzburg und Landau lieferten Anfang der fünfziger Jahre eine auf thermodynamischen Überlegungen basierende Theorie, die aber bereits quantenmechanische Grundlagen beinhaltete [69]. Erst die so genannte BCS-Theorie (nach Bardeen Cooper und Schrieffer) brachte das heutige Verständnis der klassischen Supraleitung. Diese Theorie besagte erstmals, dass Supraleitung durch korrelierte Elektronen-Paare (Cooper-Paare) vermittelt wird, welche Bosonen bilden, die unterhalb einer Übergangstemperatur T_c nicht mehr mit den Phononen des Gitters wechselwirken und somit keine Streuung erfahren [70].

Auch diese Theorie gilt jedoch nur für Supraleiter vom Typ 1, welche bis zum Über-

gang in den normalleitenden Zustand im Idealfall perfekte Diamagneten sind (Dies gilt nur bis zu einem kritischen Feld B_c . Für größere Felder ist die Supraleitung unterdrückt). Bei Supraleitern vom Typ 2 gibt es zwei kritische Felder. Für magnetische Felder kleiner als das untere kritische Feld B_{c1} ist der Supraleiter in der so genannten Meissner-Phase (also ein perfekter Diamagnet). Für Felder die größer sind als das obere kritische Feld B_{c2} geht das Material in den normalleitenden Zustand über. Zwischen B_{c1} und B_{c2} ist der Supraleiter in der Shubnikov-Phase. Dabei dringt das Magnetfeld in so genannten Flussschläuchen (Vortizes, welche jeweils exakt ein Flussquant tragen) in den Supraleiter ein. Diese bewegen sich im Supraleiter, wenn eine Spannung angelegt wird. Dabei wird Energie dissipiert. Dies kann vermieden werden, indem die Vortizes in Potentialminima (z.B. Defekte) „gepinnt“ werden [71].

Eine der wichtigsten Entdeckungen auf dem Gebiet der Supraleitung war zweifellos der Josephson Effekt. Dieser beschreibt Tunnelprozesse zwischen zwei Supraleitern, welche durch eine sehr dünne (wenige nm) nicht supraleitende Schicht getrennt sind. Der Strom über diese Josephson Kontakte hängt von der Phasenverschiebung der beiden Ströme in den Supraleitern ab [72]. Dies eröffnet die Möglichkeit sehr kleine Ströme über diese Kontakte exakt zu steuern. So können Schaltelemente konstruiert werden, welche in vielen elektronischen Geräten Anwendung finden könnten. Die Schwierigkeit besteht darin eine große Zahl an Josephson Kontakten herzustellen, welche gleiche Eigenschaften aufweisen.

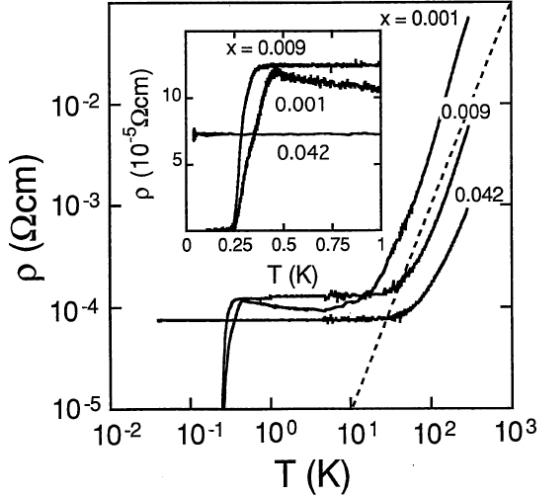
4.1.2 Hochtemperatursupraleitung

Bis zum Jahre 1986 waren die Supraleiter mit der höchsten Übergangstemperatur Nb-Legierungen mit T_c von etwas über 20 K. Erst mit der Entdeckung der Hochtemperatursupraleitung durch Bednorz und Müller wurden auch Substanzen gefunden die bei 77 K, also der Verflüssigungstemperatur des Stickstoffs, noch supraleitend sind [73]. Das erste System, welches entdeckt wurde ist La-Ba-Cu-O, welches etwa ein T_c von 40 K aufweist. Durch Ersetzen des La durch Y konnte man das Y-Ba-Cu-O (YBCO) mit einem T_c von 92 K erzeugen, welches noch immer zu den wichtigsten Materialien unter den so genannten Kupraten zählt. Weitere wichtige Systeme, wie Bi-Sr-Ca-Cu-O (BSCCO, bis zu $T_c = 107$ K) oder Tl-Ba-Ca-Cu-O (Rekord T_c von 125 K) wurden bald darauf gefunden [71]. Das Material mit der bisher höchsten Sprungtemperatur ist Hg-Ba-Ca-Cu-O, welches unter Druck Übergangstemperaturen von bis zu 160 K aufweist.

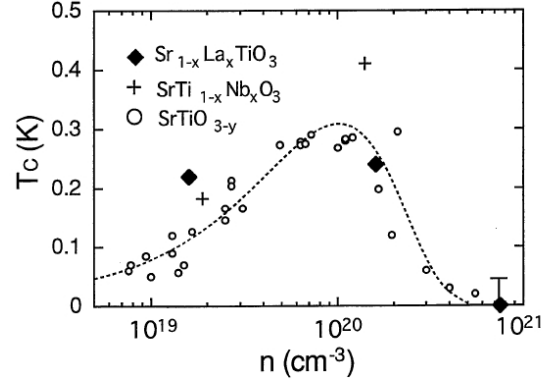
4.2 Supraleitung in den Oxiden

4.2.1 Supraleitung in SrTiO_3

Supraleitung wurde in sauerstoffreduzierten SrTiO_3 -Proben, welche i.A. halbleitendes Verhalten zeigten, festgestellt. Die Übergangstemperaturen liegen dabei bei etwa 280 mK. Die Breite des Übergangs in den supraleitenden Bereich liegt bei weniger als 100 mK. Die Supraleitfähigkeit kann bereits durch sehr geringe magnetische Felder unterdrückt



(a) Temperaturabhängigkeit des Widerstandes von $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$ mit unterschiedlicher La-Dotierung x .



(b) Abhängigkeit der kritischen Temperatur T_c von der Ladungsträgerdichte für unterschiedlich reduziertes und dotiertes SrTiO_3 , Daten für reduzierte und Nb-dotierte Probe aus [75].

Abbildung 4.1: Eigenschaften von dotierten und reduzierten SrTiO_3 -Proben [74].

werden. Außerdem liegen die beiden kritischen Felder H_{c1} und H_{c2} relativ weit auseinander, was auf einen extremen Typ 2 Supraleiter schließen lässt. Es wird ein Ginzburg-Landau Parameter κ in der Größenordnung von $\kappa > 100$ vermutet, wobei man bei GL-Parametern von $\kappa < 1/\sqrt{2}$ von Typ 1 Supraleitern spricht, darüber von Typ 2 Supraleitern [76].

Auch $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$ zeigt für $x < 0.1\%$ Supraleitung bei Temperaturen von über 0.2 K. Auch in dotiertem SrTiO_3 kann die Supraleitung durch relativ geringe magnetische Felder unterdrückt werden. Abb. 4.1 zeigt Widerstandskurven für unterschiedlichen La-Gehalt x und außerdem wird weiters veranschaulicht, dass auch durch Dotieren mit Nb oder, wie bereits erwähnt, durch Sauerstoff-Reduktion Supraleitung erreicht werden kann. Dabei scheint die Sprungtemperatur T_c nur von der Ladungsträgerdichte abzuhängen und das maximale T_c wird bei Ladungsträgerdichten von $n = 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ erreicht. Auch $\text{Sr}_{1-x}\text{La}_x\text{TiO}_3$ zeigt die Eigenschaften eines Typ 2 Supraleiters [74]. Es handelt sich also um den selben Mechanismus der die Supraleitung ermöglicht, egal ob in dotiertem oder reduziertem SrTiO_3 .

4.2.2 Supraleitung in $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ Strukturen

Auch die $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ Heterostruktur zeigt Supraleitfähigkeit, ebenfalls nur bei sehr geringen Temperaturen. T_c liegt im Bereich von 100 mK bis 200 mK und die Breite des Übergangs (20 % zu 80 %) liegt bei 16 mK für eine Probe mit einer LaAlO_3 Schichtdicke von acht Einheitszellen. Die Supraleitfähigkeit konnte mit einem Feld von etwa 180 mT vollständig unterdrückt werden (siehe Abb. 4.2). Aus den Messkurven ergeben sich für jene Probe ein oberes kritisches Feld $H_{c2}(0\text{K}) = 65 \text{ mT}$. Das Widerstandsverhalten im

normalleitenden, wie im Übergangsbereich bestätigen die Vermutung, dass es sich um ein supraleitendes zweidimensionales Elektronengas handelt, da die $R_S(T)$ -Charakteristik der eines zweidimensionalen Supraleiters ähnelt, in welchem ein Berezinskii-Kosterlitz-Thouless (BKT) Phasenübergang mit einer Übergangstemperatur von $T_{\text{BKT}} \approx 190$ mK (was T_c sehr nahe kommt) stattfindet. Dies wird auch durch das Potenzgesetz $V \approx I^3$ bestätigt, da dies typisch ist für einen BKT-Übergang. Somit kann auch die Schichtdicke der Ladungsträgerverteilung auf einen Wert kleiner als die Kohärenzlänge von $\xi = 70$ nm festgelegt werden. Weitere Überlegungen zeigen, dass diese sogar nur 10 nm betragen kann. Allerdings konnte nicht eindeutig gezeigt werden, dass der Effekt der Supraleitung in der Oxid-Heterostruktur wirklich durch Elektronen am $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ Interface verursacht wird und die Möglichkeit eines völlig anderen Phänomens kann nicht ausgeschlossen werden. Sauerstoff-Leerstellen alleine können jedoch nicht für die Supraleitfähigkeit verantwortlich sein, denn man würde unrealistisch hohe Ladungsträgerdichten im SrTiO_3 benötigen um dies zu realisieren [16], [77].

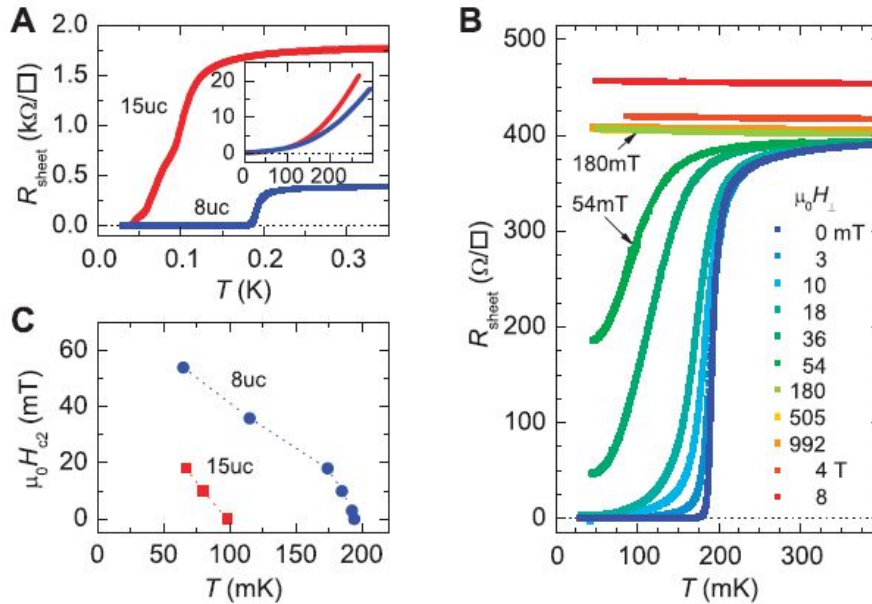


Abbildung 4.2: Temperaturabhängigkeit (A) des Schichtwiderstandes (zweier Proben mit 8 uc bzw. 15 uc LaAlO_3 , Probenstrom: 100 nA), (B) des Schicht-Widerstandes für verschiedene Magnetfelder normal zur Oberfläche (8 uc Probe), (C) des oberen kritischen Feldes (8 uc und 15 uc Probe). Aus [77], mit freundlicher Genehmigung von AAAS.

Weiters stellten Reyren et al. auch eine starke Anisotropie bezüglich der Supraleitfähigkeit in äußeren Magnetfeldern fest. Wird die Supraleitung bei normal auf die Probenoberfläche orientiertem Feld bereits bei Magnetfeldern von einigen 100 mT unterdrückt, so ist sie bei Magnetfeldern parallel zum Interface nahezu unverändert bis zu Feldern von 1.3 T (siehe Abb. 4.3). Dies ist wahrscheinlich auf Bewegung von Flussschläuchen und damit einhergehende Dissipation von Energie für das Magnetfeld normal zum Interface zurückzuführen. Dieses anisotrope Verhalten bestätigt einmal mehr die

2D-Eigenschaften der Oxidgrenzschicht. Auch die Dicke der leitenden Schicht wurde hier mit unterschiedlichen Methoden (aus den kritischen Feldern und den Eigenschaften des BKT-Übergangs) mit 7 nm bis 15 nm bestimmt [78].

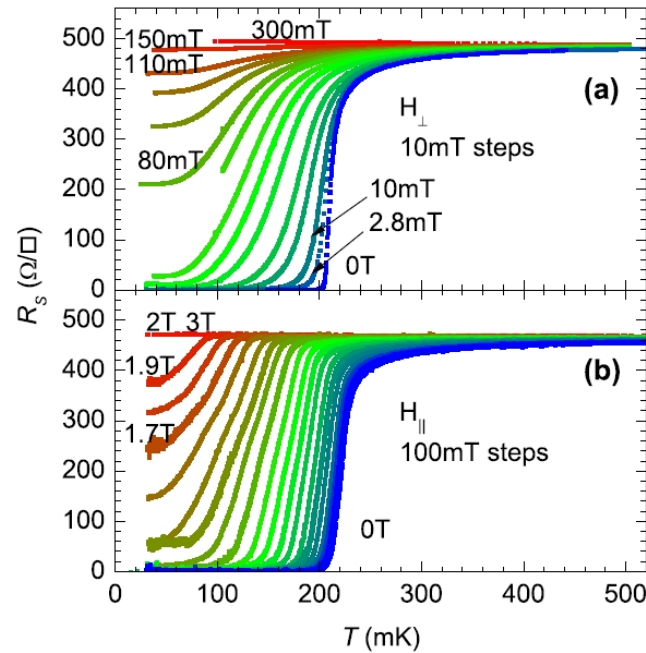


Abbildung 4.3: Temperaturabhängigkeit des Schichtwiderstandes einer $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Struktur mit a, Magnetfeld normal zur Probenoberfläche; b, parallel zur Probenoberfläche. Mit freundlicher Genehmigung von [78]. Copyright (2009), American Institute of Physics.

Auch die Supraleitfähigkeit lässt sich durch das Anlegen von elektrischen Feldern normal zum Interface steuern. Einerseits können durch die angelegte Spannung mehr Ladungsträger eingebracht werden, was T_c erhöht. Bei in entgegengesetzter Richtung angelegter Spannung kommt es hingegen zu einer Reduktion der Ladungsträgerdichte, die zur völligen Unterdrückung der Supraleitung führen kann [79].

Kapitel 5

Computersimulation der Ionenbestrahlung

Es wurden Computersimulationen mit dem Programm SRIM benutzt, um die Ionensorte sowie die Dosis für eine Bestrahlung der Proben zu ermitteln. Die Defektproduktion bei unterschiedlichen Ionenenergien, sowie die Anzahl der aus der Oberfläche abgesputterten Atome wurden analysiert. Weiters soll gezeigt werden, dass durch die relativ kleinen Bestrahlungsdosen keine nennenswerten strukturellen Schäden in der Probe entstehen.

5.1 Simulationsprogramm und theoretische Grundlagen

Es wurde das Simulationsprogramm SRIM verwendet. Dieses ist frei erhältlich [80]. Die Simulationen dienen grundsätzlich der Abschätzung geeigneter Bestrahlungsdosen und Energien.

5.1.1 Das Simulationsprogramm SRIM/TRIM

SRIM (Stopping and Ranges of Ions in Matter)/TRIM (Transport of Ions in Matter) ist ein Simulationsprogramm, welches von Biersack und Ziegler entwickelt wurde. Anhand von [81] und [82] soll eine kurze Übersicht über Grundbegriffe der Wechselwirkung von Ionen mit festen Körpern und über das Programm und die darin verwendeten Algorithmen im Speziellen gegeben werden. Ein Überblick über das SRIM-Interface und die wählbaren Einstellungen, sowie den Daten-Output wird im Anhang gegeben.

Dringen Ionen in ein Material ein, so erfahren sie eine abbremsende Kraft. Je nach Beschaffenheit des Ions, Ladung, Masse und Energie teilt sich diese Kraftwirkung und der damit verbundene Energieübertrag unterschiedlich auf die Elektronen und die Kerne des Ziel-Materials auf. Die resultierenden so genannten Stopping Powers (*Nuclear Stopping* und *Electron Stopping*) werden im Folgenden diskutiert.

Energieübertrag an die Kerne

Die Wechselwirkung der Kerne des eingestrahelten Ions und des Ziel-Atoms kann prinzipiell als elastische Streuung zweier massereicher Teilchen angesehen werden. Hier wird bereits klar, dass dies vor allem für sehr schwere Ionen eine große Rolle spielt. Im Laufe der Geschichte wurden von verschiedenen Physikern unterschiedliche Methoden entwickelt, um das Potential eines Atomkerns bzw. das Potential zwischen zwei Atomkernen in Abhängigkeit von der interatomaren Distanz zu berechnen. Diese Modelle tragen die Namen dieser Physiker, wie Bohr-, Moliere- oder Thomas-Fermi-Potential. Wie Abb. 5.1 zeigt, unterscheiden sich diese Potentiale teilweise wesentlich, besonders im Bereich kleiner Energien, und jedes hat nur Gültigkeit für bestimmte Atomkonfigurationen oder Massen.

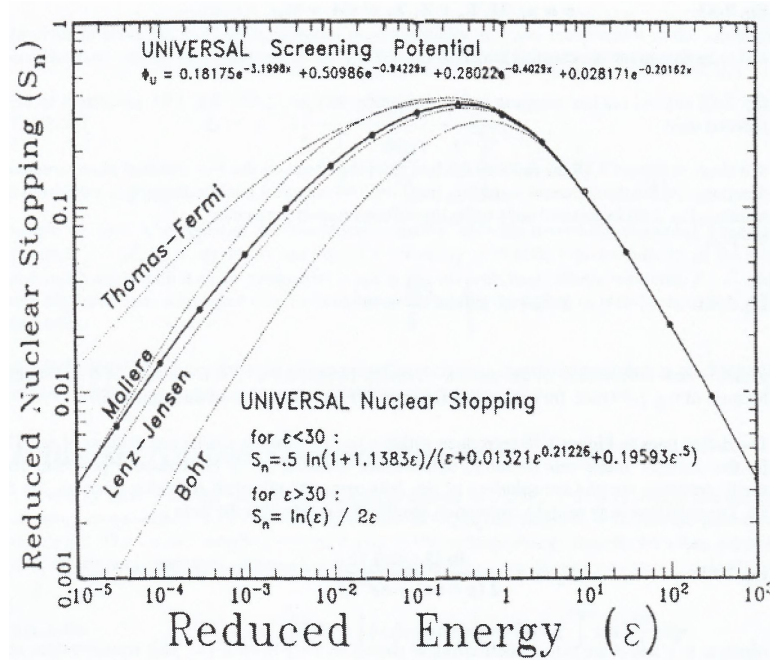


Abbildung 5.1: Reduzierter Wirkungsquerschnitt verschiedener Potentialansätze aufgetragen über der reduzierten Energie (doppellogarithmisch), durchgezogene Linie: Universal Nuclear Stopping (Universeller Wirkungsquerschnitt) [81].

Deswegen haben Biersack und Ziegler die so genannte Universal Stopping Power eingeführt, deren Wirkungsquerschnitt $S_n(\epsilon)$ sich ergibt als:

$$S_n(\epsilon) = \frac{\ln(1 + a\epsilon)}{2(\epsilon + b\epsilon^c + d\epsilon^{1/2})} \quad (5.1)$$

wobei a, b, c, d Fit-Parameter darstellen, welche so gewählt wurden, dass möglichst viele Atomkonfigurationen möglichst genau beschrieben sind. Weiters ist der Parameter ϵ , die reduzierte Energie, gegeben durch:

$$\epsilon = \frac{a_U M_2 E_0}{Z_1 Z_2 e^2 (M_1 + M_2)} \quad (5.2)$$

M_1, M_2 stellen jeweils die Massen der beiden beteiligten Atome dar, Z_1, Z_2 sind deren Kernladungszahlen, E_0 ist die kinetische Energie des Ions (im Laborsystem) und e die Elementarladung. Die reduzierte radiale Koordinate, auch Screening-Länge genannt, welche im Prinzip die radiale Elektronenverteilung um die Kerne beschreibt, wurde durch Fitten gefunden als:

$$a_U = \frac{0.8854a_0}{Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23}} \quad (5.3)$$

Mit a_0 wird hier die Screening-Länge des ungestörten Atoms bezeichnet.

Energieübertrag an die Elektronen

Für die, hier vorrangig betrachteten, leichten Ionensorten und deren elektronische Wechselwirkungen kann man die Theorie von Lindhard für die Wechselwirkung von Partikeln mit einem freien Elektronengas modifiziert verwenden. Der Wirkungsquerschnitt für einen geladenen Partikel unter Verwendung der Lokalen Dichte Approximation (LDA, *local density approximation*) ergibt sich als:

$$S_e = \int I(v, \rho) (Z_1^*(V))^2 \rho \, dx^3 \quad (5.4)$$

$I(v, \rho)$ ist die so genannte Wechselwirkungsfunktion, und Z_1^* beschreibt die tatsächliche Ladung des Ions, welches beim Eindringen in das Material einen Teil seiner Elektronen „verliert“, aber meist nicht vollständig ionisiert wird. Diese effektive Ladung ist der am schwersten zu berechnende Term, da sie stark variiert mit der Ionensorte und vor allem mit der Ionenenergie.

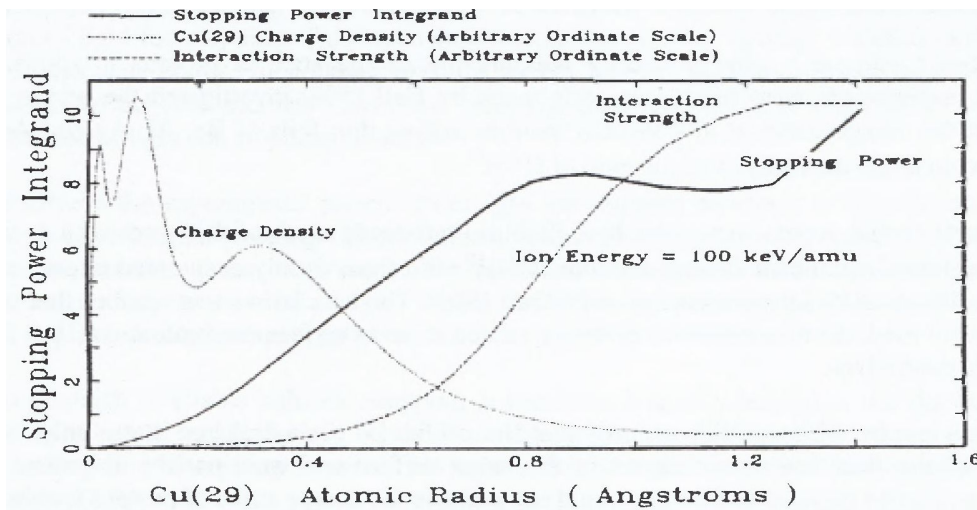


Abbildung 5.2: Electron Stopping Power eines Partikels mit 100 keV kinetischer Energie aufgetragen über der atomaren Distanz, am Beispiel von Cu^{29} [81].

Die Ladungsverteilung um ein Atom kann mittels des Hartree-Fock Modells für feste Körper berechnet werden (siehe Abb. 5.2). Dabei gehen die Elektronenschalen und deren

Besetzung in die Berechnung der Ladungsträgerdichte radial um den Kern ein. Für Ionen mit hoher kinetischer Energie ist die Wechselwirkung (also die Stopping Power) nahezu proportional zur Ladungsträgerdichte (außer für die innersten Elektronenschalen). Bei Ionen im keV-Bereich hingegen absorbieren wenige Elektronen, deren Distanz zum Kern relativ groß ist, nahezu die gesamte Energie.

Natürlich sind diese beiden Wechselwirkungen nicht voneinander unabhängig. Sie können jedoch für die Berechnungen in diesem Programm als zwei eigenständige Wechselwirkungen angesehen werden. Die daraus resultierenden Fehler sind vernachlässigbar.

Die freie Weglänge und die „Magische Formel“

Zusätzlich zum Energieübertrag müssen die Streuwinkel und die freien Weglängen zwischen einzelnen Stößen berechnet werden, um alle Stöße, die Positionen, der dadurch verschobenen Atome und die Endpositionen der Ionen berechnen zu können. SRIM verwendet das so genannte BCM (*Binary Collision Model*), es werden vereinfacht gesagt nur Zweierstöße berücksichtigt, (siehe auch [83]) und geht, unabhängig von der tatsächlichen Kristallstruktur, von einer amorphen Struktur des Materials aus. Die komplexen Formeln benötigen relativ viel Rechenzeit. Um diese einzuschränken, haben Biersack et al. mehr als zehn Jahre an der Entwicklung der so genannten „Magischen Formel“ (*Magic Formula*) gearbeitet, welche eine Angabe für den Streuwinkel Θ im Schwerpunktsystem liefert, ohne Integralberechnungen durchführen zu müssen oder die Präzision stark herabzusetzen.

$$\cos\left(\frac{\Theta}{2}\right) = \frac{B + R_C + \Delta}{R_0 + R_C} \quad (5.5)$$

mit

$$B \equiv p/a, R_0 \equiv r_0/a, R_C \equiv \rho/a, \Delta \equiv \delta/a \quad (5.6)$$

Hier stellt a , die von Lindhard berechnete Screening-Länge, ähnlich der oben bereits erwähnten, dar:

$$a = \frac{0.8853a_0}{Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23}} \quad (5.7)$$

Der Aufschlags-Parameter (*impact parameter*, der Normalabstand zwischen dem Impulsvektor des einlaufenden Teilchens und dem Mittelpunkt seines Stoßpartners) p und die Distanz der größten Annäherung r_0 sind material- und energieabhängige Parameter, genauso wie ρ (entspricht der Summe der Radien der Trajektorien bei größter Annäherung der beiden Teilchen), δ und damit auch Δ sind hingegen Fitparameter.

Die mittlere freie Weglänge L zwischen zwei Stößen ergibt sich für Ionen mit geringer Energie als

$$\pi(p_{\max})^2 L = N^{-1} \quad (5.8)$$

Mit p_{\max} : Maximaler Einschlagsparameter, N : Atomare Dichte des Ziel-Materials. Die freie Weglänge ist also umgekehrt proportional zur Dichte des Materials. Dies gilt auch für, durch Stöße von ihren ursprünglichen Gitterplätzen entfernte, Target-Atome.

5.2 Ergebnisse der Computersimulation

Betrachtet wurden für die Simulation $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Strukturen mit einer Dicke des LaAlO_3 von vier Einheitszellen (entspricht einer Dicke von 15.172 \AA), da die Probe mit drei Einheitszellen Dicke für eine Bestrahlung wenig geeignet ist. Der Annahme folgend, dass die leitende Schicht am Interface nur wenige nm dick ist, wurden Simulationen mit Dicken des gesamten Materials von 100 \AA bzw. 1000 \AA durchgeführt. In der Realität würden die Ionen natürlich in das SrTiO_3 implantiert. Für die Energien, welche notwendig sind um die einzelnen Atome aus ihren Positionen zu verschieben (*displacement energies*), wurden Werte aus Computersimulationen [84] verwendet. Diese liefern Energien von 50 eV für Sauerstoff, 70 eV für Strontium und 140 eV für Titan. Analog wurden diese Werte, in Ermangelung genauer Berechnungen für LaAlO_3 , auch für Aluminium (70 eV) und Lanthan (140 eV) verwendet. Der Einstrahlungswinkel der Ionen (zur Oberflächennormalen) wurde für die Illustrationen mit 0° gewählt. Sämtliche Berechnungen wurden mit einem Einfallswinkel von 10° durchgeführt, da auch die Probe unter einem Winkel von 10° bestrahlt wurde. Vergleiche der Defektproduktion bei beiden Einfallswinkeln zeigen erwartungsgemäß nur sehr geringe Unterschiede, da SRIM von einer amorphen Kristallstruktur ausgeht. Weiters ist zu beachten, dass SRIM die thermisch verursachte Rekombination von Atomen mit den erzeugten Leerstellen nicht berücksichtigt und somit immer ein Maximalwert für die Anzahl der erzeugten Leerstellen berechnet wird.

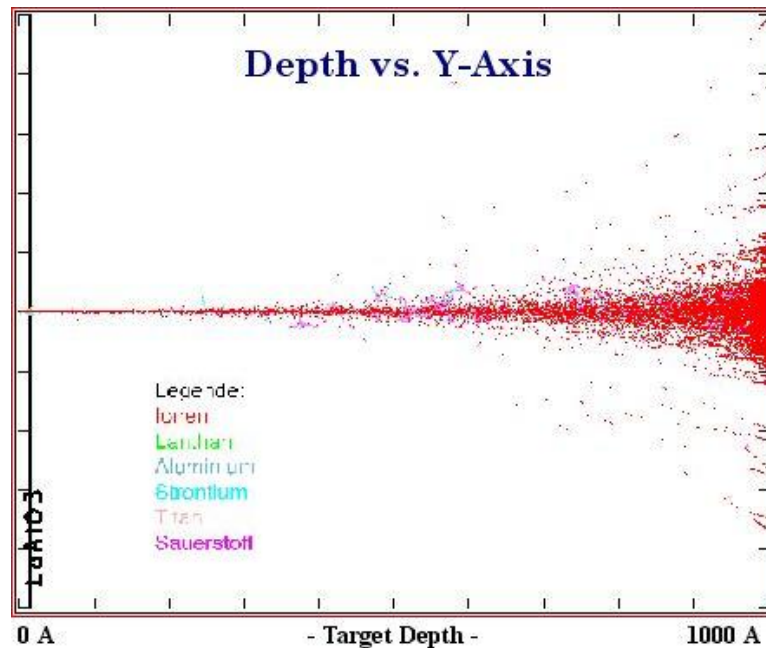


Abbildung 5.3: Stoßkaskaden aus der Bestrahlungssimulation einer $\text{LaAlO}_3(4 \text{ uc})/\text{SrTiO}_3$ Struktur (Gesamtdicke: 1000 \AA) mit dem Programm SRIM. Einstrahlung von 1000 H^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von 75 keV .

Entscheidend für die Brauchbarkeit verschiedener Konfigurationen bei der Bestrah-

lung sind folgende Kriterien: Die Ionen sollten mit der gegebenen Energie möglichst weit in das Material eindringen können, um Effekte durch die implantierten Ionen am Interface auszuschließen, und es sollte keine Rückstreuung von Ionen an der Oberfläche geben. Gleichzeitig sollten sie aber eine Mindestanzahl an Defekten in der Probe hervorrufen, vor allem knapp unter der Oberfläche, wo sich der leitende Bereich befindet, da sonst sehr hohe Bestrahlungsdosen notwendig sind, um die gewünschten Effekte zu erreichen.

In Abb. 5.3 ist die Bestrahlung der 1000 Å dicken Struktur mit H^+ -Ionen dargestellt. Bei einer Energie von 75 keV ist die Energieabgabe der Ionen im Bereich der leitenden Schicht sehr gering, die Eindringtiefe aber groß genug um das Interface nicht zu stören. Bei genauerer Betrachtung ist zu erkennen, dass direkt vor dem Interface wesentlich mehr Defekte erzeugt werden als im dahinterliegenden $SrTiO_3$.

Als Vergleich zur obigen Abbildung bietet sich die Bestrahlung mit He^+ -Ionen der selben Energie an. Wie aus Abb. 5.4 zu erkennen ist, verursachen die massereicheren He^+ -Ionen eine wesentlich größere Anzahl von Defekten, ohne eine zu große Streuung dieser Defekte hervorzurufen. Es scheint auch nahezu keine Implantation von Ionen innerhalb der gewählten Distanz zu geben. Weitere Simulationen haben gezeigt, dass die He^+ -Ionen vorwiegend in einer Tiefe von 300 nm bis 400 nm innerhalb des $SrTiO_3$ implantiert werden und die Aufweitung des Ionenstrahls in einer Tiefe von 350 nm etwa 400 nm beträgt (siehe Abb. 5.5).

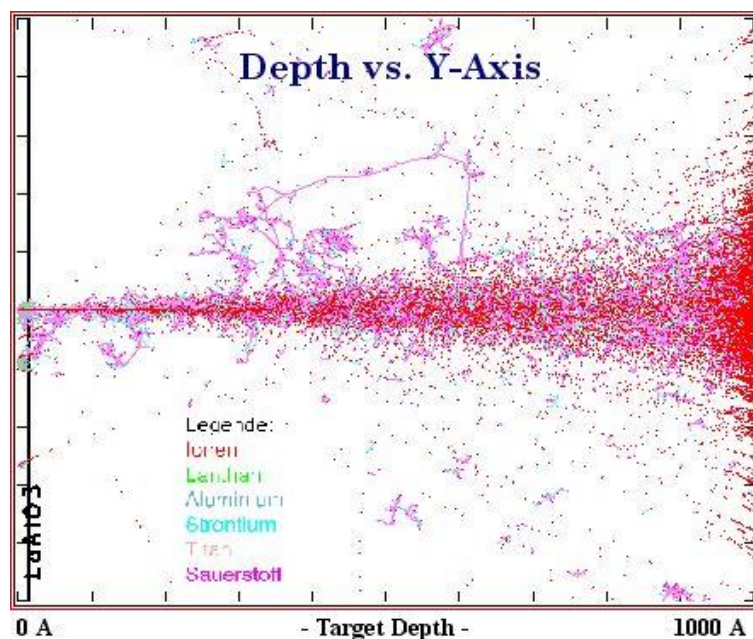


Abbildung 5.4: Stoßkaskaden aus der Bestrahlungssimulation einer $LaAlO_3(4\text{uc})/SrTiO_3$ Struktur (Gesamtdicke: 1000 Å) mit dem Programm SRIM. Einstrahlung von 1000 He^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von 75 keV.

Nun könnte man annehmen, dass für eine höhere Defektproduktion lediglich Ionen mit größerer Masse verwendet werden müssen. Wie man aus Abb. 5.6 erkennen kann,

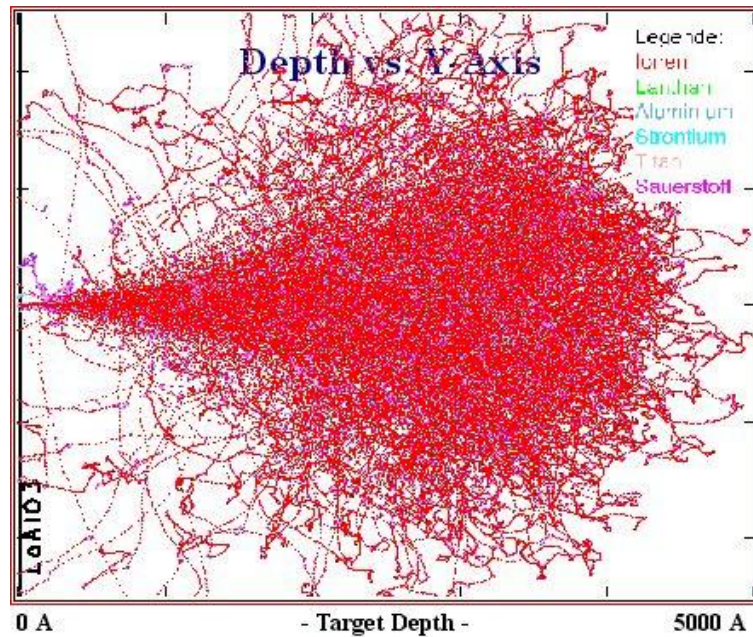


Abbildung 5.5: Stoßkaskaden aus der Bestrahlungssimulation einer $\text{LaAlO}_3(4\text{uc})/\text{SrTiO}_3$ Struktur (Gesamtdicke: 5000 \AA) mit dem Programm SRIM. Einstrahlung von 1000 He^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von 75 keV .

führt dies bei gleicher kinetischer Energie allerdings zu Implantation einer großen Anzahl von Ionen innerhalb der hier betrachteten 100 nm dicken Schicht. Es müssten also weitaus größere kinetische Energien verwendet werden, um die hier gezeigten Li^+ -Ionen in größerem Abstand zum leitenden Interface zu implantieren. Dies würde aber bereits bei sehr kleinen Dosen zu einer hohen Defektkonzentration im Material führen, was für die Experimente aber nicht erwünscht war. Besonders deutlich wird dies, wenn Ne^+ -Ionen für die Bestrahlungssimulation verwendet werden, wo nahezu alle Ionen nach Distanzen von weniger als 100 nm im Material implantiert werden (Abb. 5.7). Es wären Energien von mindestens 300 keV notwendig, um die Ne^+ -Ionen ähnlich weit im Inneren des Materials zu implantieren, wie dies bei den He^+ -Ionen der Fall ist, wobei dann schon bei relativ geringen Dosen eine strukturelle Schädigung oder sogar die vollständige Amorphisierung des Materials zu erwarten ist.

Aufgrund der vorliegenden Ergebnisse wurde die Simulation der Bestrahlung mit He^+ -Ionen genauer studiert. Um die Vorgänge im leitenden Interface genauer betrachten zu können, wurde eine Schicht mit einer Dicke von etwa 10 nm gewählt (Abb. 5.8). Es wurden Energien von 10 keV bis 150 keV untersucht. Wie man Abb. 5.9 entnehmen kann, werden für Energien kleiner als 30 keV sehr viele Ionen an der Oberfläche rückgestreut, was natürlich ebenfalls unerwünscht ist und damit He^+ -Ionen mit relativ geringen Energien für die Bestrahlungsexperimente unbrauchbar macht. Da zu erwarten ist, dass bei höheren kinetischen Energien der Ionen die Defektproduktion in den oberen Schichten des Materials geringer ist als bei Bestrahlung mit Ionen geringerer Energie, wäre es ideal Ionen mit mittlerer Energie zu verwenden, bei denen wenig Rückstreuung zu beobachten

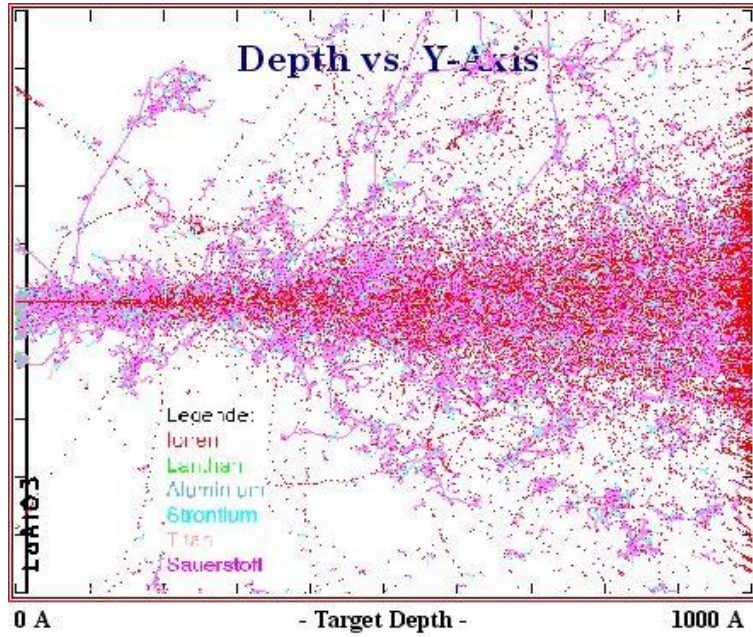


Abbildung 5.6: Stoßkaskaden aus der Bestrahlungssimulation einer $\text{LaAlO}_3(4 \text{ uc})/\text{SrTiO}_3$ Struktur (Gesamtdicke: 1000 \AA) mit dem Programm SRIM. Einstrahlung von 1000 Li^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von 75 keV .

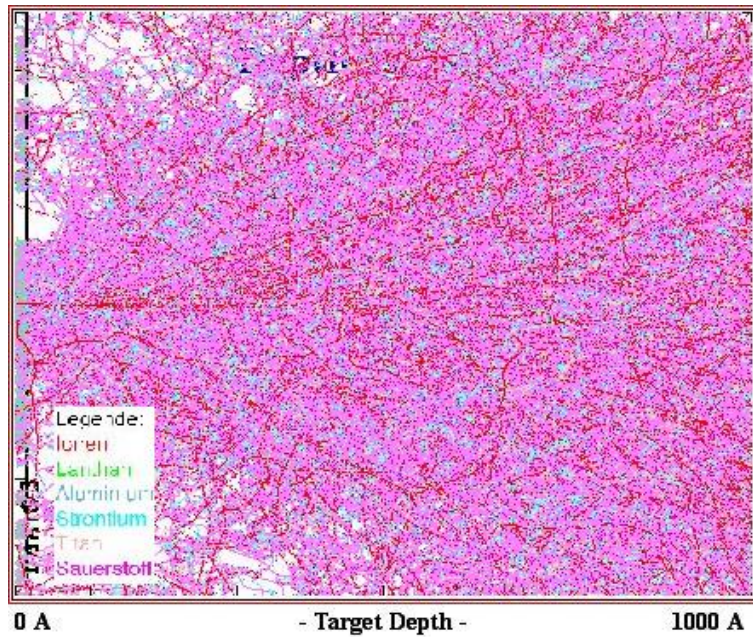


Abbildung 5.7: Stoßkaskaden aus der Bestrahlungssimulation einer $\text{LaAlO}_3(4 \text{ uc})/\text{SrTiO}_3$ Struktur (Gesamtdicke: 1000 \AA) mit dem Programm SRIM. Einstrahlung von 1000 Ne^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von 75 keV .

ist.

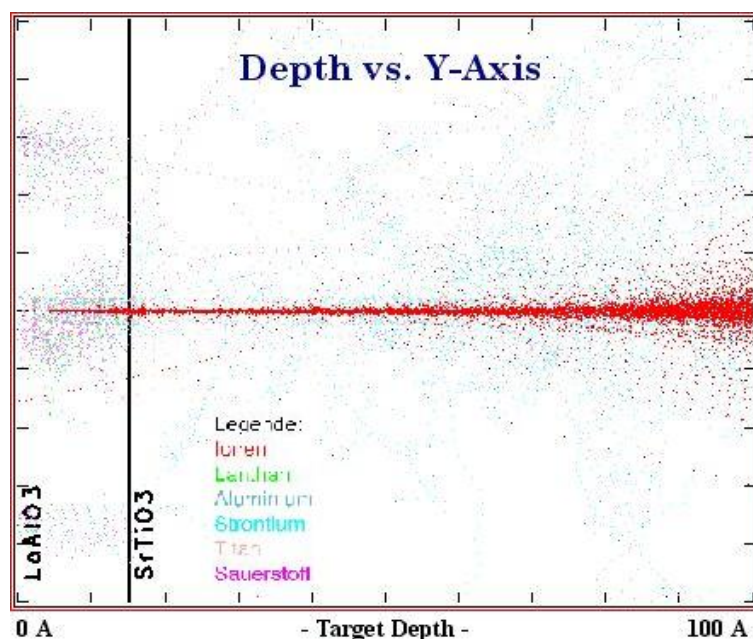


Abbildung 5.8: Stoßkaskaden aus der Bestrahlungssimulation einer $\text{LaAlO}_3(4 \text{ uc})/\text{SrTiO}_3$ Struktur (Gesamtdicke: 100 \AA) mit dem Programm SRIM. Einstrahlung von 1000 He^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von 75 keV.

Als „beste“ Lösung kann man Energien um die bereits gezeigten 75 keV betrachten. Weitere Analysen der durch die Simulation erhaltenen Daten sind in Abb. 5.10 zu sehen. Dabei wurde die Energieverteilung der Ionen berechnet, wenn diese aus der 1000 \AA dicken Heterostruktur austreten würden. Natürlich werden die Ionen in der Realität in das dahinterliegende Material implantiert. Allerdings dient diese Analyse dazu, festzustellen, ob die Ionen in genügender Distanz vom Interface implantiert werden. Die 75 keV He^+ -Ionen weisen im Mittel Energien von 45 keV bis 55 keV auf, wenn sie die 100 nm dicke Schicht verlassen. Dies lässt darauf schließen, dass genug Energie aufgewendet wird, um die Ionen in einem Abstand vom Interface zu implantieren, sodass diese keine zusätzlichen Störungen darstellen oder andere unerwünschte Effekte verursachen könnten.

Entscheidend für die Eigenschaften des Materials nach der Ionenbestrahlung ist die Defektproduktion, in Form von Leerstellen. Hier liegt besonderes Augenmerk auf Sauerstoff-Leerstellen, da zu erwarten ist, dass diese aufgrund der geringen Masse des Sauerstoffs vorrangig erzeugt werden. Für die im Material vorhandenen Elemente La, Al, O, Sr, Ti wurde die Defektproduktion für bestimmte Bestrahlungsdosen anhand der Analyse der Bestrahlungssimulation des Gebietes nahe dem Interface (Gesamtdicke: 10 nm) untersucht, wobei jeweils über das ausgewählte Gebiet gemittelt wurde (siehe Abb. 5.11). Es werden also direkt in Oberflächennähe in der Realität weniger Defekte erzeugt als einige nm im Inneren der Probe. Es werden bei einer Bestrahlungsdosis von $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$, was der größeren im Experiment verwendeten Dosis entspricht, und

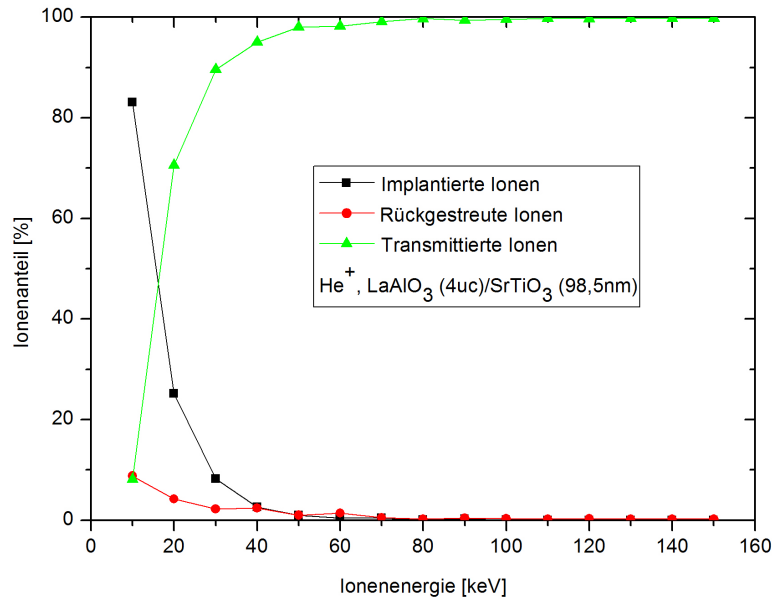


Abbildung 5.9: Analyse der Anzahl der transmittierten, reflektierten und implantierten He^+ -Ionen im Energiebereich von 10 keV bis 150 keV nach Durchgang durch eine 1000 Å dicke $\text{LaAlO}_3(4\text{uc})/\text{SrTiO}_3$ Struktur. Rohdaten aus dem Programm SRIM.

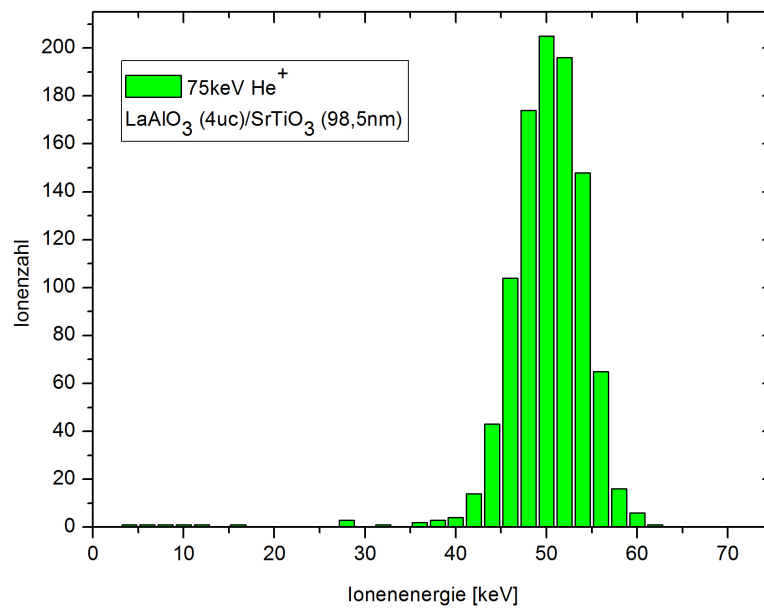


Abbildung 5.10: Histogramm der Energieverteilung von 75 keV He^+ -Ionen nach Durchgang durch eine 1000 Å dicke $\text{LaAlO}_3(4\text{uc})/\text{SrTiO}_3$ Struktur. Ionenzahl: 1000. Rohdaten aus dem Programm SRIM.

einem Energiewert von 10 keV, 0.002 Sauerstoff-Leerstellen pro Einheitszelle erzeugt. Bis zu mittleren Energien von 75 keV sinkt dieser Wert auf etwa 0.0005 ab. Für noch größere Energien sinkt die Anzahl der Sauerstoff-Leerstellen bis auf 0.0003 bei 150 keV. Auch für die schwereren Elemente ist ein ähnliches Absinken der Defektproduktion mit steigender Energie festzustellen. Es wird also nur in jeder zweitausendsten Elementarzelle ein Sauerstoff-Defekt verursacht. Damit kann man sagen, dass keine strukturelle Schädigung des Materials bei den in den Experimenten verwendeten Bestrahlungsdosen auftritt. Wenn man annimmt, dass mindestens ein Defekt pro Elementarzelle hervorgerufen werden muss, um eine Amorphisierung der Probe zu bewirken, wären dafür Dosen von etwa $1 \times 10^{17} \text{ cm}^{-2}$ notwendig. Auch bei der Bestrahlung von Hochtemperatursupraleitern, in welchen die Sauerstoffatome schwächer gebunden sind, als in der $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Struktur tritt Amorphisierung erst bei Dosen von etwa $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ auf [85]. Da vor allem Sauerstoff-Leerstellen produziert werden, kann man weiters annehmen, dass weitere Ladungsträger in das Interface eingebracht werden. Dies könnte durch das Auftreten von Ti Leerstellen nahe dem Interface kompensiert werden, da sich die Leitungselektronen in den d Bändern des Ti befinden. Weiters könnten vor allem durch die Bestrahlung erzeugte positiv geladene Ionen einen Teil der entstandenen Ladungsträger kompensieren.

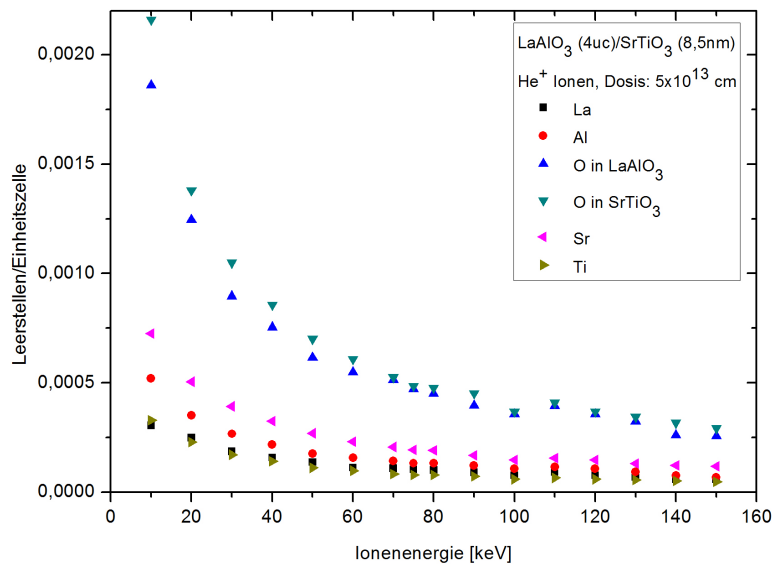


Abbildung 5.11: Analyse der Defektproduktion in einer $\text{LaAlO}_3(4 \text{ uc})/\text{SrTiO}_3$ Struktur (Gesamtdicke: 100 \AA) nach Bestrahlung mit 75 keV He^+ -Ionen. Bestrahlungsdosis: $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. Rohdaten aus dem Programm SRIM.

Ein direkter Vergleich der Defektproduktion im leitenden Bereich bei selber Bestrahlungsdosis und Ionensorte zeigt, dass die Anzahl der Defekte in YBCO um etwa einen Faktor 3 größer ist, als in der Heterostruktur. Der in Abb. 5.12 gezeigte Unterschied weist einen Faktor von etwa 10 auf. Dies ist aber auch dadurch begründet, dass hier Defekte pro Einheitszelle angegeben werden und die Einheitszelle von YBCO wesentlich größer ist als jene der Heterostruktur. Außerdem ist der leitende Bereich, über den jeweils ge-

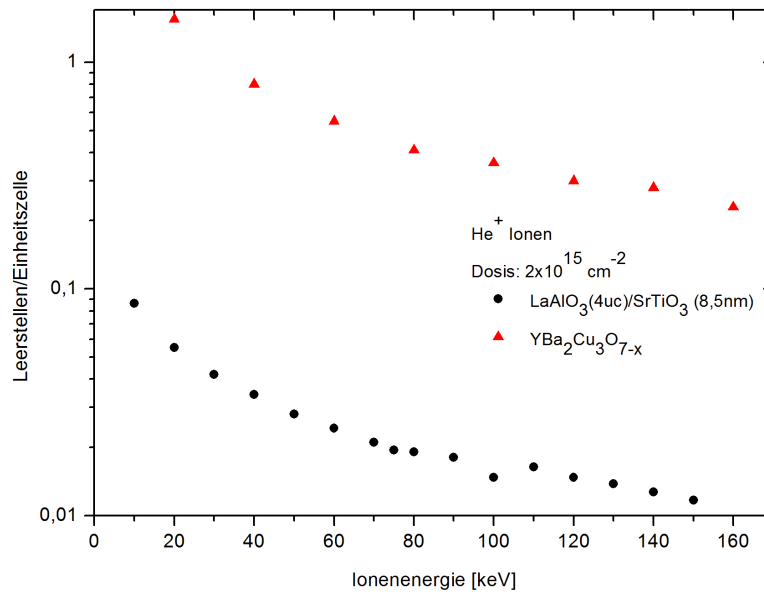


Abbildung 5.12: Analyse der Defektproduktion in einer $\text{LaAlO}_3(4\text{uc})/\text{SrTiO}_3$ Struktur (Gesamtdicke: 100 \AA), sowie in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ nach Bestrahlung mit 75 keV He^+ -Ionen. Bestrahlungsdosis: $2 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$. Rohdaten aus dem Programm SRIM bzw. aus [86].

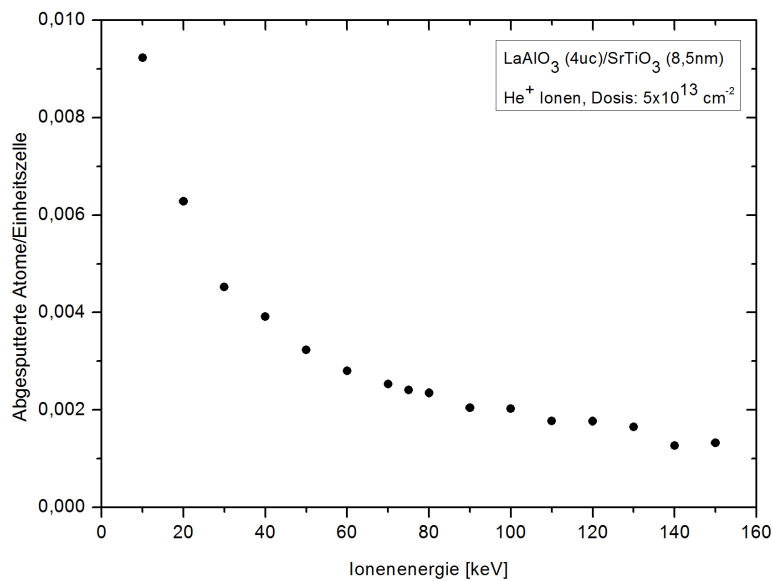


Abbildung 5.13: Abgesputterte Atome aus der Oberfläche einer $\text{LaAlO}_3(4\text{uc})/\text{SrTiO}_3$ Struktur (Gesamtdicke: 100 \AA) nach Bestrahlung mit 75 keV He^+ -Ionen. Bestrahlungsdosis: $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. Rohdaten aus dem Programm SRIM.

mittelt wurde, bei einem YBCO-Dünnsfilm (typischerweise 50 nm bis 200 nm) wesentlich größer und da im Inneren des Materials mehr Defekte erzeugt werden, ergibt sich auch dadurch eine höhere Defektkonzentration.

Die Untersuchung von aus der Oberfläche durch Bestrahlung herausgelöste Ionen (*sputtering*) war ebenfalls besonders wichtig für die vorliegenden Experimente. Da die Struktur mit 3 uc LaAlO_3 nicht mehr leitend ist, sollten die Ionen nicht zu viele Defekte an der Oberfläche der Probe verursachen. Abb. 5.13 zeigt die Anzahl von abgesputterten Atomen pro Elementarzelle für unterschiedliche Energien. Es wird bei einer Energie von 75 keV und einer Dosis von $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ nur aus weniger als jeder zweihundertsten Elementarzelle an der Oberfläche ein Sauerstoffatom abgesputtert. Man kann davon ausgehen, dass mindestens 10% der Atome an der Oberfläche fehlen müssen, um einen Übergang in den isolierenden Zustand zu erreichen. Dies wäre also erst bei Dosen von mindestens $1 \times 10^{15} \text{ cm}^{-2}$ der Fall. Man kann somit feststellen, dass die Experimente nicht durch Schädigung der Materialoberfläche beeinflusst wurden.

Abschließend kann gesagt werden, dass sich He^+ -Ionen mit einer Energie zwischen 60 keV und 75 keV am besten eignen könnten, um die Auswirkung von Ionenbestrahlung auf die Heterostruktur zu untersuchen. Für H^+ -Ionen erscheint die Defektproduktion zu gering und große Dosen wären für ein akzeptables Ergebnis erforderlich. Für schwere Ionen ist hingegen die Eindringtiefe i.A. zu gering und Ionenimplantation könnte zu unerwünschten Nebeneffekten führen.

Kapitel 6

Die Proben

Es wurden Proben der Oxid-Heterostruktur mit Dicken des LaAlO_3 von drei und vier Einheitszellen untersucht. Diese wurden mit dem PLD Verfahren hergestellt und der Prozess mit dem RHEED Verfahren beobachtet. Deswegen sollen diese beiden Verfahren zu Beginn vorgestellt werden. Weiters werden Charakterisierungen der Proben gegeben und es wird auf die Van der Pauw Form der Proben und die damit verbundenen Berechnungen eingegangen.

6.1 Probenherstellung

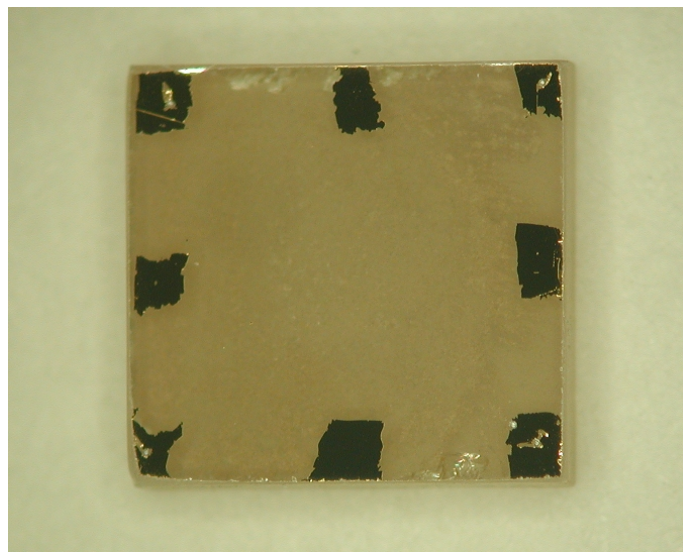


Abbildung 6.1: Die Probe L204. Größe im Original etwa 5x5 mm.

Die Herstellung der Proben erfolgte durch Präparation eines SrTiO_3 -Substrates auf das mittels PLD Verfahren eine definierte LaAlO_3 -Schicht aufgebracht wurde. Die Schichtdicke und Qualität der dünnen Schicht wurden mittels Einsatz des RHEED Verfahrens

überwacht und bestimmt. Die Präparation fand in Atmosphären mit einem Sauerstoff-Partialdruck von 10^{-5} mbar statt. Die Proben wurden nach der Herstellung in 400 mbar Sauerstoff-Atmosphäre bei 600°C eine Stunde lang ausgelagert, um die Anzahl von Sauerstoff-Leerstellen möglichst gering zu halten.

Die Präparation des Substrats umfasste mehrere Schritte, welche in [16] genauer diskutiert werden. Man erhält dabei TiO_2 terminiertes SrTiO_3 , welches eine so genannte Stufen-und-Terrassen-Struktur (*step-and-terrace-structure*) aufweist. Das bedeutet es gibt Bereiche an der Oberfläche des Substrats, die um exakt eine Elementarzelle höher bzw. tiefer liegen als die Umgebung, jedoch keine größeren Stufen, welche zu verminderter Leitfähigkeit führen könnten. Die Struktur wurde dabei mittels Rasterkraftmikroskopie (AFM *Atomic Force Microscopy*) untersucht.

6.1.1 Das PLD-Verfahren

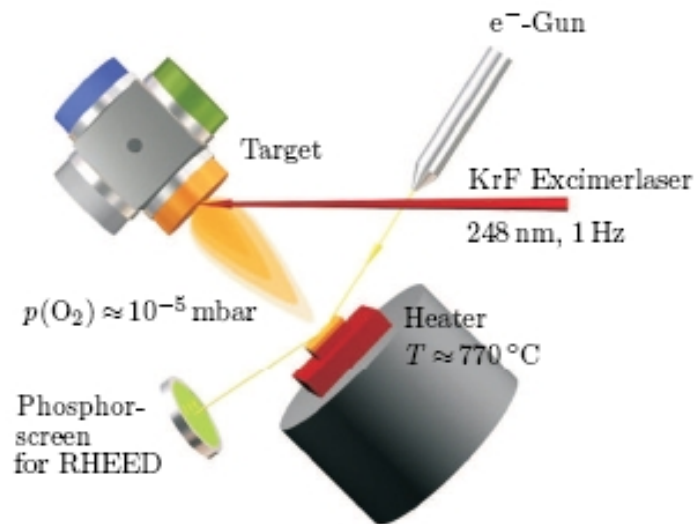


Abbildung 6.2: Schematische Darstellung des PLD-Verfahrens, wie es an der Universität Augsburg angewandt wird [16].

Das Pulsed Laser Deposition Verfahren (Abb. 6.2) wird sehr häufig bei der Erzeugung von Dünnschichten angewandt und wird bei der Herstellung, der für die Messungen präparierten Proben, dazu verwendet die LaAlO_3 -Schicht auf das Substratmaterial SrTiO_3 aufzubringen. Bei PLD Verfahren wird ein gepulster Laserstrahl (hier ein KrF Excimer Laser mit einer Pulsdauer von 25 ns) auf ein Grundmaterial gerichtet, welches mehr oder weniger stöchiometrisch dem aufzubringenden Stoff entspricht. Durch die vom Laser übertragene Energie werden Atome an der Oberfläche aus dem Material gelöst und sind dann als ionisierte Teilchenwolke (Plasma) in der Messanordnung vorhanden. Durch den zusätzlich übertragenen Impuls driften die Teilchen weg vom Grundmaterial. In einer bestimmten Distanz vom Grundmaterial (hier 5 cm) wird das Substrat angebracht, auf welches der Dünnschicht aufgebracht werden soll. Die Atome lagern sich am beheiz-

ten Substrat (hier 770°C) an, wobei sich mit der Anzahl der Laserpulse auch die Dicke des aufgetragenen Materials steuern lässt. Die exakte Anordnung und Stöchiometrie des Dünnschichtfilms kann durch geschickte Wahl des Substratmaterials, welches die Kristallstruktur und damit die Anordnung der aufgetragenen Atome bereits vorgeben kann, begünstigt werden.

Wichtige variable Faktoren bei der Herstellung mit dem PLD-Verfahren sind die Laserenergie und die Frequenz des Lasers (hier 0.8 J/cm² bzw. 1 Hz). Weiters spielen der Druck und die Variation des Sauerstoff-Partialdrucks in der Probenkammer und die Temperatur mit der die Probe beheizt wird eine wichtige Rolle für die Qualität.

6.1.2 Das RHEED-Verfahren

RHEED (*Reflection High Energy Electron Diffraction*) ist ein Verfahren bei dem die Elektronen, welche an der zu untersuchenden Oberfläche gestreut und reflektiert werden, zur Bestimmung der Eigenschaften dieser dünnen Oberflächenschicht verwendet werden. Im Prinzip benötigt man für diese Versuche nur eine Elektronenkanone (die erforderlichen kinetischen Energien der Elektronen sind meist im keV-Bereich) und einen Detektor, welcher die gestreuten Elektronen auffängt. Die Elektronen werden in einem sehr kleinen Winkel (etwa 0.5 % bis 3 %) zur Materialoberfläche eingestrahlt. Sie werden an den Elektronen des Gitters durch elastische Stöße gestreut. Abhängig von der Gitterform und Besetzung des Gitters interferieren die Elektronen nach der Reflexion an bestimmten Punkten konstruktiv oder destruktiv. Einige der Elektronen dringen auch wenige Å in das Material ein und werden inelastisch gestreut. Dies führt zu den so genannten Kikuchi-Linien, welche die einzelnen Interferenzmaxima miteinander verbinden.

Für das Aufbringen von Dünnschichtfilmen werden aber nicht diese statischen Interferenzmuster verwendet. Die wichtigste Methode um die Anzahl der aufgetragenen Elementarzellen einer Substanz zu zählen, ist die Analyse der Intensität der einzelnen Interferenzmaxima. Diese oszilliert mit steigender Dicke des aufgetragenen Materials so, dass zu bestimmten Zeiten Maxima in der Intensität auftreten. Dies ist immer dann der Fall wenn die Oberfläche des Materials ungestört ist, also eine Schicht von der Dicke einer Einheitszelle vollständig aufgebracht wurde. Während des Aufwachsens einer weiteren Schicht kommt es, vereinfacht gesagt, vermehrt zu Streuprozessen und die Intensität nimmt ab.

Durch Beobachtung dieser Intensitätssoszillationen kann die Dicke der LaAlO₃-Schicht (wie in Abb. 6.3 veranschaulicht) genau bestimmt werden. Da für das Aufbringen einer Schicht von der Dicke einer Elementarzelle durch geschicktes Wählen der Parameter im PLD-Verfahren im Falle der hier verwendeten Proben 25 Laserpulse notwendig sind, kann das Aufbringen mit hoher Präzision durchgeführt werden. Weiters kann auch gezeigt werden, dass das LaAlO₃ gleichmäßig am ganzen Substrat Schicht für Schicht aufwächst (*layer by layer growth*.)

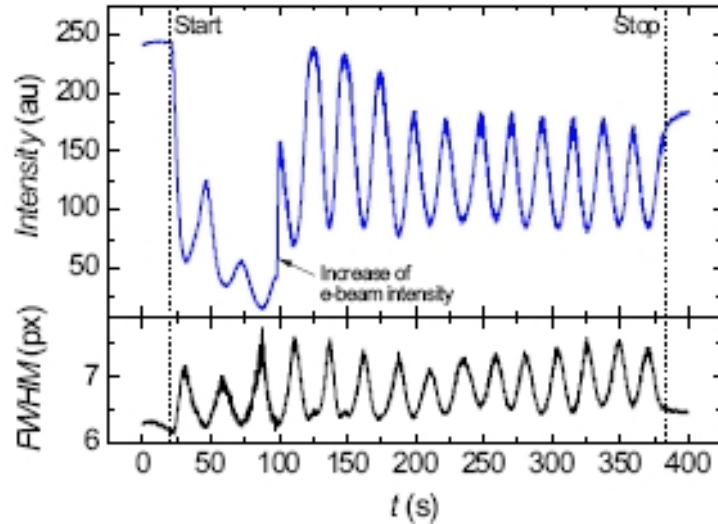


Abbildung 6.3: RHEED-Intensitätsoszillationen, aufgenommen bei der Herstellung einer $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Struktur. $((\text{LaO})^+ / (\text{TiO}_2)^0$ terminiert an der Grenzfläche) [16].

6.2 Probencharakteristik

6.2.1 Probendaten

Die verwendeten Proben wurden am Institut für Physik (Experimentalphysik VI) der Universität Augsburg erzeugt. Die Proben bestanden jeweils aus TiO_2 terminiertem SrTiO_3 (001), auf welches drei bzw. vier Schichten LaAlO_3 aufgebracht wurden. Die Proben wiesen quadratische Van der Pauw Form auf, mit Kontakten an den Eckpunkten und an den Seitenmitten (siehe Abb. 6.1). Diese wurden mittels einer photolithographisch erzeugten Maske durch Ionenätzen definiert und darauf Gold durch Sputter-Deposition aufgebracht [87]. Weiterführende Informationen zur Präparation der Materialien, sowie auch zu den angewandten Methoden PLD und RHEED, finden sich in [16]. Die folgende Tabelle enthält eine Zusammenfassung der verwendeten Proben und ihrer Eigenschaften.

Probenbezeichnung	LaAlO_3 -Schichtdicke [uc]	Dimensionen [cm^3]
L203	3	5x5x1
L204	4	5x5x1

Tabelle 6.1: Eckdaten der untersuchten Proben

Da, bei direkter Verbindung der Probenkontakte mit den Kontakten am Probenhalter, Fluktuationen des Widerstandes unterhalb einer Temperatur von 45 K auftraten, wurden die Proben an der Universität Augsburg auf ein isolierendes Saphirplättchen mit Silberlack aufgeklebt auf welches vier weitere Goldpads aufgetragen wurden. Diese wurden mittels Silberdraht durch Bonden mit den Kontakten der Proben an den Seitenmitten verbunden. Die Verbindungen zwischen Probenhalter und den Goldpads wurden

mit Golddraht der Dicke $25\ \mu\text{m}$ bzw. $17.5\ \mu\text{m}$ hergestellt, welcher mit Silberlack befestigt wurde.

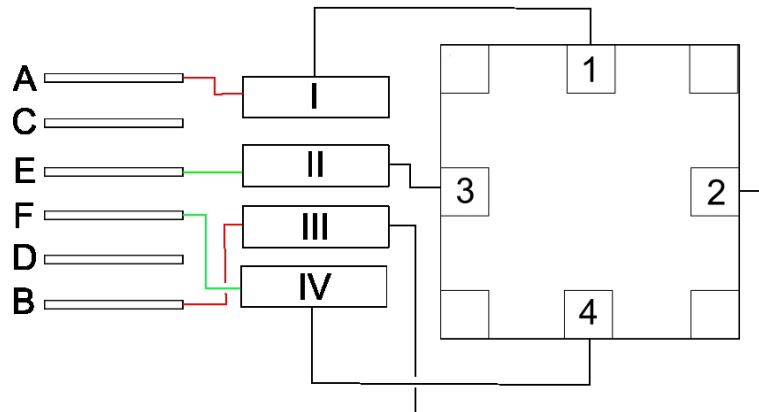


Abbildung 6.4: Schematische Darstellung der Messanordnung für die Widerstandsmessung. 1-4: verwendete Kontakte an der Probe, I-IV: Kontakte auf dem Saphirplättchen, A-F: Kontakte am Probenhalter, rot: Strommessung, grün: Spannungsmessung

6.2.2 Die Van der Pauw Methode

L. J. van der Pauw fand 1958 eine Möglichkeit den Widerstand von Proben beliebiger Form zu messen und dann eine Widerstands-Größe zu errechnen, welche materialabhängig aber nicht abhängig von der Form der Probe ist. Er schlug dazu Geometrien vor, in denen die Kontaktflächen möglichst klein sein sollten und dabei am Rand der Probe liegen. Gebräuchliche Geometrien in der Halbleitertechnik sind kreuzförmig bzw. kleeblattförmig. Die in diesem Experiment verwendete Form ist die eines Quadrates. (siehe auch Abb. 6.5).

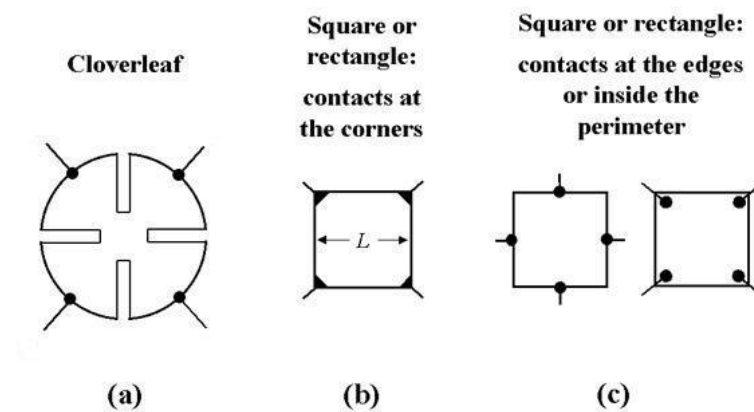


Abbildung 6.5: Schematische Darstellung verschiedener Van der Pauw Geometrien [88].

Die Berechnung der Vergleichsgröße, des so genannten Schichtwiderstandes (*Sheet Resistance*) wurde von Van der Pauw ebenfalls durchgeführt. Es wird (in den vorliegenden Experimenten) zuerst zwischen zwei Kontakten 1,2 die Spannung und zwischen 3,4 (siehe Abb. 6.4) der Strom durch die Probe gemessen und die Stromrichtung nach der ersten Messung umgekehrt. Ein Mittelwert für diesen Widerstand $R_{12,34}$ wird berechnet. Dasselbe wird für den Widerstand $R_{13,24}$ gemacht. Wären diese beiden Widerstände identisch, so würde sich der Schicht-Widerstand R_S ergeben als:

$$R_S = \frac{\pi R_{12,34}}{\ln 2} \quad (6.1)$$

Da sich die beiden Widerstände aber meist deutlich unterscheiden, kann man mittels des Quotienten $R_{12,34}/R_{13,24}$ und Abbildung 6.6 einen Korrekturfaktor f ermitteln, mit dem man für R_S

$$R_S = \frac{\pi(R_{12,34} + R_{13,24})}{2 \ln 2} f \quad (6.2)$$

erhält. Für die untersuchten Proben lag dieser Korrekturfaktor sehr nahe bei 1 und konnte für nahezu alle Bestrahlungsdosen als $f = 0.975$ bzw. 0.95 ermittelt werden.

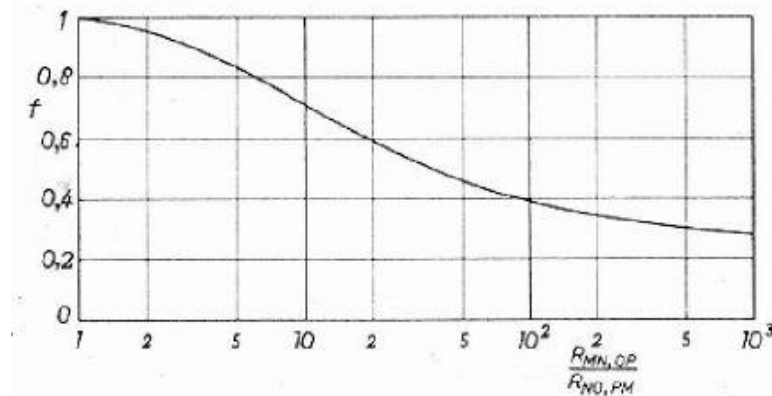


Abbildung 6.6: Van der Pauw Korrekturfaktor in Abhängigkeit von $R_{12,34}/R_{13,24}$ (1,2,3,4 hier als M,N,O,P bezeichnet) [89].

Für die Bestimmung der Hall-Spannung wird jeweils die Transversalspannung, also U_{14} bzw. U_{23} (bei Strömen I_{23} bzw. I_{14}) gemessen und zwar jeweils in positivem (p) und negativem (n) Magnetfeld B , welches normal zu Strom und Spannung liegt. Durch Differenzbildung, wie

$$U_{14} = U_{14,p} - U_{14,n} \quad (6.3)$$

erhält man schließlich die Hall-Spannung U_H als:

$$U_H = \frac{U_{14} + U_{41} + U_{23} + U_{32}}{8} \quad (6.4)$$

U_{41} und U_{14} werden einfach durch Umpolen der Stromrichtung erreicht. Weitere Größen, wie die Ladungsträgerbeweglichkeit μ_H und die Schicht-Ladungsträgerdichte n_S können

mittels

$$n_S = \frac{IB}{e|U_H|} \quad (6.5)$$

sowie

$$\mu_H = \frac{1}{en_S R_S} \quad (6.6)$$

berechnet werden [88], [89].

6.3 Probenbestrahlung

Bestrahlung	Dosis [Gesamtionenzahl cm^{-2}]	Probe	Bestrahlungszeit	Datum
1	2×10^{13}	L204	< 1 min	2009/04/02
2	5×10^{13}	L204	< 2 min	2009/05/20

Tabelle 6.2: Bestrahlungsreihenfolge und Dosis für die $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ Strukturen [90].

Die Bestrahlung der Probe L204 wurde an der Johannes Kepler Universität Linz durchgeführt. Verwendet wurden He^+ -Ionen mit einer kinetischen Energie von 75 keV. Die Proben wurden dabei auf der gesamten Fläche unter einem Winkel von 10° zur Oberflächennormalen der Probe bestrahlt [90]. Die Bestrahlung erfolgte in mehreren Schritten. Tabelle 6.2 gibt einen Überblick über die einzelnen Bestrahlungsschritte und die Ionendosen.

Kapitel 7

Die Messapparatur und das Messverfahren

Im folgenden Kapitel werden die Messapparatur, sowie die verwendeten Messprogramme vorgestellt. Es soll ein Überblick über den Messablauf und die verwendeten Techniken gegeben werden. Diskutiert wird die Messgenauigkeit der verschiedenen Messabläufe.

7.1 Das Messverfahren

Es wurden ausschließlich Messungen mit Gleichstrom- und Gleichspannung durchgeführt. Ermittelt wurden die Temperaturabhängigkeit von Gleichstromwiderstand und der Hall-Spannung der Oxid-Grenzschichten mittels Vier-Punkt-Messung in einem Temperaturbereich von etwa 10 K bis 300 K vor und nach der Bestrahlung mit Ionen. Die Messungen wurden alle computergesteuert durchgeführt und die Ergebnisse ebenfalls computergesteuert aufgezeichnet und einzelne Zwischenergebnisse bereits mit den Messprogrammen berechnet. Der Messaufbau ist fast identisch mit jenem, der auch zur Messung von Transporteigenschaften von Hochtemperatursupraleitern verwendet wird [91] (siehe Abb. 7.1).

Der Hauptunterschied zu jenen Messungen besteht in den relativ hohen Widerständen der 3 Einheitszellen Probe und auch die Proben mit 4 Einheitszellen LaAlO_3 weisen im Gegensatz zu YBCO relativ geringe Leitfähigkeit auf. Die Spannungen an der 4 uc Probe konnten mit einem konventionellen Nanovoltmeter (Keithley 2182) gemessen werden. Für die hohen Spannungen, welche an der 3 uc Probe abfallen, wurde ein Messgerät mit einem sehr großen Innenwiderstand benötigt. Die Wahl fiel dabei auf ein Keithley 6514 Electrometer (Innenwiderstand $> 200 \text{ T}\Omega$). Zudem mussten für die 3 uc Probe sehr kleine Ströme gewählt werden, im Bereich von 0.1 nA bis 10 nA. Messungen an HTSL wurden mit Strömen im Bereich von $50 \mu\text{A}$ durchgeführt. Weiters konnte mit den vorhandenen Geräten die Supraleitungs-Übergangstemperatur der Oxid-Grenzschicht nicht erreicht werden. Die Abkühlung der Probe war bis etwa 10 K möglich.



Abbildung 7.1: Der geschlossene He-Kühlkreislauf, der Elektromagnet, die Vakuumpumpe und die Stromquelle für den Magneten.

7.2 Kühlung, Temperaturregelung und Einbau der Probe

7.2.1 Der Kryostat und der Probenhalter

Das Closed Cycle (geschlossener Kreislauf) Kühlsystem besteht aus einem Leybold-Heraeus RDG210 Kryostat, einem Leybold-Heraeus RW 2 Kompressor, einer Edwards Hochvakuumpumpe E2M5 und einem Barometer Leybold-Heraeus Combitron CM30. Im Kryostaten befindet sich die Probe in einem Probenhalter unterhalb des Kaltkopfes.

Dieser aus Reinkupfer bestehende Probenhalter weist sechs Kontakte auf. Jeweils zwei dieser Kontakte werden über paarweise verdrehte Kabel zu den Messgeräten geführt und bilden damit ein Kontaktpaar. Dies dient dazu, die Induktionsspannungen und somit Störungen so gering wie möglich zu halten. Die Kontaktierung der Drähte erfolgt, wie in Kapitel 6 beschrieben, mittels Bonden bzw. mit Silberlack an der Probe und immer mit Silberlack am Probenhalter.

Zwischen Probe und Probenhalter wird eine Wärmeleitpaste (Apiezon) aufgetragen, um die Probe auf einer möglichst exakt zu bestimmenden Temperatur zu halten. Zusätzlich werden die Proben zumeist mit Rubber Cement am Probenhalter befestigt. Alternativ dazu wurden die Proben auch mit Silberlack an den Probenhalter geklebt, was ebenfalls gute Wärmeleitung garantiert. Nach Abschluss des Probeneinbaus wird der Probenraum mit einem Kupferschirm abgeschlossen. Der Probenhalter wird an den feststehenden Teil des Kryostaten geschraubt (dazwischen wird eine Schicht Wärmeleitpaste aufgebracht). Darüber wird eine Wärmeisolierung aus Aluminium und darüber eine weitere ebenfalls aus Aluminium gestülpt, um eine möglichst gute Abschirmung der Probe und eine möglichst homogene Temperatur im Kryostaten zu erreichen. Der Kryostat kann danach, falls erforderlich, zwischen die beiden Pole eines Elektromagneten geschoben werden, um Hall-Effekt Messungen durchzuführen.

Vor jeder Messung wurde ein Vakuum in dem Kryostaten und damit in der Probenkammer erzeugt. In diesem eingebauten Zustand wurde die Probe jeweils mindestens 18 Stunden belassen, um eine Verringerung des Widerstandes durch Photoleitung nach Beleuchtung mit Tageslicht bzw. durch Beleuchtung unter dem Mikroskop zu vermeiden.

Die Kühlung erfolgt mit einem Gifford-McMahon Kühler. Dieses Kühlsystem komprimiert Helium welches an einem Kaltkopf mittels eines Kolbens in einem Zylinder zweistufig expandiert wird. Komprimiert wird das Helium in einem Leybold-Heraeus RW 2 Kompressor (siehe auch [92]). Mit der vorliegenden Anordnung können Temperaturen bis zu 10 K erreicht werden. Die Anordnung der Probe unterhalb des Kaltkopfes führt dazu, dass sich die Temperatur am Kaltkopf erst nach einer gewissen Zeit auch an der Probe einstellt.

Da sich die Kühlung selbst nicht regeln lässt, werden zwei Heizungen zur Regelung der Temperatur verwendet. Eine liegt direkt am Kaltkopf, die andere am Probenkopf. Ihre Steuerung soll im nächsten Kapitel erläutert werden. Am Kaltkopf befindet sich ein Pt100, am Probenkopf ein Cernox Temperatursensor.

7.2.2 Temperaturregelung

Die Temperaturregelung kann ein- oder zweistufig erfolgen. Die einstufige Temperaturregelung erfolgt mit der Heizung am Kaltkopf, welche vom Oxford ITC 503 gesteuert wird. Da diese Methode vorwiegend für das Abfahren von Temperatursweeps (Beim Sweep wird die Temperatur zeitlich linear auf einen gewissen Wert hinauf oder hinuntergefahren.) benutzt wird, erfolgt die Steuerung und Programmierung dieser Sweeps ausschließlich am Gerät selbst und ist nicht softwaregesteuert. Am Oxford ITC 503 können bis zu 16 verschiedene Sweeps programmiert und hintereinander abgefahren werden. Es kann die Temperatur, die erreicht werden soll, eingestellt werden ebenso die Zeitdauer in der diese Temperatur angefahren wird. Weiters kann für jeden Temperaturpunkt eine Haltezeit eingegeben werden, für die diese Temperatur konstant gehalten wird.

Bei der zweistufigen Temperaturregelung wird die Heizung am Kaltkopf mit dem Hewlett Packard 6633A gesteuert und die Heizung am Probenkopf mit Oxford ITC 503. Diese Regelung erfolgt, vereinfacht gesagt, durch Einstellen einer Temperatur am Kaltkopf und Feinjustierung der gewünschten Temperatur am Probenkopf. Natürlich sind beide Heizungen gleichzeitig in Betrieb. Sie wurden aber für vorhergehende Messungen bereits kalibriert und so justiert, dass eine Temperatur am Probenkopf exakt eingestellt werden kann. Der Messablauf wird bei diesen Messungen extern von einem in Test Point geschriebenen Computerprogramm gesteuert.

7.3 Messablauf

7.3.1 Verwendete Geräte

Im Folgenden eine kurze Aufzählung aller im Messaufbau verwendeten Geräte (vgl. z.B. mit [92]):

- Oxford ITC 503
- Keithley 2182 Nanovoltmeter
- Keithley 6221 Current Sourcemeter
- Keithley 6514 Electrometer
- Hewlett Packard 6633A Dynamic Measurement DC Source
- Leybold-Heraeus RDG210 Cryostat
- Leybold-Heraeus RW 2 Kompressor
- Leybold-Heraeus Combitron CM30 (Barometer)
- Edwards Vakuumpumpe E2M5
- Bruker Forschungsmagnet B-E 15 S8

- FUG NTN 4200M-125 Magnet Supply
- Selbstgebaute Steckbox als Interface zwischen Messgeräten und Closed Cycle
- PC mit GPIB Einsteckkarte

7.3.2 Durchführung der Messungen

Nachdem die Probe kontaktiert und ordnungsgemäß eingebaut wurde, werden die Voreinstellungen in den Messprogrammen gewählt. Der Computer ist über GPIB Ports mit den Messgeräten verbunden und kann diese auslesen und steuern.

Temperatursweep Die Temperatursteuerung beim Sweep erfolgt nicht durch ein Programm sondern am ITC503 selbst, welcher die entsprechende Heizleistung an die Heizung am Kaltkopf ausgibt. Der Sweep wird also zuerst am ITC503 programmiert und dann automatisch abgefahren. Dabei wird die Temperatur in einer definierten Zeit kontinuierlich auf einen bestimmten Wert herunter oder hinaufgefahren und kann dort für eine bestimmte Zeit gehalten werden. Diese Sweeps wurden in einem Temperaturbereich von 10 K bis 310 K (Abkühl- und Aufwärmkurven) durchgeführt. Der Strom wird mittels des Keithley 6221 an die Probe gelegt (Ströme im Bereich von $1 \mu\text{A}$ bis $10 \mu\text{A}$ bei L204 und 0.1 nA bei L203). Die Spannungsmessung erfolgt mit dem Keithley 2182 (4 uc Probe) bzw. dem Keithley 6514 (3 uc Probe). Dabei wird die Spannung bei positivem und negativem Stromwert gemessen und gemittelt. Nach dem Anlegen des Stromes wird jeweils 5 s (4 uc Probe) bzw. 2700 s (3 uc Probe) abgewartet. Zwischen den Messungen gibt es ebenfalls eine variable Wartezeit, die hier jedoch meistens klein (1 s bis 2 s) gewählt wird. Das Messprogramm (siehe Anhang) steuert die Strom-Spannungsmessung und als Ausgabedatei erhält man jeweils die Temperatur an Kaltkopf und Probenkopf und die dazugehörigen Strom- und Spannungswerte mit denen der Widerstand berechnet werden kann. Die Dauer der Sweeps beträgt für die 4 uc Probe standardmäßig 21.5 Stunden, wobei jeweils 10 Stunden von 310 K bis 10 K abgekühlt und genauso lange wieder aufgewärmt wurde. Zusätzlich wurde die Temperatur bei 10 K 90 Minuten lang gehalten, um möglichst tiefe Temperaturen zu ermöglichen. Für die 3 uc Probe ist die Sweepdauer wesentlich länger und beträgt mindestens 96 h. Um den Schichtwiderstand zu ermitteln, wurde jeder Messvorgang zweimal durchgeführt. Beim zweiten Mal wurden Strom - und Spannungsrichtung um 90° gedreht (siehe Kapitel 6). Dies geschieht mittels geänderten Kontakten an der Probe oder durch Umstecken der Kontakte an der Steckbox.

Hall-Effekt Messung Wie oben bereits erwähnt wird der Kryostat für die Hall-Messungen zwischen die Pole eines Elektromagneten (Bruker Forschungsmagnet B-E 15 S8) gebracht. Dieser wird in den durchgeführten Experimenten von einer FUG NTN 4200M-125 mit Strom versorgt und ist außerdem an die Wasserkühlung angeschlossen (siehe Abb. 7.2). Standardmäßig werden die Messungen bei Strömen von 30 A und Spannungen von 80 V durchgeführt, was ein Magnetfeld von 1.05 T

(gemessen mit einem Bell 620 Gaussmeter) ergibt. Die Strom- und Spannungsmessungen an der Probe erfolgen analog zu jener bei den Temperatursweeps mit den Keithley Messgeräten. Dabei wird der Strom 30-mal pro Messzyklus umgepolt und die gemessenen Werte gemittelt. Es wird dieser Messzyklus jeweils ohne Magnetfeld sowie in positivem und negativem Magnetfeld durchgeführt. Dieser Ablauf wird für jeden Temperaturpunkt standardmäßig 5-mal durchgeführt. Die Temperaturregelung erfolgte zweistufig wie oben bereits beschrieben. Dabei wurden Temperaturpunkte in 5 K Abständen im Bereich von 10 K bis 310 K (abkühlen und aufwärmen) angefahren. Um die Temperaturen exakt einstellen zu können, wird zwischen den Messungen eine definierte Zeit (zumeist 10 Minuten) abgewartet. Diese Temperaturen sowie die Ströme, die vom HP 6633A an das Heizelement am Kaltkopf angelegt werden, müssen in einer Eingabedatei vordefiniert werden. Die anderen Werte (außer der Wartezeit) können direkt im verwendeten Test Point Programm eingegeben werden (siehe Programmbeschreibung im Anhang). Dieses Programm steuert auch den gesamten Messablauf inklusive der Temperatursteuerung. Als Ausgabedatei erhält man für jeden Messdurchlauf (also ohne Feld, in positivem und negativem Magnetfeld) die jeweilige Transversalspannungen an der Probe. Diese werden dann zur Berechnung der Hall-Spannungen verwendet. Auch hier werden jeweils zwei Messungen durchgeführt, um die erforderlichen Transversalspannungen zu ermitteln.

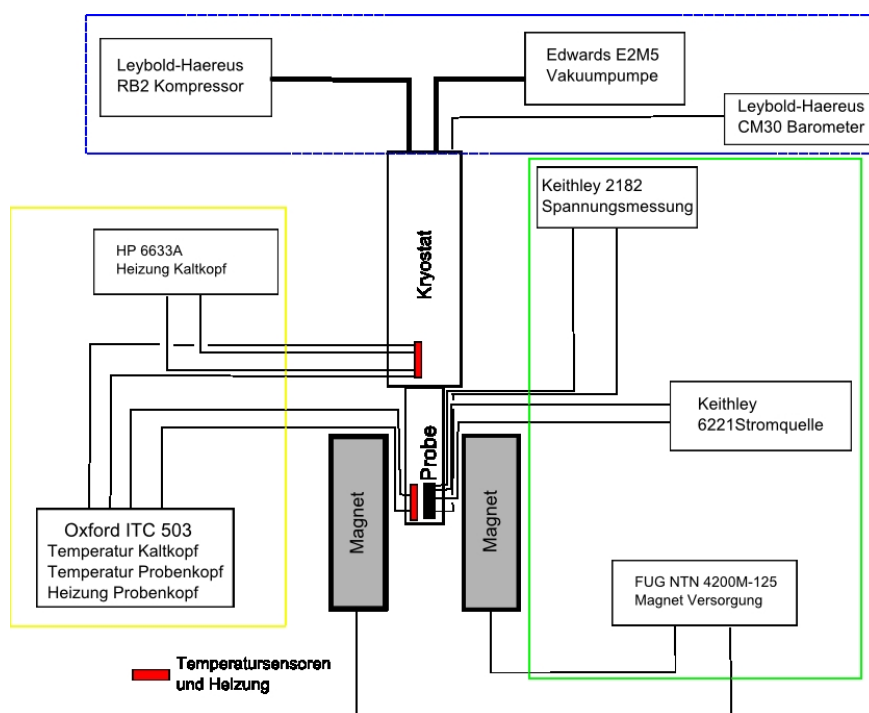


Abbildung 7.2: Schematische Darstellung des Messaufbaus für die Hall-Effekt-Messungen an der Probe L204. Grüner Bereich: Stromversorgung und Spannungsmessung; Gelber Bereich: Temperatursteuerung; Blauer Bereich: Closed Cycle und Vakuumpumpe.

7.4 Messgenauigkeit

Messgerätegenauigkeit Das Keithley 6221 Sourcemeter kann im verwendeten Messbereich Abweichungen von etwa 0.5 % aufweisen. Beim Keithley 6514 Electrometer liegen diese bei unter 0.03 %, beim Keithley 2182 sogar bei weniger als 0.003 %. Exakte Werte für alle Messbereiche sind den jeweiligen Manuals zu entnehmen. Auch die Temperaturkontrolle und Messung sollte Abweichungen von nicht mehr als 0.1 % liefern. Auch das, bei den Hall-Effekt Messungen angelegte, äußere Magnetfeld kann die Messgenauigkeit und insbesondere die Genauigkeit der Temperaturmessung beeinträchtigen. Nachdem einige zur Temperaturmessung benötigte Kabel ausgetauscht werden mussten, wurde der Temperatursensor neu geeicht, was exakt aber nur bis etwa 15 K möglich war. Die Temperaturkorrekturen unterhalb von 15 K wurden interpoliert. Es besteht also die Möglichkeit, dass in diesem Bereich größere Fehler (bis 0.5 K) auftreten.

Die Genauigkeit der Messungen wird aber durch unterschiedliche Faktoren zusätzlich beschränkt:

Temperaturkontrolle Insbesondere bei Temperatursweeps kann es gerade bei den hier notwendigen langen Settle-Zeiten zu einer merklichen Veränderung der Temperatur während eines Messzyklus kommen. Deswegen ist es von entscheidender Bedeutung die Werte Temperatur, Strom und Spannung nahezu gleichzeitig auszulesen, um Ungenauigkeiten zu vermeiden.

Hochohmige Proben Da, wie bereits erwähnt, vor allem die 3 uc Probe Widerstände im $10\text{ G}\Omega$ Bereich aufweist, kann die abfallende Spannung mit herkömmlichen Messgeräten nicht mehr gemessen werden, da diese aufgrund ihres meist im hohen $\text{M}\Omega$ Bereich liegenden Innenwiderstandes die Probe kurzschließen würden. Um dieses Problem zu umgehen, werden einerseits sehr geringe Ströme (unter 1 nA) verwendet. Andererseits muss ein Spannungsmessgerät mit nahezu unendlichem Innenwiderstand verwendet werden. Ein Elektrometer bietet sich hierfür an, da der Innenwiderstand eines solchen zumeist unmessbar hoch ist. Natürlich ergeben sich sehr lange Settle Zeiten, also Zeiten bei denen der Strom angelegt wurde und sich die Spannung zu einem konstanten Wert aufbaut. Dies birgt das Risiko, dass trotz der Wahl dieser Settle-Zeiten nicht die richtige endgültige Spannung gemessen wurde.

Thermische Effekte Thermische ausgelöste Veränderung in der 4 uc Probe (traten jeweils unter 45 K auf) oder an den Kontakten führten zu unrealistisch hohen Widerständen. Um dies zu vermeiden, wurden die Kontakte an die Probe gebondet damit thermisch verursachte hohe Kontaktwiderstände nicht auftreten können. Es traten jedoch auch weitere Effekte an den Bondkontakten auf, die teilweise Messungen unter 50 K unmöglich machten. Weiters kann auch die Wärmeleitung durch die mechanischen Vibrationen beeinträchtigt werden und so eine genaue Temperatursteuerung schwierig machen. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Vibrationen

die Verbindung zwischen Kaltkopf und Probenhalter lockern können und somit keine störungsfreie Wärmeleitung mehr möglich ist.

Kapitel 8

Ergebnisse und Diskussion

8.1 Messungen an der 4 uc Probe L204

8.1.1 Unbestrahlter Zustand

Widerstand

Der Schichtwiderstand der untersuchten Probe erreichte Werte von $60 \text{ k}\Omega/\square$ bei 300 K. Die Probe zeigt eindeutig metallisches Verhalten und der Widerstand fällt bis 30 K auf etwa $500 \Omega/\square$ (siehe Abb. 8.1). Dies entspricht einer Schicht-Leitfähigkeit von $1.75 \times 10^{-5} (\Omega/\square)^{-1}$ (300 K) bzw. $2 \times 10^{-3} (\Omega/\square)^{-1}$ (30 K).

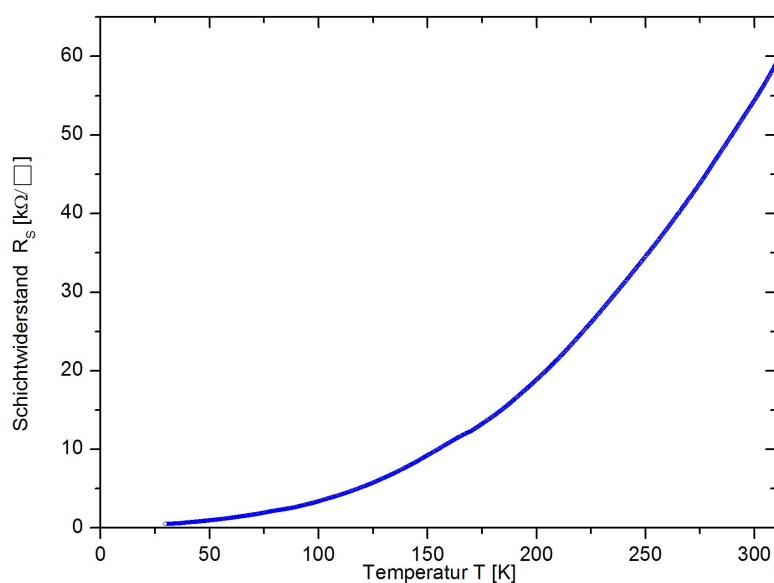
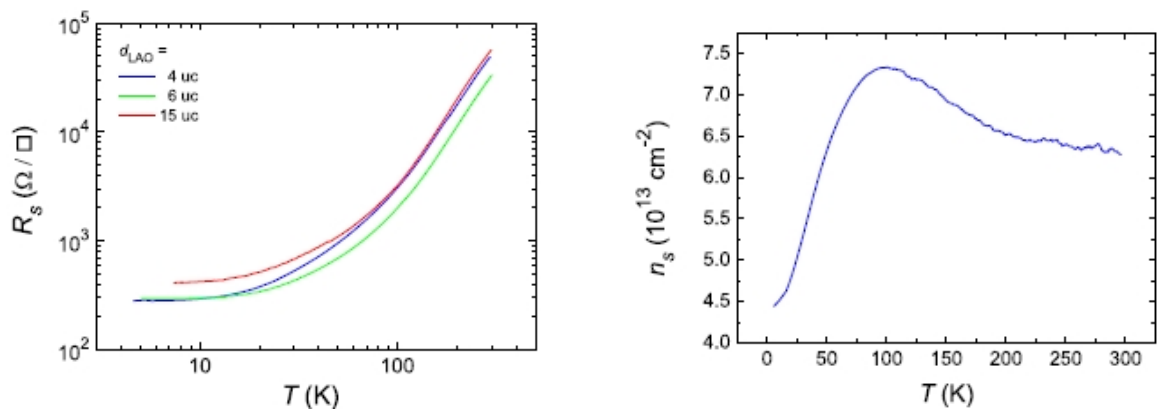


Abbildung 8.1: Temperaturabhängigkeit des Schichtwiderstandes R_s der Probe L204.

Dies ist größenordnungsmäßig in relativ guter Übereinstimmung mit den Werten, die Thiel et al für analog hergestellte Proben gefunden haben. Proben mit 4 uc LaAlO_3 zeigten Schichtwiderstände von etwa $50 \text{ k}\Omega/\square$ bei Raumtemperatur und $300 \Omega/\square$ bei 4.2 K.

Abb. 8.2 zeigt auch, dass für Proben mit mehr Einheitszellen LaAlO_3 ähnliche Werte gefunden wurden [15], [16]. Allerdings liegen die Widerstandswerte über jenen, die bei anderen Proben gemessen wurden. Dies ist wohl auf die unterschiedlichen Herstellungsverfahren zurückzuführen und könnte ein Hinweis darauf sein, dass in anderen Proben Sauerstoff-Leerstellen eine Rolle spielen, in den hier untersuchten jedoch, wenn überhaupt, nur einen vernachlässigbaren Beitrag zur Leitfähigkeit liefern.

Weiters konnte qualitativ auch eine erhöhte Photoleitfähigkeit nachgewiesen werden, wie sie von Thiel und anderen Forschungsgruppen bereits festgestellt werden konnte. Die Probe zeigte unter künstlicher Beleuchtung wie auch unter Einfluss von Tageslicht Kontaktwiderstände, die jeweils um 10 % bis 15 % geringer waren als unter Lichtabschluss. Deswegen wurde die Probe vor den eigentlichen Messungen jeweils mindestens 18 Stunden unter Lichtabschluss im Kryostaten belassen. Kontrollmessungen des Widerstandes während dieser Zeit zeigten ebenfalls ein deutliches Ansteigen des Widerstandes.



(a) Temperaturabhängigkeit des Schichtwiderstandes für unterschiedliche Dicke der LaAlO_3 -Schicht

(b) Temperaturabhängigkeit der Ladungsträgerdichte n_s (LaAlO_3 -Dicke: 5 uc)

Abbildung 8.2: Elektrische Eigenschaften von $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostrukturen [16].

Ladungsträgerdichte und Beweglichkeit

Aus Messungen des Hall-Effekts wurden die Ladungsträgerdichte und die Beweglichkeit berechnet. Bei Raumtemperatur ergibt sich eine Schicht-Ladungsträgerdichte von $2.1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$. Dieser Wert ändert sich bis 100 K nur unwesentlich, obwohl es bei etwa 200 K ein lokales Minimum gibt, dessen Ursprung aber nicht exakt bestimmt werden konnte. Bei einer Temperatur von ungefähr 100 K nimmt die Ladungsträgerdichte schnell ab, bis sie bei 25 K nur mehr $1.4 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ beträgt. Wie man den Abbildungen 8.2 und 8.3 entnehmen kann, liegen diese Werte deutlich unter jenen, die analog präparierte Proben liefern. Der Verlauf ist jedoch annähernd gleich. Man kann aufgrund des starken Abfalls der Ladungsträgerdichte auf ein „Ausfrieren“ der Ladungsträger bei tiefen Temperaturen schließen. Weiters lässt die geringe Ladungsträgerdichte nochmals den Schluss zu, dass die Polaritätsdiskontinuität für das Einbringen der Ladungsträger in das Inter-

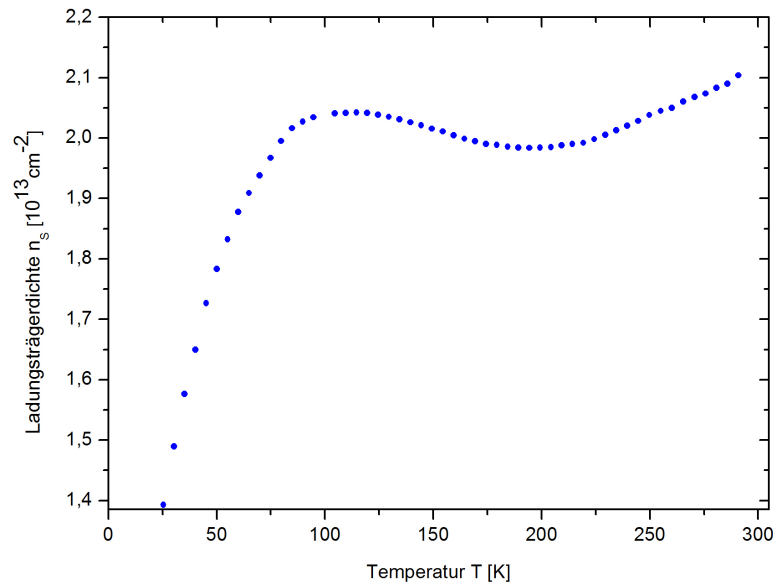


Abbildung 8.3: Temperaturabhängigkeit der Ladungsträgerdichte n_s der Probe L204 in unbestrahltem Zustand.

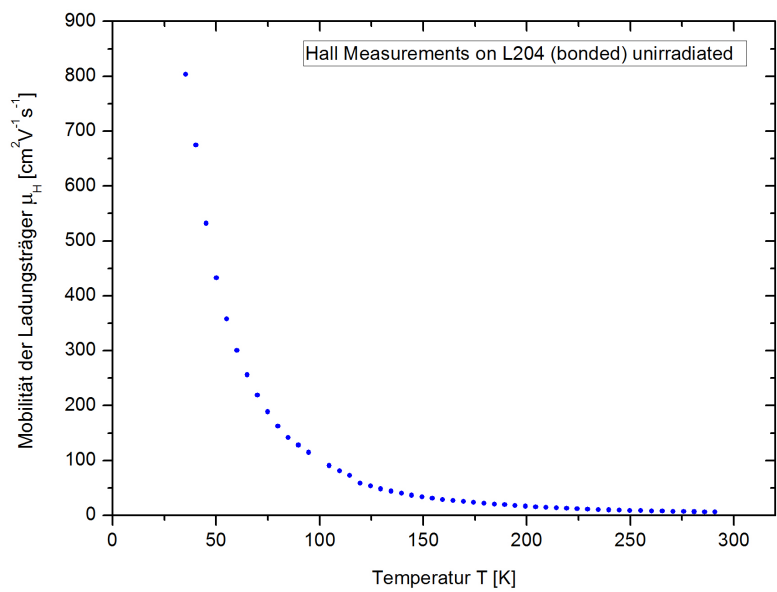


Abbildung 8.4: Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit μ_H der Probe L204 in unbestrahltem Zustand.

face verantwortlich ist, aber noch weitere Prozesse die Wirkung dieser Diskontinuität kompensieren.

Die Beweglichkeit der Ladungsträger wies im Gegensatz zur Ladungsträgerdichte etwas höhere Werte auf als jene, die von Thiel für ähnliche Proben gefunden wurden. Bei Temperaturen von 25 K war dies ungefähr $900 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ (im Vergleich zu etwa $500 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ bei 4.2 K [16]). Dieses Verhalten ist darauf zurückzuführen, dass zwar ein Teil der Ladungsträger „ausfriert“, die anderen aber aufgrund der geringen fermionischen Wechselwirkung wesentlich beweglicher werden. Bei Raumtemperatur ist die Beweglichkeit hingegen stark eingeschränkt und beträgt weniger als $10 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ (Abb. 8.4). Diese Tatsache bestätigt wiederum, dass das Elektronengas stark lokalisiert ist und die Beweglichkeit aufgrund des 2D-Verhaltens relativ gering ist. Damit wird der Unterschied zu Proben deutlich, welche elektrische Leitfähigkeit auf Grund von Sauerstoff-Leerstellen zeigen. Dort sind die Beweglichkeiten um zumindest eine Zehnerpotenz größer als sie an der untersuchten Probe festgestellt werden konnte ($10^4 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ bei 300 K und Ladungsträgerdichten von 10^{16} cm^{-2} [53]).

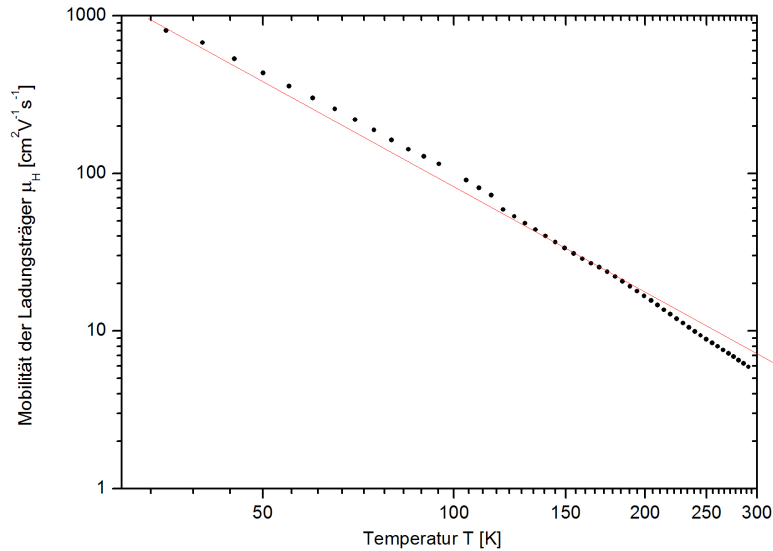


Abbildung 8.5: Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit μ_H der Probe L204 (unbestrahlter Zustand) in doppellogarithmischer Auftragung.

Um die Streuprozesse in der Oxid-Heterostruktur zu untersuchen wurde die Beweglichkeit eingehender studiert. Es ist zu erwarten, dass die Beweglichkeit über ein Potenzgesetz von der Temperatur abhängt wie $\mu_H \propto T^{-\alpha}$. Aus Abb. 8.5 ist zu erkennen, dass der Faktor etwa $\alpha = 2$ beträgt (exakt $\alpha = 2.43$). Ein Faktor 2 weist nach Huijben et al. bei der Oxidheterostruktur auf das Verhalten einer Fermi-Flüssigkeit hin, obwohl prinzipiell auch inelastische Streuung so eine Abhängigkeit verursacht. Elektron-Phonon-Wechselwirkung dürfte hingegen nicht die Ursache sein [93]. Dies deckt sich auch mit anderen Messungen, wo auch Werte von ungefähr $\alpha = 2$ bis $\alpha = 2.5$ festzustellen sind, egal ob die Polaritätsdiskontinuität oder Leerstellen der Ursprung der Ladungsträger sind (z.B. in [55]).

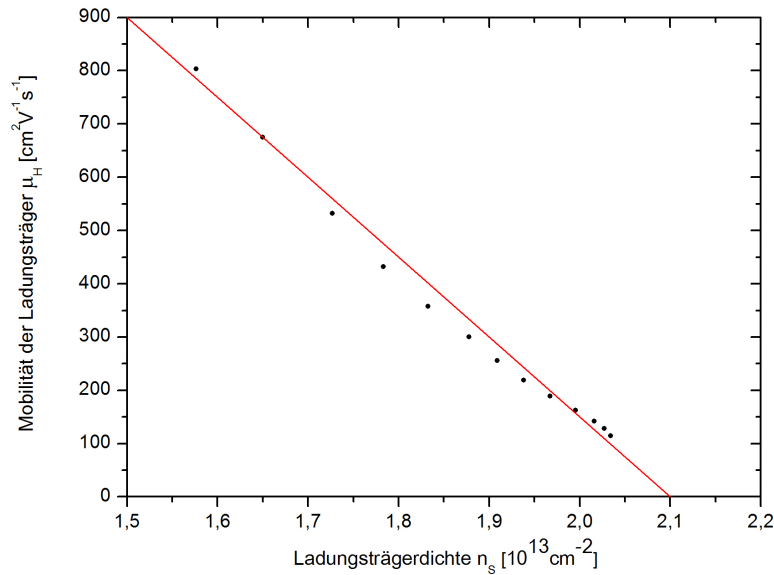


Abbildung 8.6: Abhängigkeit der Beweglichkeit μ_H von der Ladungsträgerdichte n_s für Temperaturen unter 100 K. Probe L204 in unbestrahltem Zustand.

Auch die Abhängigkeit der Beweglichkeit von der Ladungsträgerdichte wurde untersucht. Bei Temperaturen über 100 K verändert sich die Ladungsträgerdichte ja nur geringfügig. Unterhalb dieser Temperatur nimmt sie relativ langsam ab. Die Beweglichkeit hingegen nimmt sehr schnell zu. Man erhält eine lineare Abhängigkeit zwischen Ladungsträgerdichte und Beweglichkeit für niedrige Temperaturen (siehe Abb. 8.6). Die Abhängigkeit ergibt sich somit als $\mu_H \propto -1.5 \times 10^{-10} n_s$. Dies ist verständlich, da ja einige der Ladungsträger „ausfrieren“, also nicht mehr zur Leitung beitragen können, die anderen aber höhere Beweglichkeit aufgrund eingeschränkter Streuprozesse aufweisen.

8.1.2 Bestrahlter Zustand

Widerstand

Der Schichtwiderstand sinkt nach der Bestrahlung mit $2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ He^+ -Ionen um etwa ein Drittel auf $40 \text{ k}\Omega/\square$ (was einer Leitfähigkeit von $2.5 \times 10^{-5} (\Omega/\square)^{-1}$ entspricht) bei Raumtemperatur ab. Es ist somit möglich durch geeignete Bestrahlungsdosen eine Erhöhung der Leitfähigkeit zu erreichen. Bei der größeren Bestrahlungsdosis ($5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$) nimmt der Schichtwiderstand hingegen wieder zu, erreicht zwar nicht mehr den Ausgangswert der unbestrahlten Probe, jedoch etwa $50 \text{ k}\Omega/\square$ bei 300 K. Der geringere Widerstand nach der Ionenbestrahlung kann auf die Erzeugung von Defekten zurückgeführt werden. Wie in Kapitel 5 gezeigt wurde entstehen vorwiegend Sauerstoff-Defekte. Diese stellen weitere Ladungsträger für die Leitung zur Verfügung. Es kann angenommen werden, dass nur bis in eine maximale Materialtiefe von 200 nm bis 300 nm Sauerstoff-Defekte erzeugt werden, sodass diese Defekte nicht uniform im SrTiO_3 verteilt sind. Allerdings befinden sich die zusätzlich generierten Ladungsträger etwas weiter im

Inneren des SrTiO_3 , als jene die direkt am Interface durch die Polaritätsdiskontinuität erzeugt werden. Weiters ist in Abbildung 8.7 zu erkennen, dass der Restwiderstand bei tiefen Temperaturen mit steigender Bestrahlungsdosis zunimmt und für $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ $1100 \Omega/\square$ bei 35 K erreicht.

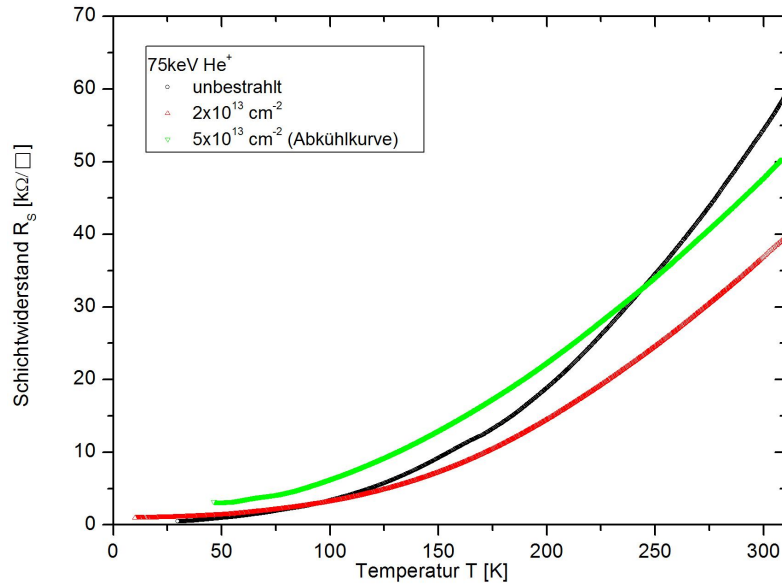


Abbildung 8.7: Temperaturabhängigkeit des Schichtwiderstandes R_S gemessen an der Probe L204 für den unbestrahlten Zustand und unterschiedliche Bestrahlungsdosen. Bestrahlung mit 75 keV He^+ -Ionen.

Ladungsträgerdichte und Beweglichkeit

Genaue Betrachtung der Temperaturabhängigkeit der Ladungsträgerdichte in Abbildung 8.8 zeigt einen völlig anderen Verlauf für den bestrahlten im Vergleich zum unbestrahlten Zustand. Dies könnte auf unterschiedliche Streumechanismen zurückgeführt werden. Dominiert im unbestrahlten Zustand die Elektron-Elektron-Streuung aufgrund der geringen Zahl von Defekten, so verursacht die Bestrahlung eine wesentliche höhere Zahl von Punktdefekten, welche auch die Temperaturabhängigkeit der Ladungsträgerdichte beeinflussen könnte. Die Ursache für den nahezu linearen Verlauf über den Temperaturbereich von 100 K bis 300 K konnte allerdings noch nicht geklärt werden.

Für die niedrigere Bestrahlungsdosis wurden Ladungsträgerdichten von $3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ bei 300 K ermittelt. Dies bedeutet eine Zunahme der Ladungsträger um 50 % im Vergleich zum unbestrahlten Zustand. Die Bestrahlungssimulationen ergaben, dass bei der geringeren Bestrahlungsdosis maximal $6.5 \times 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ Sauerstoff-Defekte in einem Bereich von 10 nm um das Interface eingebracht werden, welche jeweils zwei Elektronen für die Leitung zur Verfügung stellen. Dies hätte eine theoretische Erhöhung der Ladungsträgerdichte um maximal $1.3 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ zur Folge. Das würde die Zunahme der Ladungsträgerdichte um etwa $1 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ prinzipiell erklären. Dies untermauert, die

zuvor erwähnte Annahme, dass die Produktion von Sauerstoff-Leerstellen ausschlaggebend für die Änderung der Leitfähigkeit nach der Bestrahlung ist.

Für die höhere Dosis von $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ nimmt die Ladungsträgerdichte jedoch wieder ab. Es entstehen zwar wesentlich mehr Sauerstoff-Leerstellen in der Nähe des Interface, aber auch weitere Punktdefekte, die wahrscheinlich die zur Verfügung stehenden Ladungsträger wieder kompensieren. Bei Raumtemperatur ist die Ladungsträgerdichte zwar geringfügig größer als im unbestrahlten Zustand, doch nimmt sie mit sinkender Temperatur sehr schnell ab, sodass bei Temperaturen um 75 K eine Ladungsträgerdichte von nur mehr $1.2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ gemessen werden konnte.

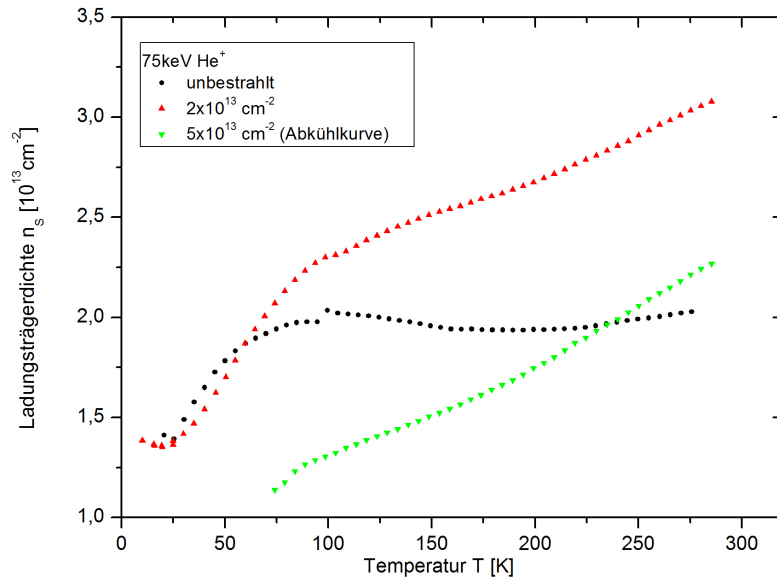


Abbildung 8.8: Temperaturabhängigkeit der Ladungsträgerdichte n_s gemessen an der Probe L204 für den unbestrahlten Zustand und unterschiedliche Bestrahlungsdosen. Bestrahlung mit 75 keV He^+ -Ionen.

Die Beweglichkeit der Ladungsträger ist für die geringere Bestrahlungsdosis bei allen Temperaturen kleiner als im unbestrahlten Zustand (siehe Abb. 8.9). Für Temperaturen über 100 K sind die Unterschiede nur gering, da die Beweglichkeit im Allgemeinen bereits relativ klein ist. Erst wenn einige der Ladungsträger beweglicher sind, wird der Unterschied deutlich. Bei Temperaturen um 30 K ist die Beweglichkeit der Ladungsträger nach der Bestrahlung bereits nur mehr halb so groß, wie vor dem Bestrahlungsvorgang ($450 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$). Dies ist leicht verständlich, wenn man bedenkt, dass die durch die Bestrahlung erzeugten Punktdefekte zusätzliche Streuzentren bilden, welche die Beweglichkeit der Ladungsträger erheblich einschränken. Dies drückt sich vor allem auch im erhöhten Restwiderstand aus. Für die größere Bestrahlungsdosis wurden jedoch wieder etwas höhere Beweglichkeiten gemessen als für die kleinere Dosis. Das ist wohl auf die kleinere schnell absinkende Ladungsträgerdichte zurückzuführen. Stehen weniger Ladungsträger für die Leitung zur Verfügung, so ist die fermionische Streuung durch Elektron-Elektron-Wechselwirkung geringer, was wiederum die Beweglichkeit erhöht.

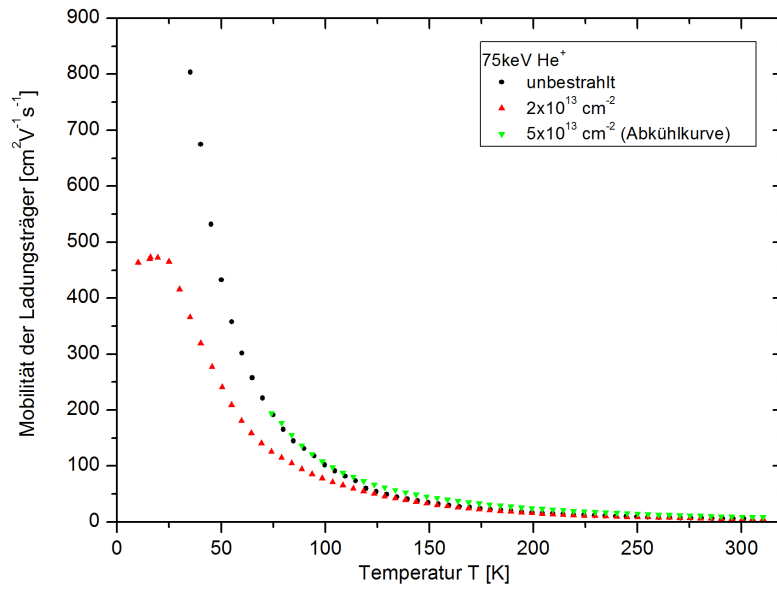


Abbildung 8.9: Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit μ_H gemessen an der Probe L204 für den unbestrahlten Zustand und unterschiedliche Bestrahlungsdosen. Bestrahlung mit 75 keV He^+ -Ionen.

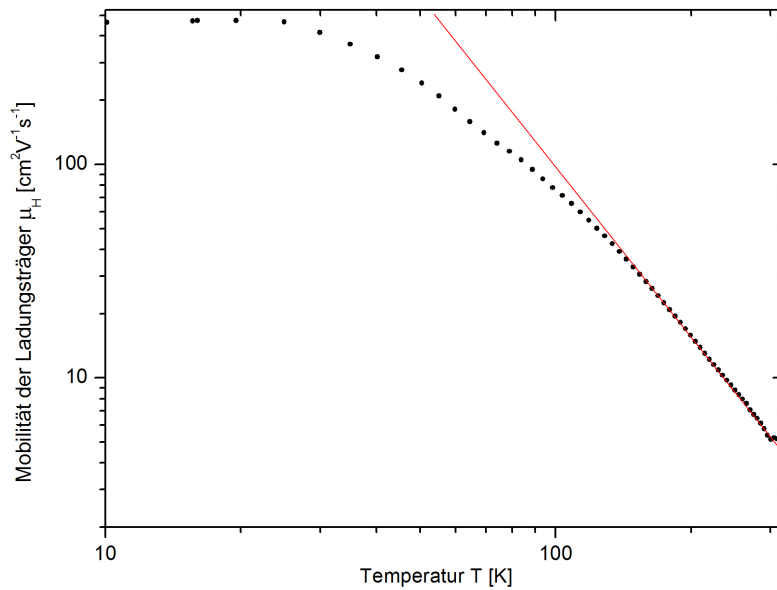


Abbildung 8.10: Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit μ_H der Probe L204 (bestrahlt mit 75 keV He^+ -Ionen, Dosis: $2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$) in doppellogarithmischer Auftragung.

Auch für die geringere Bestrahlungsdosis wurde versucht die Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit zu ermitteln. Es konnte festgestellt werden, dass die Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit nicht mehr über den gesamten Temperaturbereich einem Potenzgesetz folgt. Im Bereich zwischen 150 K und 300 K genügt die Beweglichkeit weiterhin der Gleichung $\mu_H \propto T^{-\alpha}$, genauso wie für den unbestrahlten Fall. Für Temperaturen unter 150 K wird die Kurve jedoch flacher, was wiederum auf eine eingeschränkte Beweglichkeit bei tiefen Temperaturen ausgelöst durch die eingebrachten Punktdefekte schließen lässt (siehe Abb. 8.10). Der Exponent α ergibt sich als $\alpha = 2.44$. Somit ist klar, dass auch die Streumechanismen, welche den Widerstand bei Temperaturen über 150 K verursachen, vor und nach der Bestrahlung die selben sind.

Für die größere Bestrahlungsdosis stellt sich die Situation etwas anders dar. Die Beweglichkeit scheint nun wieder über den ganzen gemessenen Temperaturbereich einem Potenzgesetz zu folgen. Allerdings verändert sich der Faktor α , sodass nun gilt: $\mu_H \propto T^{-2.17}$ (siehe Abb. 8.11). Dies könnte darauf hindeuten, dass die Streuung an den Defekten nach der Bestrahlung maßgeblich ist für das Widerstandsverhalten der Oxid-Heterostruktur.

Auch die Abhängigkeit der Beweglichkeit von der Ladungsträgerdichte stellt sich völlig anders dar als im unbestrahlten Zustand. Ein linearer Zusammenhang ist nicht gegeben und auch der restliche Verlauf unterscheidet sich stark vom unbestrahlten Zustand.

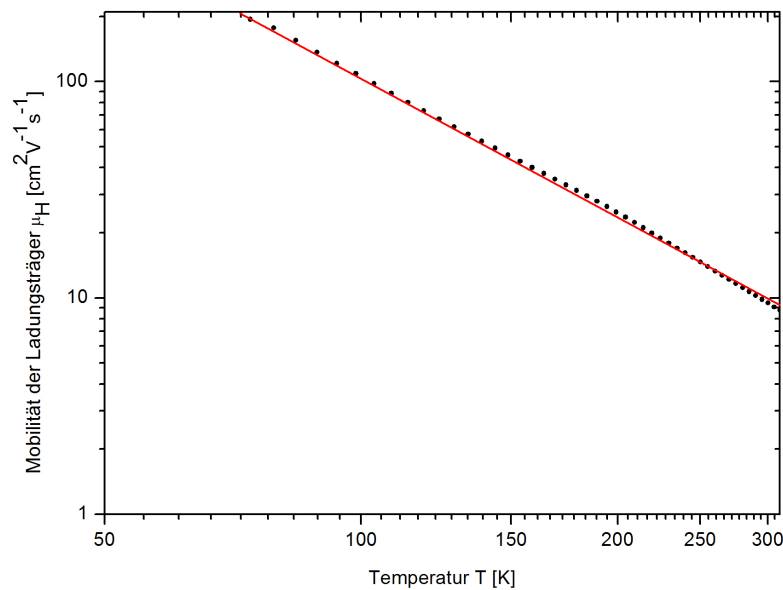


Abbildung 8.11: Temperaturabhängigkeit der Beweglichkeit μ_H der Probe L204 (bestrahlt mit 75 keV He^+ -Ionen, Dosis: $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$) in doppellogarithmischer Auftragung.

8.1.3 Schlussfolgerungen

Es konnte gezeigt werden, dass Proben der $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ -Heterostruktur, welche unter den in Kapitel 6 beschriebenen Bedingungen hergestellt wurden, Schichtwiderstände von etwa $60 \text{ k}\Omega/\square$ bei Raumtemperatur und einige 100Ω bei einer Temperatur von 30 K zeigen. Dies deckt sich mit Messungen, die von Thiel et al., aber auch von anderen Gruppen, durchgeführt wurden. Weiters wird nochmals die Annahme bestätigt, dass die Polaritätsdiskontinuität für das leitende Interface in diesen Proben verantwortlich ist, da Proben, in welchen viele Sauerstoff-Leerstellen vermutet werden, Schichtwiderstände aufweisen, die um Größenordnungen geringer sind.

Auch die Ladungsträgerdichte ($n_s \approx 2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ bei 300 K) und die Beweglichkeit ($\mu_H < 10 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$ bei 300 K) sind wesentlich geringer als bei Proben, die viele Sauerstoff-Defekte enthalten, was auch auf die starke Lokalisierung der Ladungsträger in einem schmalen Bereich um das Interface schließen lässt.

Bestrahlung mit geringen Dosen ($2 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ bzw. $5 \times 10^{13} \text{ cm}^{-2}$) von 75 keV He^+ -Ionen führt zuerst zu einer Verringerung des Schichtwiderstandes um etwa ein Drittel. Die größere Bestrahlungsdosis führt aber wieder zu einem Ansteigen des Schichtwiderstandes, auch wenn der Ausgangswert der unbestrahlten Probe nicht erreicht wird. Ein Anstieg des Restwiderstandes bei tiefen Temperaturen ist ebenfalls zu beobachten. Aufgrund der ebenfalls um etwa die Hälfte erhöhten Ladungsträgerdichte kann folgendes angenommen werden: Durch die Bestrahlung werden Punktdefekte erzeugt. Dies sind vor allem Sauerstoff-Leerstellen, welche im Prinzip jeweils zwei Elektronen zur Leitung zur Verfügung stellen, was die Erhöhung der Leitfähigkeit erklärt. Allerdings werden auch weitere Defekte erzeugt, die einen Teil der Ladungsträger kompensieren könnten. Vor allem für die größere Bestrahlungsdosis scheinen viele der theoretisch erzeugten Ladungsträger nicht mehr zur Leitung beizutragen. Die Beweglichkeit der Ladungsträger wird bei allen Bestrahlungsdosen und Temperaturen verringert. Dies ist leicht verständlich, da Punktdefekte erzeugt werden, die zusätzliche Streuzentren bilden und die Beweglichkeit dadurch deutlich einschränken.

8.2 Messungen an der 3 uc Probe L203

Die Messungen an der Probe L203 gestalteten sich schwierig, da exakte Widerstandsmessungen aufgrund der geringen Leitfähigkeit verschiedene Veränderungen an der Messanordnung erfordert hätten, welche im Rahmen dieser Arbeit nicht realisierbar waren. Dies betrifft vor allem die Isolierung der Probe um die Möglichkeit von Kriechströmen über verschiedene Teile der Messanordnung auszuschließen. Abb. 8.12 zeigt das Ergebnis einer Widerstandsmessung an L203. Im Gegensatz zu den obigen Grafiken wird hier nicht der Schichtwiderstand, sondern der Widerstand zwischen zwei Kontakten an der Probe gezeigt. Aus dieser Abkühlkurve lässt sich erkennen, dass der Widerstand mit sinkender Temperatur stark ansteigt, also eindeutig halbleitendes Verhalten zu beobachten ist. Allerdings ist der Widerstand bei Raumtemperatur hier geringer ($30 \text{ M}\Omega$), als z.B. in [15], wo analog hergestellte Proben bei allen Temperaturen Schichtwiderstände von mehr als

$10 \text{ G}\Omega/\square$ aufwiesen.

Es kann somit nur eine Abschätzung für einen unteren Grenzwert des Widerstands der 3 uc Probe getroffen werden. Allerdings scheint ihr Schichtwiderstand, wie in anderen Publikationen bereits festgestellt wurde, für Temperaturen unter 150 K mehr als $10 \text{ G}\Omega/\square$ zu betragen. Anzunehmen ist, dass der wahre Widerstandswert sogar noch weit höher liegt. Die 4 uc Probe weist somit auch bei den höchsten hier angewandten Bestrahlungsdosen weit geringere Widerstände auf als die 3 uc Probe. Es konnte somit auch im Rahmen dieser Arbeit nochmals bestätigt werden, dass es eine kritische Dicke der LaAlO_3 -Schicht gibt, die $d_c = 4 \text{ uc}$ beträgt. Mit dem Schritt von 3 uc auf 4 uc steigt die Schicht-Leitfähigkeit um mindestens einen Faktor 10000 an. Außerdem ist bei der 3 uc Probe eindeutig halbleitendes, bei der 4 uc Probe jedoch eindeutig metallisches Widerstandsverhalten zu beobachten.

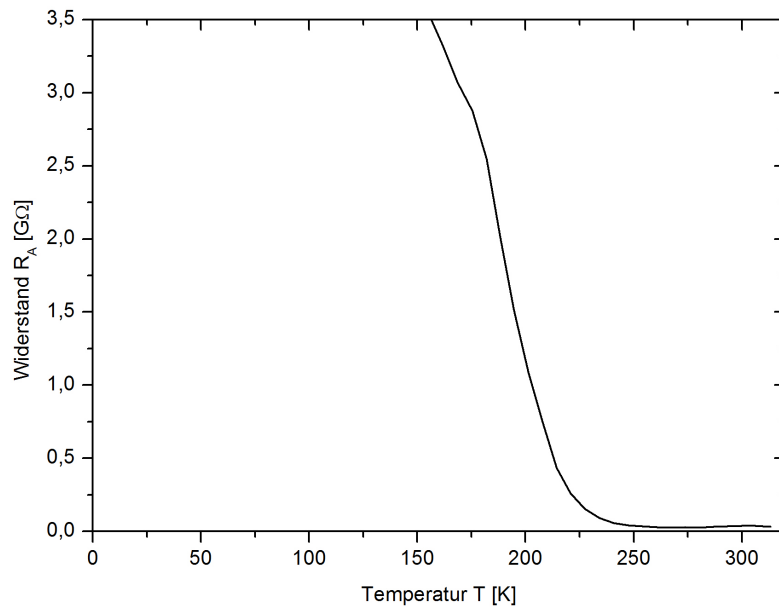


Abbildung 8.12: Temperaturabhängigkeit des Widerstandes R_A der Probe L203.

Kapitel 9

Ausblick

Eine der wichtigsten Aufgaben in der Erforschung der Oxid-Heterostrukturen wird es zukünftig sein eine endgültige Erklärung für das Auftreten metallischer Leitfähigkeit zu finden. Es gibt zwar offensichtlich je nach Probenpräparation sehr unterschiedliche Mechanismen, die die erhöhte Leitfähigkeit verursachen, doch eine exakte quantitative Beschreibung der Prozesse scheint noch nicht gefunden zu sein.

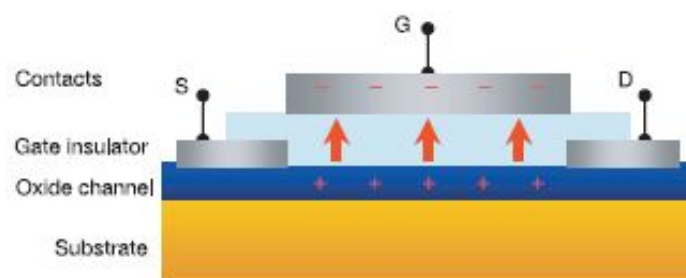


Abbildung 9.1: Schematische Darstellung eines Feldeffekttransistors (FET). Mit freundlicher Genehmigung von Macmillan Publishers Ltd: Aus [94], Copyright (2003).

Seit der Entdeckung der leitenden Schicht an der Oxid-Heterostruktur wurde auch vielfach über die Anwendungsmöglichkeiten diskutiert. Die kommerziell interessanteste dürfte der Bau von Feldeffekttransistoren (FET, Abb. 9.1) sein, wie bereits in Kapitel 3 erwähnt wurde. Momentan werden solche Transistoren meist auf Si/SiO Basis hergestellt. Da die Oxid-basierten Transistoren jedoch viele Vorteile bieten würden, ist die genaue Erforschung dieser Eigenschaften besonders interessant.

Für alle elektronischen Anwendungen ist eine Strukturierung der Materialien notwendig. Herkömmliche Methoden, wie die Strukturierung mittels lithographischer Masken, haben jedoch zumeist den Nachteil, dass die aufgetragenen Schichten die Weiterverarbeitung der Proben stören können. Deswegen wurden Hochtemperatursupraleiter mittels Ionenbestrahlung strukturiert. Auch dabei wurde zuerst mit lithographisch aufgetragenen Masken gearbeitet, deren Entfernung aber schwierig oder unmöglich war. Deswegen wurde die so genannte MIBS (*Masked Ion Beam Structuring*)-Technik (siehe Abb. 9.2) entwickelt. Dabei wird eine Maske in einem gewissen Abstand von der Probe angebracht

und von den Ionen durchstrahlt. Um kleinere Strukturen zu erhalten, wird dieser Ionenstrahl danach durch ein magnetisches Linsensystem fokussiert. Somit kann die Probe strukturiert werden ohne zusätzliche Schichten auf das Material aufzutragen [95].

Diese Technik könnte auch bei der Oxid-Heterostruktur angewandt werden. Da nun die Auswirkungen von kleinen Bestrahlungsdosen bekannt sind, ist der nächste logische Schritt die Auswirkungen höherer Dosen zu erforschen und bestimmte Formen leitender Strukturen mittels Ionenbestrahlung im $\text{LaAlO}_3/\text{SrTiO}_3$ zu erreichen.

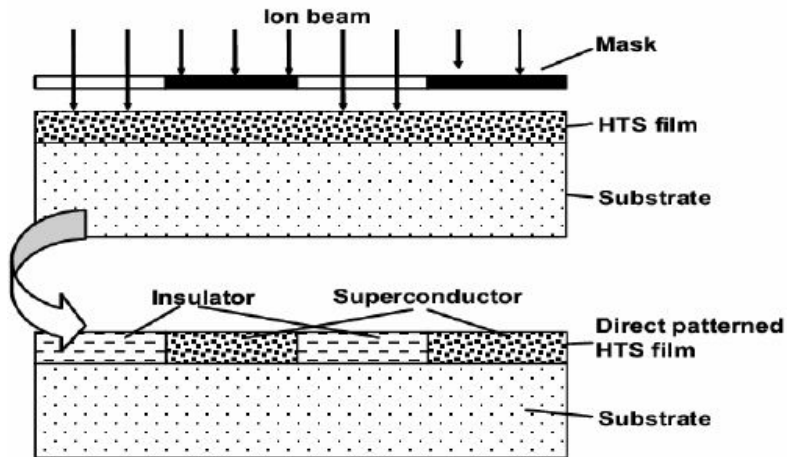


Abbildung 9.2: Schematische Darstellung der Anwendung von MIBS-Technik an Hochtemperatursupraleitern. Aus [95], mit freundlicher Genehmigung von Elsevier.

Anhang A

SRIM/TRIM Ein- und Ausgabe

SRIM/TRIM bietet für die Eingabe der gewünschten Daten ein grafisches Interface, welches in Abb. A.1 zu sehen ist. Es sollen hier in exemplarischer Form die Eingabe und Auswahlmöglichkeiten dieses Programms dargestellt werden. Es wird vor allem auf die Parameter eingegangen, welche auch für die vorliegenden Berechnungen gewählt wurden.

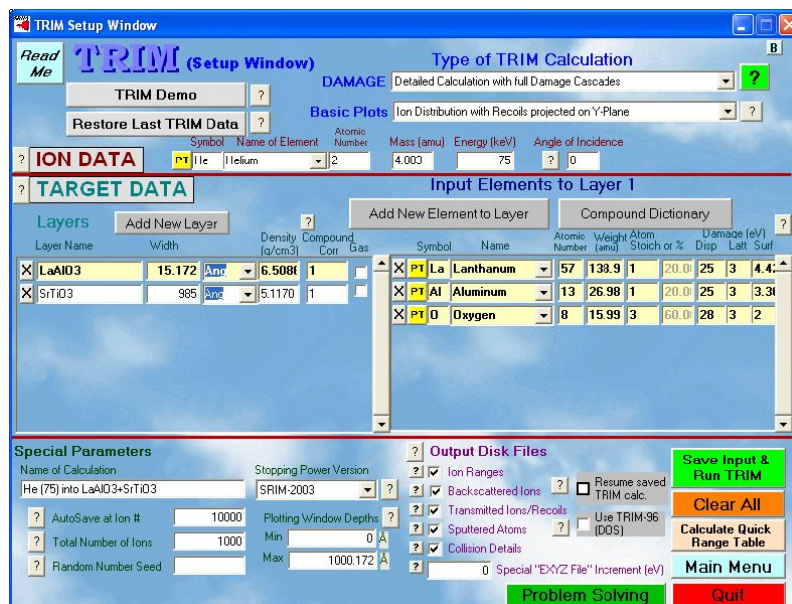


Abbildung A.1: Eingabe- und Auswahlbildschirm des Computerprogramms SRIM/TRIM.

SRIM/TRIM-Eingabefenster

Damage bietet Auswahlmöglichkeiten zwischen verschiedenen Berechnungsarten. Es wurde meist *Detailed Calculation with Full Damage Cascades* verwendet, also eine ausführliche Kalkulation mit allen Stoßkaskaden. Weiters können auch Berechnungen ohne diese Details durchgeführt werden, bzw. Berechnungen bei denen der

Einfallswinkel, die Energie, etc. variiert werden kann. SRIM/TRIM erhält die dafür benötigten Daten aus eine bereitzustellenden externen File (Trim.dat).

Basic Plots gibt die Option zwischen den verschiedenen Ausgabegrafiken zu wählen. Es stehen zur Auswahl: longitudinale Plots in der Y- (siehe Grafiken in Kapitel 6) oder Z-Ebene (die Ionen fallen jeweils in X-Richtung ein), weiters eine YZ-Ebenen-Ansicht, Y-Ebenen-Ansicht in welcher nur die von den Gitterplätzen gestreuten Atome dargestellt werden, alle bisher erwähnten Plots auf einmal und die Darstellung ohne Plots für eine schnellere Kalkulationsgeschwindigkeit.

Ion Data Hier kann per Elementsymbol oder Name die gewünschte Ionensorte ausgewählt werden. Zusätzlich werden Elementnummer und Atommasse angezeigt. Weiters kann die kinetische Energie der Ionen (in keV) sowie der Einschlagswinkel (in der XY-Ebene, in Einheiten von Grad) gewählt werden.

Target Data bietet die Möglichkeit mehrere Materialien virtuell übereinander anzuordnen, welche jeweils aus mehreren Elementen zusammengesetzt sind.

- *Layers* bietet die Möglichkeit mehrere Targetmaterialien einzugeben. Es können Namen (welche auch in der Ausgabegrafik erscheinen), die Dicke des Materials und die Dichte gewählt werden. Weiters gibt es die Möglichkeit eine so genannte Compound Correction einzugeben, mit welcher Ungenauigkeiten bei der Berechnung an verschiedenen Materialien ausgeglichen werden können. Des weiteren gibt es die Möglichkeit auch das Bestrahlen von Gasen zu simulieren, wenn die Tick-Box Gas angehakt ist.
- *Input Elements To Layer XY* Es können Elemente zur ausgewählten Schicht hinzugefügt werden, welche auch im Compound Dictionary (Verzeichnis der Elemente) nachgeschlagen und ausgewählt werden können. Atomnummer und Atomgewicht werden zusätzlich angezeigt. Die Stöchiometrie kann durch Eingabe in das nebenstehende Fenster für jedes Element eingestellt werden. Zusätzlich ist es möglich die Energien für das Produzieren einer Leerstelle, die Gitterbindungsenergie und die Oberflächenbindungsenergie (also die Energie die aufgewendet werden muss um ein Teilchen aus dem Kristall herauszulösen) einzustellen.

Special Parameters Hier kann der Name der Kalkulation festgelegt werden. Weiters kann die Anzahl der Ionen bestimmt werden und eine Ionenanzahl, bei welcher ein Autosave durchgeführt werden soll (nur notwendig für große Ionenzahlen), festgelegt werden. Außerdem kann man einen Wert für das „Berechnen“ der Zufallsnummern eingeben. Dieser Wert wird dem Random Number Generator als Startwert zugeführt. Wird dieser nicht verändert, so liefert eine Kalkulation mit den selben Parametern immer exakt das selbe Ergebnis. Die Version der Stopping Powers kann ebenso eingestellt werden (standardmäßig verwendet man die neueste erhältliche Version) wie die Größe des Ausgabefensters (Standard ist die Darstellung des ganzen Materials).

Output Disk Files Damit können, durch Markieren der entsprechenden Tick-Boxen, Datenfiles erstellt werden, welche folgende Details der Kalkulation beinhalten: Reichweite der Ionen, transmittierte, reflektierte Ionen, aus der Oberfläche herausgeschlagene (sputtered) Atome, die gesamten Kollisionsdetails und ein File, welches die Ionenpositionen in definierbaren energetischen Schritten ausgibt.

SRIM/TRIM Ausgabefenster

Abbildung A.2 zeigt den Ausgabebildschirm von SRIM/TRIM. Die einzelnen Funktionen sollen im Folgenden erklärt werden. „Aktuell“ bezieht sich hier immer darauf, dass diese Daten während der Kalkulation für jedes Ion aktualisiert werden.

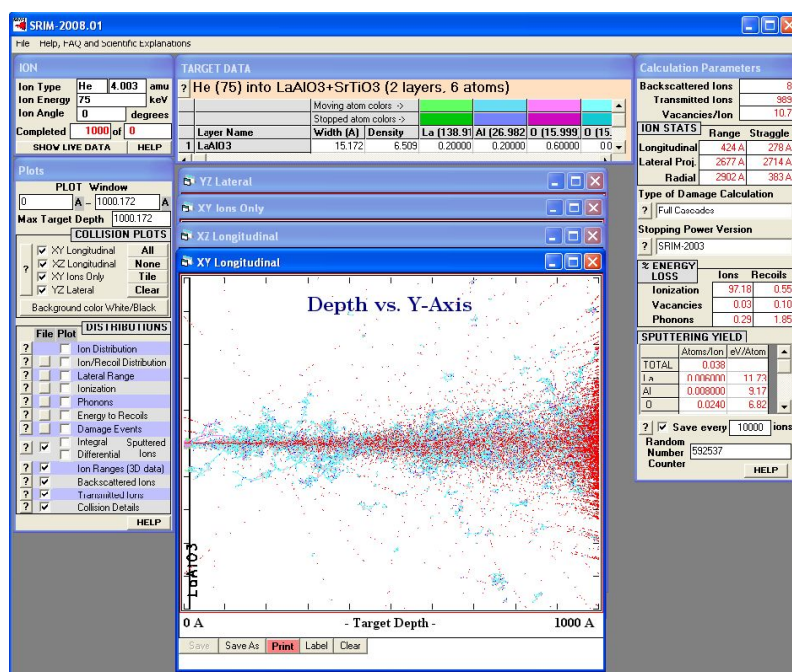


Abbildung A.2: Ausgabebildschirm des Computerprogramms SRIM/TRIM.

Ion gibt die Einstellungen für Ionensorte, Energie, Einstrahlwinkel und während der Berechnung auch die Anzahl der bereits berechneten Ionen (Kollisionskaskaden) wieder. Veränderungen sind möglich und werden bei Neustart der Kalkulation berücksichtigt.

Plots lässt Veränderungen der Darstellungsgröße des Ausgabefensters zu.

- *Collision Plots* bietet die Möglichkeit auch nachträglich die Art der Darstellung der Ionen und Atomtrajektorien zu verändern.

- *Distributions* bietet die Möglichkeit weitere Graphen, welche im Eingabemenü nicht wählbar sind, darzustellen und in separate Datenfiles abspeichern zu lassen. Darstellbar sind Ionen und/oder Atomverteilung, Energieübertrag der Ionen auf Ionisation, Phononen und kinetische Energie der Targetatome, Defektproduktion und gesputterte Atome. Meist wird dies in Abhängigkeit von der Orstkoordinate (X-Koordinate) im Material dargestellt.

Target Data gibt sämtliche im Eingabebildschirm gewählten Daten des Targets wieder und bietet die Möglichkeit sie für eine weitere Kalkulation zu verändern. Außerdem wird eine Legende für die darunter liegenden Plots gezeigt.

Calculation Parameters zeigt aktuelle Daten für die Anzahl der rückgestreuten und transmittierten Ionen, sowie die mittlere Anzahl der von einem Ion produzierten Leerstellen.

- *Ion Stats* zeigt aktuelle Statistiken zur Reichweite und Streuung der Ionen in den verschiedenen Raumrichtungen. Darunter werden die Art der Berechnung und die SRIM/TRIM Stopping Power Variante angezeigt.
- *Energy Loss* zeigt den Energieübertrag der Ionen an die Atome des bestrahlten Materials, an Phononen und durch elastische Stöße.
- *Sputtering Yield* zeigt aktuelle Werte für gesputterte Atome: die Anzahl der pro Ion aus der Oberfläche gelösten Atome und den Energieübertrag pro Atom.

Anhang B

Die Messprogramme

Es wurden bereits vorhandene, in Test Point programmierte Messprogramme, für die Messungen der Transporteigenschaften der Oxid-Grenzschichten adaptiert. Durch geringe Änderungen können diese Programme sowohl Spannungsmessungen mit dem Keithley 2182 Nanovoltmeter (im Folgenden gezeigt), als auch mit dem Keithley 6514 Electrometer durchführen. Alle Programme sind Dateien, welche unabhängig von Test Point funktionieren.

Temperatursweep

Das Interface des verwendeten Programmes für die Temperatursweeps an der 4uc Probe ist in Abb. B.1 ersichtlich und die einzelnen Funktionen sollen im Folgenden kurz beschrieben werden.

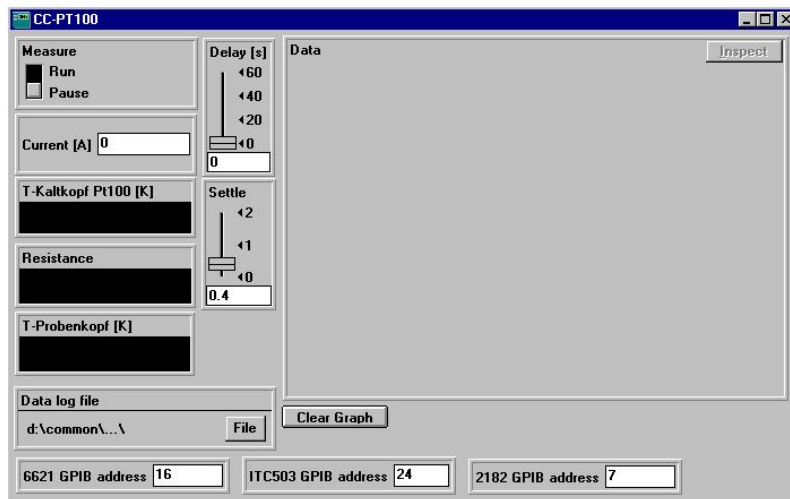


Abbildung B.1: Interface des Computerprogramms für das Durchführen von Temperatursweeps.

Measure Run startet die Messung.

Current Messstrom in A.

T-Kaltkopf Pt100 Temperatur am Kaltkopf in K.

Resistance Berechneter Widerstand in Ω .

T-Probenkopf Temperatur am Probenkopf in K.

Delay Wartezeit zwischen den Messungen in s.

Settle Wartezeit zwischen dem Anlegen des Stromes und der Spannungsmessung in s.

Data Log File Spezifiziert die Ausgabedatei.

Außerdem wird der Widerstand gegen die Temperatur in einem Graphen dargestellt. Weiters ist es möglich die GPIB Adressen der verwendeten Geräte zu verändern, was beim Austausch von Messgeräten hilfreich sein kann.

Hall-Messung

Das Interface des verwendeten Programmes für die Hall-Messungen an der 4uc Probe ist in Abb. B.2 ersichtlich:

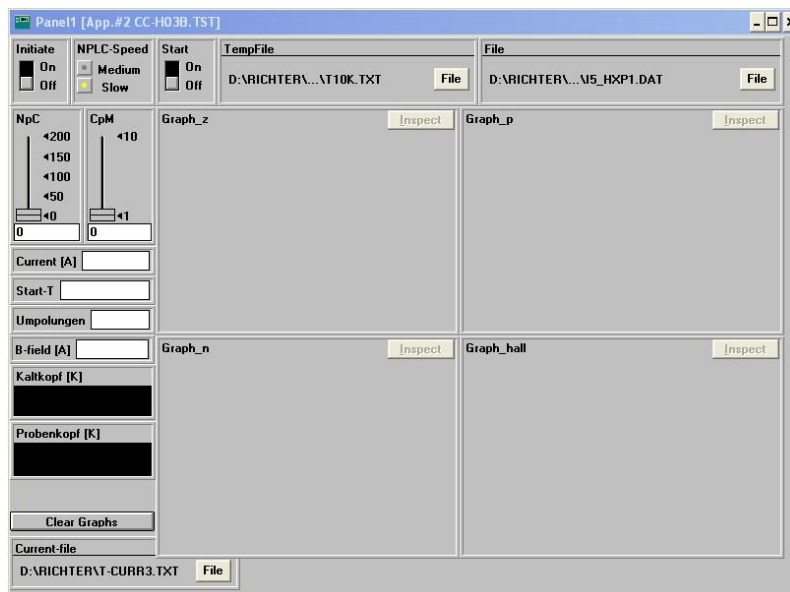


Abbildung B.2: Interface des Computerprogrammes für die Hall-Effekt-Messungen.

Initiate Aktiviert die Temperaturkontrolle. Start-T wird angefahren.

NPLC-Speed Zwei unterschiedliche Einstellungen (schnell, langsam) für die Wartezeit zwischen Umpolungen der Stromrichtung (Standard: Slow).

Start On startet die Messung.

NpC Anzahl der Umpolungen des Stromes.

CpM Anzahl der Messabläufe.

Current A Messstrom in A.

Start-T Temperatur die zu Beginn angefahren werden soll.

Umpolungen Anzahl der Umpolungen des Magneten. (Eine Umpolung entspricht einem vollen Messdurchlauf ohne Feld, mit positivem und negativem Feld.)

B-field A Strom, der vom FUG NTN 4200M-125 an den Magneten ausgegeben wird.

Kaltkopf K Temperatur am Kaltkopf in K.

Probenkopf K Temperatur am Probenkopf in K.

Current-file Enthält Stromwerte für unterschiedliche Temperaturen, die vom HP 6633A an die Heizung am Kaltkopf ausgegeben werden.

TempFile Enthält die Temperaturen, welche angefahren werden.

File Spezifiziert die Ausgabe Datei.

Zusätzlich sind vier Graphen zu sehen, welche aber ohne die Messung der longitudinalen Spannung (welche in der vorliegenden Konfiguration nicht messbar war) unbrauchbar sind und für die Messung somit nicht benötigt wurden.

Literaturverzeichnis

- [1] M. K. Wu, J. R. Ashburn, C. J. Torng, P. H. Hor, R. L. Meng, L. Gao, Z. J. Huang, Y. Q. Wang, C. W. Chu, Phys. Rev. Lett. **58**, 908 (1987)
- [2] H. Maeda, Y. Tanaka, M. Fukutomi, T. Asano, Jpn. J. Appl. Phys. **27**, L209 (1988)
- [3] R. von Helmholt, J. Wecker, B. Holzapfel, L. Schultz, K. Samwer, Phys. Rev. Lett. **71**, 2331 (1993)
- [4] M. McCormack, S. Jin, T. H. Tiefel, R. M. Fleming, J. M. Phillips, R. Ramesh, Appl. Phys. Lett. **64**, 3045 (1994)
- [5] A. Ohtomo, H. Y. Hwang, Nature **427**, 423 (2004)
- [6] Pearson's Crystal Data - Crystal Structure Database for Inorganic Compounds (PCD), Online Datenbank
- [7] H. D. Megaw, Proc. Phys. Soc. **58**, 133 (1946)
- [8] H. Lehnert, H. Boysen, P. Dreyer, Y. Yu, Z. Kristallogr. **215**, 145 (2000)
- [9] H. Lehnert, H. Boysen, J. Schneider, F. Frey, D. Hohlwein, P. Radaelli, H. Ehrenberg, Z. Kristallogr. **215**, 536 (2000)
- [10] V. F. Savchenko, L. S. Ivashkevich, V. N. Meleshko, Inorg. Mater. **21**, 1499 (1985)
- [11] F. Sánchez, C. Ferrater, C. Guerrero, M. V. García-Cuenca, M. Varela, Appl. Phys. A **71**, 59 (2000)
- [12] K. Tsuda, M. Tanaka, Acta Cryst. **A51**, 7 (1995)
- [13] R. H. Mitchell, A. R. Chakhmouradian, J. Solid State Chem. **144**, 81 (1999)
- [14] G. Li, X. Kuang, S. Tian, F. Liao, X. Jing, Y. Uesu, K. Kohn, J. Solid State Chem. **165**, 381 (2002)
- [15] S. Thiel, G. Hammerl, A. Schmehl, C. W. Schneider, J. Mannhart, Science **313**, 1942 (2006)
- [16] S. Thiel, *Study of Interface Properties in LaAlO₃/SrTiO₃ Heterostructures*, Dissertation, Universität Augsburg 2009

- [17] Y. Mukunoki, N. Nakagawa, T. Susaki, H. Y. Hwang, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 171908 (2005)
- [18] N. M. Plakida, *High-Temperature Superconductivity*, Springer, Berlin, 1995
- [19] S. Flügge, *Lehrbuch der theoretischen Physik III*, Springer, Berlin, 1961
- [20] C. M. Hurd, *The Hall Effect In Metals And Alloys*, Plenum Press, New York, 1972
- [21] H. Ibach, H. Lüth, *Festkörperphysik*, Springer, Berlin, 2009
- [22] H.-J. Shin, S. H. Kim, H. J. Yang, Y. Kuk, *Nanotechnology* **18**, 175304 (2007)
- [23] E. K. Weise, I. A. Lesk, *J. Chem. Phys.* **21**, 801 (1953)
- [24] H. P. R. Frederikse, W. R. Thurber, W. R. Hosler, *Phys. Rev.* **134**, A442 (1964)
- [25] J. S. Steinhart, S. R. Hart, *Deep Sea Res.* **15**, 497 (1968)
- [26] H. P. R. Frederikse, W. R. Hosler, *Phys. Rev.* **161**, 822 (1967)
- [27] R. Moos, W. Menesklou, K. H. Härdtl, *Appl. Phys. A* **61**, 389 (1995)
- [28] M. Itoh, R. Wang, M. Narahara, T. Kyomen, *Ferroelectrics* **258**, 3 (2003)
- [29] J. H. Haeni, P. Irvin, W. Chang, R. Uecker, P. Reiche, Y. L. Li, S. Choudhury, W. Tian, M. E. Hawley, B. Craigo, A. K. Tagantsev, X. Q. Pan, S. K. Streiffer, L. Q. Chen, S. W. Kirchoefer, J. Levy, D. G. Schlom, *Nature* **430**, 758 (2004)
- [30] Y. Nakao, *Jap. J. Appl. Phys.* **46**, 7008 (2007)
- [31] M. Takesada, T. Yagi, M. Itoh, S. Koshihara, *J. Phys. Soc. Jap.* **72**, 37 (2003)
- [32] G. A. Samara, *J. Appl. Phys.* **68**, 4214 (1990)
- [33] X. B. Lu, H. B. Lu, J. Y. Dai, Z. H. Chen, M. He, G. Z. Yang, H. L. W. Chan, C. L. Choy, *Microelec. Eng.* **77**, 399 (2005)
- [34] T. Takahashi, H. Iwahara, Y. Nagai, *J. Appl. Electrochem.* **2**, 97 (1972)
- [35] T. Ishihara, H. Matsuda, Y. Takita, *J. Electrochem. Soc.* **141**, 3444 (1994)
- [36] J. Y. Park, G. M. Choi, *Sol. State Ion.* **154 - 155**, 535 (2002)
- [37] T. L. Nguyen, M. Dokiya, S. Wang, H. Tagawa, T. Hashimoto, *Sol. State Ion.* **130**, 229 (2000)
- [38] H. Y. Hwang, A. Ohtomo, N. Nakagawa, D. A. Muller, J. L. Grazul, *Physica E* **22**, 712 (2004)
- [39] R. Pentcheva, W. E. Pickett, *Phys. Rev. B* **74**, 035112 (2006)

- [40] M. S. Park, S. H. Rhim, A. J. Freeman, Phys. Rev. B **74**, 205416 (2006)
- [41] P. R. Willmott, S. A. Pauli, R. Herger, C. M. Schlepütz, D. Martocchia, B. D. Patterson, B. Delley, R. Clarke, D. Kumah, C. Cionca, Y. Yacoby, Phys. Rev. Lett. **99**, 155502 (2007)
- [42] R. Pentcheva, W. E. Pickett, Phys. Rev. B **78**, 205106 (2008)
- [43] J. Lee, A. A. Demkov, Phys. Rev. B **78**, 193104 (2008)
- [44] R. Pentcheva, W. E. Pickett, Phys. Rev. Lett. **102**, 107602 (2009)
- [45] Y. Hotta, T. Susaki, H. Y. Hwang, Phys. Rev. Lett. **99**, 236805 (2007)
- [46] S. Okamoto, A. J. Millis, Nature **428**, 630 (2004)
- [47] M. Sing, G. Berner, K. Goß, A. Müller, A. Ruff, A. Wetscherek, S. Thiel, J. Mannhart, S. A. Pauli, C. W. Schneider, P. R. Willmott, M. Gorgoi, F. Schäfers, R. Claessen, <http://arxiv.org/abs/0809.1917>
- [48] M. Salluzzo, J. C. Cezar, N. B. Brookes, V. Bisogni, G. M. De Luca, C. Richter, S. Thiel, J. Mannhart, M. Huijben, A. Brinkman, G. Rijnders, G. Ghiringhelli, Phys. Rev. Lett. **102**, 166804 (2009)
- [49] J.-L. Maurice, G. Herranz, C. Colliex, L. Devos, C. Carrétéro, A. Barthélémy, K. Bouzehouane, S. Fusil, D. Imhoff, É. Jaquet, F. Jomard, D. Ballutaud, M. Basletic, EPL **82**, 17003 (2008)
- [50] Z. S. Popovic, S. Satpathy, R. M. Martin, Phys. Rev. Lett. **101**, 256801 (2008)
- [51] T. Fix, F. Schoofs, J. L. MacManus-Driscoll, M. G. Blamire, Phys. Rev. Lett. **103**, 166802 (2009)
- [52] A. Kalabukhov, R. Gunnarsson, J. Börjesson, E. Olsson, T. Claeson, D. Winkler, Phys. Rev. B **75**, 121404 (2007)
- [53] W. Siemons, G. Koster, H. Yamamoto, W. A. Harrison, G. Lucovsky, T. H. Geballe, D. H. A. Blank, M. R. Beasley, Phys. Rev. Lett. **98**, 196802 (2007)
- [54] W. Siemons G. Koster, H. Yamamoto, T. H. Geballe, D. H. A. Blank, M. R. Beasley, Phys. Rev. B **76**, 155111 (2007)
- [55] G. Herranz, M. Basletic, M. Bibes, C. Carrétéro, E. Tafrá, É. Jaquet, K. Bouzehouane, C. Deranlot, A. Hamzić, J.-M. Broto, A. Barthélémy, A. Fert, Phys. Rev. Lett. **98**, 216803 (2007)
- [56] A. Kalabukhov, R. Gunnarsson, T. Claeson, D. Winkler, <http://www.arxiv.org/abs/0704.1050>

- [57] K. Yoshimatsu, R. Yasuhara, H. Kumigashira, M. Oshima, Phys. Rev. Lett. **101**, 026802 (2008)
- [58] M. Basletic, J.-L. Maurice, C. Carrétéro, G. Herranz, O. Copie, M. Bibes, É. Jaquet, K. Bouzehouane, S. Fusil, A. Barthélémy, Nat. Mat. **8**, 621 (2008)
- [59] A. Brinkman, M. Huijben, M. Van Zalk, J. Huijben, U. Zeitler, J. C. Maan, W. G. Van der Wiel, G. Rijnders, D. H. A. Blank, H. Hilgenkamp, Nat. Mat. **6**, 493 (2007)
- [60] M. Huijben, A. Brinkman, G. Koster, G. Rijnders, H. Hilgenkamp, D. H. A. Blank, Adv. Mat. **21**, 1665 (2009)
- [61] A. Ohtomo, D. A. Muller, J. L. Grazul, H. Y. Hwang, Nature **419**, 378 (2002)
- [62] D. P. Norton, B. C. Chakoumakos, J. D. Budai, D. H. Lowndes, B. C. Sales, J. R. Thompson, D. K. Christen, Science **265**, 2074 (1994)
- [63] T. Koida, M. Lippmaa, T. Fukumura, K. Itaka, Y. Matsumoto, M. Kawasaki, H. Koinuma, Phys. Rev. B **66**, 144418 (2002)
- [64] T. Tsurumi, T. Hairgai, D. Tanaka, S.-M. Nam, H. Kakemoto, S. Wada, K. Saito, Appl. Phys. Lett. **85**, 5016 (2004)
- [65] C. W. Schneider, S. Thiel, G. Hammerl, C. Richter, J. Mannhart, Appl. Phys. Lett. **89**, 122101 (2006)
- [66] H. Kammerlingh-Onnes, Comm. Lab. Univ. Leiden **120b** (1911)
- [67] W. Meissner, R. Ochsenfeld, Naturwissenschaften **21**, 787 (1933)
- [68] F. London, H. London, Proc. Roy. Soc. (London) **A149**, 72 (1935)
- [69] V. L. Ginzburg, L. D. Landau, Zh. Eksp. Theor. Fiz. **20**, 1064 (1950)
- [70] J. Bardeen, L. N. Cooper, J. R. Schrieffer, Phys. Rev. **108**, 1175 (1957)
- [71] W. Buckel, R. Kleiner, *Supraleitung*, Wiley-VCH, Weinheim, 2004
- [72] B. D. Josephson, Phys. Lett. **1**, 251 (1962)
- [73] J. G. Bednorz, K. A. Müller, Z. Phys. B **64**, 189 (1986)
- [74] H. Suzuki, H. Bando, Y. Ootuka, I. H. Inoue, T. Yamamoto, K. Takahashi, Y. Nishihara, J. Phys. Soc. Jap. **65**, 1529 (1996)
- [75] C. S. Koonce, M. Marvin, M. L. Cohen, J. F. Schooley, W. R. Hosler, E. R. Pfeiffer, Phys. Rev. **163**, 380 (1967)
- [76] J. F. Schooley, W. R. Hosler, M. L. Cohen, Phys. Rev. Lett. **12**, 474 (1964)

- [77] N. Reyren, S. Thiel, A. D. Caviglia, L. Fitting Kourkoutis, G. Hammerl, C. Richter, C. W. Schneider, T. Kopp, A.-S. Rüetschi, D. Jaccard, M. Gabay, D. A. Muller, J.-M. Triscone, J. Mannhart, *Science* **317**, 1196 (2007)
- [78] N. Reyren, S. Gariglio, A. D. Caviglia, D. Jaccard, T. Schneider, J.-M. Triscone, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 112506 (2009)
- [79] A. D. Caviglia, S. Gariglio, N. Reyren, D. Jaccard, T. Schneider, M. Gabay, S. Thiel, G. Hammerl, J. Mannhart, J.-M. Triscone, *Nature* **456**, 624 (2008)
- [80] Internet Homepage: <http://www.srim.org> (Stand: 22. März 2010)
- [81] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, M. D. Ziegler, *SRIM The Stopping And Range Of Ions In Matter*, SRIM Co., Chester MD, 2008
- [82] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, U. Littmark, *The Stopping And Range Of Ions In Solids*, Pergamon Pr., New York, 1985
- [83] W. Eckstein, *Computer Simulation of Ion-Solid Interactions*, Springer, Berlin, 1991
- [84] B. S. Thomas, N. A. Marks, B. D. Begg, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, **254**, 211 (2007)
- [85] W. Lang, T. Enzenhofer, M. Peruzzi, J. D. Pedarnig, D. Bäuerle, C. Horner, E. Cekan, E. Platzgummer, H. Loeschner, *Inst. Phys. Conf. Ser.* **181**, 1549 (2004)
- [86] M. Dineva-Stavreva, *Monte-Carlo Simulation der Defekterzeugung in Hochtemperatursupraleitern*, Dissertation, Universität Wien 2005
- [87] S. Thiel, persönliche Mitteilung
- [88] Internet Homepage: <http://www.eeel.nist.gov/812/meas.htm> (Stand: 22. März 2010)
- [89] L. J. van der Pauw, *Phil. Techn. Rev.* **26**, 220 (1958)
- [90] J. D. Pedarnig, persönliche Mitteilung
- [91] M. Marksteiner, *Einfluss winkelabhängiger Ionenbestrahlung in Hochtemperatursupraleitern*, Diplomarbeit, Universität Wien 2006
- [92] H. Richter, *Elektrische Eigenschaften von quecksilberhaltigen Hochtemperatursupraleitern*, Diplomarbeit, Universität Wien 2003
- [93] M. Huijben, G. Rijnders, D. H. A. Blank, S. Bals, S. van Aert, J. Verbeeck, G. van Tendeloo, A. Brinkman, H. Hilgenkamp, *Nat. Mat.* **5**, 556 (2006)
- [94] C. H. Ahn, J.-M. Triscone, J. Mannhart, *Nature* **424**, 1015 (2003)

- [95] W. Lang, M. Dineva, M. Marksteiner, T. Enzenhofer, K. Siraj, M. Peruzzi, J. D. Pedarnig, D. Bauerle, R. Korntner, E. Cekan, E. Platzgummer, H. Loeschner, *Microelec. Eng.* **83**, 1495 (2006)

Ich habe mich bemuhrt, samtliche Inhaber der Bildrechte ausfindig zu machen und ihre Zustimmung zur Verwendung der Bilder in dieser Arbeit eingeholt. Sollte dennoch eine Urheberrechtsverletzung bekannt werden, ersuche ich um Meldung bei mir.

Danksagung

Ich danke Prof. Dr. Wolfgang Lang für die Bereitstellung und Betreuung der Diplomarbeit. Ich danke auch allen anderen Mitgliedern der Gruppe „Elektronische Materialeigenschaften“ für ihre Hilfe, insbesondere Mag. Herbert Richter und Dr. Ionut Puica. Außerdem danke ich Prof. Dr. Jochen Mannhart und seiner Gruppe an der Universität Augsburg für die Bereitstellung der Proben. Besonders danken möchte ich dabei Stefan Paetel und Christoph Richter, die unsere „Sonderwünsche“ bezüglich der Probenkontaktierung sofort erfüllt haben. Dank gilt auch Prof. Dr. Johannes Pedarnig und seiner Gruppe an der Johannes-Kepler-Universität Linz für die Bestrahlung der Probe.

Bedanken möchte ich mich weiters auch bei meinen Studien- und Laborkollegen, für ihre Hilfe und für lange (nicht)physikalische Gespräche: Werner Daxböck, Philip Rohringer, Tobias Kitzler und Thomas Penz. Dies gilt natürlich auch ganz besonders für meinen guten Freund, Schul- Studien und Laborkollegen Bernd Steiger.

Ich möchte ein ganz besonders großes Dankeschön an meine Eltern und Großeltern richten, ohne deren Unterstützung mein Studium und damit diese Arbeit niemals möglich gewesen wäre.

Schließlich danke ich meiner Verlobten Sandra, für die Ablenkung von physikalischen Problemen und einfach dafür, dass du jeden Tag für mich da bist.

Curriculum Vitae

Persönliche Daten

- Name: Markus Sauer
- Geburtsdatum: 14. September 1984
- Geburtsort: Neunkirchen (Niederösterreich)
- Staatsbürgerschaft: Österreich
- Familienstand: ledig
- Adresse: Antonigasse 13/17, 1180 Wien

Bildungsweg

- 1991-1995: Volksschule Neunkirchen Steinfeld
- 1995-2003: Bundesrealgymnasium Neunkirchen
- 2003-2004: Zivildienst
- 2004-2010: Physikstudium an der Universität Wien
- 2008-2010: Diplomarbeit in der Gruppe Elektronische Materialeigenschaften an der Fakultät für Physik der Universität Wien