

Elektronische Charakterisierung von LaAlO₃-SrTiO₃-Grenzflächen mittels Rastertunnelspektroskopie

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades
der mathematisch-naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Augsburg

vorgelegt von

Martin Breitschaft

Augsburg, Juni 2010

Tag der mündlichen Prüfung: 22. Oktober 2010

Erstgutachter:	Prof. Dr. Jochen Mannhart (Universität Augsburg)
Zweitgutachter:	Prof. Dr. Armin Reller (Universität Augsburg)
Drittgutachter:	Prof. Dr. Dirk Grundler (Technische Universität München)

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	3
1 Einleitung	5
2 LaAlO₃-SrTiO₃-Heterostrukturen	11
2.1 Volumeneigenschaften der Materialien	11
2.2 Grundlegende Eigenschaften	12
3 Physikalische Grundlagen der Rastersondenmikroskopie	17
3.1 Rasterkraftmikroskopie	20
3.2 Rastertunnelmikroskopie	24
4 Das verwendete Mikroskopie-System	33
5 Durchgeführte instrumentelle Entwicklungen	47
5.1 Mechanische Modifikationen	49
5.2 Neuentwicklung der Mikroskop-Elektronik	52
5.3 Neuentwicklung des Probentransfersystems	61
5.4 Neuentwicklung des Probenpräparations-Systems	67
5.5 Neuentwicklung des Mikroskopkopfs	73
6 Untersuchung der LaAlO₃-SrTiO₃-Heterostruktur	83
6.1 Probenherstellung	83
6.2 Probenpräparation durch Heizen	86
6.3 Untersuchte Proben	87
6.4 Spitzenpräparation	88
6.5 Topografieabbildung	89
6.6 Spektroskopie	90
6.7 Ergebnisse und Diskussion	98
7 Zusammenfassung und Ausblick	103
A Berechnung des Ladungstransports durch realistisch geformte Tunnelbarrieren	105
A.1 Tunnelmatrix-Element für ebene Wellen	105
A.2 Tunnelbarriere unter Berücksichtigung der Bildladungs-Kräfte .	109

A.3 Numerische Auswertung des Tunnelstroms	110
B Schaltpläne von Einzelgeräten der Mikroskop-Elektronik	115
C Verschaltung der Mikroskopkopf-Piezostapel	139
D Details zu den DFT-Rechnungen	141
E Berechnete Zustandsdichten von Volumen-LaAlO₃ und -SrTiO₃	147
F Messaufbau zur Untersuchung von LaAlO₃-SrTiO₃-Doppellagen mit Backgate	149
Abbildungsverzeichnis	153
Tabellenverzeichnis	159
Literaturverzeichnis	161

1 Einleitung

An der Grenzfläche zwischen TiO_2 -terminiertem Strontiumtitanat SrTiO_3 und epitaktischem Lanthanaluminat LaAlO_3 bildet sich ein leitfähiges, zweidimensionales Elektronensystem aus [1], sofern der LaAlO_3 -Film eine Stärke von mindestens vier Einheitszellen erreicht [2]. Die elektrische Leitfähigkeit des Elektronensystems ist durch elektrische Felder einstellbar [2]. Bei Temperaturen unterhalb von ≈ 250 mK wird die Grenzfläche supraleitend [3]. Dieses Verhalten ist überraschend, da sowohl LaAlO_3 als auch SrTiO_3 Isolatoren sind.

Die Funktionalität von Oxidgrenzflächen kann sich, wie im Falle der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche, qualitativ vom Ergebnis einer bloßen Kombination der Volumeneigenschaften der Ausgangsstoffe unterscheiden. Da komplexe Oxide bereits in Volumenform, etwa im Vergleich zu konventionellen Halbleitern, besonders vielfältige physikalische Eigenschaften wie Ferroelektrizität, Piezoelektrizität, Ferromagnetismus oder Supraleitung zeigen [4], lassen ihre Grenzflächen besonders großen Reichtum auch an noch unbekanntem physikalischen Phänomenen erwarten. Die inhaltliche Ausrichtung der weiteren Erforschung von Elektronensystemen an Oxidgrenzflächen sowie das Erschließen möglichen Anwendungspotentials setzen eine zutreffende Vorstellung von der Konfiguration dieser Elektronensysteme voraus. Das Ziel der vorliegenden Arbeit war es, die elektronische Zustandsdichte des zweidimensionalen Elektronensystems an der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche mittels Rastertunnelspektroskopie [5, 6] zu messen. Dies ist zum ersten Mal gelungen. Die experimentellen Resultate ermöglichten eine Bewertung unterschiedlicher theoretischer Modellvorstellungen von der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche [7].

Den Ausgangspunkt bildete die Vorstellung, an der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche bilde sich in Analogie zu zweidimensionalen Elektronensystemen an Halbleitergrenzflächen ein zweidimensionales Gas quasi-freier Elektronen, das in einem durch Bandverbiegung gegebenen Potentialtopf eingeschlossen ist. Zweidimensionale Elektronengase an Halbleitergrenzflächen [8] spielen sowohl in der Grundlagenforschung, als auch in technischen Anwendungen eine wichtige Rolle. Beispielsweise wurde an diesen Systemen der Quanten-Hall-Effekt entdeckt [9], und sie bilden die Grundlage des High Electron Mobility Transistors [10], wie er millionenfach in der Hochfrequenztechnik eingesetzt wird. Die Untersuchungen der vorliegenden Arbeit machten zwei grundlegende Unterschiede zwischen

dem Elektronensystem an der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche und den zweidimensionalen Elektronengasen an Halbleitergrenzflächen deutlich. Ein Vergleich gemessener Tunnelspektren mit von Natalia Pavlenko in Dichtefunktionaltheorie (DFT) berechneten Zustandsdichten zeigte zum einen, dass die mobilen Elektronen an der Grenzfläche nicht durch Bandverbiegung, sondern vielmehr in atomaren Coulomb-Potentialen von Ionen an der Grenzfläche eingeschlossen sind und zum anderen, dass die Zustandsdichte des Elektronensystems von elektronischen Korrelationen geprägt ist [7]. Insbesondere unterscheidet sich die Zustandsdichte des Grenzflächen-Elektronensystems von den Zustandsdichten von dotiertem LaAlO_3 und SrTiO_3 .

Das wichtigste Ergebnis der vorliegenden Arbeit ist die Entdeckung, dass das Elektronensystem an der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche ein neuartiges zweidimensionales Elektronensystem ist. Seine gegenüber bekannten zweidimensionalen Elektronensystemen neuartigen Merkmale sind die Art des zweidimensionalen Einschlusses in atomaren Potentialtöpfen sowie der nennenswerte Einfluss elektronischer Korrelationen.

Zweidimensionale Elektronensysteme wurden bereits mittels Rastertunnelmikroskopie und -spektroskopie untersucht. An Halbleiteroberflächen wurden zweidimensionale Elektronensysteme mittels Ionen-Implantation [11] oder durch Adsorbate [12] erzeugt. Zweidimensionale Elektronengase in Bandverbiegungszonen an Halbleitergrenzflächen wurden über Querschnittsflächen der Heterostrukturen erforscht [13]. In Halbleiter-Heterostrukturen können quasi-zweidimensionale Elektronensysteme nicht nur in Bandverbiegungszonen an Oberflächen und Grenzflächen existieren, sondern auch durch Einschluss von Elektronen in definierten Filmlagen entstehen. Die Filmlage gibt dann die Dicke des Elektronensystems vor; sie bestimmt die Quantisierung der Elektronen-Wellenvektor-Komponenten senkrecht zur Filmebene und damit die Quantisierung der Elektronen-Energien. Halbleiterfilme, in denen Elektronen innerhalb der Filmdicke eingeschlossen sind, wurden spektroskopisch über die Filmoberfläche [14] oder über Querschnittsflächen von Mehrfachschichten [15, 16] untersucht. Elektronensysteme an Oxid-Grenzflächen waren vor Beginn der Untersuchungen für die vorliegende Arbeit noch nicht mittels Rastertunnelmikroskopie oder -spektroskopie untersucht worden.

Rastertunnelspektroskopie bietet sich zur Erforschung von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostrukturen an, da sie eine Untersuchung der Oxid-Doppelschichten ohne weitere Präparationsschritte, wie sie etwa zur Aufbringung einer feststehenden Tunnel-Gegenelektrode erforderlich wären, gestattet. Die Möglichkeit, durch variierende Spitzen-Probenabstände die Tunnelstromdichten nach oben zu begrenzen, erschließt, verglichen mit den Möglichkeiten feststehender Tunnel-Elektroden,

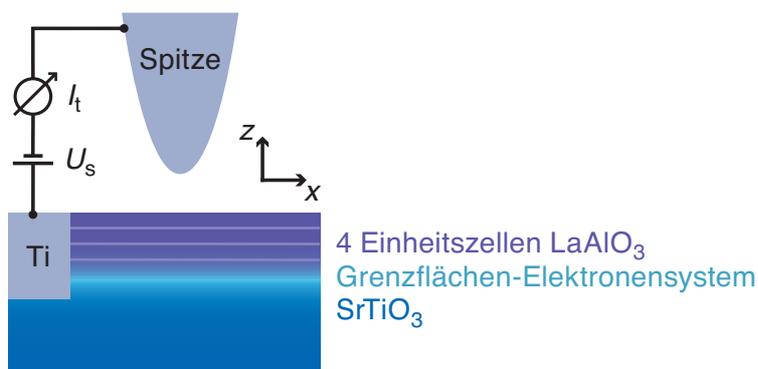


Abbildung 1.1: Skizze der experimentellen Anordnung, mit der in der vorliegenden Arbeit das metallische Elektronensystem an der Grenzfläche einer LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellage mit vier Einheitszellen LaAlO_3 untersucht wurde. Zur Rastertunnelmikroskopie und -spektroskopie wird der Tunnelstrom I_t , der zwischen Spitze und Probe fließt, als Funktion der Spannung U_s an der Probe gegenüber der Spitze gemessen. Der von Grenzflächenzuständen getragene Tunnelstrom passiert den LaAlO_3 -Film überwiegend in Richtung der Normalen zur Grenzfläche (aus Ref. [7]).

auf einfache Art einen relativ großen Energiebereich.

Die LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostruktur bietet relativ günstige Voraussetzungen für eine Untersuchung mittels Rastertunnelmikroskopie und -spektroskopie. Es zeigte sich, dass die sehr geringe Mindeststärke von vier Einheitszellen LaAlO_3 ($\approx 1,6$ nm), die für die Ausbildung des leitfähigen Grenzflächen-Elektronensystems erforderlich ist, bei normaler Tunnelrichtung durch den Film messbare, wenn auch kleine, Tunnel-Leitwerte zulässt. Abbildung 1.1 zeigt die für die vorliegende Arbeit verwendete Messanordnung.

Bei den rastertunnelmikroskopischen und -spektroskopischen Untersuchungen der vorliegenden Arbeit erforderten die in der Regel sehr kleinen Tunnelströme sehr niedrige Messgeschwindigkeiten. Die Aufzeichnung eines Tunnelspektrums nahm vier Minuten, die eines rastertunnelmikroskopischen Topografiebildes häufig mehrere Stunden in Anspruch. Eine Voraussetzung kontrollierbarer Spitzen-Probenabstände ist eine über die Zeitdauer einer Messung vernachlässigbare thermische Relativbewegung zwischen Spitze und Probe. Mit seiner besonders geringen thermischen Drift von < 7 fm/s [17] erfüllt das am Lehrstuhl entwickelte Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop [17, 18] diese Anforderung. Das Mikroskop arbeitet im Ultrahochvakuum (UHV) bei der Siedetemperatur flüssigen Heliums. Mittels seines auf einer Quarz-Stimmgabel basierenden Kraftsensors

(qPlus-Sensor [19, 20]) ermöglicht es simultane Rastertunnel- und Rasterkraftmikroskopie. Alle rastersondenmikroskopischen Messungen für die vorliegende Arbeit wurden mit diesem Instrument durchgeführt.

Bei der Untersuchung der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostrukturen mittels Rastertunnelspektroskopie ergaben sich auch experimentelle Anforderungen, denen mit dem Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop in seiner bisherigen Konstruktion nicht zu begegnen war. Die Entwicklung geeigneter Lösungen war Teil der vorliegenden Arbeit. Im Gegensatz zu vielen üblicherweise mittels Rastersondenmikroskopie untersuchten Proben ist es bei LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostrukturen nicht ohne weiteres möglich, eine atomar saubere Oberfläche zu präparieren. Zur Oberflächenpräparation wurden die Proben mittels eines neu entwickelten Präparationssystems, das auf einem ebenfalls neu entwickelten Probentransfersystem aufbaut, bei einem Sauerstoffdruck von 10^{-2} mbar auf Temperaturen von etwa 400°C geheizt. Der Sauerstoffdruck ist erforderlich, um eine Bildung von Sauerstoff-Leerstellen im SrTiO_3 zu verhindern. Der eingelassene Sauerstoff führt zu einem Hintergrunddruck von etwa $5 \cdot 10^{-7}$ mbar. Schon deshalb ist davon auszugehen, dass auf den Proben auch nach dieser Oberflächenpräparation eine Adsorbatbelegung verbleibt. Die Adsorbate übertragen sich auf die Spitze und können den Tunnelkontakt beeinflussen. Erst eine Präparation der Spitze durch Feldemission ermöglichte reproduzierbare spektroskopische Resultate. Eine neu entwickelte Mikroskop-Elektronik erlaubt eine Spitzenpräparation durch Feldemission, eine hochauflösende Messung des differentiellen Tunnel-Leitwerts sowie simultane Tunnel- und Kraftmikroskopie. Die Elektronik ermöglichte spektroskopische Aussagen selbst bei Strömen unterhalb von $0,1$ pA.

Die Grundvoraussetzung jeder rastersondenmikroskopischen Untersuchung ist die mechanische Positionierung der Spitze relativ zur Probe in Distanzen weniger Ångström, in denen die Spitzen-Probenwechselwirkungen wirksam werden. Der so genannte Scanner, ein häufig als piezoelektrisches Röhrchen [21] realisiertes Stellelement, realisiert diese Positionierung und ermöglicht das Abrastern der Probe bei der Bildaufzeichnung. Gerade bei tiefen Temperaturen ist der Stellbereich solcher Stellelemente eng begrenzt, etwa auf $2\ \mu\text{m}$ in transversaler (x - y -) Richtung und $0,5\ \mu\text{m}$ in longitudinaler (z -) Richtung. Die Spitze und die Probe einander so anzunähern, dass die Probe im Stellbereich des Scanners zu liegen kommt, bezeichnet man als *Grobpositionierung*. Die Grobpositionierungsmechanik besteht aus einem beweglichen Schlitten auf einem feststehenden Chassis. Der Schlitten wird meist von einem piezoelektrischen Trägheitsmotor [22] angetrieben. Diese Mechanik ist nach der Spitze und dem Scanner die wichtigste Komponente eines Rastersondenmikroskops. Im Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop wird sie im UHV bei einer Temperatur von $4,7\ \text{K}$ betrieben. Die Herausforderung besteht darin, mit für das UHV und für tiefe Temperaturen geeig-

neten Materialien und Verbindungstechniken ein Instrument zu konstruieren, bei dem zum einen die Einheit aus Schlitten und Chassis eine große mechanische Steifigkeit aufweist, und zum anderen der Schlitten mit einer Stellpräzision in der Größenordnung von 100 nm und mit möglichst geringer mechanischer Hysterese bewegt werden kann. Besonders bezüglich der mechanischen Steifigkeit der Mechanik wurde am Lehrstuhl ein hoher Entwicklungsstand erreicht [17]. Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit neu entwickelte Grobpositionierungsmechanik stellt einen weiteren großen Fortschritt dar. Sie bietet nicht nur eine besonders zuverlässige Bewegung des Schlittens, sondern ermöglicht vielmehr eine Bewegung des Schlittens entlang *zweier* Achsen anstatt wie vormals entlang nur einer Achse. Damit kann die Spitze nicht nur durch Bewegung in z -Richtung an die Probe angenähert, sondern auch in der x - y -Ebene parallel zur Probenoberfläche verschoben werden. Die so gegebene Möglichkeit, etwa nach einer Spitzenpräparation durch Feldemission eine neue Probenstelle anzufahren, brachte eine große Beschleunigung der experimentellen Prozesse. Mit den Neuentwicklungen wurde den zusätzlichen experimentellen Anforderungen begegnet und gleichzeitig eine hohe Zuverlässigkeit des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops erreicht. Die komplexe Anlage war in der zweiten Hälfte des Jahres 2009 ohne defektbedingte Unterbrechung voll funktionstüchtig.

Die vorliegende Schrift gibt zunächst einen Überblick über grundlegende Eigenschaften der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostruktur (Kapitel 2) und über die Rastersondenmikroskopie (Kapitel 3). Das verwendete Mikroskopie-System wird in Kapitel 4 beschrieben, die erwähnten instrumentellen Neuentwicklungen in Kapitel 5. Die Ergebnisse der Untersuchungen von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzflächen sind Gegenstand von Kapitel 6. Kapitel 7 beinhaltet eine Zusammenfassung und gibt einen Ausblick auf mögliche zukünftige rastersondenmikroskopische Untersuchungen komplexer Oxide.

2

LaAlO₃-SrTiO₃-Heterostrukturen

Dieses Kapitel gibt einen Überblick über Grundlagen zu LaAlO₃-SrTiO₃-Heterostrukturen. Zunächst werden Volumeneigenschaften von LaAlO₃ und SrTiO₃ beschrieben.

2.1 Volumeneigenschaften der Materialien

LaAlO₃ und SrTiO₃ bilden Perowskit-Strukturen. Die Einheitszellen sind in Abb. 2.1 skizziert.

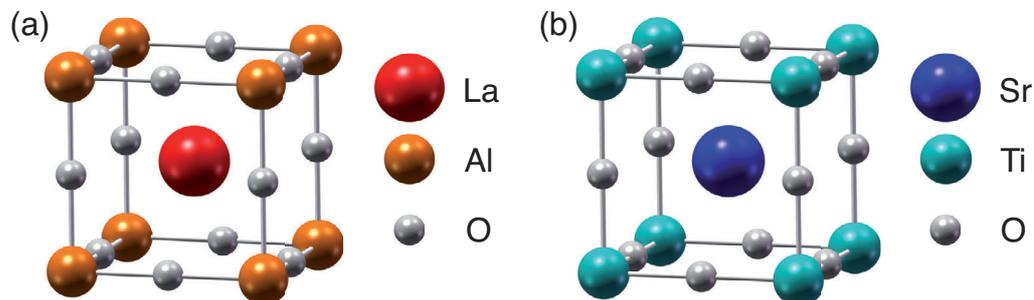


Abbildung 2.1: Skizze der Einheitszellen von LaAlO₃ (a) und SrTiO₃ (b).

Die Einheitszelle von LaAlO₃ ist bei Temperaturen oberhalb von 813 K kubisch mit einer Gitterkonstanten von 3,8 Å [23]. Die Bandlücke von LaAlO₃ beträgt 5,6 eV [24]. Die Valenzelektronenverteilung innerhalb der Einheitszelle kann näherungsweise angegeben werden, indem man jeder ionischen Spezies formal die Ionenladung zuweist, die jeweils einer elektronischen Edelgaskonfiguration entspricht, also Lanthan- und Aluminiumionen jeweils eine Ladung von +3 Elementarladungen und Sauerstoffionen eine Ladung von -2 Elementarladungen $e = 1,6022 \cdot 10^{-19}$ C.

Die Einheitszelle von SrTiO₃ ist bei Raumtemperatur kubisch mit einer Gitterkonstanten von 3,9 Å [25]. Die Bandlücke von SrTiO₃ beträgt 3,2 eV [26]. Strontium

erreicht elektronische Edelgaskonfiguration für eine Ionenladung von +2, Titan für eine Ionenladung von +4. Sauerstoff-Leerstellen führen, falls vorhanden, in SrTiO_3 zu metallischer Leitfähigkeit. Bei allen in der vorliegenden Arbeit untersuchten Proben wurden Vorkehrungen getroffen, eine Bildung von Sauerstoff-Leerstellen im SrTiO_3 zu vermeiden.

2.2 Grundlegende Eigenschaften der Heterostrukturen

Betrachtet werden LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostrukturen, bei denen LaAlO_3 epitaktisch auf TiO_2 -terminierte (001)-Ebenen von SrTiO_3 -Einkristallen abgeschieden ist. Abbildung 2.2 zeigt die Struktur einer solchen Doppellage. Die Struktur lässt sich darstellen als Abfolge von SrO - und TiO_2 -Schichten, die das SrTiO_3 -Substrat bilden, und daran angrenzenden LaO - und AlO_2 -Schichten des LaAlO_3 -Films. Geht man von der Valenzelektronen-Verteilung aus, wie sie oben für Volumen- LaAlO_3 und Volumen- SrTiO_3 angenommen wurde, so sind eine Formeleinheit SrO und eine Formeleinheit TiO_2 jeweils ladungsneutral, während für eine Formeleinheit LaO eine Ladung von $+e$ und für eine Formeleinheit AlO_2 eine Ladung von $-e$ resultiert. Die Bildung eines Systems mobiler Elektronen an der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche ist das Ergebnis einer *elektronischen Rekonstruktion*, bei der in der Doppellage eine andere Verteilung der Valenzelektronen entsteht, als sie bei Volumen- LaAlO_3 und Volumen- SrTiO_3 vorliegt.

Eine Modellvorstellung zur energetischen Motivation der elektronischen Rekonstruktion ist in Abb. 2.3 illustriert. Wie in Abb. 2.3a dargestellt, führt die Valenzelektronen-Verteilung, wie sie für Volumen- LaAlO_3 und Volumen- SrTiO_3 angenommen wurde, zu einem Anstieg des elektrostatischen Potentials ϕ_{el} innerhalb des LaAlO_3 -Films und wird daher mit wachsender Filmdicke energetisch zunehmend ungünstig. Die elektronische Rekonstruktion besteht in einer Umverteilung von Valenzelektronen aus der AlO_2 -Schicht an der LaAlO_3 -Filmoberfläche in grenzflächennahe TiO_2 -Schichten. Wie in Abb. 2.3b dargestellt, steigt nach einer derartigen Umverteilung eines halben Elektrons je Einheitszellenfläche das elektrostatische Potential innerhalb des LaAlO_3 -Films nicht mehr mit wachsender Filmdicke an. Die elektronische Rekonstruktion ist in LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen möglich, da die Oxidationszahlen -1 des Sauerstoffs im AlO_2 und $+3$ des Titans im TiO_2 energetisch zugänglich sind.

DFT-Rechnungen (s. Abschnitt 6.7) ergeben, dass eine solche elektronische Rekonstruktion in LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen stattfindet. Den DFT-Ergebnissen zufolge führt die Rekonstruktion zu einer Besetzung von O $2p$ -Orbitalen in der

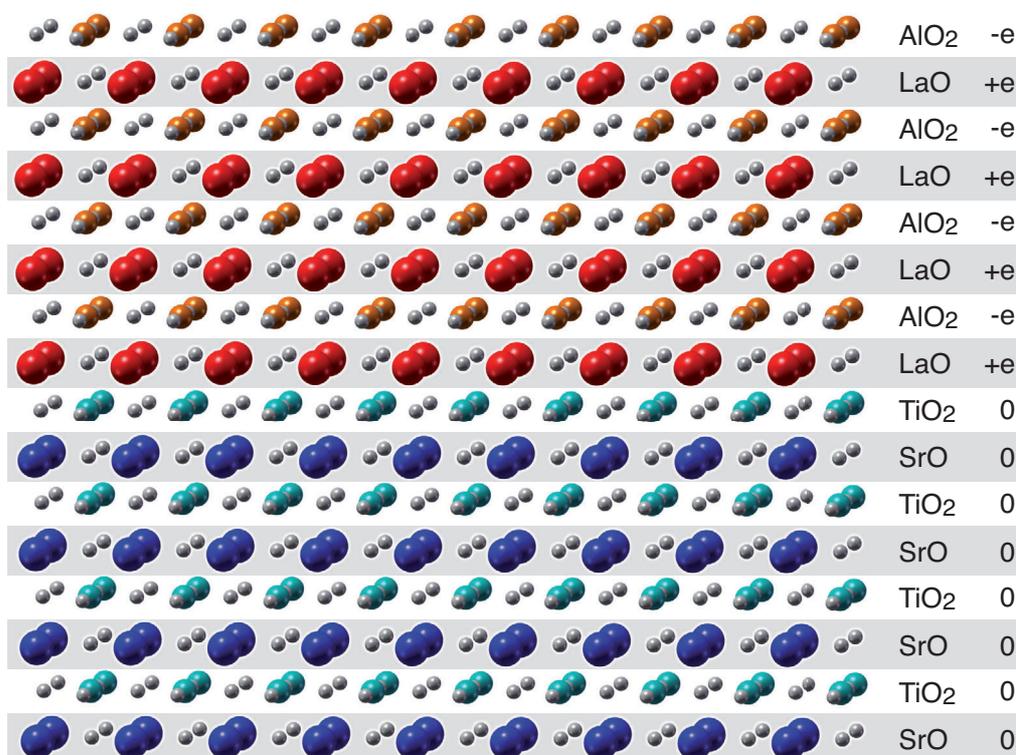


Abbildung 2.2: Skizze der Schichtstruktur einer LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellage, wie sie in der vorliegenden Arbeit untersucht wurde. Lanthan-Atome sind in rot, Aluminium-Atome in orange, Strontium-Atome in blau, Titan-Atome in cyan und Sauerstoff-Atome in hellgrau eingezeichnet. Die Struktur der Doppellage wird hier als Schichtstruktur aufgefasst. Rechts sind die Summenformeln der Schichten und die resultierenden Ladungen einer Formeleinheit angegeben, wie sie sich aus den für Volumen- LaAlO_3 und Volumen- SrTiO_3 angenommenen Ionenladungen ergeben.

obersten AlO_2 -Schicht, die an Vakuum angrenzt, mit Löchern, und einer Besetzung von $\text{Ti } 3d$ -Orbitalen grenzflächennaher TiO_2 -Schichten mit Elektronen. Damit ist eine p -Leitfähigkeit der Doppelschicht-Oberflächen und eine n -Leitfähigkeit der Grenzflächen zu erwarten.

Im Experiment bestätigt sich die p -Leitfähigkeit der LaAlO_3 -Filmoberflächen nicht, wohl aber die n -Leitfähigkeit der Grenzflächen [2]. Die Leitfähigkeit der Grenzflächen hängt dabei stark von der Dicke des LaAlO_3 -Films ab. Wie in Abb. 2.4a zu sehen ist, vergrößert sich der Flächenleitwert σ_A der Grenzflächen um mehr als vier Größenordnungen, sobald der LaAlO_3 -Film eine kritische Dicke

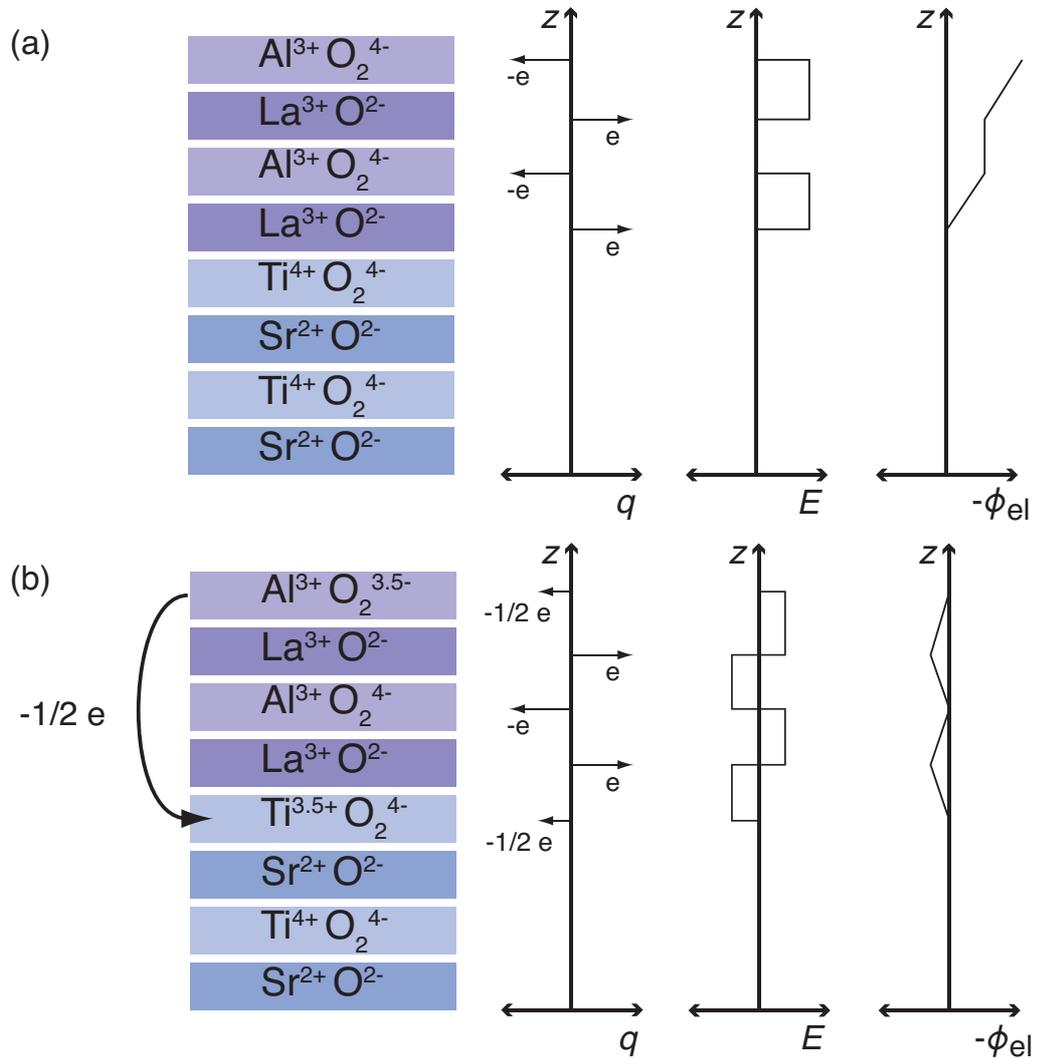


Abbildung 2.3: Skizze des Verlaufs des elektrostatischen Potentials ϕ_{el} innerhalb des LaAlO_3 -Films einer LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellage entlang der c -Achse für die Valenzelektronen-Verteilung, wie sie für Volumen- LaAlO_3 und Volumen- SrTiO_3 angenommen wurde (a) und nach Umverteilung einer halben Elektronenladung je Einheitszelle von der obersten AlO_2 -Lage in die TiO_2 -Schicht an der Grenzfläche (b). Dargestellt ist jeweils von links nach rechts die Schichtabfolge, die Gesamtladung q je Schicht-Formeleinheit, das elektrische Feld $E(z)$ in z -Richtung und das elektrostatische Potential $\phi_{\text{el}}(z)$. Die Koordinatenrichtung z ist parallel zur c -Achse gewählt (nach Ref. [27]).

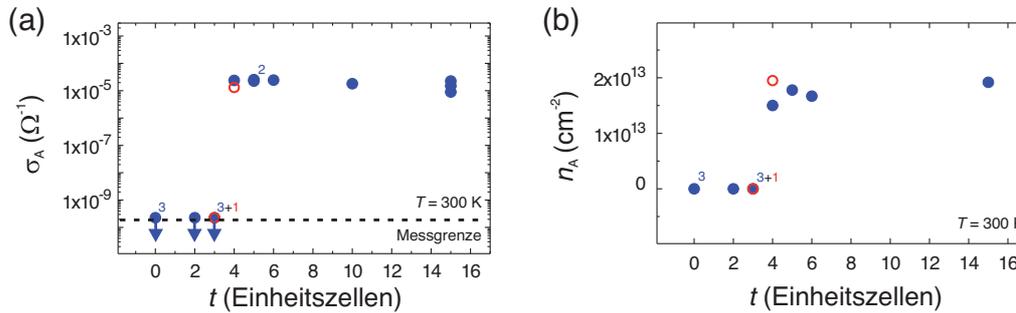


Abbildung 2.4: Auftragungen des gemessenen Flächenleitwerts σ_A (a) und der gemessenen Flächendichte der Ladungsträger n_A (b) der Grenzfläche in LaAlO₃-SrTiO₃-Doppellagen als Funktion der LaAlO₃-Filmdicke t . Der Flächenleitwert und die Flächendichte der Ladungsträger steigen sprunghaft an, sobald die LaAlO₃-Filmdicke vier Einheitszellen erreicht (aus Ref. [2]).

von vier Einheitszellen erreicht [2]. Doppellagen mit bis zu drei Einheitszellen LaAlO₃ weisen Flächenleitwerte kleiner als $2 \cdot 10^{-10}$ A/V auf. Für Doppellagen mit vier oder mehr Einheitszellen LaAlO₃ sind typische Werte des Flächenleitwerts $2,4 \cdot 10^{-5}$ A/V bei Raumtemperatur und $4 \cdot 10^{-3}$ A/V bei 4,2 K. Die Flächendichte der Ladungsträger aus Hall-Messungen n_A , in Abb. 2.4b als Funktion der LaAlO₃-Filmdicke für $T = 300$ K aufgetragen, beträgt für Filmdicken ab vier Einheitszellen mehrere 10^{13} cm^{-2} und hängt wenig von der Temperatur ab [2].

Da bei den rastertunnelmikroskopischen und -spektroskopischen Untersuchungen der vorliegenden Arbeit der minimale Abstand zwischen Grenzfläche und Spitze mit durch die LaAlO₃-Filmdicke bestimmt ist (s. Abb. 1.1), verringert sich mit zunehmender Filmdicke die Wahrscheinlichkeit für Tunnelprozesse, an denen Grenzflächenzustände beteiligt sind. Daher wurden stets LaAlO₃-SrTiO₃-Doppellagen mit einer LaAlO₃-Filmdicke von vier Einheitszellen untersucht, der minimalen Filmdicke, für die sich das leitfähige Grenzflächen-Elektronensystem spontan ausbildet.

3 Physikalische Grundlagen der Rastersondenmikroskopie

Dieses Kapitel gibt einen Überblick über physikalische Grundlagen der in der vorliegenden Arbeit angewendeten rastersondenmikroskopischen Verfahren. Die Rastersondenmikroskopie basiert auf der Messung lokaler Wechselwirkungen zwischen der Probe und einer Sonde in der Nähe der Probenoberfläche. Im Falle der Rasterkraftmikroskopie [28] und der Rastertunnelmikroskopie [5] besteht die Sonde in einer scharfen Spitze. Typische Spitzenenden haben einen effektiven Radius von etwa 50 nm [29]. In Abb. 3.1 ist die grundlegende Messanordnung, bestehend aus der Probe und der gegenüber der Probenoberfläche angeordneten Spitze, skizziert. Die Ebene, die die Atomkerne der äußersten Atomlage der Probe verbindet, heie *Probenebene*. Die x - y -Ebene eines kartesischen Koordinatensystems liege in der Probenebene, die z -Koordinatenrichtung weise aus der Probe heraus. Der Spitzen-Probenabstand d sei gegeben durch den Abstand des Kerns des vordersten Spitzenatoms von der Probenebene.

Die Messgroen in der Rasterkraftmikroskopie sind durch die zwischen Spitze und Probe wirkenden Wechselwirkungskraften bestimmt. In der Rastertunnelmikroskopie werden der quantenmechanische Tunnelstrom I_t , der zwischen Spitze und Probe flieen kann, und davon abgeleitete Groen beobachtet.

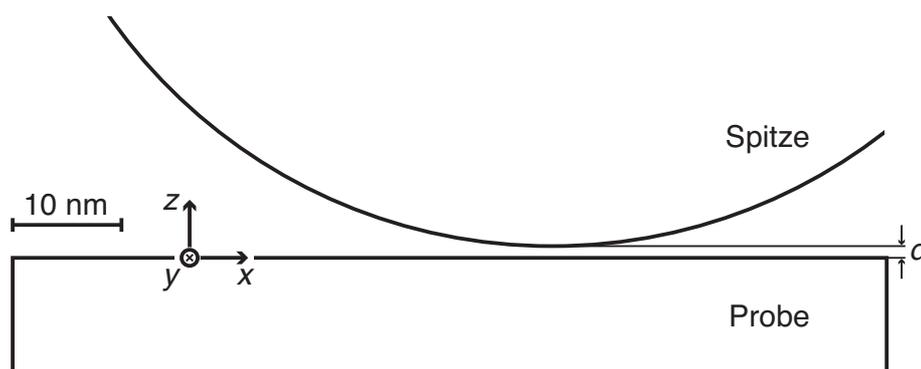


Abbildung 3.1: Querschnitts-Skizze einer Rastersondenmikroskopie-Spitze in der Nhe einer Probenoberflche.

Die Messgrößen in der Rastersondenmikroskopie können als *bildgebende Messgrößen* verwendet werden. Hierzu wird die Spitze zeilenweise über einen meist quadratischen Probenbereich geführt, die Probe wird *abgerastert*. Die Richtung der Zeilen bezeichnet man als die schnelle Abtastrichtung, die Richtung des Zeilenvorschubs als die langsame Abtastrichtung. Ist M die betrachtete Messgröße und $M(x, y, z)$ der Wert dieser Größe als Funktion der Raumposition (x, y, z) eines relativ zur Spitze festen Bezugspunktes gegenüber der Probe, so bezeichnet man den Datensatz $M(x, y, z = \text{const.})$ als *Constant-Height-Bild*. Ein *Topografiebild* $z(x, y, M = \text{const.})$ entsteht unter Zuhilfenahme einer z -Regelschleife, die durch Einstellung des Spitzen-Probenabstandes $d = z + \text{const.}$ die Messgröße M konstant auf einem vorgewählten Wert hält.

Ist p ein zusätzlicher Parameter, von dem die Messgröße M abhängt, so bezeichnet man einen Datensatz

$$M(x = \text{const.}, y = \text{const.}, z = \text{const.}, p)$$

als *Spektrum*¹. Die wichtigsten experimentellen Resultate der vorliegenden Arbeit sind Spektren

$$I_t(x = \text{const.}, y = \text{const.}, z = \text{const.}, U_S)$$

und

$$\partial I_t / \partial U_S(x = \text{const.}, y = \text{const.}, z = \text{const.}, U_S),$$

bei denen der Tunnelstrom I_t und der differentielle Tunnel-Leitwert $\partial I_t / \partial U_S$ als Funktion der Spannung U_S an der Probe gegenüber der Spitze gemessen wird (Rastertunnelspektroskopie).

Die zur gezielten Positionierung der Spitze relativ zur Probe verwendeten mechanischen Komponenten eines Rastersondenmikroskops zeigt Abb. 3.2. Die Spitze befindet sich am freien Ende des *Scanners*, einem Stellelement, das die Spitze mit Subnanometer-Präzision relativ zur Probe positioniert. Der Scanner bewerkstelligt die Feineinstellung des Spitzen-Probenabstandes sowie die Rasterbewegung. Diese Stellelemente sind häufig als piezoelektrische Röhren [21] realisiert. Typische Werte für den Stellbereich des Scanners sind $2 \mu\text{m}$ in x - und y -Richtung und $0,5 \mu\text{m}$ in z -Richtung. Der Scanner ist am *Schlitten* befestigt. Der Schlitten ruht auf Gleitkontakten auf dem Chassis und ist relativ zum Chassis mindestens in z -Richtung beweglich. Durch Bewegung des Schlittens wird die Einheit aus Scanner und Spitze relativ zur Probe so positioniert, dass die Probenoberfläche im Stellbereich des Scanners zu liegen kommt (Grobpositionierung). Der Schlitten wird hierzu häufig von einem piezoelektrischen Trägheitsmotor angetrieben

¹ Im weiteren Sinne wird auch $M(x = \text{const.}, y = \text{const.}, z, p = \text{const.})$ als Spektrum bezeichnet.

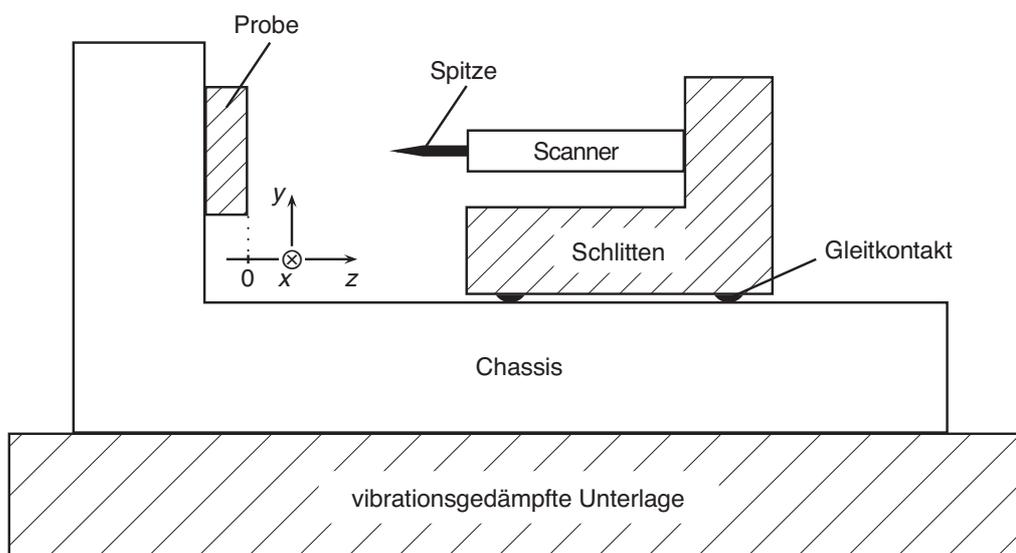


Abbildung 3.2: Skizze der mechanischen Komponenten eines Rastersondenmikroskops.

[22]. Die Einheit aus der Sonde, dem Scanner, dem Schlitten mit Antrieb und dem Chassis bildet den *Mikroskopkopf*. Eine Lagerung von Probe und Mikroskopkopf auf einer vibrationsgedämpften Unterlage kann zur Verringerung von Rauschen in der Raumposition der Spitze relativ zur Probe beitragen.

Bei Raumtemperatur tritt stets eine thermische Relativbewegung zwischen Spitze und Probe auf, die thermische Drift. Ihre Geschwindigkeit kann in der Größenordnung von 1 nm/s liegen. Die Drift macht es unmöglich, eine definierte Position der Spitze relativ zur Probe, wie etwa bei der Rastertunnelspektroskopie erforderlich, über längere Zeit aufrechtzuerhalten. Die thermischen Ausdehnungskoeffizienten von Festkörpern verkleinern sich mit sinkender Temperatur. Wird daher ein Rastersondenmikroskop bei tiefen Temperaturen betrieben, so kommt, eine stabile Temperatur vorausgesetzt, die thermische Drift nahezu zum Erliegen. Bei dem für die vorliegende Arbeit verwendeten Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop beträgt die durch thermische Ausdehnung verursachte Relativgeschwindigkeit zwischen Spitze und Probe höchstens 7 fm/s.

3.1 Rasterkraftmikroskopie

Bei der Rasterkraftmikroskopie betrachtet man Messgrößen, die mit der zwischen Spitze und Probe wirkenden Wechselwirkungskraft F_{TS} zusammenhängen. Diese Wechselwirkungskraft kann bei gegebener Raumposition der Spitze relativ zur Probe attraktiv oder repulsiv sein und beinhaltet im Allgemeinen Komponenten verschiedenen physikalischen Ursprungs². Wichtige attraktive Wechselwirkungskräfte wie die van-der-Waals-Kraft oder die Coulombkraft sind langreichweitig im Vergleich zur wichtigsten repulsiven Wechselwirkungskraft, der *Pauli-Kraft*. Letztere gründet im Energieaufwand für beim Überlapp von Orbitalen von Spitzen- und Probenatomen durch das Pauli-Prinzip erzwungene Elektronenanregungen. Chemische Bindungen zwischen Spitzen- und Probenatomen können kurzreichweitige attraktive Kräfte vermitteln. Bei den kurzreichweitigen Kräften beschränkt sich die Interaktion auf wenige Atome der Spitze und der Probe, die ausreichend geringen Abstand voneinander haben. Im Falle der langreichweitigen Kraftwechselwirkungen wie der van-der-Waals-Wechselwirkung tragen mesoskopische Teilvolumina von Spitze und Probe nennenswert zur Kraftwirkung bei.

Mit einem Term $\propto 1/d$ für die potentielle Energie aufgrund langreichweitiger Kraftwechselwirkungen [30] und einem Term $\propto 1/d^{12}$ für die potentielle Energie aufgrund der Pauli-Kraft [29] kann ein qualitativer Ausdruck für die potentielle Energie der Spitze im Kraftfeld der Spitzen-Proben-Wechselwirkung V_{TS} mit $F_{\text{TS}} = -\partial V_{\text{TS}}/\partial d$ formuliert werden zu

$$V_{\text{TS}}(d) = E_{\min} \left(\frac{12}{11} \left(\frac{\sigma}{d} \right) - \frac{1}{11} \left(\frac{\sigma}{d} \right)^{12} \right).$$

Realistische Parameterwerte sind dabei $E_{\min} = -10 \text{ eV}$ und $\sigma = 2 \text{ \AA}$.

Zur Messung der Wechselwirkungskraft werden in der Kraftmikroskopie unterschiedliche Verfahren angewandt. Im Folgenden wird ausschließlich die *Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie* [31] betrachtet. Allen Methoden der Kraftmessung gemeinsam ist die Verwendung eines einseitig eingespannten Federbalkens, des *Cantilevers* (s. Abb. 3.3), an dessen freiem Ende die Spitze angebracht ist. Die wichtigsten Kenngrößen des Cantilevers sind seine Federkonstante k und Eigenfrequenz ω_0 . Für quaderförmige Cantilever der Länge L , der Breite w und der Dicke t ist die Federkonstante [29]

$$k = \frac{Ywt^3}{4L^3}.$$

² Die Abhandlung bezieht sich auf adsorbatfreie Proben- und Spitzenoberflächen, wie sie nur im UHV vorliegen können. Adsorbate können zusätzliche Kräfte verursachen, die hier nicht betrachtet werden sollen.

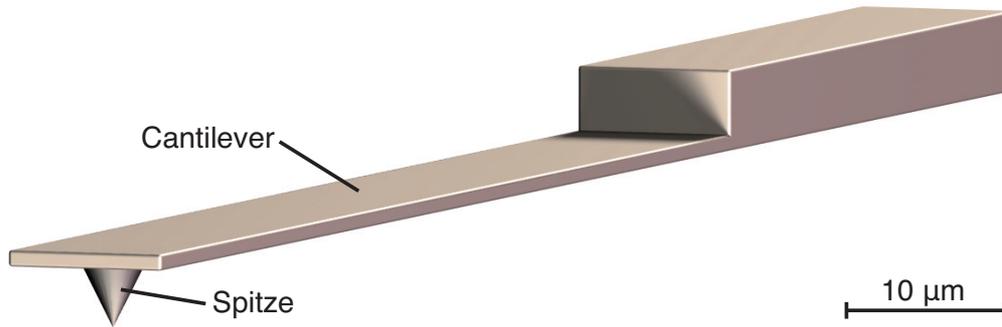


Abbildung 3.3: Skizze eines Cantilevers, wie er in der Rasterkraftmikroskopie verwendet wird. Typische Abmessungen sind eine Länge von 100 μm, eine Breite von 10 μm und eine Dicke von 1 μm.

Dabei ist Y der Elastizitätsmodul des Materials, aus dem der Cantilever besteht. Mit der Massendichte ρ des Cantilevermaterials ist die Eigenfrequenz des Cantilevers [29]

$$\omega_0 = 2\pi \cdot 0,162 \frac{t}{L^2} \sqrt{\frac{Y}{\rho}}.$$

Bei der Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie wird der Cantilever zu erzwungenen Schwingungen angeregt (s. Abb. 3.4). Die Eigenschaften des Cantilevers als Oszillator werden unter dem Einfluss der Spitzen-Proben-Wechselwirkung beobachtet. Es bezeichne q' die Auslenkung des Cantilevers in z -Richtung aus seiner Ruhelage. Der frei schwingende Cantilever verhält sich bei moderaten Amplituden wie ein harmonischer Oszillator. Schwingt der Cantilever mit der Frequenz ω und der Amplitude A , so verliert er aufgrund der dämpfenden Reibungskraft $-\gamma \dot{q}'$ pro Schwingungszyklus die Energie $\Delta E_{\text{CL}}(A, \omega) = \pi \gamma \omega A^2$. Im Folgenden soll ausschließlich der für die Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie relevante Fall schwacher Dämpfung, in dem die Eigenfrequenz ω_0 und die Resonanzfrequenz des Cantilevers nahezu zusammenfallen, betrachtet werden. Mit der Schwingungsenergie $E_{\text{CL}}(A) = 1/2 \cdot k A^2$ ist die Güte des Cantilevers

$$Q \equiv 2\pi \frac{E_{\text{CL}}(A)}{\Delta E_{\text{CL}}(A, \omega_0)} = \frac{\pi k A^2}{\Delta E_{\text{CL}}(A, \omega_0)}. \quad (3.1)$$

Bei Anregung bei der Eigenfrequenz ω_0 und mit der Anregungsamplitude A_{drive} ist die Schwingungsamplitude des Cantilevers im eingeschwungenen Zustand

$$A = Q \cdot A_{\text{drive}}. \quad (3.2)$$

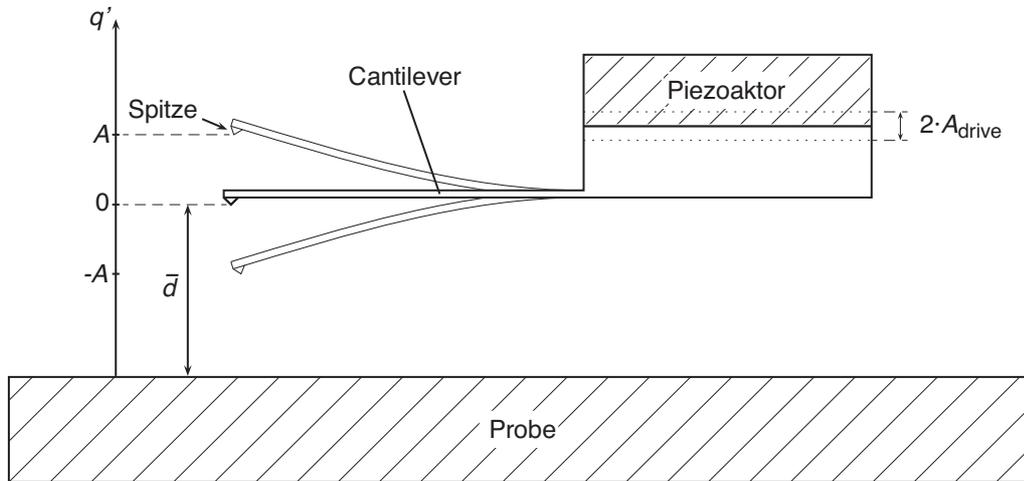


Abbildung 3.4: Skizze eines in der Nähe einer Probe schwingenden Cantilevers. Die Koordinate q' bezeichnet die Auslenkung seiner Spitze. In der Ruhelage ist $q' = 0$ und der Spitzen-Probenabstand d gleich seinem Mittelwert \bar{d} über eine Schwingungsperiode. Ein Piezoaktor regt den Cantilever mit der Amplitude A_{drive} an. Die Schwingungsamplitude A des Federbalkens ist bei typischen Parameterwerten wesentlich größer als die Anregungsamplitude ($A \gg A_{\text{drive}}$).

Die dem Cantilever über die Anregung von außen pro Schwingungszyklus zugeführte Energie ΔE_{drive} ist im eingeschwungenen Zustand gleich der aufgrund von Dämpfung pro Schwingungszyklus verlorenen Energie, $\Delta E_{\text{drive}} = \Delta E_{\text{CL}}$. Mit den Gleichungen 3.1 und 3.2 folgt daraus für die von außen über die Anregung pro Schwingungszyklus zugeführte Energie der Zusammenhang

$$\Delta E_{\text{drive}}(A, \omega_0) = \pi k A A_{\text{drive}}. \quad (3.3)$$

Die Eigenfrequenz des Cantilevers ist veränderlich unter dem Einfluss der Spitzen-Proben-Wechselwirkung. Die *Frequenzverschiebung* $\Delta\omega$ ist die grundlegende Messgröße bei der Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie. Mit der Eigenfrequenz des Cantilevers unter Einfluss der Wechselwirkung $\omega_{0,\text{WW}}$ und der Eigenfrequenz des frei schwingenden Cantilevers ω_0 ist die Frequenzverschiebung

$$\Delta\omega \equiv \omega_{0,\text{WW}} - \omega_0.$$

Die Frequenzverschiebung ist in der Regel klein im Vergleich zur Eigenfrequenz, es gilt $\Delta\omega/\omega_0 < 1/1000$. Mit dem negativen Gradienten der Wechselwirkungskraft

$$k_{\text{TS}}(d) \equiv -\frac{\partial}{\partial d} F_{\text{TS}}(d) = \frac{\partial^2}{\partial d^2} V_{\text{TS}}(d)$$

ergibt sie sich zu [32]

$$\Delta\omega(\bar{d}) = \omega_0 \cdot \frac{\langle k_{\text{TS}}(\bar{d}) \rangle}{2k}.$$

Dabei ist

$$\langle k_{\text{TS}}(\bar{d}) \rangle = \frac{2}{\pi A^2} \int_{-A}^A dq' k_{\text{TS}}(\bar{d} + q') \sqrt{A^2 - q'^2}$$

ein (mit einem Halbkreis) gewichteter Mittelwert des negativen Kraftgradienten k_{TS} .

Bei der Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie wird der Cantilever über eine Rückkoppelschleife [30] bei seiner momentanen Eigenfrequenz angeregt. Die Rückkoppelschleife gibt die Resonanzbedingung über die Phasenbeziehung von Cantilever- und Anregungsschwingung vor und regelt die Schwingungsamplitude A auf einen konstanten Wert. Die Frequenzverschiebung wird mittels einer Phasenregelschleife gemessen.

Als Funktion des Spitzen-Probenabstandes $d = \bar{d} + q'$ verhält sich die Wechselwirkungskraft F_{TS} zwischen Spitze und Probe im Allgemeinen hysteretisch; der Verlauf der Kraft bei Annäherung der Spitze an die Probe $F_{\text{TS}}^\downarrow(q')$ unterscheidet sich vom Verlauf der Kraft bei Entfernung der Spitze von der Probe $F_{\text{TS}}^\uparrow(q')$. Bei jedem Schwingungszyklus des Cantilevers wird eine Kraft-Distanz-Hystereseschleife durchlaufen. Die dabei der Schwingungsenergie des Cantilevers entnommene Energie, die *Dissipation* ΔE_{TS} , ist eine weitere wichtige Messgröße des Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskops. Sie kann dargestellt werden als

$$\Delta E_{\text{TS}} = - \int_A^{-A} dq' F_{\text{TS}}^\downarrow(q') - \int_{-A}^A dq' F_{\text{TS}}^\uparrow(q').$$

Die Dissipation nimmt in der Regel positive Werte an. Die Messung der Dissipation lässt sich auf eine Messung der Schwingungsamplitude des Cantilevers und der Anregungsamplitude zurückführen. Unter Vorhandensein dissipativer Spitzen-Proben-Wechselwirkung habe sich der Cantilever bei seiner Eigenfrequenz $\omega_{0,\text{WW}}$ auf die Schwingungsamplitude A eingeschwungen, die Anregungsamplitude betrage A_{drive} . Dann gilt

$$\Delta E_{\text{drive}}(A, \omega_{0,\text{WW}}) = \Delta E_{\text{CL}}(A, \omega_{0,\text{WW}}) + \Delta E_{\text{TS}}.$$

Mit den Gleichungen 3.3 und 3.1 ergibt sich die Dissipation als Funktion von A und A_{drive} zu

$$\Delta E_{\text{TS}} = \pi k A \cdot \left(A_{\text{drive}} - \frac{A}{Q} \right).$$

In der vorliegenden Arbeit wurden Filmoberflächen von $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Doppellagen mittels Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie topografisch abgebildet (s. Abschnitt 6.5). Informationen aus der Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie unterstützten auch tunnelmikroskopische Untersuchungen der vorliegenden Arbeit. Besonders aufgrund der häufig extrem kleinen Tunnel-Leitwerte war es hilfreich, die Position der Spitze relativ zur Probe mittels Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie unabhängig von der Rastertunnelmikroskopie einschätzen zu können. Die Grobpositionierung der Spitze erfolgte immer aufgrund der Kraftwechselwirkung zwischen Spitze und Probe. Vielfach lieferten kraftmikroskopische Spitzeneigenschaften für die Rastertunnelspektroskopie wertvolle Hinweise über die jeweils vorliegende Spitzenkonfiguration.

3.2 Rastertunnelmikroskopie

Bei der Rastertunnelmikroskopie und -spektroskopie wird eine elektrisch leitfähige Spitze bis auf wenige Ångström einer elektrisch leitfähigen Probe angenähert und der Tunnelstrom I_t in Abhängigkeit von der Spannung U_S an der Probe gegenüber der Spitze gemessen.

Es soll zunächst das thermodynamische Gleichgewicht des aus Spitze und Probe bestehenden Systems anhand von Darstellungen der elektronischen Zustandsdichten von Spitze und Probe D_T und D_S als Funktion der Energie E der Elektronen (s. Abb. 3.5) betrachtet werden. Hierzu sei der Spitzen-Probenabstand so groß, dass kein Tunneln von Elektronen zwischen Spitze und Probe stattfindet. Die Temperatur betrage 0 K. Das Vakuumniveau E_{vak} ist die Energie eines bezüglich Spitze und Probe ruhenden Elektrons, das sich in großer Entfernung³ von der Spitze und der Probe befindet [33]. Die Austrittsarbeit W_T der Spitze (W_S der Probe) ist die Differenz zwischen dem Vakuumniveau und dem chemischen Potential μ_T der Spitze (μ_S der Probe). Sind Spitze und Probe jeweils ungeladen, so ist das Vakuumniveau unabhängig vom Ort (s. Abb. 3.5a). Für $W_T > W_S$ verringert sich die Gesamtenergie des Systems beim Übergang von Elektronen der Probe auf die Spitze. Sobald eine elektrisch leitfähige Verbindung zwischen Spitze und Probe hergestellt wird, kommt es daher zum Ladungstransfer zwischen Spitze und Probe. Die Ladungsneutralität beider Körper wird dabei aufgehoben und ein elektrisches Feld, das Antidiffusionsfeld E_a , bildet sich aus. Das Antidiffusionsfeld wirkt der Übertragung von Elektronen der Probe auf die Spitze entgegen. Im Gleichgewichtszustand (Abb. 3.5b) hat es einen Wert erreicht, bei dem eine Über-

³ Der Abstand des Elektrons zur Spitze und zur Probe sei dabei insbesondere so groß, dass die elektrostatische Kraftwechselwirkung zwischen dem Elektron und seinen Bildladungen in der Spitze und der Probe vernachlässigbar klein ist.

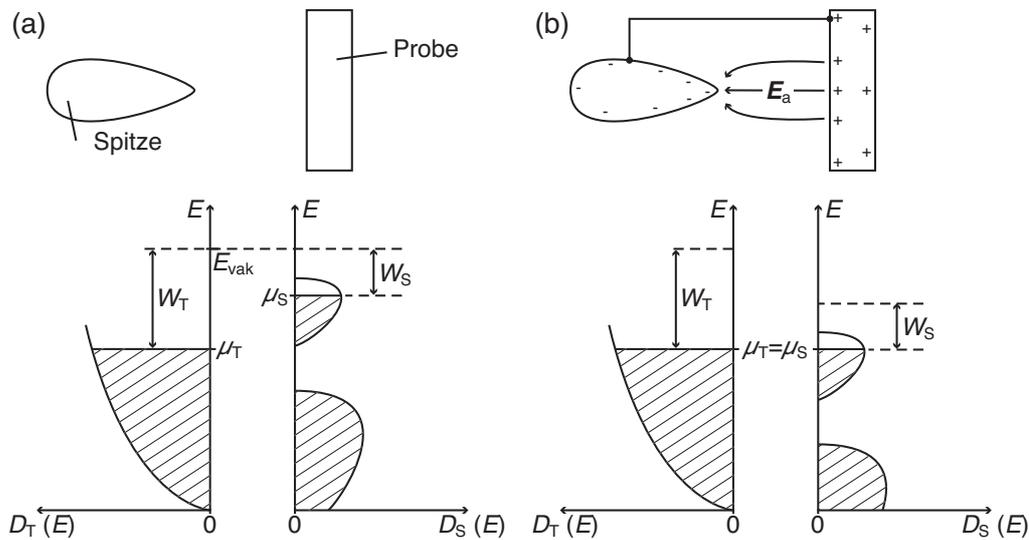


Abbildung 3.5: Darstellung des thermodynamischen Gleichgewichts von Spitze und Probe bei einer Temperatur von 0 K. Skizziert sind jeweils die Anordnung von Spitze und Probe mit deren Oberflächenladungen sowie die elektronischen Zustandsdichten von Spitze und Probe D_T und D_S als Funktion der Elektronenenergie E . **(a)** Im Ausgangszustand seien die Spitze und die Probe jeweils ungeladen. Das Vakuumniveau E_{vak} ist ortsunabhängig. **(b)** Eine elektrisch leitfähige Verbindung wurde zwischen Spitze und Probe hergestellt. Die chemischen Potentiale μ_T und μ_S von Spitze und Probe haben sich angeglichen.

tragung von Elektronen zwischen der Spitze und der Probe energieneutral wird; die chemischen Potentiale μ_T und μ_S von Spitze und Probe stimmen überein.

Wird eine äußere, positive Spannung U_S an die Probe gegenüber der Spitze angelegt (s. Abb. 3.6), so verringert sich das chemische Potential der Probe gegenüber dem der Spitze um eU_S . Die durch die Austrittsarbeiten W_T und W_S gegebene Barriere der potentiellen Energie verhindert jedoch im Falle eines großen Spitzen-Probenabstands eine Bewegung von Elektronen aus der Spitze in die Probe.

Der Tunneffekt besagt, dass Elektronen mit endlicher Wahrscheinlichkeit eine solche Barriere überwinden, sofern diese ausreichend dünn ist. Der Tunnelstrom ist ein Ladungstransport durch klassisch unüberwindbare Barrieren potentieller Energie aufgrund des Tunneffektes. Zwischen Spitze und Probe besteht ein Tunnelkontakt, wenn der Spitzen-Probenabstand nur wenige Ångström beträgt. Geht ein Elektron mit der Energie E_T aus einem Zustand der Spitze unter Energieerhaltung in einen Zustand der Probe über (oder umgekehrt), so spricht man von einem *elastischen Tunnelprozess*. Hier soll ausschließlich elastisches Tunneln be-

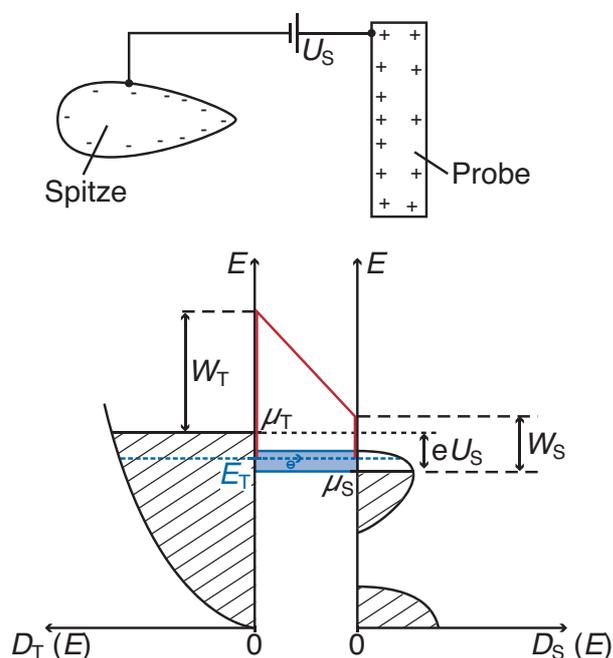


Abbildung 3.6: Skizze einer Anordnung von Spitze und Probe mit einer äußeren Spannung U_S an der Probe gegenüber der Spitze und der zugehörigen Zustandsdichten $D_T(E)$ und $D_S(E)$ von Spitze und Probe. Im blau hinterlegten Energiebereich stehen besetzte Elektronenzustände der Spitze unbesetzten Elektronenzuständen der Probe gegenüber. Ein Elektron in einem Zustand der Spitze mit der Energie E_T trifft auf die rot hervorgehobene Barriere potentieller Energie. Beträgt der Spitzen-Probenabstand nur wenige Ångström, so kann das Elektron die Barriere durchtunneln und in einen Zustand der Probe übergehen.

trachtet werden. Im blau schraffierten Energiebereich in Abb. 3.6 stehen besetzte Elektronenzustände der Spitze unbesetzten Elektronenzuständen der Probe gegenüber. Ein Elektron in einem Zustand der Spitze mit der Energie E_T trifft auf die rot hervorgehobene Barriere der potentiellen Energie⁴. Beträgt der Spitzen-Probenabstand nur wenige Ångström, so tunnelt das Elektron mit endlicher Wahrscheinlichkeit in einen gleichenergetischen Zustand der Probe.

Das Tunneln quantenmechanischer Teilchen durch Barrieren potentieller Energie, deren Höhe größer ist als die Energie der Elektronen, gründet darin, dass die Teilchen innerhalb einer Barriere der potentiellen Energie endlicher Höhe von Null verschiedene Aufenthaltswahrscheinlichkeiten besitzen. Die Tunneltheorie von

⁴ Die Darstellung der Barriere als Trapez ist eine Vereinfachung gegenüber den realen Verhältnissen (vgl. Anhang A).

Bardeen [34, 35] beschreibt den Tunnelprozess als einen Übergang eines Elektrons aus einem stationären Zustand $\psi_T^{(n)}(\mathbf{r})$ der Spitze in einen stationären Zustand $\psi_S^{(p)}(\mathbf{r})$ der Probe. Die Wahrscheinlichkeit eines solchen Übergangs wird als Funktion der Zustände $\psi_T^{(n)}(\mathbf{r})$ und $\psi_S^{(p)}(\mathbf{r})$ und deren Energien ausgedrückt. Es besteht endliche Wahrscheinlichkeit für den Tunnelprozess, sofern $\psi_T^{(n)}(\mathbf{r})$ und $\psi_S^{(p)}(\mathbf{r})$ im Ortsraum überlappen, es also Orte innerhalb der Tunnelbarriere gibt, an denen sowohl ein Elektron im Zustand $\psi_T^{(n)}(\mathbf{r})$ als auch ein Elektron im Zustand $\psi_S^{(p)}(\mathbf{r})$ jeweils endliche Aufenthaltswahrscheinlichkeiten besitzen. In der Theorie von Bardeen werden Elektron-Elektron-Wechselwirkungen vernachlässigt. Mit dem Operator \hat{T} der kinetischen Energie und dem Operator \hat{V} der potentiellen Energie des Elektrons sei

$$\hat{H} = \hat{T} + \hat{V} \quad (3.4)$$

der Einelektron-Hamiltonoperator des aus Spitze und Probe bestehenden Gesamtsystems. In Abb. 3.7a ist ein möglicher Verlauf der potentiellen Energie $V(z)$ skizziert, wobei die Elektronensysteme von Spitze und Probe jeweils als freie Elektronengase beschrieben werden.

Tunnelwahrscheinlichkeiten lassen sich näherungsweise angeben als Übergangswahrscheinlichkeiten von Elektronen aus Eigenzuständen $|\psi_T^{(n)}\rangle$ in Eigenzustände $|\psi_S^{(p)}\rangle$ von Hamiltonoperatoren

$$\hat{H}_T = \hat{T} + \hat{V}_T \text{ und } \hat{H}_S = \hat{T} + \hat{V}_S, \quad (3.5)$$

die für die Spitze und die Probe als getrennte Systeme formuliert werden. Hierzu sei ∂S der glatte Rand eines zusammenhängenden Raumbereiches S , der das Probenvolumen und einen an die Probe angrenzenden Teil der Barrierenregion umfasst. Die Fläche ∂S verlaufe also innerhalb der Barrierenregion. Der Operator \hat{V}_T der potentiellen Energie wird so gewählt, dass der Ortsverlauf $V_T(\mathbf{r})$ der potentiellen Energie im Raumbereich der Spitze und in dem an die Spitze angrenzenden Teil der Barrierenregion bis zur Fläche ∂S dem Ortsverlauf $V(\mathbf{r})$ der potentiellen Energie des Gesamt-Hamiltonoperators \hat{H} entspricht, $V_T(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r})$, und jenseits von ∂S ein glattes Abfallen der Wellenfunktionen $\psi_T^{(n)}(\mathbf{r})$ gegen Null sichergestellt ist [34] (s. Abb. 3.7b). Analog wird \hat{V}_S so gewählt, dass $V_S(\mathbf{r}) = V(\mathbf{r})$ im Raumbereich S gilt und außerhalb dieses Raumbereiches ein glattes Abfallen der Wellenfunktionen $\psi_S^{(p)}(\mathbf{r})$ gegen Null sichergestellt ist (s. Abb. 3.7c).

Für die Spitze und die Probe gelten die stationären Schrödingergleichungen

$$\hat{H}_T|\psi_T^{(n)}\rangle = E_T^{(n)}|\psi_T^{(n)}\rangle \text{ und } \hat{H}_S|\psi_S^{(p)}\rangle = E_S^{(p)}|\psi_S^{(p)}\rangle. \quad (3.6)$$

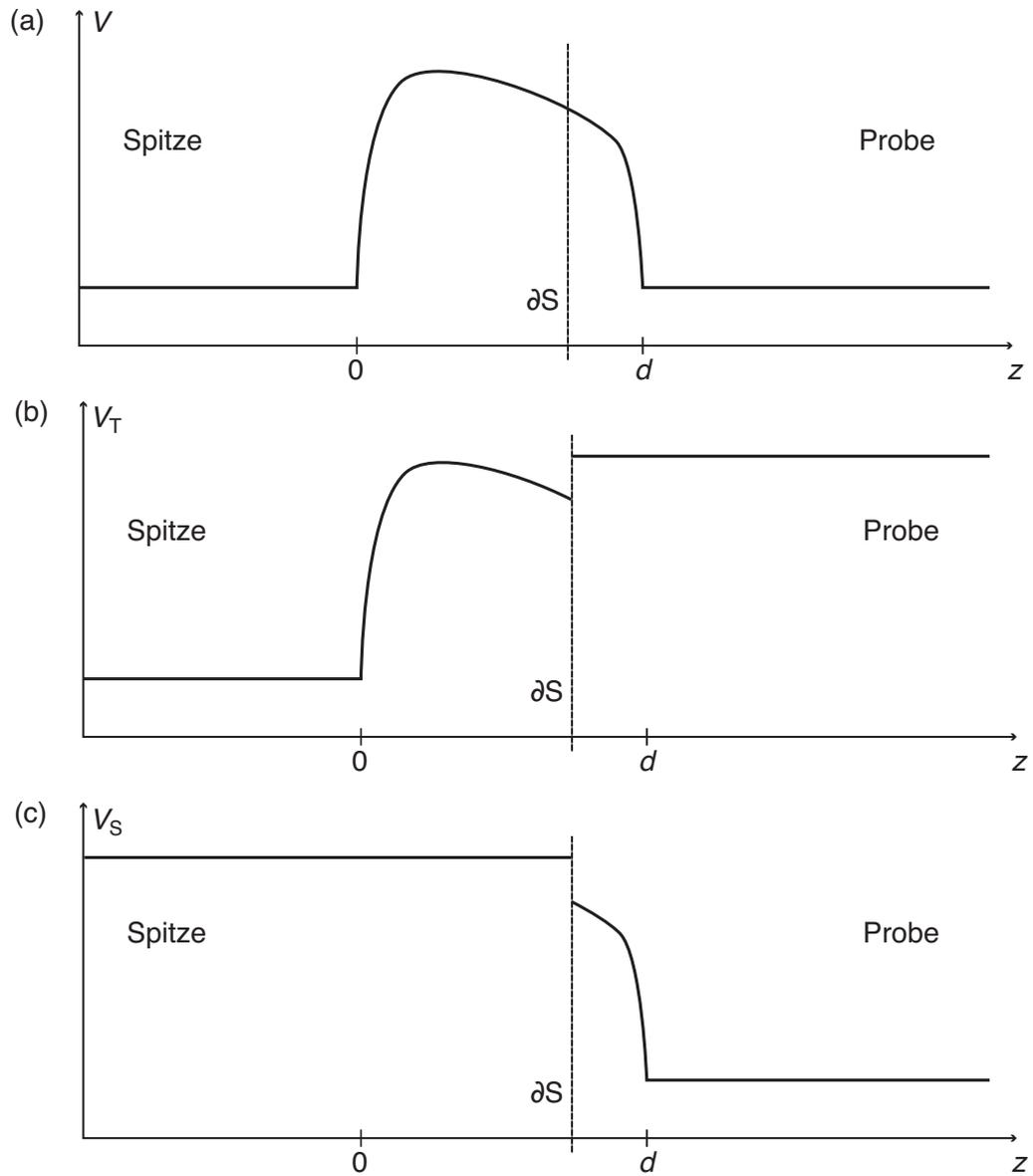


Abbildung 3.7: Skizze des Verlaufs der potentiellen Energie eines Elektrons als Funktion der Ortskoordinate z für die vollständige Anordnung von Spitze und Probe und eines sie trennenden Vakuumsplatts (a) sowie für die Spitze (b) und die Probe (c) in separater Betrachtung nach Bardeen. Die Spitze erfüllt den negativen Halbraum bis $z = 0$, die Probe den positiven Halbraum für $z \geq d$. Die Trennfläche ∂S verläuft innerhalb der Vakuumregion $0 < z < d$.

Für den Zustand $|\psi\rangle$ gelte $|\psi(t=0)\rangle = |\psi_T^{(n)}\rangle$, zum Zeitpunkt $t=0$ befinde sich ein Elektron also im Spitzenzustand $|\psi_T^{(n)}\rangle$ mit $\hat{H}_T|\psi_T^{(n)}\rangle = E_T^{(n)}|\psi_T^{(n)}\rangle$. Die Zeitentwicklung des Zustandes erfolgt gemäß der Schrödingergleichung

$$i\hbar \cdot \partial/\partial t |\psi\rangle = \hat{H} |\psi\rangle \quad (3.7)$$

mit $i^2 = -1$ und $\hbar = h/(2\pi)$, wobei h das Planck'sche Wirkungsquantum bezeichnet. Es unterscheide sich die Zeitentwicklung nach Gleichung 3.7 nur wenig von der Zeitentwicklung nach der Schrödingergleichung $i\hbar \cdot \partial/\partial t |\psi\rangle = \hat{H}_T |\psi\rangle$, so dass sich für $|\psi(t)\rangle$ der Ansatz

$$|\psi(t)\rangle = e^{-iE_T^{(n)}t/\hbar} |\psi_T^{(n)}\rangle + \sum_k a_k(t) |\psi_S^{(k)}\rangle \quad (3.8)$$

mit kleinen Koeffizienten $a_k(t)$, $a_k(0) = 0$ für alle k , eignet. Unter der Annahme *nahezu orthogonaler* Eigenzustände [35] von \hat{H}_T und \hat{H}_S gilt für die Übergangswahrscheinlichkeit $|\langle \psi_S^{(p)} | \psi(t) \rangle|^2$ in den Probenzustand $|\psi_S^{(p)}\rangle$ nach Gleichung 3.8 der Zusammenhang

$$|\langle \psi_S^{(p)} | \psi(t) \rangle|^2 \approx |a_p(t)|^2.$$

Die Koeffizienten $a_k(t)$ lassen sich durch Einsetzen des Ansatzes 3.8 in die Schrödingergleichung 3.7 näherungsweise bestimmen. Für die Übergangsrate $\Gamma_{n \rightarrow p} \equiv \partial/\partial t |a_p(t)|^2$ findet man [35, 36]

$$\Gamma_{n \rightarrow p} \approx \frac{2\pi}{\hbar} \cdot \delta(E_S^{(p)} - E_T^{(n)}) \cdot |\mathcal{M}_{pn}|^2. \quad (3.9)$$

Darin ist δ die Dirac'sche Deltafunktion und \mathcal{M}_{pn} das *Tunnelmatrix-Element*, $\mathcal{M}_{pn} \equiv \langle \psi_S^{(p)} | \hat{H} - \hat{H}_T | \psi_T^{(n)} \rangle$. Es lässt sich näherungsweise als Oberflächenintegral über ∂S [34] angeben zu

$$\mathcal{M}_{pn} \approx -\frac{\hbar^2}{2m} \int_{(\partial S)} d\mathbf{S} \left(\overline{\psi_T^{(n)}(\mathbf{r})} \nabla \psi_S^{(p)}(\mathbf{r}) - \psi_S^{(p)}(\mathbf{r}) \nabla \overline{\psi_T^{(n)}(\mathbf{r})} \right). \quad (3.10)$$

Hier bezeichnet \bar{c} die zu c konjugierte komplexe Zahl, ∇ den Nabla-Operator und $d\mathbf{S} = dS \cdot \mathbf{S}_0$, mit dem Flächenelement dS sowie dem bezüglich des Raumbereiches S nach außen orientierten Flächennormalen-Einheitsvektor \mathbf{S}_0 . Damit hängt die Übergangsrate $\Gamma_{n \rightarrow p}$ nur von den Wellenfunktionen des Ausgangs- und des Zielzustandes am Ort der Fläche ∂S und den Energien dieser Zustände ab.

Der Gesamt-Tunnelstrom I_t über einen Tunnelkontakt, über den die Spannung U_S an der Probe gegenüber der Spitze abfällt (s. Abb. 3.6), ergibt sich als Summe

der Übergangsraten für alle verfügbaren Ausgangszustände und alle verfügbaren Zielzustände, multipliziert mit der Elementarladung e . Unter der vereinfachenden Annahme, das Tunnelmatrix-Element hänge nur von der Spannung U_S und den Energien E_T und E_S der Ausgangs- und Zielzustände ab, ergibt sich mit $\varepsilon \equiv E_T - \mu_S$ für tiefe Temperaturen

$$I_t(U_S) = \frac{2\pi e}{\hbar} \int_0^{eU_S} d\varepsilon D_T(\mu_T - eU_S + \varepsilon) D_S(\mu_S + \varepsilon) \cdot |\mathcal{M}(U_S, \mu_S + \varepsilon)|^2. \quad (3.11)$$

Für Spannungen U_S , deren Betrag wenige Millivolt nicht übersteigt [37], kann das Tunnelmatrix-Element als nahezu konstant betrachtet werden [34], $\mathcal{M}(U_S, \mu_S + \varepsilon) = \text{const.} \equiv \mathcal{M}$. Unter der zusätzlichen Annahme konstanter Zustandsdichte der Spitze D_T — die sich in der Praxis häufig als zulässig erweist — ist der differentielle Tunnel-Leitwert $\partial I_t / \partial U_S$ proportional zur Zustandsdichte der Probe D_S ,

$$\frac{\partial I_t}{\partial U_S}(U_S) = \frac{2\pi e^2}{\hbar} |\mathcal{M}|^2 D_T \cdot D_S(\mu_S + eU_S). \quad (3.12)$$

Im Falle der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostrukturen ist ein Vergleich gemessener Zustandsdichten mit in DFT berechneten besonders im Energiebereich von 0,5 eV bis 2 eV oberhalb von μ_S aussagekräftig. Die Voraussetzung kleiner Spannungen U_S für die Annahme eines nahezu konstanten Tunnelmatrix-Elementes ist im Spannungsbereich von $U_S = 0,5 \text{ V}$ bis $U_S = 2 \text{ V}$ nicht gegeben; der Verlauf des differentiellen Leitwertes $\partial I_t / \partial U_S(U_S)$ ist hier im Allgemeinen deutlich von der Abhängigkeit der Übergangswahrscheinlichkeit von der Spannung U_S und der Zustandsenergie geprägt. Wie in Anhang A für realistisch geformte Tunnelbarrieren qualitativ gezeigt, ergibt sich aufgrund dieser Abhängigkeit bei jeweils konstanten Zustandsdichten D_T und D_S von Spitze und Probe ein annähernd exponentieller Anstieg des Tunnelstroms $I_t(U_S)$ und damit des differentiellen Leitwertes $\partial I_t / \partial U_S(U_S)$ mit zunehmender Spannung U_S . Dieser Anstieg erschwert im Bereich großer Spannungen U_S eine direkte Interpretation der Spannungsabhängigkeit des differentiellen Tunnel-Leitwertes im Hinblick auf die spektrale Proben-Zustandsdichte. Es zeigte sich [38], dass der auf den totalen Leitwert $I_t / U_S(U_S)$ normierte differentielle Leitwert (*normalized differential conductance*, NDC)

$$\text{NDC}(U_S) \equiv \frac{\partial I_t / \partial U_S}{I_t / U_S + \zeta}(U_S) \quad (3.13)$$

nur wenig von der Spannungs- und Energieabhängigkeit der Tunnelwahrscheinlichkeiten beeinflusst ist und Aussagekraft über die spektrale Zustandsdichte der Probe $D_S(\mu_S + eU_S)$ besitzt. Charakteristische Positionen $U_{S,c}$ lokaler Maxima von $\text{NDC}(U_S)$ entsprechen charakteristischen Positionen $E_c = \mu_S + eU_{S,c}$ lokaler Maxima in $D_S(E)$. Der empirisch eingeführte Parameter ζ [39] verhindert

eine Divergenz des normierten differentiellen Leitwerts in Spannungsbereichen geringen Tunnel-Leitwerts.

In der vorliegenden Arbeit werden Tunnelspektren

$$\text{NDC}(x = \text{const.}, y = \text{const.}, z = \text{const.}, U_S)$$

mit der Zustandsdichte $D_S(\mu_S + eU_S)$ des Elektronensystems an der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche verglichen. Der NDC wird dabei in willkürlichen Einheiten angegeben, da mit den absoluten Werten des NDC keine physikalische Bedeutung verbunden wird.

4 Das verwendete Mikroskopie-System

Vakuumsystem und Kühlung

Das für die Untersuchungen der vorliegenden Arbeit eingesetzte Rastersondenmikroskop [17] arbeitet im UHV und bei tiefen Temperaturen. Im Vakuumsystem herrscht bei Raumtemperatur ein Druck der Größenordnung 10^{-10} mbar. Als Kühlmittel dient flüssiges ^4He , die Proben­temperatur beträgt 4,7 K. Abbildung 4.1 zeigt die Vakuumanlage und das Kühlsystem im Querschnitt. Die Anlage steht zum Schutz vor Vibrationen auf einem separaten Betonfundament mit einer Masse von 30 t und ist von einer schalldämmenden Kammer umgeben. Der Mikroskopkopf und die Probe sind an einem Zylinder aus Sauerstoff-freiem Kupfer montiert, dessen Unterseite in direktem Kontakt zum flüssigen Helium in einem superisolierten Badkryostaten steht. Eine Besonderheit dieser Konstruktion ist der geringe Wärmewiderstand von weniger als 0,5 K/W zwischen dem Heliumbad und der Stelle des Kupferzylinders, an der Mikroskop und Probe angebracht sind. Der geringe Wärmewiderstand ermöglicht eine hohe Stabilität der Temperatur von Mikroskopkopf und Probe und damit eine außergewöhnlich niedrige Driftgeschwindigkeit von höchstens 7 fm/s [17]. Ein angedrehter Kragen am Kupferzylinder ist zwischen den Schneidkanten eines CF-Vakuumverbinders am Ende eines UHV-Membranbalgs an der Unterseite der Vakuumkammer eingepresst, wodurch sich ein gasdichter Abschluss des Balgs ergibt. Der Kupferzylinder ist an einem im Balg verlaufenden Gestänge aufgehängt. Das Gestänge ist aus vier parallel verlaufenden Stützrohren aufgebaut und mit Hitzeschilden versehen. Es durchläuft die Vakuumkammer und setzt sich oberhalb der Vakuumkammer fort, wo es von einem weiteren UHV-Membranbalg umschlossen ist. Es mündet in einem CF-Blindflansch, der die Oberseite des oberen Membranbalgs abschließt. An diesem Flansch ist das aus Kupferzylinder und Gestänge gebildete Pendel aufgehängt. Über diese Aufhängung kann das Pendel unter Kompression des unteren und Expansion des oberen Balgs vertikal nach oben bewegt werden, so dass die Oberseite des Kupferzylinders mit Mikroskopkopf und Probe in der Vakuumkammer zum Vorschein kommt. Ein Austausch der Probe und eine grobe Positionierung der Spitze gegenüber der Probe können dann unter Sichtkontrolle vorgenommen werden. Die elektrischen Zuleitungen zum Mikroskopkopf gelan-

gen über D-sub-UHV-Stromdurchführungen im CF-Blindflansch an der Oberseite des oberen UHV-Membranbalgs in die Vakuumkammer. Fast alle Leitungen sind in den Rohren des Pendelgestänges zum Kupferzylinder geführt, ein kleiner Teil der Leitungen verläuft außerhalb der Rohre entlang dem Gestänge. Abbildung 4.2 zeigt eine fotografische Außenansicht des Vakuumsystems und des Dewar-Gefäßes.

qPlus-Sensor

Der Cantilever des Mikroskops basiert auf einer Quarz-Stimmgabel. Eine Zinke der Stimmgabel ist an einer großen Masse fixiert, die freie Zinke wird als Cantilever verwendet (qPlus-Sensor) [19, 20]. Abbildung 4.3 zeigt einen qPlus-Sensor nach Ref. [20], wie er in der vorliegenden Arbeit verwendet wurde. Die Quarz-Stimmgabel ist vom Typ E158 (DS26) [40]. Die Verklebung von Stimmgabelzinke und Aluminiumoxid-Substrat wurde mit Zweikomponenten-Epoxidharzklebstoff Loctite Hysol 1C (EPK-1C) [41] realisiert. Die Federkonstante der als Cantilever verwendeten Zinke beträgt 1800 N/m, die Resonanzfrequenz des Cantilevers ohne Spitze 32768 Hz [20]. Die im Vergleich zu typischen Silizium-Cantilevern großen Abmessungen der Stimmgabel erlauben die Anbringung von Spitzen aus beliebigen Materialien durch Verklebung von Hand. Alle Messungen für die vorliegende Arbeit wurden mit Iridium-Spitzen durchgeführt. Als Spitzen geeignete Iridium-Splitter wurden durch Zerquetschen eines polykristallinen Iridium-Drahtes mittels eines Seitenschneiders hergestellt. Zur Fixierung der Spitze wurde der elektrisch leitfähige Epoxidharz-Zweikomponentenklebstoff EPO-TEK E4110 [42] verwendet. Die Massenbeladung des Cantilevers durch die Spitze und den Klebstoff führt zu einer Absenkung seiner Resonanzfrequenz auf Werte zwischen 15 und 20 kHz [20]. Die Güte eines qPlus-Sensors beträgt im UHV und bei 4,7 K etwa 10 000.

Kleinamplituden-Technik Der qPlus-Sensor weist im Vergleich zu konventionellen Silizium-Cantilevern eine um zwei Größenordnungen größere Federkonstante auf. Die bei Interaktion der Spitze mit der Probe zur Aufrechterhaltung einer stabilen Cantileverschwingung notwendigen rückstellenden Federkräfte [43] und Schwingungsenergien [30] werden daher beim qPlus-Sensor bereits bei kleinen Cantilever-Schwingungsamplituden A in der Größenordnung von 100 pm erreicht. Konventionelle Silizium-Cantilever müssen hingegen mit Amplituden in der Größenordnung von 10 nm betrieben werden. Es wurde gezeigt, dass die großen Federkonstanten Quarzstimmgabel-basierter Cantilever und die durch sie ermöglichten kleinen Schwingungsamplituden den für die Frequenzmodulations-Kraftmikroskopie optimalen Parametern nahe kommen [43]. Der qPlus-Sensor

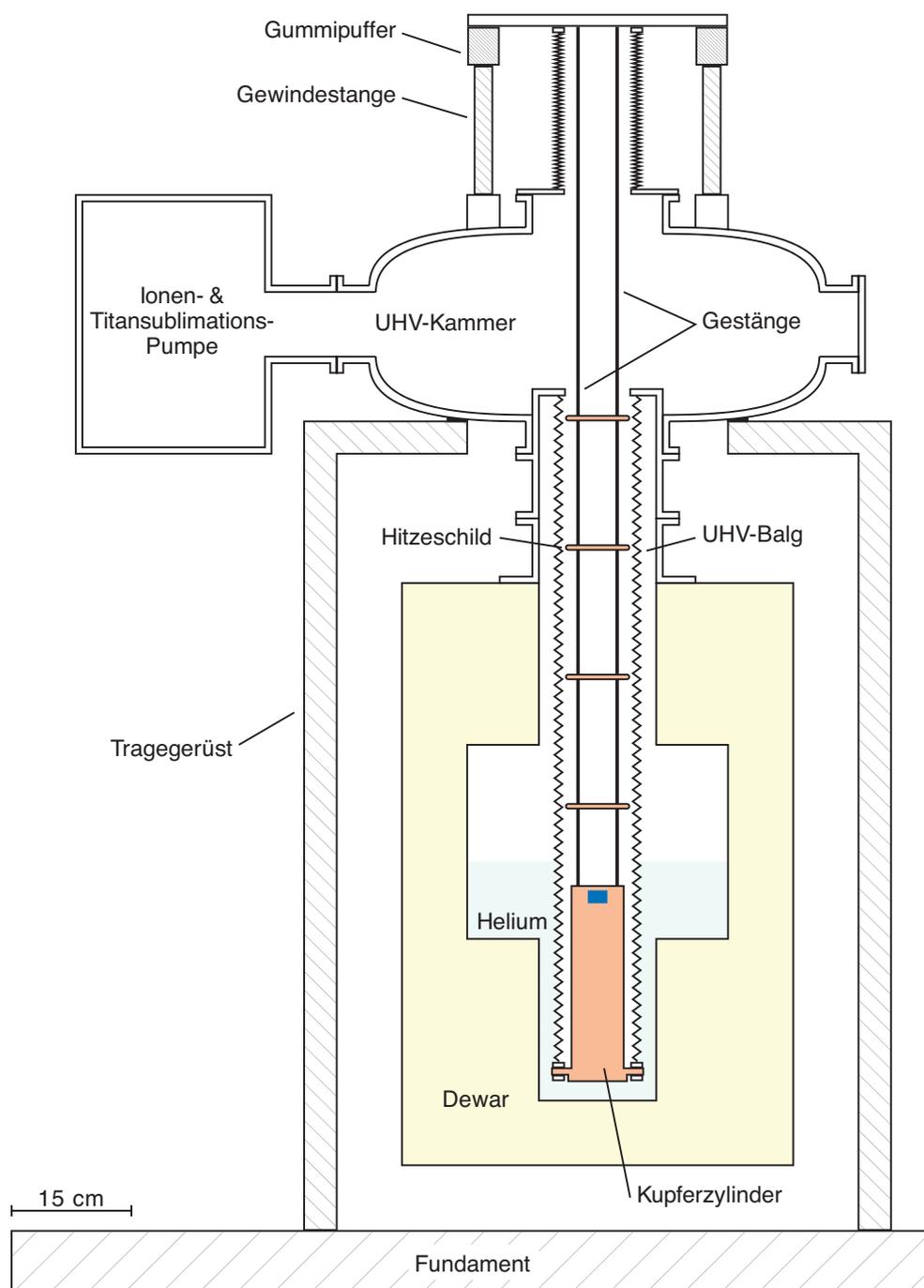


Abbildung 4.1: Skizze von Vakuumanlage und Kühlsystem des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops im Querschnitt. Mikroskopkopf und Probe befinden sich an der mittels des blauen Rechtecks markierten Stelle des Kupferzylinders.



Abbildung 4.2: Fotografische Außenansicht von Vakuumsystem und Dewar-Gefäß des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops. In der Mitte oben ist die Vakuumkammer mit den UHV-Bälgen, am linken Bildrand ist das Dewar-Gefäß zu sehen. Das Dewar-Gefäß wird zum Betrieb unterhalb der Vakuumkammer angebracht, so dass der untere UHV-Balg in das flüssige Helium abgesenkt werden kann (Fotografie von K. Wiedenmann).

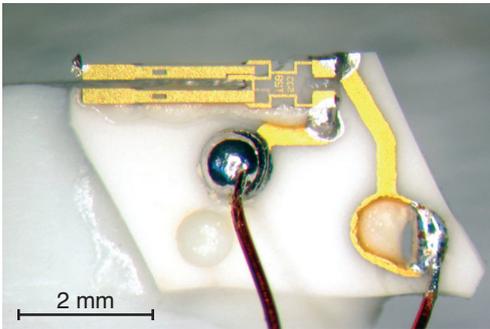


Abbildung 4.3: Fotografische Ansicht eines qPlus-Sensors mit Iridiumspitze. Der Sensor basiert auf einer Quarz-Stimmgabel, von der eine Zinke an einem Aluminiumoxid-Substrat fixiert ist. Die im Bild oben liegende freie Zinke ist der Cantilever. Die Spitze ist mit dem freien Ende des Cantilevers verklebt.

ermöglichte erstmals subatomare Ortsauflösung mittels Frequenzmodulations-Kraftmikroskopie [44].

Simultane Tunnel- und Kraftmikroskopie Der qPlus-Sensor ermöglicht simultane Tunnel- und Frequenzmodulations-Kraftmikroskopie [18, 45–48], da bei kleinen Cantilever-Schwingungsamplituden die Variationsbreite des Tunnelstrombetrags während eines Cantilever-Schwingungszyklus auf ein experimentell handhabbares Maß begrenzt ist. Für eine nach $q'(t) = A \cdot \cos(\omega t)$ um die Ruhelage \bar{d} schwingende Spitze gilt mit einer Abklingkonstanten $\kappa_t \approx 1/(1 \text{ \AA})$ (vgl. Anhang A) und einer Konstanten I_0 für den Momentanwert des Tunnelstroms der Zusammenhang

$$I_t(\bar{d}, t) = I_0 e^{-2\kappa_t(\bar{d} + q'(t))}. \quad (4.1)$$

Ist die Grenzfrequenz des für die Tunnelstromdetektion verwendeten Transimpedanzverstärkers klein gegenüber der Schwingungsfrequenz des Cantilevers, so ist das Ausgangssignal des Transimpedanzverstärkers proportional zum zeitlichen Mittelwert des Tunnelstroms nach Gleichung 4.1. Mit der modifizierten Besselfunktion nullter Ordnung [49] I_0 beträgt der zeitliche Mittelwert über eine Schwingungsdauer [30]

$$\langle I_t(\bar{d}, A) \rangle = I_0 \cdot e^{-2\kappa_t \bar{d}} \cdot I_0(2\kappa_t A).$$

Auslenkungsmessung Die Messung der Auslenkung q' des Cantilevers basiert beim qPlus-Sensor auf dem piezoelektrischen Effekt. Abbildung 4.4 zeigt eine schematische Aufsicht auf die Stirnflächen der Stimmgabelzinken sowie die Verschaltung der beiden Elektrodensysteme der Stimmgabel, dargestellt in rot und blau, mit einem Transimpedanzverstärker. Die internen elektrischen Verbindungen der Stimmgabel zwischen den Elektroden sind in grün eingezeichnet. Der Transimpedanzverstärker hält die beiden Elektrodensysteme auf gleichem elektrischen Potential. Wird eine Stimmgabelzinke durch Verbiegung um q' ausgelenkt,

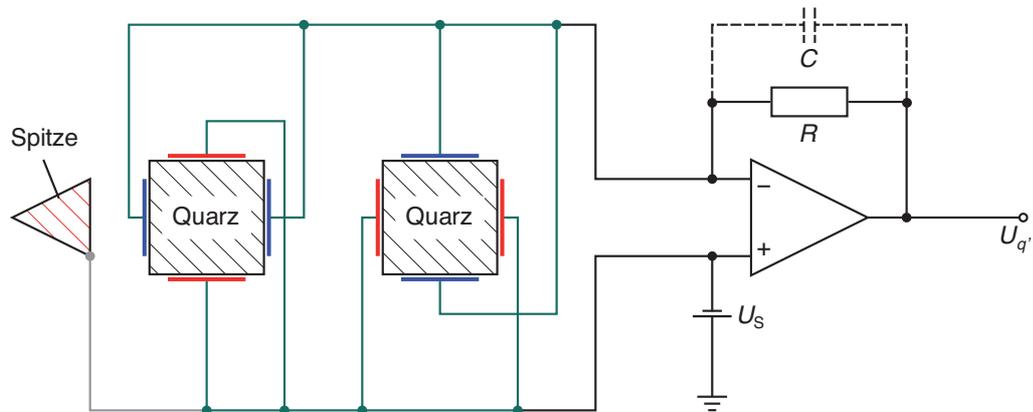


Abbildung 4.4: Schematische Aufsicht auf die Stirnflächen der Stimmgabelzinken und Schaltplan des zur Auslenkungsdetektion verwendeten Transimpedanzverstärkers. Die Goldelektroden der Stimmgabel sind zu zwei Elektrodensystemen verschaltet, von denen eines in rot und eines in blau eingezeichnet ist. Das Rückkoppelnetzwerk des Transimpedanzverstärkers besteht aus dem Widerstand R und der parasitären Kapazität C . An den Elektrodensystemen und der Spitze liegt gegenüber der Probe die Spannung $-U_s$ an.

so fließen auf die Elektrodensysteme jeweils entgegengesetzte Influenzladungen Q und $-Q$. Für den Stimmgabeltyp E158 gilt [20]

$$Q(q') = 2,8 \cdot 10^{-6} \frac{\text{C}}{\text{m}} \cdot q'.$$

Der Strom zur Aufladung des in Abb. 4.4 blau eingezeichneten Elektrodensystems fließt über das aus dem Widerstand R und der parasitären Kapazität C bestehende Rückkoppelnetzwerk und verursacht hier den Spannungsabfall $U_{q'}$. Für $q'(t) = \hat{q}' \cdot \sin(\omega t)$ gilt mit dem Scheinwiderstand Z des Rückkoppelnetzwerks für die Sensitivität $S_{q'}$ der Auslenkungsdetektion der Zusammenhang

$$S_{q'} \equiv \frac{\hat{U}_{q'}}{\hat{q}'} = 2,8 \cdot 10^{-6} \frac{\text{C}}{\text{m}} \cdot Z \cdot \omega. \quad (4.2)$$

Der Scheinwiderstand des Rückkoppelnetzwerks ist mit dem Rückkoppelwiderstand R , der parasitären Kapazität C und der Signalfrequenz ω gegeben zu

$$Z = \frac{1}{\sqrt{1/R^2 + \omega^2 C^2}}. \quad (4.3)$$

Die parasitäre Kapazität C des Rückkoppelnetzwerks beträgt in der Regel etwa 0,5 pF [29]. Mit $R = 10 \text{ M}\Omega$ und $C = 0,5 \text{ pF}$ ergibt sich für $\omega = 2\pi \cdot 27410 \text{ Hz}$ aus den Gleichungen 4.2 und 4.3 eine Sensitivität von $S_{q',\text{theo}} = 3,65 \cdot 10^6 \text{ V/m}$. Die experimentell über die Aufzeichnung eines Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie-Bildes der Kantenlänge 0 mit wechselnder Amplitude bestimmte [20] Sensitivität der Auslenkungsdetektion bei auf Heliumtemperatur eingekühltem Mikroskop mit $R = 10 \text{ M}\Omega$ und $\omega = 2\pi \cdot 27410 \text{ Hz}$ beträgt $S_{q',\text{exp}} = 3,74 \cdot 10^6 \text{ V/m}$ (s. Kapitel 5), in guter Übereinstimmung mit dem berechneten Wert.

Im Folgenden wird die parasitäre Kapazität des Rückkoppelnetzwerks als fest vorgegeben betrachtet. Unter der Annahme, das Johnson-Rauschen des Rückkoppelwiderstands R dominiere das Rauschen der Auslenkungsmessung, kann für eine gegebene Schwingungsfrequenz ω des Cantilevers ein optimaler Wert für R angegeben werden, für den das Signal-Rausch-Verhältnis (*signal-to-noise ratio*, SNR) der Auslenkungsmessung einen maximalen Wert annimmt. Als Johnson-Rauschen wird durch thermische Bewegung der Ladungsträger hervorgerufenen Rauschen bezeichnet. Der quadratische Mittelwert der durch thermische Ladungsträgerbewegung entstehenden Rausch-Spannung $U_{J,\text{rms}}$ zwischen den Anschlüssen eines Widerstands R bei Messung mit der Bandbreite B (angegeben in Hertz) beträgt

$$U_{J,\text{rms}} = \sqrt{4k_{\text{B}}TRB} \quad (4.4)$$

bei der Temperatur T und mit der Boltzmann-Konstanten k_{B} . Mit den Gleichungen 4.2 und 4.4 ergibt sich für das Signal-Rauschverhältnis der Auslenkungsmessung für die Cantilever-Amplitude \hat{q}' , die Temperatur T , den Rückkoppelwiderstand R und die Bandbreite B der Ausdruck

$$\text{SNR} = \frac{\left(\frac{1}{\sqrt{2}} \cdot S_{q'} \cdot \hat{q}'\right)^2}{4k_{\text{B}}TRB}.$$

Für festgehaltene Schwingungsfrequenz ω , Schwingungsamplitude \hat{q}' , Temperatur T und Bandbreite B gilt mit Gleichung 4.3 für das Signal-Rauschverhältnis

$$\text{SNR}(R) \propto \frac{1}{1/R + \omega^2 RC^2}. \quad (4.5)$$

Die Lage des Maximums dieses Ausdrucks ist der optimale Wert des Rückkoppelwiderstands R_{opt} . Es gilt

$$R_{\text{opt}} = \frac{1}{\omega C}. \quad (4.6)$$

Obige Rechnung mit der Annahme, das Johnson-Rauschen des Rückkoppelwiderstands R dominiere das Rauschen der Detektions-Ausgangsspannung $U_{q'}$, und

eine experimentelle Bestimmung des Signal-Rauschverhältnisses der qPlus-Auslenkungsdetektion für unterschiedliche Werte des Rückkoppelwiderstands R ergaben ein konsistentes Bild. Zur Messung des Signal-Rauschverhältnisses wurde die in Abb. 4.5 gezeigte Schaltung verwendet. Eine gekapselte Quarzstimmgabel Q_T des Typs XTAL002995 wird hier mittels des Piezoplättchens Q_A , das mit der Wechselspannung $U_A = \hat{U}_A \sin(2\pi f_{\text{res}} t)$ beaufschlagt ist, mit konstanter Amplitude bei seiner Resonanzfrequenz $f_{\text{res}} = 32764,880$ Hz angeregt. Der Transimpedanzverstärker ist mit einem Operationsverstärker des Typs Analog Devices AD823AN [50] realisiert. Als Rückkoppelwiderstände R werden jeweils SMD-Dickschichtwiderstände verwendet. Das Ausgangssignal $U_{q'}$ des Transimpedanzverstärkers wird mittels eines Spektrumanalysators Agilent 35670A [51] betrachtet. Abbildung 4.6 zeigt ein so erhaltenes Spektrum der leitwertbezogenen Leistungsdichte $S \cdot 1 \Omega$ des Detektions-Ausgangssignals für $R = 10 \text{ M}\Omega$. Ist im betrachteten Frequenzintervall $(f_{\text{min}}, f_{\text{min}} + B)$ die Nutzsignalleistung sehr viel größer als die Rauschleistung, und verschwindet die Nutzsignalleistung im angrenzenden Frequenzintervall $(f_{\text{min}} + B, f_{\text{min}} + 2B)$, so kann unter der Annahme frequenzunabhängiger Rauschleistungsdichte das Signal-Rauschverhältnis aus der leitwertbezogenen spektralen Leistungsdichte berechnet werden zu

$$\text{SNR} \approx \frac{\int_{f_{\text{min}}}^{f_{\text{min}}+B} df (S(f) \cdot 1 \Omega)}{\int_{f_{\text{min}}+B}^{f_{\text{min}}+2B} df (S(f) \cdot 1 \Omega)}. \quad (4.7)$$

Mit diesem Zusammenhang bestimmte Werte des Signal-Rauschverhältnisses in Abhängigkeit vom Rückkoppelwiderstand R sind in Abb. 4.7 eingetragen. Eine Kurvenanpassung nach Gleichung 4.5 resultiert in der durchgezogenen Linie in Abb. 4.7 und ergibt eine parasitäre Kapazität des Rückkoppelnetzwerks von $C = 0,6 \text{ pF}$ sowie einen optimalen Wert des Rückkoppelwiderstands von $R_{\text{opt}} = 8 \text{ M}\Omega$. Vormals wurden bezüglich des Signal-Rauschverhältnisses der qPlus-Detektion günstige Werte des Rückkoppelwiderstands empirisch bestimmt [52]. Dies führte in weitgehender Übereinstimmung zu den hier systematisch gewonnen Resultaten für Cantilever-Resonanzfrequenzen von etwa 20 kHz zu einem Wert von $R_{\text{opt,emp}} = 10 \text{ M}\Omega$ [17]. In der vorliegenden Arbeit wurde zur Messung der Auslenkung von Cantilevern mit einer Resonanzfrequenz von etwa 25 kHz stets ein Transimpedanzverstärker mit $R = 10 \text{ M}\Omega$ eingesetzt. Dieser Wert des Rückkoppelwiderstands liegt nahe am Optimum.

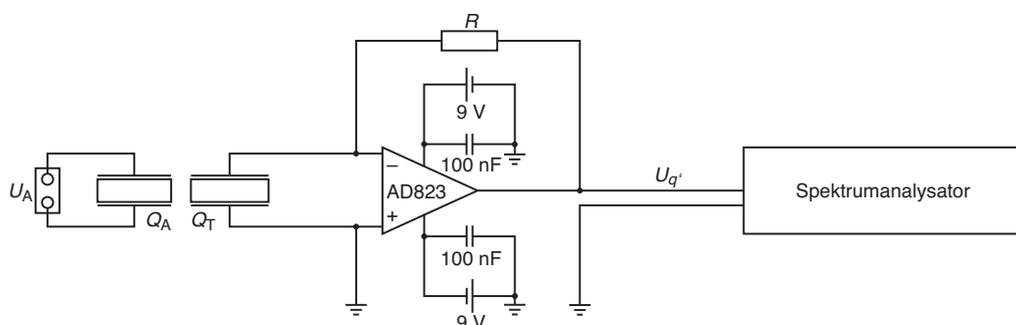


Abbildung 4.5: Schaltplan der Messanordnung zur Bestimmung des Signal-Rauschverhältnisses der qPlus-Auslenkungsdetektion.

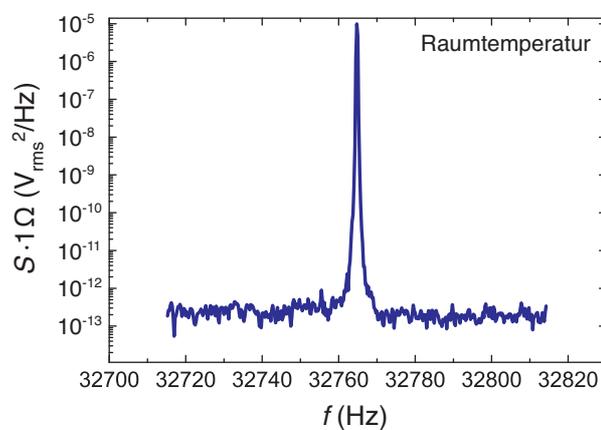


Abbildung 4.6: Spektrum der leitwertbezogenen Leistungsdichte $S \cdot 1 \Omega$ des Detektions-Ausgangssignals für $R = 10 \text{ M}\Omega$, wie es mittels der in Abb. 4.5 gezeigten Schaltung gemessen wurde. Der Spektrumanalysator arbeitete mit Wechselspannungs-Eingangskopplung und Hanning-Fenster. Aufgetragen ist ein Mittelwert von 10 Spektren, berechnet mittels der *RMS averaging*-Funktion des Agilent 35670A.

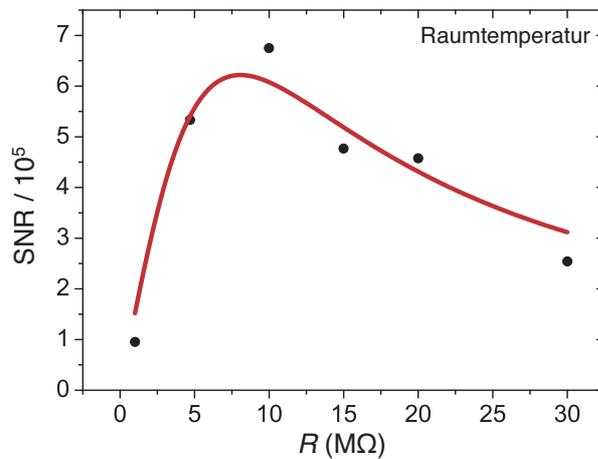


Abbildung 4.7: Auftragungen des experimentell ermittelten Signal-Rauschverhältnisses der Auslenkungsdetektion als Funktion des Rückkoppelwiderstands R bestimmt mit Gleichung 4.7 für $f_{\min} = 32750$ Hz und eine Bandbreite $B = 30$ Hz (Punkte) und Resultat einer Kurvenanpassung nach Gleichung 4.5 (durchgezogene Linie). Aus der Kurvenanpassung ergibt sich eine parasitäre Kapazität des Rückkoppelnetzwerks von $C = 0,6$ pF und damit ein optimaler Wert des Rückkoppelwiderstands von $R_{\text{opt}} = 8$ MΩ für $f = f_{\text{res}} = 32764,880$ Hz.

Messaufbau für Rastertunnelmikroskopie und Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie

Abbildung 4.8 zeigt einen vereinfachten Übersichtsplan des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops. Die Kernkomponenten sind der Mikroskopkopf mit Cantilever, Auslenkungsdetektion und Probe, die Tunnelstromdetektion, die Amplitudenregelungselektronik, die Phasenregelschleife (*phase-locked loop*, PLL) und die Steuerelektronik (Park Scientific Instruments Autoprobe VP2-Steuerelektronik [53]). Die Steuerelektronik erzeugt die Tunnelspannung U_S sowie die Spannungen U_x , U_y und U_z zur Ansteuerung des Scanners. Weiterhin erfasst sie die betrachteten Messgrößen, wie etwa den Tunnelstrom I_t und die Frequenzverschiebung $\Delta\omega$, zur Bilddarstellung und Datenspeicherung. Jeweils eine Messgröße kann als Regelgröße der z -Regelschleife verwendet werden. Der z -Regler ist Teil der Steuerelektronik.

Cantilever, Auslenkungsdetektion, Amplitudenregelungselektronik und Sensoranregungs-Piezoaktor bilden zusammen die Amplituden-Regelschleife, die als Blockschaltbild in Abb. 4.9 dargestellt ist. Die Ausgangsspannung $U_{q'}$ der Auslenkungsdetektion wird im Eingangsverstärker der Amplitudenregelungselektronik

nik um den Faktor G_e vorverstärkt. Die Spannung $G_e U_{q'}$ gelangt zur Phasenregelschleife, zur Effektivwertberechnung und zum Phasenschieber. Der Effektivwert $2^{-1/2} G_e \hat{U}_{q'}$ der verstärkten Detektions-Ausgangsspannung wird vom Amplituden-Sollwert subtrahiert. Die Differenz gelangt zu einem Proportionalverstärker. Dessen Ausgangsspannung U_{damping} wird mit dem Ausgangssignal des Phasenschiebers multipliziert. Das Produkt wird zum Ausgangsverstärker geleitet. Mit dessen Ausgangssignal, der Anregungsspannung U_{drive} , wird der Sensoranregungs-Piezoaktor beaufschlagt. Mittels des Phasenschiebers der Amplitudenregelungselektronik wird eine Phasenverschiebung der Cantileverschwingung gegenüber der Anregungsschwingung von $-\pi/2$ eingestellt. Aufgrund der so erreichten positiven Rückkopplung schwingt sich der Cantilever selbsterregend bei seiner Eigenfrequenz ein. Durch Einstellung der Amplitude der Anregungsspannung U_{drive} regelt die Amplitudenregelungselektronik die Schwingungsamplitude des Cantilevers auf einen konstanten Wert. Die Frequenzverschiebung $\Delta\omega$ des Cantilevers wird mittels einer Phasenregelschleife (Nanosurf easyPLL plus detector [54]) gemessen.

Mittels des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops waren vor Beginn der vorliegenden Arbeit sehr erfolgreiche Untersuchungen an Graphit durchgeführt worden [17]. Im Jahr 2004 lieferte die Anlage kraftmikroskopische Bilder mit der höchsten bis zum damaligen Zeitpunkt jemals mit einem Rastersondenmikroskop erreichten Ortsauflösung [18]. Die extrem geringe thermische Drift des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops sowie seine Möglichkeit simultaner Tunnel- und Kraftmikroskopie waren auch für die Untersuchungen der vorliegenden Arbeit sehr wichtige Voraussetzungen. Die Aufgabe der tunnelspektroskopischen Erforschung einer Oxidgrenzfläche brachte gegenüber den bislang mit der Anlage realisierten Experimenten auf Graphit zusätzliche Anforderungen. Die konstruktive Anpassung des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops an diese neuen experimentellen Anforderungen ist ein wichtiger Teil der vorliegenden Arbeit, dem das folgende Kapitel gewidmet ist.

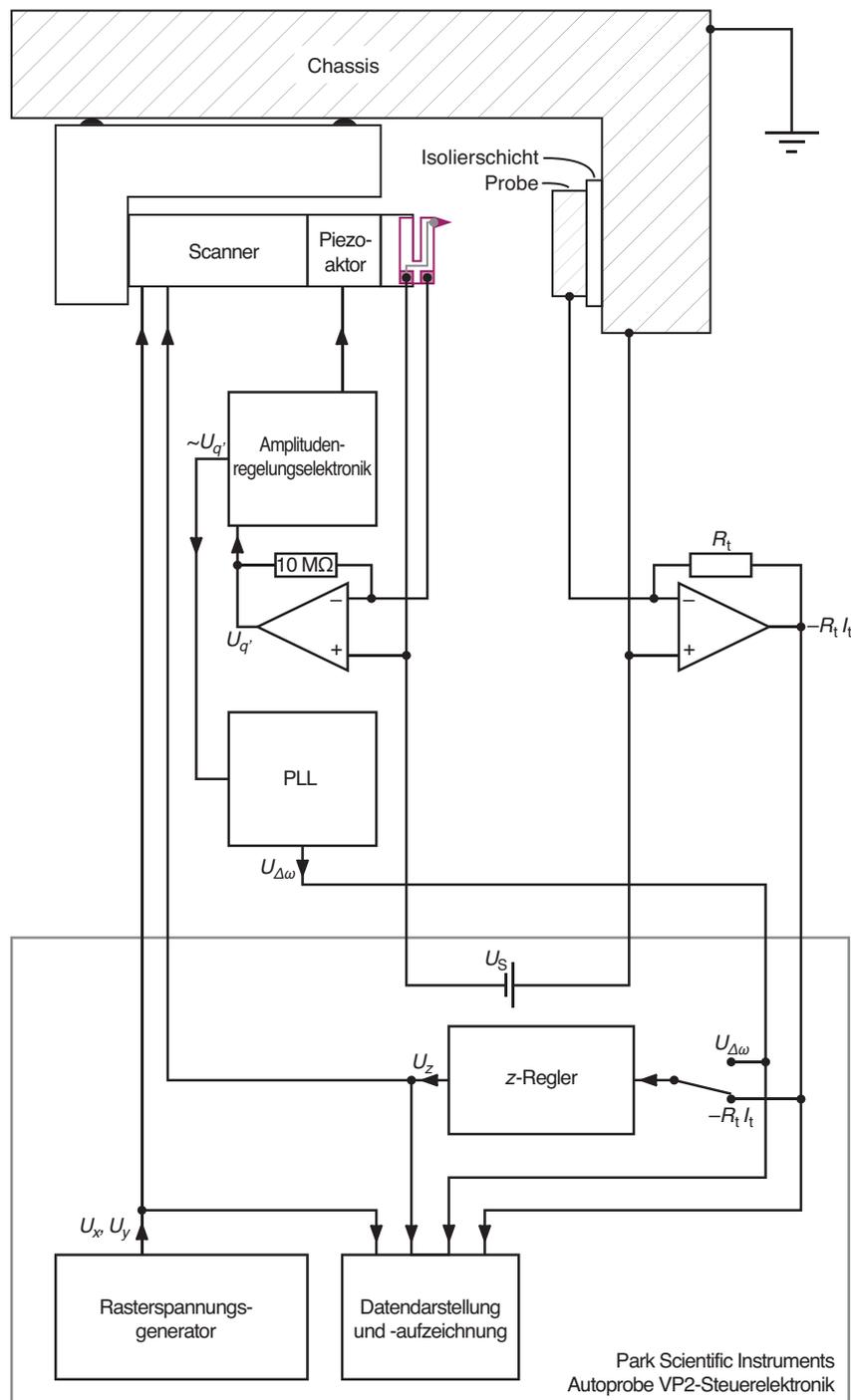


Abbildung 4.8: Vereinfachter Übersichtsplan des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops mit den elektronischen Kernkomponenten und einer schematischen Darstellung von Mikroskopkopf und Probe.

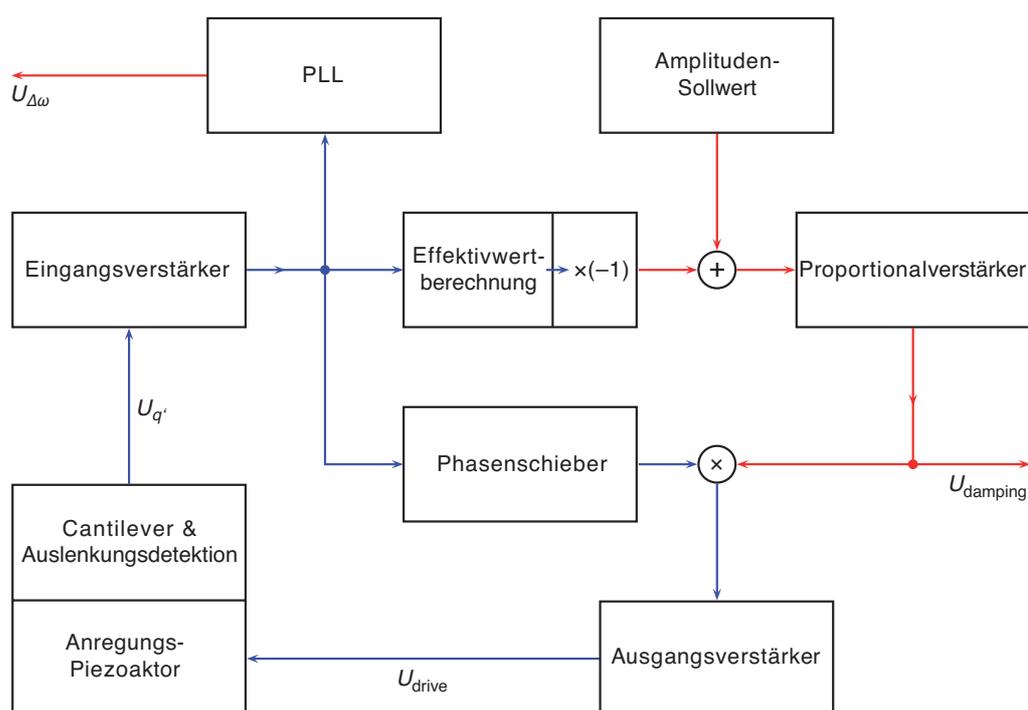


Abbildung 4.9: Blockschaltbild der Amplituden-Regelschleife, bestehend aus der Amplitudenregelungselektronik, dem Anregungs-Piezoaktor, dem Cantilever und der Auslenkungsdetektion, zusammen mit der Phasenregelschleife zur Messung der Frequenzverschiebung $\Delta\omega$. Blaue Pfeile symbolisieren Wechselspannungen mit der Schwingungsfrequenz ω des Cantilevers, rote Pfeile kennzeichnen Gleichspannungen.

5 Durchgeführte instrumentelle Entwicklungen

Für die vormals mit dem Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop durchgeführten Untersuchungen an Graphit wurden die Spitze durch elektrochemisches Ätzen und die Probe durch Spalten jeweils an Luft präpariert [18]. Die Probe wurde bei geöffnetem Vakuumsystem am Kupferzylinder angebracht (vgl. Abb. 4.1). Spitze und Probe wurden danach zusammen mit dem gesamten Vakuumsystem ausgeheizt. So wurde bei Raumtemperatur ein Druck von 10^{-10} mbar im Vakuumsystem erreicht. Nach Einkühlen des Mikroskops ermöglichte bereits eine Spitzenpräparation durch Feldemission mit $|U_S| \leq 10$ V und Emissionsströmen im Bereich einiger Nanoampere atomar saubere Spitzen [18]. Diese Feldemissionsparameter sind mit jedem Rastertunnelmikroskopie-System unmittelbar zugänglich. Dieses relativ unkomplizierte Vorgehen war möglich dank der Eigenschaft von Graphit, Adsorbate nur relativ schwach zu binden. Die Graphitoberfläche liegt nach dem Ausheizen der Anlage im UHV atomar sauber vor, womit gute Voraussetzungen sowohl für die Spitzenpräparation als auch für die Oberflächenuntersuchung gegeben sind.

Für eine tunnelmikroskopische Untersuchung von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen liegen andere Voraussetzungen vor. Die Herstellungsbedingungen dieser Proben im Laserpulsepitaxie-System verursachen eine Adsorbatbelegung der LaAlO_3 -Filmoberflächen, selbst wenn das nominelle Materialangebot bei der LaAlO_3 -Deposition der Stöchiometrie des epitaktischen Films entspricht. Die Abkühlung der Proben nach der Filmabscheidung erfolgt zur Vermeidung von Sauerstoff-Leerstellen bei einem Sauerstoff-Hintergrunddruck von 400 mbar [55], wobei aufgrund begrenzter Reinheit des Sauerstoff-Gases ein Hintergrunddruck unbekannter Fremdgase von $\approx 10^{-3}$ mbar herrscht. Darüber hinaus wurden die Proben vor ihrem Einbau in das Vakuumsystem des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops Luft ausgesetzt. Damit ist von einer Adsorbatbelegung der Probenoberflächen auszugehen.

Für die vorliegende Arbeit wurden zunächst LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen, die nach Luftexposition keinen weiteren Säuberungsmaßnahmen unterzogen worden waren, mit durch Feldemission im UHV bei $|U_S| \leq 10$ V präparierten Spitzen untersucht. Diese ersten Untersuchungen lieferten keine konsistenten Resultate.

Im Nachhinein kann diese Tatsache mit dem störendem Einfluss von Adsorbaten an der Probenoberfläche, die auf die Spitze übergangen, in Verbindung gebracht werden. Eine topografische Abbildung von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen mittels Rastertunnelmikroskopie und reproduzierbare Tunnelspektroskopie wurden schließlich möglich durch die Kombination folgender Maßnahmen:

1. Heizen der Proben auf eine Temperatur von ≈ 400 °C bei einem Sauerstoff-Hintergrunddruck von $\approx 10^{-2}$ mbar direkt im Vakuumsystem des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops.
2. Spitzenpräparation durch Feldemission bei Spannungen bis $|U_S| = 400$ V und bei Emissionsströmen bis zu mehreren Mikroampere, während sich die Spitze in der Nähe der Oberfläche von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen befand.

Das Ziel dieser beiden Maßnahmen war es zunächst, die Adsorbatbelegung von Probenoberfläche und Spitze insgesamt zu verringern, und schließlich die Neigung des Tunnel-Leitwerts zu spontanen Fluktuationen zu vermindern, *stabiles Tunneln* zu erreichen. Zur Herstellung einer stabilen Spitzenkonfiguration, die stabiles Tunneln ermöglichte, erwies sich die Spitzenpräparation durch Feldemission als unabdingbar.

Die folgenden Abschnitte beschreiben die im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführte Weiterentwicklung des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops, durch die unter anderem Vibrationen im System verringert und die Voraussetzungen für die Spitzenpräparation durch Feldemission sowie die Probenpräparation durch Heizen geschaffen wurden. Die Maßnahmen umfassen mechanische Modifikationen (s. Abschnitt 5.1) mit dem Ziel der Verringerung störender Vibrationen des Pendelgestänges und des Rauschens in der relativen Position der Spitze gegenüber der Probe sowie die Neuentwicklung der Mikroskop-Elektronik (s. Abschnitt 5.2), eines Probentransfersystems (s. Abschnitt 5.3), eines Probenpräparations-Systems (s. Abschnitt 5.4) und des Mikroskopkopfs (s. Abschnitt 5.5).

Die neu entwickelte Mikroskop-Elektronik macht die für die Feldemission benötigten großen Spannungen und Emissionsströme mittels eines außerhalb der Vakuumkammer angebrachten Transimpedanzverstärkers zur Stromdetektion zugänglich. Der Transimpedanzverstärker ist bei dieser Anordnung etwa zwei Meter vom Mikroskopkopf entfernt. Die das Stromsignal führende Eingangsleitung des Transimpedanzverstärkers überbrückt diese Entfernung und weist aufgrund ihrer großen Länge eine relativ große Kapazität von ≈ 200 pF auf. Neben elektromagnetischen Einstreuungen wird daher Mikrofonie zu einer nennenswerten Rauschquelle im Tunnelstromsignal, so dass die Minimierung von Vibrationen

der Tunnelstromleitung an Bedeutung gewinnt. Die oben erwähnten mechanischen Modifikationen zur Eindämmung von Vibrationen im Vakuumsystem tragen daher wesentlich zur erreichten hohen Signalqualität der Tunnelstromdetektion bei. Das neu entwickelte Probentransfersystem ermöglicht es, Proben im neu entwickelten Probenpräparations-System zur Oberflächenpräparation zu beheizen und sie danach ohne das Vakuum zu brechen zur Untersuchung am Kupferzylinder einzubauen. Die Spitzenpräparation durch Feldemission führt in der Regel zu lokalen Veränderungen der Probenoberfläche, wobei die Größe der betroffenen Probenbereiche den Stellbereich des Scanners zumeist überschreitet. Nach durchgeführter Feldemission muss die Spitze deshalb zu einer neuen Probenstelle bewegt werden. Für die Untersuchungen der vorliegenden Arbeit wurde hierzu in einem relativ zeitaufwändigen Prozess die Probe mittels eines Manipulators des Transfersystems verschoben. Eine jüngere Entwicklung ist ein Mikroskopkopf, der nicht nur die Grobannäherung, sondern zusätzlich auch eine Bewegung der Spitze parallel zur Probenebene ermöglicht. Er verspricht nicht nur eine Effizienzsteigerung bei zukünftigen Untersuchungen der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche, sondern schafft auch die grundlegend neue Möglichkeit, vorgegebene eindimensional ausgedehnte Probenstrukturen mit der Spitze anzusteuern.

5.1 Mechanische Modifikationen

Bei vielen gebräuchlichen Tieftemperatur-Rastersondenmikroskopen ist die Einheit aus Mikroskopkopf und Probe in der Vakuumkammer durch eine federnde Aufhängung von ihrer Umgebung mechanisch entkoppelt [56]. Eine solche Konstruktion kann die Eindämmung von Rauschen in der relativen Position der Spitze gegenüber der Probe erleichtern, steht allerdings einer guten thermischen Ankopplung von Mikroskopkopf und Probe an das Kühlmedium im Wege [56]. Bei der Konzeption des für die vorliegende Arbeit verwendeten Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops stand im Vordergrund, extrem schmalbandige Signaldetektion selbst bei Experimenten zu ermöglichen, die einen relativ großen Wärmeeintrag verursachen. Die damit verbundenen langen Zeitdauern von Messungen erfordern wiederum eine Minimierung der thermischen Drift und hierzu eine Maximierung der Temperaturstabilität. Aus diesem Grund wurde beim verwendeten Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop auf eine vibrationsentkoppelnde Aufhängung von Mikroskopkopf und Probe verzichtet. Mikroskop und Probe sind starr mit dem vom Pendelgestänge getragenen Kupferzylinder verbunden, der in direktem Kontakt mit dem flüssigen ^4He steht. Dadurch konnte der Widerstand zwischen dem Mikroskopkopf und dem Anbringungsort der Probe auf der einen, und dem flüssigen ^4He als Kühlmedium auf der anderen Seite mini-

miert und somit eine hohe Temperaturstabilität bei gleichzeitig hoher Toleranz gegenüber Wärmeeintrag erreicht werden. Dieser Aufbau erfordert besondere Sorgfalt bei der Minimierung der Vibrationsentstehung im Mikroskopiesystem selbst und von Vibrationseinkopplungen in das System von außen. Eine bedeutsame Vibrationsquelle im Mikroskopiesystem selbst ist häufig das Kühlsystem. Im superisolierten Badkryostaten des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops entstehen Vibrationen durch das Sieden des Heliums und als thermoakustische Schwingungen im Gasvolumen oberhalb des flüssigen Heliums. Der Vibrationseintrag von außen wird beim eingesetzten Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop durch ein vom weiteren Gebäude unabhängiges Fundament und eine schalldämmende Kammer vermindert.

Abbildung 5.1 dokumentiert exemplarisch die Ausgangssituation vor den im Folgenden beschriebenen mechanischen Modifikationen. Im gezeigten rastertunnelmikroskopischen Topografiebild einer Graphitoberfläche zeichnen sich Schwingungen mit einer Amplitude von $\approx 2 \text{ \AA}_{pp}$ und einer Frequenz von etwa $\approx 20 \text{ Hz}$ deutlich ab. Bei der Aufzeichnung des abgebildeten Datensatzes wurde der Tunnelstrom mittels eines direkt am Mikroskopkopf angebrachten Transimpedanzverstärkers detektiert; eine Störung des Tunnelstromsignals durch Mikrofonieeffekte kann daher als Ursache dieser Schwingungen in der Topografie weitgehend ausgeschlossen werden. Bei der Bildaufzeichnung wurde offenbar der Spitzen-Probenabstand durch eine mechanische Schwingung beeinflusst. Störungen, wie sie in Abb. 5.1 zu erkennen sind, traten häufig auf und vereitelten Messungen mitunter komplett. Beim Zusammentreffen bestimmter Helium-Füllstände des Dewar-Gefäßes mit einer sehr ruhigen Umgebung konnte das mechanische Rauschen allerdings auch wesentlich geringer ausfallen als es bei der Messung in Abb. 5.1 der Fall war.

Mittels der folgenden Modifikationen konnte die Vibrationsanfälligkeit der Anlage deutlich vermindert werden:

1. Die Standfüße des Vakuumsystems wurden durch neu angebrachte Aussparungen im Boden der schalldämmenden Kammer direkt auf das vom weiteren Gebäude unabhängige Betonfundament gestellt. Zuvor war der Boden der schalldämmenden Kammer gleichzeitig Standfläche des Vakuumsystems. Die schalldämmende Kammer steht zwar selbst auf dem Betonfundament, allerdings koppelten niederfrequente Schwingungen ihrer Wände in den Kammerboden und damit in das Vakuumsystem ein.
2. Der Durchmesser mehrerer Hitzeschilde des Pendelgestänges wurde um wenige Millimeter verkleinert, so dass ein Anstehen der Hitzeschilde an der Innenseite des unteren UHV-Membranbalgs bei abgesehenem Pendel

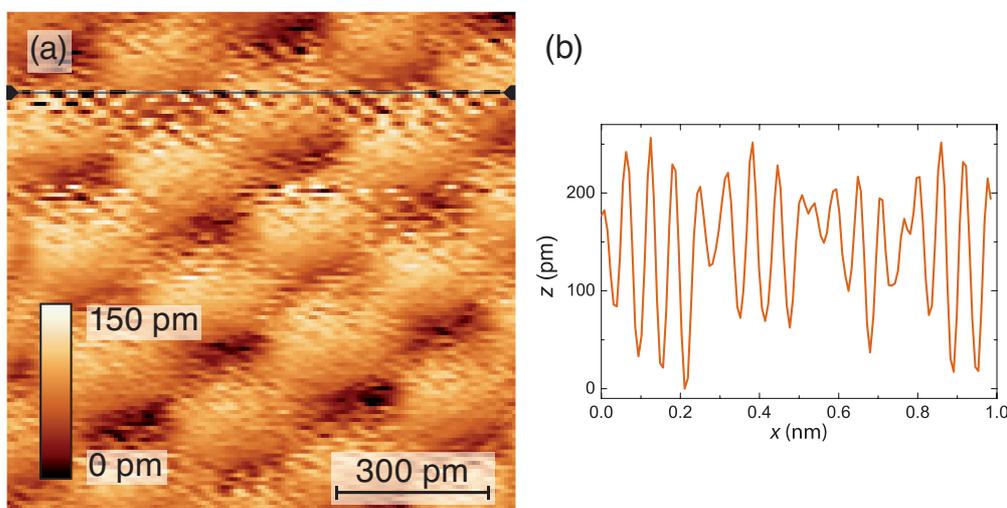


Abbildung 5.1: Rastertunnelmikroskopisches Topografiebild einer Graphitoberfläche (a) und Profil entlang der in (a) gezeigten horizontalen Linie (b). Das Bild wurde mit einer Rastergeschwindigkeit von 1 nm/s, einer Tunnelspannung $U_S = -0,1$ V und einem Tunnelstrom-Sollwert von 2 nA bei einer Temperatur von 4,7 K vor Durchführung der hier beschriebenen mechanischen Modifikationen aufgezeichnet. Schnelle Abtastrichtung: von links nach rechts; langsame Abtastrichtung: von oben nach unten. Sowohl im Bild als auch in der Profillinie tritt eine zwischenzeitlich angeregte Störschwingung mit einer Frequenz von etwa 20 Hz deutlich hervor. Mit den für die vorliegende Arbeit durchgeführten Modifikationen an der Anlage konnten derartige Störschwingungen auf ein nicht mehr auffälliges Maß reduziert werden.

nun vermieden werden kann. Bei den zuvor gegebenen Abmessungen der Hitzeschilde war ein mechanischer Kontakt der Schilde mit der Innenseite des Membranbalgs unvermeidlich. Schwingungen im Dewar-Gefäß konnten so über den Membranbalg das Pendelgestänge zu Vibrationen anregen. Schwingungen des Pendelgestänges können sich auf entlang dem Gestänge geführte Signalleitungen auswirken und zu Rauschen in der relativen Position der Spitze gegenüber der Probe beitragen.

3. Der Kupferzylinder am unteren Ende des Pendelgestänges, an dem Mikroskop und Probe angebracht sind, wurde neu gestaltet (s. Abschnitt 5.3). Ein Konstruktionsziel war dabei eine relativ kleine Federkonstante der Verbindungselemente, über die der Kupferzylinder am Pendelgestänge montiert ist. Die Kräfte, die durch Schwingungen im Pendelgestänge gegebener Am-

plitude auf den Kupferzylinder einwirken, und damit seine Deformation, sollten so begrenzt werden.

Die genannten Modifikationen resultierten in weitgehender Immunität der Anlage gegen Vibrationseinkopplungen aus der Umgebung der schalldämmenden Kammer und in einer Reduktion des Rauschens in der relativen Position der Spitze gegenüber der Probe auf ein nicht mehr auffälliges Maß. Diese Fortschritte waren eine wichtige Voraussetzung für das Gelingen der Untersuchungen der $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Heterostruktur. Bei diesen Experimenten war, wie bereits erwähnt, die Präparation eines stabilen Spitzenzustands durch Feldemission von zentraler Bedeutung. Unkontrollierbare Störschwingungen der Spitze gegenüber der Probe haben kaum einschätzbare Auswirkungen auf den Spitzenzustand. Die Spitzenpräparation durch Feldemission wird ermöglicht durch die im folgenden Abschnitt beschriebene für die Untersuchungen neu entwickelte Mikroskop-Elektronik. Bei dieser Konstruktion wird das unverstärkte Tunnelstromsignal von einer etwa zwei Meter langen entlang dem Pendelgestänge verlaufenden Leitung geführt. Ihre vibrationsarme Lagerung ist eine Grundbedingung für eine rauscharme Detektion des Tunnelstroms.

5.2 Neuentwicklung der Mikroskop-Elektronik

Die Neuentwicklung der Mikroskop-Elektronik erfolgte mit dem Ziel, gleichzeitig eine rauscharme Messung des differentiellen Tunnel-Leitwerts und eine Spitzenpräparation durch Feldemission zu ermöglichen. Typische Emissionsparameter sind Spannungen bis zu mehreren hundert Volt und Ströme im Bereich mehrerer Mikroampere; ein zur Detektion von Tunnelströmen bis hinunter zu Bruchteilen eines Picoamperes geeigneter Transimpedanzverstärker mit einem Konvertierungsfaktor von 10^9 V/A würde durch typische Emissionsströme um etwa zwei Größenordnungen übersteuert. Bei der im Folgenden vorgestellten Konstruktion ermöglicht ein außerhalb der Vakuumkammer angebrachter Transimpedanzverstärker mit umschaltbarem Konvertierungsfaktor eine Messung sowohl der kleinen Tunnel-, als auch der großen Emissionsströme. Die zentrale Herausforderung bestand darin, mit dem etwa zwei Meter vom Mikroskopkopf entfernten Transimpedanzverstärker ein großes Signal-Rauschverhältnis der Tunnelstromdetektion zu erreichen.

Die Mikroskop-Elektronik umfasst einen Transimpedanzverstärker am Mikroskopkopf zur Auslenkungsdetektion des qPlus-Sensors, die im UHV zwischen den D-sub-UHV-Stromdurchführungen im CF-Flansch an der Oberseite des Pendels und dem Mikroskopkopf entlang dem Pendelgestänge verlaufende Verkabe-

lung, die Geräte *Breakout-Box HV*, *Breakout-Box LV – measurement (current via sample)*, *Breakout-Box LV – measurement (current via tip)* und *Breakout-Box LV – field emission* sowie einen Transimpedanzverstärker zur Tunnelstromdetektion (alternativ ein Eigenbau basierend auf einem Operationsverstärker oder ein Femto DLPCA-200 [57]), die in unmittelbarer Nähe zum CF-Flansch mit den Stromdurchführungen angeordnet sind, die passive Schnittstelle, die Tunnelstromsignal-Aufbereitungselektronik, mehrere kommerzielle Bandpassfilter (Stanford Research Systems SR650 [58]), einen kommerziellen Synchrongleichrichter (Signal Recovery Modell 7280 [59]) zur dynamischen Messung des differentiellen Tunnel-Leitwerts, die Amplitudenregelungselektronik, eine kommerzielle Phasenregelschleife (Nanosurf easyPLL plus Detector), Instrumentenverstärker-Schaltungen zur Massentrennung, rauscharme Netzteile, kommerzielle Netzteile (Agilent E3630A [51]) sowie die Park Scientific Instruments VP2-Steuerelektronik [53] („Controller“).

Die entlang dem Pendelgestänge im UHV verlaufende Verkabelung, die Breakout-Boxen, der Eigenbau-Transimpedanzverstärker zur Tunnelstromdetektion, die passive Schnittstelle, die Tunnelstromsignal-Aufbereitungselektronik und die rauscharmen Netzteile sind Neuentwicklungen für die Untersuchungen der vorliegenden Arbeit. Die Amplitudenregelungselektronik ist eine Weiterentwicklung basierend auf Arbeiten von F. J. Gießibl [44]. Die Anwendung eines Transimpedanzverstärkers auf die Auslenkungsdetektion des qPlus-Sensors geht auf Ref. [20] zurück. In Ref. [17] wurde der qPlus-Kraftsensor erstmals erfolgreich in einem Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop eingesetzt, wobei der Transimpedanzverstärker unter Zuhilfenahme einer äußeren Beheizung betrieben wurde. In den von mir für die vorliegende Arbeit entwickelten Auslenkungsdetektions-Transimpedanzverstärker gehen Optimierungen der thermischen Konstruktion von F. J. Gießibl in Zusammenarbeit mit der Rastersondenmikroskopie-Gruppe um A. J. Heinrich am IBM Almaden Research Center [48] ein. Aus dieser Zusammenarbeit ging auch die hier angewendete Verschaltung des Transimpedanzverstärkers für die Spitzenpräparation durch Feldemission bei großen Spannungen hervor.

Eine ausführliche Dokumentation des elektronischen Messaufbaus mit vollständigen Schaltplänen ist in Anhang B gegeben. Die Funktionsweise des Aufbaus geht aus dem vereinfachten Übersichtsschaltplan in Abb. 5.2 hervor. Der Controller erzeugt die Scanner-Spannungen sowie die Tunnelspannung. Die Scanner-Spannungen werden nach Tiefpassfilterung und induktiver Addition der von der Amplitudenregelungselektronik erzeugten Kraftsensor-Anregungsspannung in der *Breakout-Box HV* zum Scanner geleitet. Die Tunnelspannung wird in der passiven Schnittstelle mittels eines RC -Glieds tiefpassgefiltert. Die gefilterte Tunnelspannung wird in der *Breakout-Box LV – measurement* von einem Im-

pedanzwandler abgenommen und von einem Tiefpass erster Ordnung mit Umkehrverstärker nochmals gefiltert. Nach Addition der vom Synchrongleichrichter erzeugten Modulationsspannung zur dynamischen Leitwertmessung wird die Tunnelspannung über ein teflonisoliertes Koaxialkabel zur Spitze geleitet. Der probenseitig abgenommene Tunnelstrom fließt ebenfalls über ein teflonisoliertes Koaxialkabel zum Transimpedanzverstärker. Das Ausgangssignal des Transimpedanzverstärkers wird zur Tunnelstromsignal-Aufbereitungselektronik geführt. Von dort wird der niederfrequente Anteil des Tunnelstromsignals zur Erfassung zum Controller und sein volles Frequenzspektrum zur dynamischen Messung des Tunnel-Leitwerts zum Synchrongleichrichter geleitet. Der Synchrongleichrichter liefert die wiederum vom Controller erfasste zum differentiellen Tunnel-Leitwert proportionale Amplitude des Realteils des Tunnelstromsignals bei der Frequenz der Tunnelspannungs-Modulationsspannung. Die Auslenkung des qPlus-Kraftsensors wird vom Transimpedanzverstärker am Mikroskopkopf detektiert. Das Bezugspotential des Transimpedanzverstärkers ist die Tunnelspannung gegenüber der Laborerde; seine Ausgangsspannung wird in einem Differenzverstärker in der *Breakout-Box LV – measurement* mit einem Faktor 500 skaliert und, auf die Laborerde bezogen, zum Auslenkungssignal-Eingang der Amplitudenregelungselektronik geleitet. Das Auslenkungssignal gelangt von dort zur Phasenregelschleife, die eine vom Controller erfasste Spannung proportional zur Frequenzverschiebung erzeugt.

Die in Abb. 5.2 gezeigte Konfiguration ermöglicht simultane Tunnel- und Kraftmikroskopie. Zur Spitzenpräparation mittels Feldemission wird der Konvertierungsfaktor des Tunnelstromdetektions-Transimpedanzverstärkers von 10^9 V/A auf 10^6 V/A reduziert und die *Breakout-Box LV – measurement* wird durch die *Breakout-Box LV – field emission* ersetzt. Dort sind alle zur Spitze, zur Quarzstimmgabel und zum Auslenkungsdetektions-Transimpedanzverstärker führenden Leitungen miteinander verbunden. Zur Feldemission werden sie gemeinsam auf das Potential der Emissionsspannung gegenüber der Probe auf Labor-Erdpotential gebracht. Potentialdifferenzen zwischen Anschlüssen des Transimpedanzverstärkers oder den Stimmgabel-Elektroden, die zur Zerstörung von Komponenten führen könnten, werden so vermieden.

Der differentielle Tunnel-Leitwert $\partial I_t / \partial U_S$ wird gemessen, indem zur Tunnelspannung U_S eine Wechselspannung U_{mod} mit einer Amplitude \hat{U}_{mod} von einigen Millivolt und einer Frequenz f_{mod} in der Größenordnung von 100 Hz addiert wird. Aus der Modulation der Tunnelspannung resultiert eine Komponente des Tunnelstromsignals mit der Frequenz f_{mod} . Befindet sich die Spitze in großer Entfernung zur Probe, so ist die Tunnelwahrscheinlichkeit verschwindend klein und die Komponente des Tunnelstromsignals mit der Frequenz f_{mod} entsteht weitgehend durch kapazitives Übersprechen der Tunnelspannungs-Modulation in das

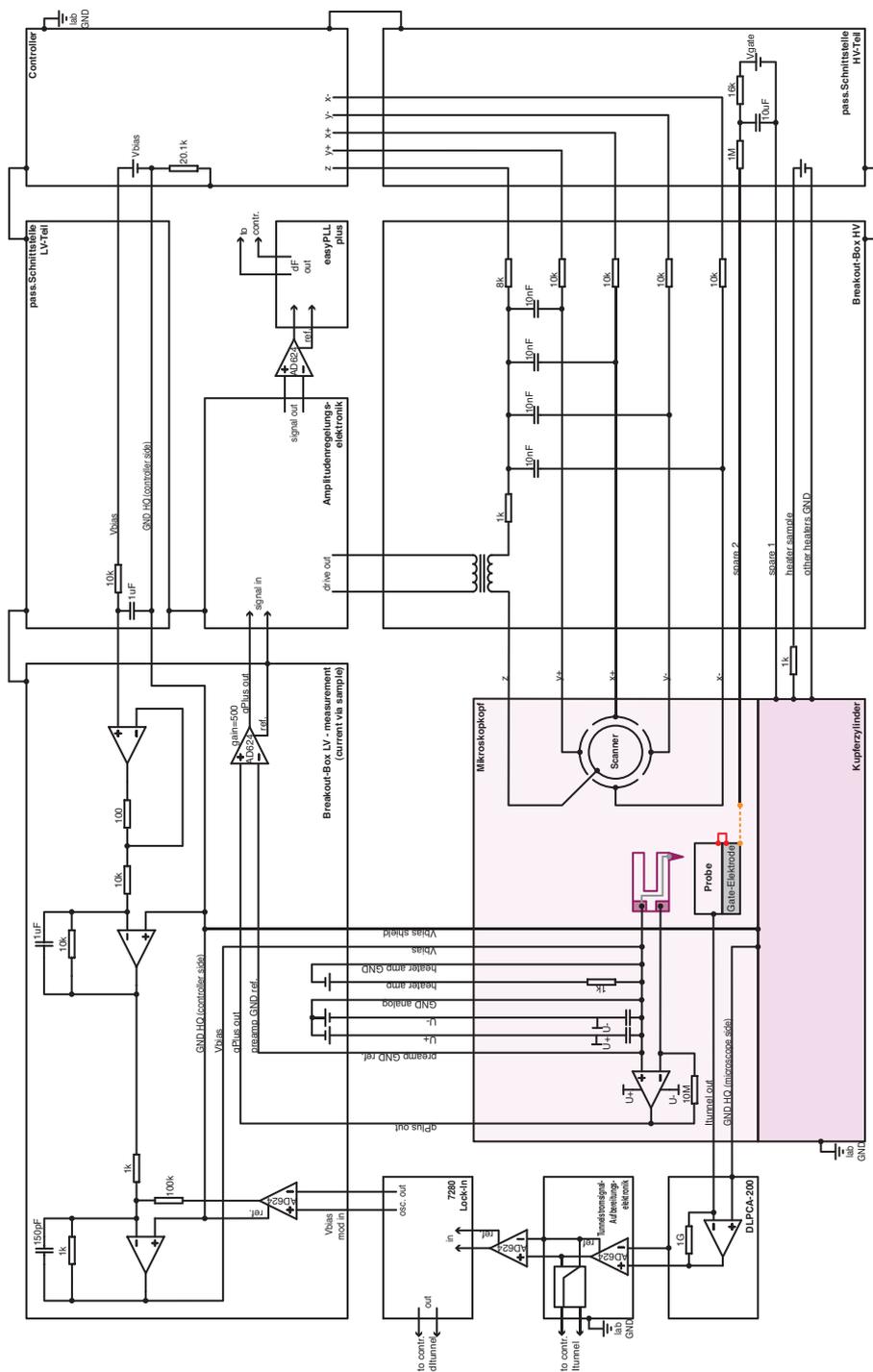


Abbildung 5.2: Übersichts-Schaltplan der Mikroskop-Elektronik (vereinfacht).

Tunnelstromsignal. Ein tatsächlicher Tunnelstrom mit der Frequenz f_{mod} ist in Phase mit der Modulationsspannung und eilt damit dem durch kapazitive Kopplung entstehenden Anteil des Tunnelstromsignals um $\pi/2$ nach. Die Phasenlage des Tunnelstromsignals bei großem Spitzen-Probenabstand wird so zur Identifikation der Phasenlage des Tunnelstroms, auf welche das Synchrongleichrichter-Referenzsignal eingestellt wird, herangezogen. Der Quotient aus der Amplitude ΔI_t des Tunnelstroms bei der Frequenz f_{mod} und der Modulationsspannungs-Amplitude \hat{U}_{mod} nähert den differentiellen Tunnel-Leitwert $\partial I_t / \partial U_S$ gemäß des Zusammenhangs $\Delta I_t / \hat{U}_{\text{mod}} \approx \partial I_t / \partial U_S$ an.

Die Herausforderung bei der Konstruktion der Elektronik bestand wie erwähnt darin, bei der durch die Verwendung eines außerhalb der Vakuumkammer angebrachten Transimpedanzverstärkers für die Tunnelstromdetektion gegebenen großen Entfernung des Verstärkers vom Mikroskopkopf eine rauscharme Messung des Tunnelstroms zu realisieren. Neben den bereits diskutierten Mikrofonie-Effekten sind elektromagnetische Einstreuungen in die etwa zwei Meter lange Eingangsleitung des Tunnelstrom-Transimpedanzverstärkers eine relevante Störquelle. Die Ansatzpunkte zur Minimierung störender Einstreuungen in das Tunnelstromsignal waren die Entstehung elektromagnetischer Störfelder zu vermeiden sowie die Tunnelstromleitung abzuschirmen und in möglichst großer Entfernung zu Störfeldquellen zu führen. Die zur Stromversorgung aller in oder in der Nähe der Vakuumkammer betriebenen elektronischen Schaltungen eingesetzten neu entwickelten rauscharmen Netzteile setzen bei den starken magnetischen Störfeldern an, die von Transformatoren ausgehen können. Die Transformatoren dieser Netzteile befinden sich zusammen mit einer Spannungsregelung auf ± 18 V (s. Schaltplan in Abb. B.18) in einem außerhalb der schalldämmenden Kammer und damit in relativ großer Entfernung zur Vakuumkammer untergebrachten Gehäuse. Die auf ± 18 V geregelten Spannungen werden in die schalldämmende Kammer geführt und dort nochmals mit einstellbaren Spannungsreglern (s. Schaltplan in Abb. B.19) stabilisiert. Zur Begrenzung neuer Einstreuungen in die stabilisierten Versorgungsspannungen ist das Gehäuse mit den einstellbaren Spannungsreglern in der Nähe der D-sub-UHV-Stromdurchführungen der Vakuumkammer und damit der zu versorgenden Schaltungen positioniert. Das so erreichte niedrige Rauschen in den Versorgungsspannungen ist insbesondere für die Stromversorgung des Auslenkungsdetektions-Transimpedanzverstärkers am Mikroskopkopf wichtig, da seine Versorgungsspannungsleitungen wie die Tunnelstromleitung entlang dem Pendelgestänge verlaufen und bei Beaufschlagung mit verrauschten Versorgungsspannungen zu einer auf das Tunnelstromsignal wirkenden Quelle elektromagnetischer Störfelder würden. Mit aus demselben Grund werden die Scanner-Spannungen und insbesondere die Tunnelspannung jeweils vor Eintritt in die Vakuumkammer tiefpassgefiltert. Bei der Verkabelung des Pen-

delgestänges (s. Verkabelungsplan in Tabelle B.3) wurde eine räumliche Trennung und elektromagnetische Abschirmung der Leitungen übersprechgefährdeter Signale voneinander vorgenommen. Die Führung des probennahen Abschnitts der Tunnelstromleitung am neu entwickelten Kupferzylinder (s. Abb. 5.10) gewährleistet eine hervorragende Abschirmung der Tunnelstromleitung vom Mikroskopkopf. Als Kabeltyp zur Führung des Tunnelstroms hat sich, besonders im Hinblick auf 50 Hz-Brummeinstreuungen, ein teflonisoliertes Koaxialkabel bewährt. Bei einer moderaten Kapazität von 100 pF/m bietet es weitgehende Immunität gegen magnetische Störfelder.

Die erreichte Rauschdichte der Tunnelstromdetektion beträgt $4,1 \text{ fA}_{\text{rms}}/\sqrt{\text{Hz}}$ (s. Abb. 5.3), die der Cantilever-Auslenkungsdetektion $135 \text{ fm}_{\text{rms}}/\sqrt{\text{Hz}}$ bei Raumtemperatur (s. Abb. 5.4) und $59 \text{ fm}_{\text{rms}}/\sqrt{\text{Hz}}$ bei Heliumtemperatur (s. Abb. 5.5). Somit ermöglichte die in diesem Abschnitt vorgestellte Mikroskop-Elektronik die für die tunnelspektroskopische Untersuchung $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Heterostruktur unabdingbare Spitzenpräparation durch Feldemission, eine rauscharme Messung des Tunnelstroms bei simultaner rauscharmer Messung der Cantileverauslenkung. Selbst bei Tunnelströmen unterhalb von 0,1 pA ermöglichten mit der Elektronik gemessene Verläufe $\partial I_t/\partial U_S(U_S)$ Aussagen über die spektrale Zustandsdichte des Elektronensystems an der $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Grenzfläche.

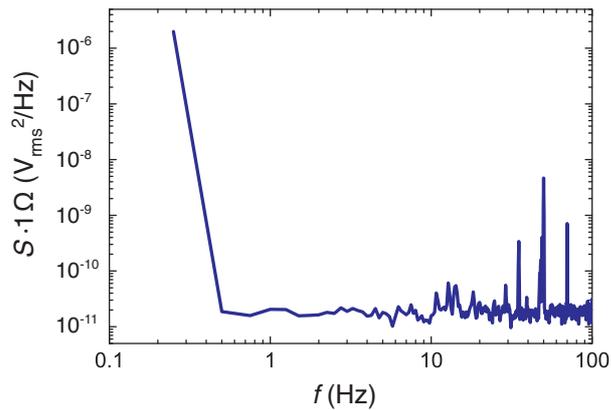


Abbildung 5.3: Spektrum der leitwertbezogenen Leistungsdichte $S \cdot 1 \Omega$ des Tunnelstromdetektions-Ausgangssignals bei Messung des Tunnelstroms über die Probe mittels des Transimpedanzverstärkers Femto DLPCA-200 („Low Noise“-Betriebsart, volle Bandbreite, Gleichstrom-Eingangskopplung) bei einem Konvertierungsfaktor von 10^9 V/A. Der Rauschteppich hat eine Höhe von $1,7 \cdot 10^{-11} \text{ V}_{\text{rms}}^2/\text{Hz}$, die Rauschdichte der Tunnelstromdetektion beträgt damit $4,1 \text{ fA}_{\text{rms}}/\sqrt{\text{Hz}}$. Zur Messung des Spektrums wurde das Ausgangssignal des DLPCA-200 direkt zum Eingang des Spektrumanalysators (Agilent 35670A) geführt. Das Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop war in messbarem Zustand bei Heliumtemperatur. Der Spitzen-Probenabstand betrug $\approx 0,1$ mm. Der Cantilever wurde nicht angeregt, die Tunnelspannung nicht moduliert. Der Spektrumanalysator arbeitete mit Gleichspannungs-Eingangskopplung und Hanning-Fenster. Aufgetragen ist ein Mittelwert von 30 Spektren, berechnet mittels der *RMS averaging*-Funktion des Agilent 35670A.

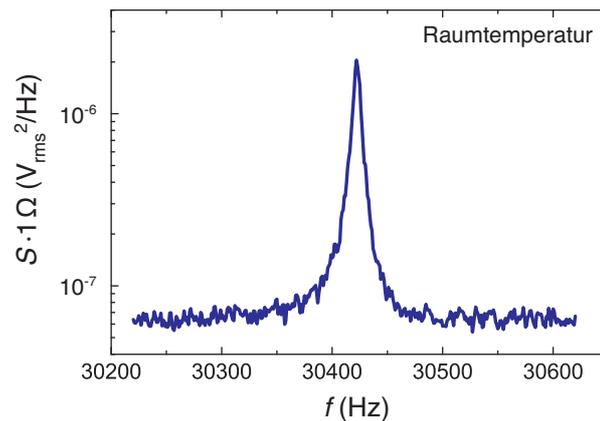


Abbildung 5.4: Spektrum der leitwertbezogenen Leistungsdichte $S \cdot 1 \Omega$ des Auslenkungsdetektions-Ausgangssignals bei Raumtemperatur. Der Rauschteppich hat eine Höhe von $63,2 \cdot 10^{-9} \text{ V}_{\text{rms}}^2/\text{Hz}$. Für die experimentell über die Aufzeichnung eines Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie-Bildes der Kantenlänge 0 mit wechselnder Amplitude bestimmte [20] Sensitivität der Auslenkungsdetektion gilt $500 \cdot S_{q'} = 1,86 \cdot 10^9 \text{ V/m}$, wobei der Faktor 500 der Signalverstärkung in der *Breakout-Box LV – measurement (current via sample)* Rechnung trägt. Damit ergibt sich die Rauschdichte der Auslenkungsdetektion aus der Höhe des Rauschteppichs zu $135 \text{ fm}_{\text{rms}}/\sqrt{\text{Hz}}$. Zur Messung des Spektrums wurde das qPlus-Ausgangssignal der *Breakout-Box LV – measurement (current via sample)* direkt zum Eingang des Spektrumanalysators (Agilent 35670A) geführt. Das Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop war in messbarem Zustand bei Raumtemperatur. Der Cantilever wurde nicht angeregt, die Tunnelspannung nicht moduliert. Der Spektrumanalysator arbeitete mit Wechselspannungs-Eingangskopplung und Hanning-Fenster. Aufgetragen ist ein Mittelwert von 200 Spektren, berechnet mittels der *RMS averaging*-Funktion des Agilent 35670A.

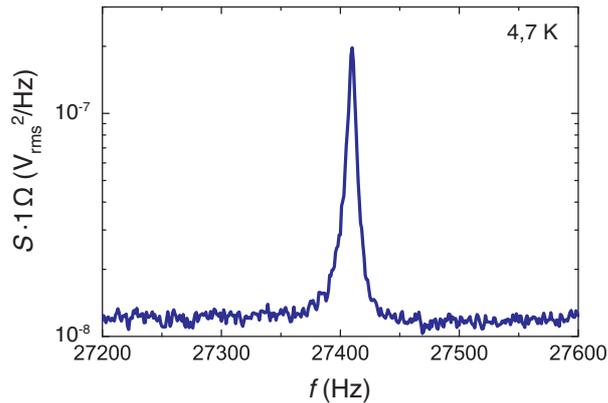


Abbildung 5.5: Spektrum der leitwertbezogenen Leistungsdichte $S \cdot 1 \Omega$ des Auslenkungsdetektions-Ausgangssignals bei 4,7 K. Der Rauschteppich hat eine Höhe von $12,2 \cdot 10^{-9} \text{ V}_{\text{rms}}^2/\text{Hz}$. Für die experimentell über die Aufzeichnung eines Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie-Bildes der Kantenlänge 0 mit wechselnder Amplitude bestimmte [20] Sensitivität der Auslenkungsdetektion gilt $500 \cdot S_{q'} = 1,87 \cdot 10^9 \text{ V/m}$, wobei der Faktor 500 der Signalverstärkung in der *Breakout-Box LV – measurement (current via sample)* Rechnung trägt. Damit ergibt sich die Rauschdichte der Auslenkungsdetektion aus der Höhe des Rauschteppichs zu $59 \text{ fm}_{\text{rms}}/\sqrt{\text{Hz}}$. Zur Messung des Spektrums wurde das qPlus-Ausgangssignal der *Breakout-Box LV – measurement (current via sample)* direkt zum Eingang des Spektrumanalysators (Agilent 35670A) geführt. Das Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop war in messbarem Zustand bei Heliumtemperatur. Der Cantilever wurde nicht angeregt, die Tunnelspannung nicht moduliert. Der Spektrumanalysator arbeitete mit Wechselspannungs-Eingangskopplung und Hanning-Fenster. Aufgetragen ist ein Mittelwert von 500 Spektren, berechnet mittels der *RMS averaging*-Funktion des Agilent 35670A.

5.3 Neuentwicklung des Probentransfersystems

Abbildung 5.6 zeigt die Kernkomponenten des neu entwickelten Probentransfersystems. Der Probenträger besteht aus einem Stück. Diese Konstruktion umgeht mögliche Probleme mit sich bei wiederholten Temperaturzyklen lockernden Verbindungselementen. Die Probe ist an der Abschlussfläche des konischen Teils des Probenträgers angebracht (s. Abb. 6.1 auf Seite 84). Alle Manipulatoren des Transfersystems sind sehr einfach und robust aufgebaut. Die Probe wird sowohl von den männlichen, als auch von den weiblichen Manipulatoren von Blattfedern gehalten, auf aktiv bewegliche Teile wird vollständig verzichtet. Die männlichen Manipulatoren greifen ähnlich einem Schraubendreher in eine Nut des Probenträgers und können so ohne Beanspruchung ihrer Blattfedern ein Drehmoment auf den Probenträger übertragen. Zur Übergabe des Probenträgers von einem männlichen auf einen weiblichen Manipulator wird der konische Teil des Probenträgers in das Loch des weiblichen Manipulators eingeführt. Zur Arretierung wird der Probenträger relativ zum weiblichen Manipulator so gedreht, dass die Blattfedern des Manipulators über die Flügel des Probenträgers greifen und so den Probenträger halten. Der männliche Manipulator kann dann abgezogen werden. Abbildung 5.7 zeigt eine fotografische Ansicht der drei in der Präparationskammer (vgl. Abschnitt 5.4) agierenden Manipulatoren durch das Sichtfenster der Präparationskammer.

Der als Teil des Transfersystems neu entwickelte Kupferzylinder ist in Abb. 5.8 dargestellt. In Abb. 5.8a ist der Einbauort des Probenträgers, in Abb. 5.8b der des Mikroskopkopfs zu erkennen. Aus Abb. 5.8c geht die sich aus den Einbaupositionen ergebende relative Lage des Probenträgers zum Mikroskopkopf hervor. Abbildung 5.8d zeigt den für die Grobannäherung vorgesehenen Sichtzugang zur Spitze und Probenebene. Dieser Sichtzugang ist bei nach oben gezogenem Pendel über ein Sichtfenster in der Vakuumkammer nutzbar. Mikroskopkopf und Probe sind weitgehend von gekühlten Kupferwänden umgeben; insbesondere für aus Bereichen des Vakuumsystems oberhalb des Kupferzylinders ankommende Teilchen besteht keine Sichtverbindung zur Probe. Eine einmal eingekühlte Probe ist so vor Oberflächenverunreinigung durch Adsorption freier Teilchen geschützt.

Abbildung 5.9 zeigt den Probenhalter des Kupferzylinders im Detail. Der Probenträger wird am Kupferzylinder wie bei den weiblichen Manipulatoren des Transfersystems gehalten. Da beim Ein- und Ausbau des Probenträgers die Minimaldistanz zwischen Spitze und Probe fest vorgegeben ist, sind Beschädigungen der Spitze beim Probentransfer praktisch ausgeschlossen.

Der Kupferzylinder befindet sich auf Erdpotential. Um eine Detektion des Tunnelstroms über den von der Probe zur Laborerde abfließenden Strom zu ermöglichen,

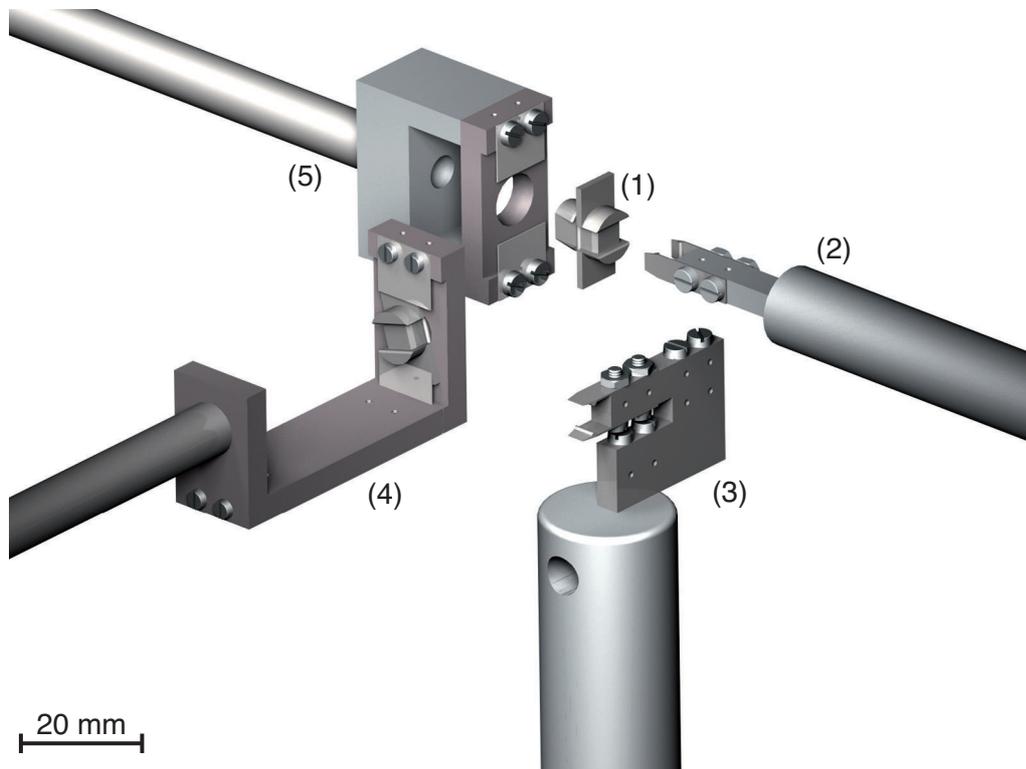


Abbildung 5.6: Zeichnung der Kernkomponenten des neu entwickelten Proben-transfersystems. Abgebildet sind der Probenträger (1), der männliche Manipulator der UHV-Kammer (2) zum Einbau des Probenträgers in den Probenhalter des Kupferzylinders, der männliche Manipulator der Präparationskammer (3), der weibliche Manipulator der Ladeschleuse (4), der den Probenträger während der Probenpräparation durch Heizen hält, sowie der weibliche Manipulator der Präparationskammer (5), der die Übergabe von Probenträgern aus der Präparationskammer auf den männlichen Manipulator der UHV-Kammer ermöglicht.

ist der vom Probenhalter des Kupferzylinders gehaltene Probenträger, und damit die Probe, elektrisch vom Kupferzylinder isoliert. Wie in Abb. 5.9 zu sehen ist, befindet sich zwischen Probenträger und Kupferzylinder ein Abstandshalter, der wahlweise aus Saphir oder Teflon besteht. Die mit dem Probenträger in elektrischem Kontakt stehenden Blattfedern sind mittels Macor-Isolierelementen [60] vom Kupferzylinder getrennt. Die elektrische Verbindung zwischen dem Probenträger und dem Eingang des Tunnelstromdetektions-Transimpedanzverstärkers wird über die obere Blattfeder des Kupferzylinder-Probenhalters realisiert. Der probennahe Teil der Tunnelstromleitung ist in der fotografischen Ansicht des Kup-

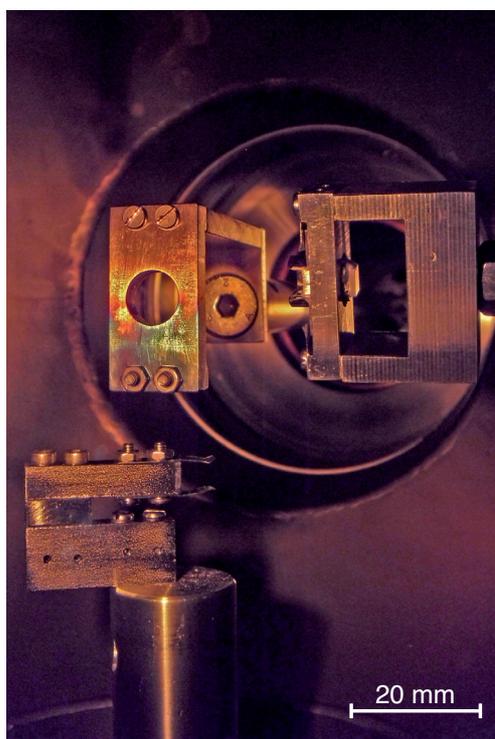


Abbildung 5.7: Fotografische Ansicht der drei in der Präparationskammer agierenden Manipulatoren. Unten ist der männliche, rechts der weibliche Manipulator der Präparationskammer, in der Mitte der weibliche Manipulator der Ladeschleuse zu sehen.

ferzyinders in Abb. 5.10 deutlich zu erkennen. Das weiße teflonisierte Koaxialkabel verläuft in einer vertikalen Nut des Kupferzylinders. Der Innenleiter ist mit der oberen Blattfeder des Probenhalters, der Schirm mit dem Kupferzylinder verbunden.

Sowohl die Transferierbarkeit des Probenträgers, als auch seine elektrische Isolation vom Kupferzylinder erschweren eine gute thermische Anbindung des Probenträgers an das Kupfer. Die Kontaktfläche zwischen den Probenträger-Flügeln und der Isolationsplatte des Kupferzylinder-Probenhalters ist durch die von den beiden Blattfedern ausgeübte Andruckkraft begrenzt und hängt weiterhin von der Härte der Materialien von Probenträger und Isolationsplatte sowie von der Beschaffenheit ihrer Oberflächen ab. Der an diesem Übergang auftretende Grenzflächen-Wärmewiderstand stellt sicherlich einen wesentlichen Beitrag zum Gesamt-Wärmewiderstand zwischen Probe und Kupferzylinder dar. Die Höhe des Grenzflächen-Wärmewiderstands im Vergleich zu den Wärmewiderständen in der Isolationsplatte und im Probenträger selbst ist schwer schätzbar und wurde nicht näher untersucht. Bei den Experimenten für die vorliegende Arbeit wurden im Probenhalter am Kupferzylinder sowohl aus Saphir, als auch aus Teflon gefertigte Isolationsplatten verwendet. Die Saphir-Isolationsplatten wurden mit dem Kupferzylinder verklebt. Sie bieten damit neben hoher Wärmeleitfähigkeit eine gute thermische Anbindung an das Kupfer und sind formstabil. Ein Nachteil

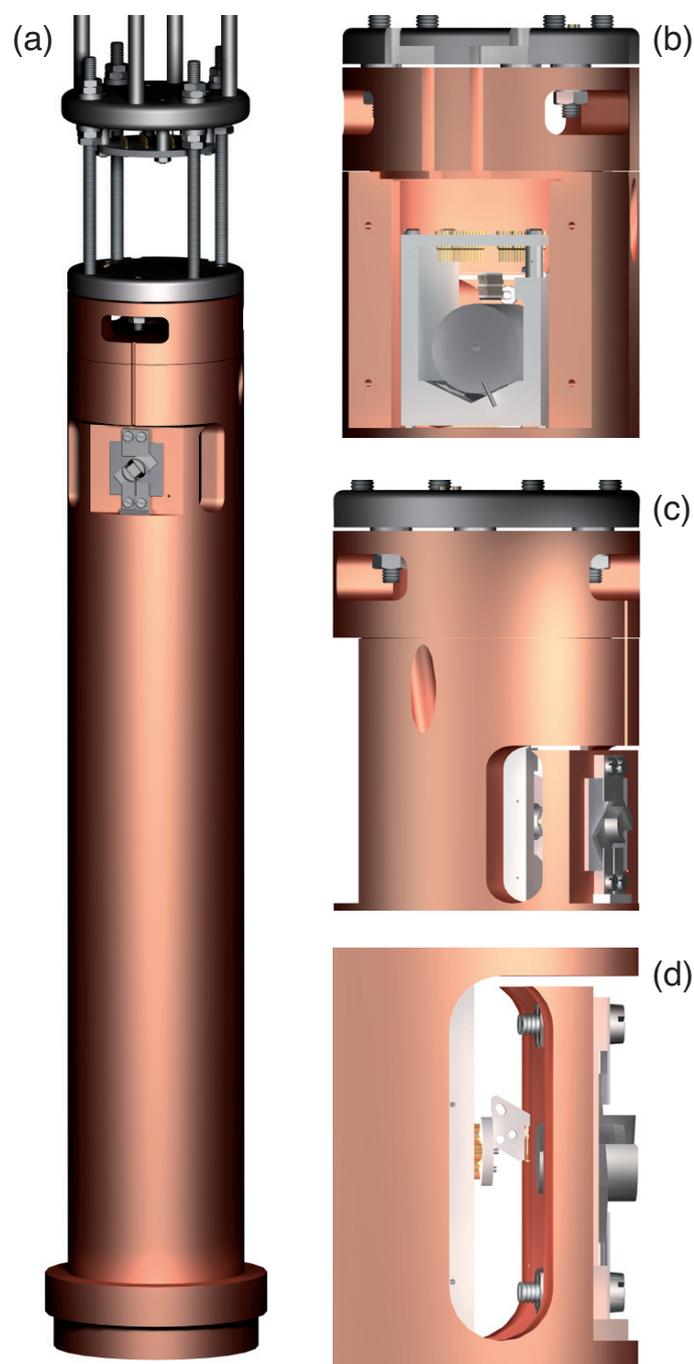


Abbildung 5.8: Zeichnung des neu entwickelten Kupferzylinders. Der innerhalb des Membranbalgs verlaufende Teil des Kupferzylinders hat einen Durchmesser von 65,5 mm.

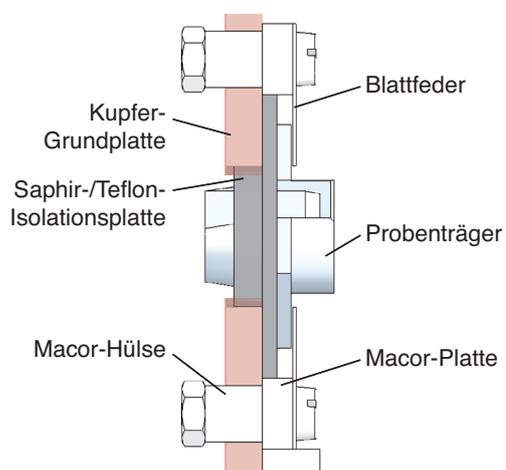


Abbildung 5.9: Detailansicht des Probenhalters am Kupferzylinder.

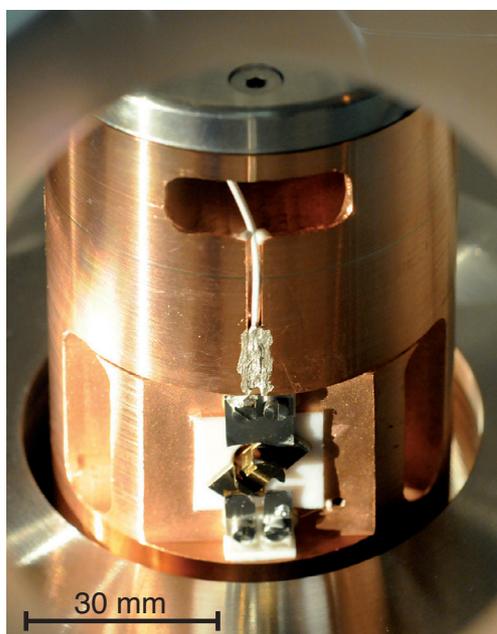


Abbildung 5.10: Fotografische Ansicht des Kupferzylinders mit eingebautem Probenträger durch ein Sichtfenster der Vakuumkammer. Der Kupferzylinder befindet sich in Transferposition (Fotografie von K. Wiedenmann).

besteht in ihrer durch die Sprödigkeit des Saphirs begrenzten Standzeit. Teflon-Isolationsplatten wurden lediglich unter die Blattfedern des Probenhalters eingelegt. Eine Isolationsplatte aus Teflon bietet sehr leichtgängigen Probentransfer und praktisch unbegrenzte Standzeit, weist jedoch eine geringe Wärmeleitfähigkeit auf. Für die Untersuchungen zur vorliegenden Arbeit erwiesen sich Teflon-Isolationsplatten als ausreichend formstabil. Ein Kriechen des Materials unter dem Anpressdruck der Blattfedern konnte allerdings nicht ausgeschlossen werden. Als Materialien für den Probenträger wurden Aluminium und Cr-Ni-Stahl V2A eingesetzt. Im Vergleich zu Aluminium-Probenträgern weisen Edelstahl-Probenträger eine relativ geringe Wärmeleitfähigkeit, aber auch eine relativ geringe Neigung zum Festfressen im UHV auf. Da die Probe an ihrem Einbauort am Kupferzylinder weitgehend von gekühlten Kupferwänden umgeben ist, ist sie einer nur geringen Wärmelast ausgesetzt. Selbst mit der thermisch am wenigsten günstig erscheinenden Konfiguration bestehend aus einer Teflon-Isolationsplatte und einem Edelstahl-Probenträger erreichte die Temperatur am Ort der Probe nach Einkühlen der Anlage mit flüssigem Helium über Nacht ihren Sättigungswert $< 4,7$ K.

Die mit dem Probentransfersystem neu gegebene Möglichkeit, Proben in das Vakuumsystem des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops ein- oder aus dem Vakuumsystem auszuschleusen stellte einen großen Fortschritt in der Entwicklung des Mikroskopie-Systems dar. Weiterhin war die vom Transfersystem ermöglichte sichere Handhabung der Proben im Vakuumsystem eine wichtige Voraussetzung für den Aufbau des im folgenden Abschnitt vorgestellten Probenpräparations-Systems.

5.4 Neuentwicklung des Probenpräparations-Systems

Das neu entwickelte Probenpräparations-System ermöglicht ein Heizen von Proben auf Temperaturen von mehreren hundert °C bei einstellbarem Sauerstoff-Hintergrunddruck. Das System besteht aus der Probenpräparations-UHV-Kammer mit Sichtzugang zur Probe, mehreren in dieser Kammer agierenden Manipulatoren, einem Gaseinlass zur kontrollierten Zuführung von Sauerstoff und einer außerhalb der Präparationskammer angebrachten Halogenlampe als Wärmequelle. Das Vakuumsystem des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops inklusive Präparationskammer ist zusammen mit allen Manipulatoren in Abb. 5.11 skizziert, Abbildung 5.12 zeigt eine fotografische Außenansicht von Präparationskammer und Ladeschleuse. Bei betriebsbereitem Mikroskop ist das Plattenventil 2 (s. Abb. 5.11) geschlossen, in der Haupt-UHV-Kammer herrscht UHV. Vor dem Einbau einer zu untersuchenden Probe werden Präparationskammer und Ladeschleuse bei geöffnetem Plattenventil 1 gemeinsam belüftet. Die Probe wird mittels des Probeneinbauwerkzeugs (s. Abb. 5.13) über die Tür der Ladeschleuse am weiblichen Manipulator der Ladeschleuse angebracht. Die hervorstehenden Blattfedern des Probeneinbauwerkzeugs schützen dabei die Probe vor Kollisionen. Mittels einer an der Ladeschleuse angeflanschten Turbomolekularpumpe werden Ladeschleuse und Präparationskammer bis zu einem Druck von $\approx 10^{-7}$ mbar abgepumpt. Über einen Gaseinlass an der Ladeschleuse wird Sauerstoff des Reinheitsgrads 4.8 eingelassen. Vor dem Beheizen von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen wird der Sauerstoff-Fluss über ein Nadelventil so eingestellt, dass bei laufender Turbomolekularpumpe in der Präparationskammer ein Druck von $\approx 10^{-2}$ mbar herrscht.

Zum Beheizen der Probe wird der weibliche Manipulator der Ladeschleuse nahe an das Sichtfenster der Präparationskammer an die als Heizung arbeitende Halogenglühlampe HLX 64635 [61] bewegt. Die Lampe weist eine Nennleistung von 150 W auf. Der goldbedampfte Reflektor der Lampe fokussiert das von der Lampe abgestrahlte Licht auf die Probe. Die Heizanordnung ist in Abb. 5.14 skizziert. In der fotografischen Ansicht in Abb. 5.15 sind die Halogenglühlampe, das durchstrahlte Sichtfenster der Präparationskammer sowie der weibliche Manipulator der Ladeschleuse in Heizposition zu sehen.

Vor ihrer tunnelspektroskopischen Untersuchung wurden LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen zur Oberflächenreinigung im Präparationssystem auf eine Temperatur von ≈ 400 °C geheizt. Diese Temperatur wurde bei einer Leistung der Halogenlampe von 40 W erreicht.

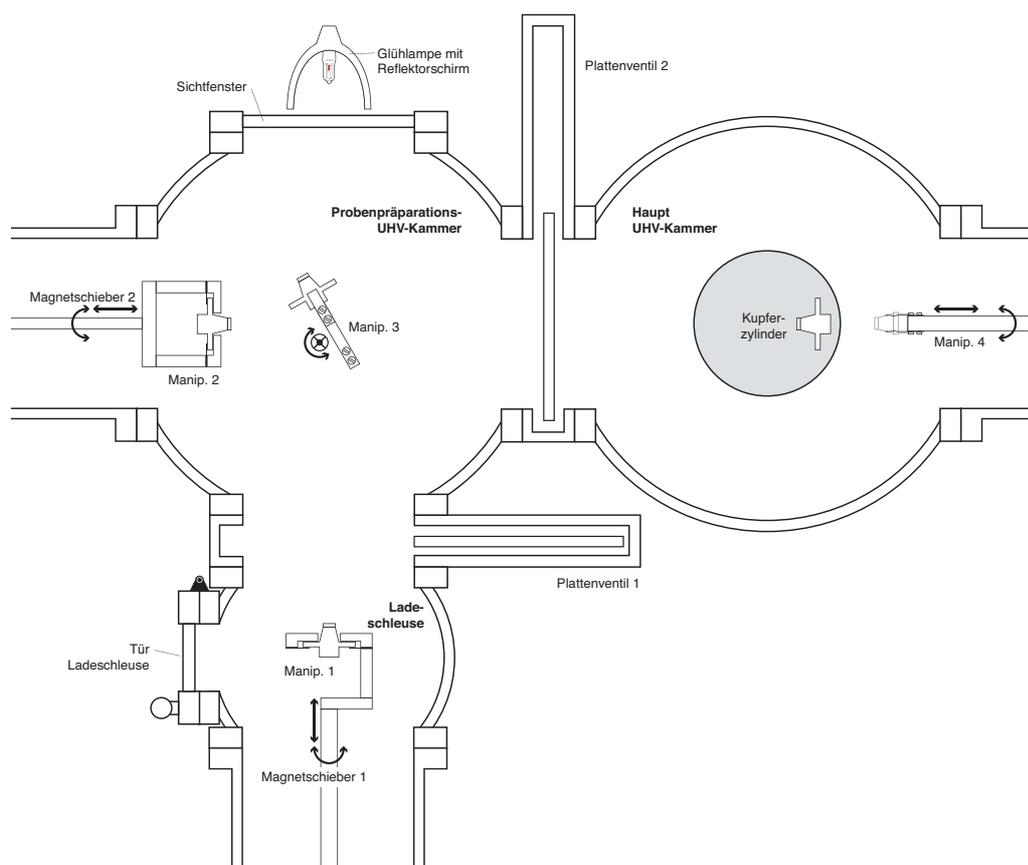


Abbildung 5.11: Übersichts-Skizze des Vakuumsystems und der Manipulatoren des Probentransfersystems.

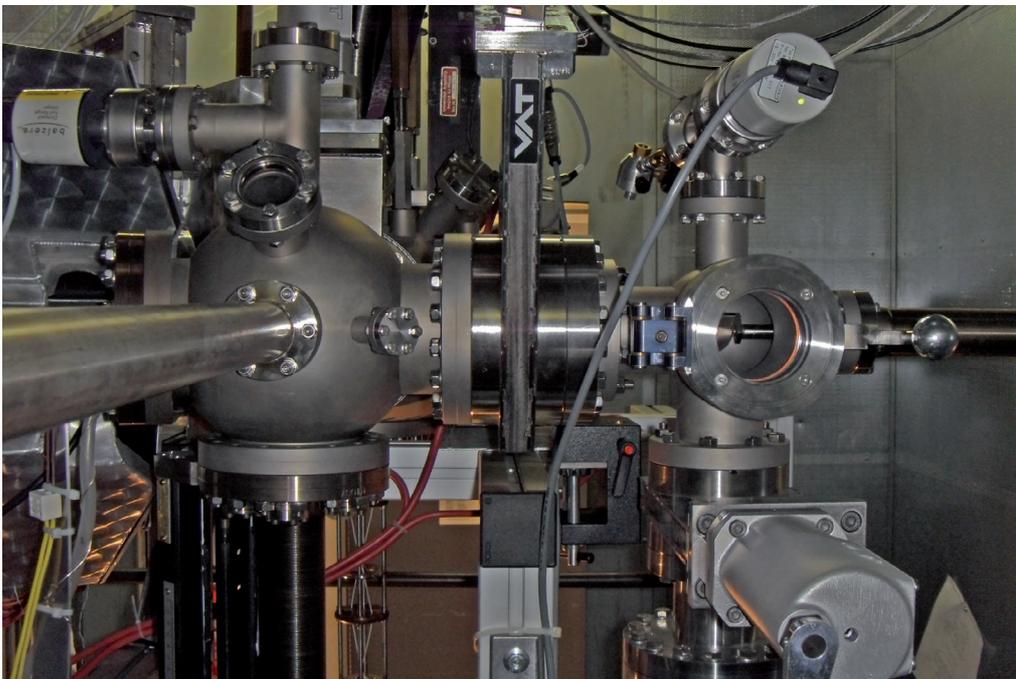


Abbildung 5.12: Fotografische Ansicht von Präparationskammer (links) und Ladeschleuse (rechts).

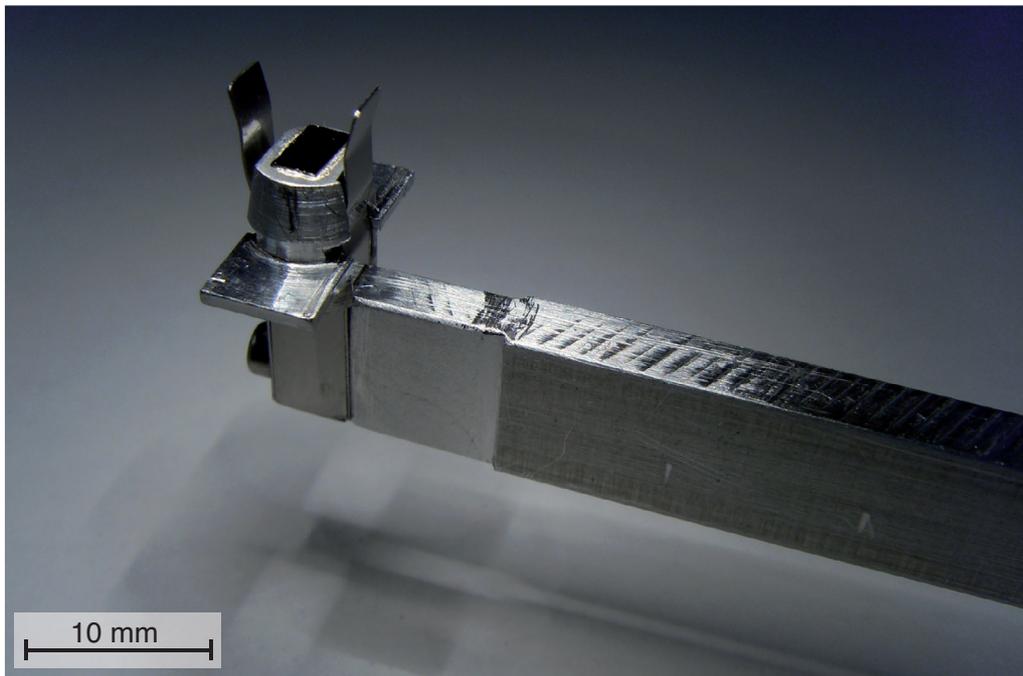


Abbildung 5.13: Fotografische Ansicht eines Probenträgers, gehalten vom Probeneinbauwerkzeug.

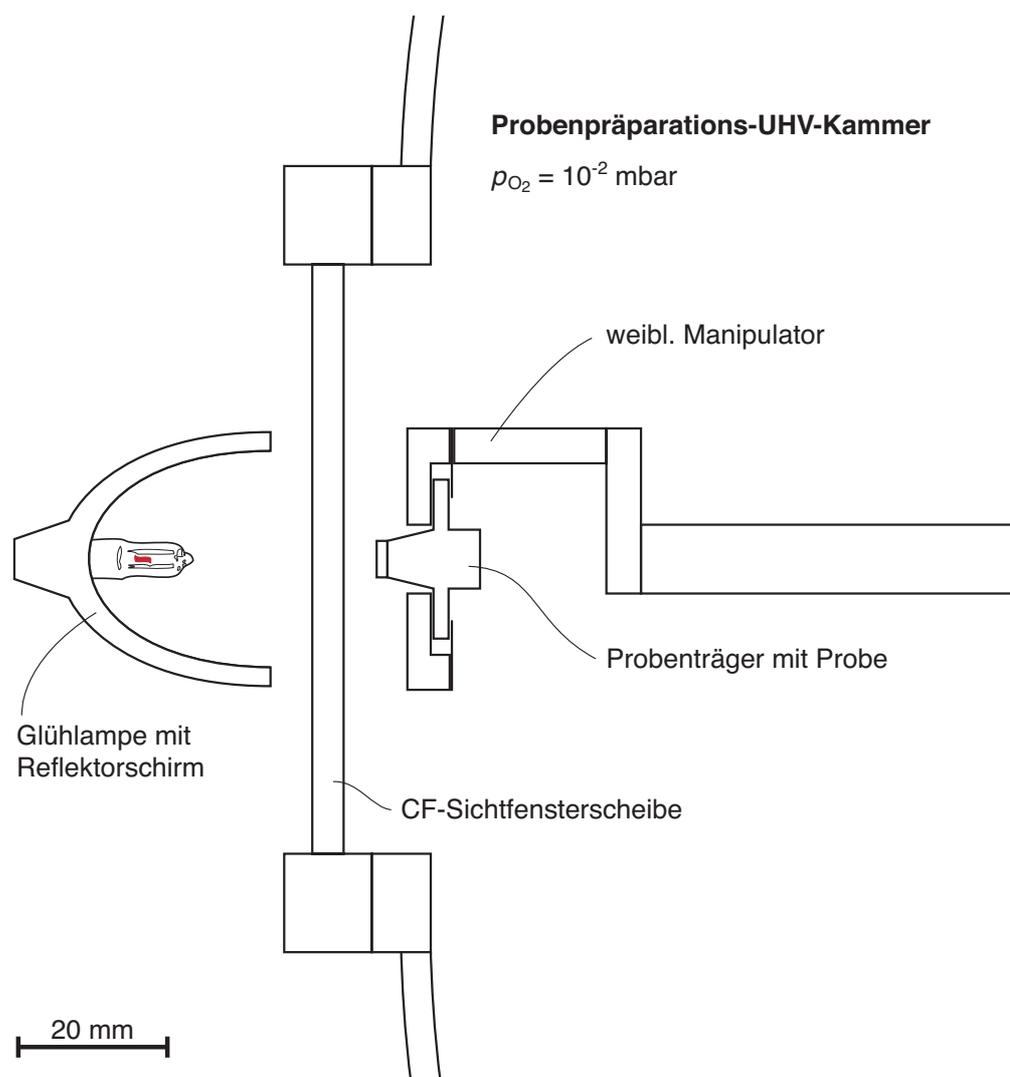


Abbildung 5.14: Skizze der Heizanordnung des Probenpräparationssystems.

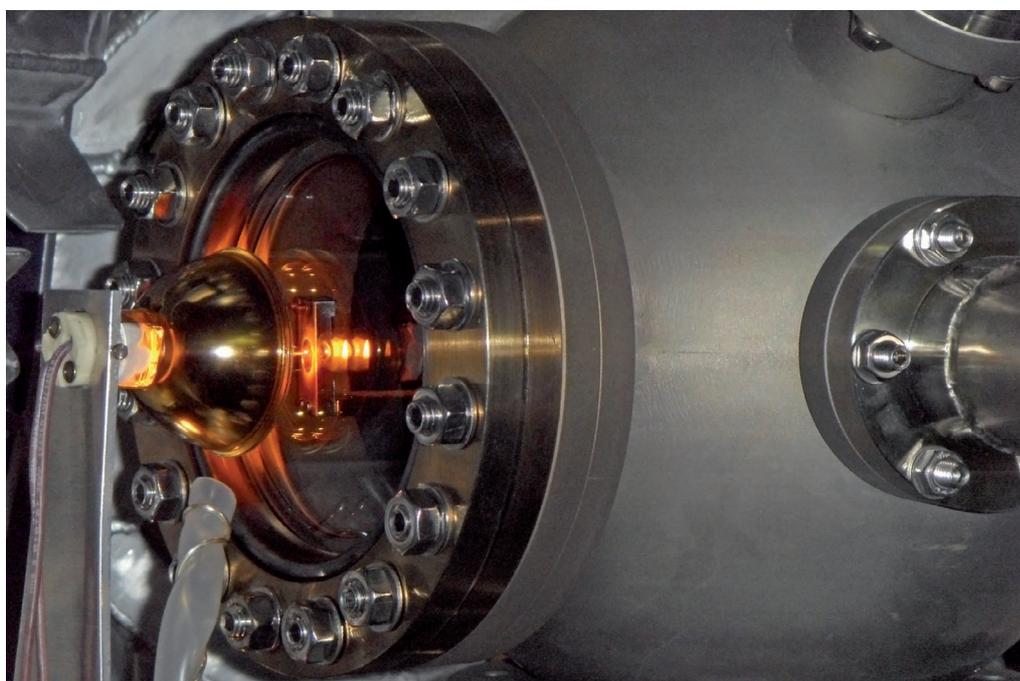


Abbildung 5.15: Fotografische Ansicht der Heizanordnung des Probenpräparationsystems.

5.5 Neuentwicklung des Mikroskopkopfs

Der in diesem Abschnitt beschriebene neu entwickelte Mikroskopkopf ermöglicht die Grobpositionierung der Spitze gegenüber der Probe mittels eines piezoelektrisch angetriebenen Trägheitsmotors [22]. Piezoelektrische Trägheitsmotoren werden in vielen Rastersondenmikroskopen zur Grobpositionierung eingesetzt. Sie ermöglichen im Prinzip unbegrenzte Stellwege bei einer Positioniergenauigkeit von Bruchteilen eines Mikrometers. Ihr verhältnismäßig einfacher Aufbau kann mechanisch sehr stabil ausgeführt werden. Schwierig ist es, auch im UHV und bei Heliumtemperatur eine zuverlässige Funktion zu erreichen. Der neu entwickelte Mikroskopkopf erreicht sehr hohe Zuverlässigkeit und ermöglicht eine Bewegung der Spitze entlang zweier Achsen anstatt entlang nur einer Achse wie bei allen früheren in diesem Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop verwendeten Konstruktionen. Die Spitze kann so nicht nur der Probenoberfläche angenähert und von ihr entfernt, sondern auch parallel zur Probenebene seitwärts verschoben werden. Am Lehrstuhl wurde im Zeitraum von über zehn Jahren weitreichende Erfahrung mit der Konstruktion von Trägheitsantrieben für extreme Umgebungsbedingungen erworben [17, 62]. Basierend darauf wurden grundlegende Überarbeitungen eines großen Teils der Konstruktionsaspekte piezoelektrischer Trägheitsmotoren an einer Vielzahl von Prototypen getestet und schließlich im in diesem Abschnitt beschriebenen Mikroskopkopf angewandt. Sein Trägheitsmotor verwendet als aktive Antriebselemente Scherplatten aus Blei-Zirkonat-Titanat-Piezokeramik wie in Abb. 5.16 skizziert. Die Platten erfahren eine Scherdeformation, wenn ihre Elektroden mit einer Spannung U_P beaufschlagt werden.

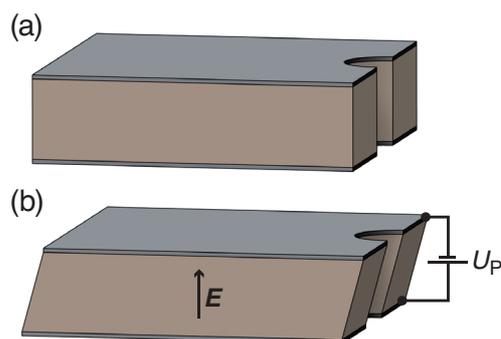


Abbildung 5.16: Skizze einer piezoelektrischen Scherplatte in Ruhe- lage (a) und deformiert durch eine äußere Spannung U_P zwischen ihren Elektroden (b).

Das Funktionsprinzip eines auf Scherplatten basierenden Trägheitsmotors geht aus Abb. 5.17 hervor. Mehrere mit Gleitflächen versehene Scherplatten sind auf einem Chassis fest angebracht. Der bewegliche Schlitten wird mit der Andruckkraft F_a auf die Gleitflächen dieser Scherplatten gepresst; die Andruckkraft wird selbst über eine Scherplatte mit Gleitfläche übertragen. Die Ruhelage des Mo-

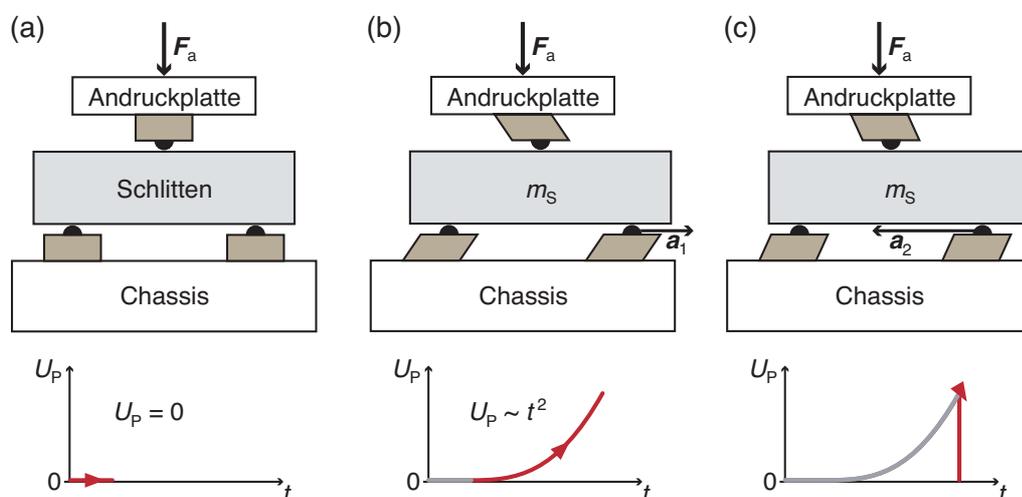


Abbildung 5.17: Skizze zum Funktionsprinzip des Trägheitsmotors.

tors mit $U_p = 0$ ist in Abb. 5.17a dargestellt. Zur Ausführung einer Stellbewegung werden die Scherplatten mit einem Spannungsverlauf $U_p(t)$ beaufschlagt, der eine relativ geringe Beschleunigung a_1 der am Schlitten aufliegenden Gleitflächen in die gewünschte Bewegungsrichtung des Schlittens (s. Abb. 5.17b), und anschließend eine sehr hohe Beschleunigung a_2 der Gleitflächen in die entgegengesetzte Richtung bewirkt (s. Abb. 5.17c). Es bezeichne m_S die Masse des Schlittens und $F_{h,max}$ die maximal von allen Auflagepunkten zusammen aufnehmbare Haftreibungskraft. Die Schlittenbewegung kommt dadurch zustande, dass $F_{h,max}$ in der Bewegungsphase mit der Beschleunigung a_1 von der Trägheitskraft $m_S \cdot a_1$ des beschleunigten Schlittens nicht überwunden wird, $m_S \cdot a_1 < F_{h,max}$, der Schlitten sich also mit den Gleitflächen der Scherplatten mitbewegt, für die Beschleunigung a_2 aber $m_S \cdot a_2 \gg F_{h,max}$ gilt, so dass die Gleitflächen der Scherplatten bei ihrer Bewegung entgegen der Schrittrichtung am Schlitten entlanggleiten, der Schlitten bei der Rückbewegung der Scherplatten also nicht mitgenommen wird.

In Abb. 5.18 sind die Spannungsverläufe aufgetragen, mit denen der Trägheitsmotor des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops bei Heliumtemperatur betrieben wird. Bei der Erzeugung der Antriebsspannung sind hohe Grenzfrequenzen und hohe maximale Spannungsanstiegsraten notwendig, um mit den Piezoelementen hohe Beschleunigungen erreichen zu können. Die Antriebsspannung wird von einem Funktionsgenerator (Agilent 33220A [51]) erzeugt und gelangt nach Verstärkung mittels des Hochspannungsverstärkers [62] (Schaltplan in Abb. B.20) zu den Scherplatten. Der Hochspannungsverstärker erreicht mittels einer gebrückten Endstufe, die auf Hochspannungs-Operationsverstärkern des Typs Apex PA85 [63] basiert, einen maximalen Spannungshub von 800 V.

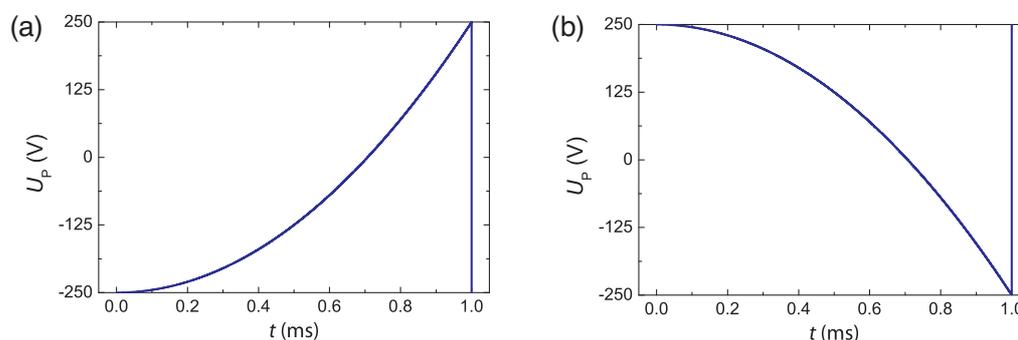


Abbildung 5.18: Zeitverläufe der Antriebsspannung des Trägheitsmotors. Die in (a) und (b) aufgetragenen Wellenformen generieren entgegengesetzte Bewegungsrichtungen des Schlittens.

Der vormals eingesetzte Mikroskopkopf war mit dem Ziel größtmöglicher mechanischer Steifigkeit entwickelt worden [17] und ermöglichte herausragende Resultate [18]. Allerdings war es zur Bewegung seines Trägheitsmotors bei Heliumtemperatur häufig notwendig, das Antriebs-Piezoelement zu beheizen. Der damit verbundene Wärmeeintrag verursachte thermische Drift und veränderte die Schwingungseigenschaften des Cantilevers, was die Grobannäherung der Spitze an die Probe wesentlich erschwerte und einen typischen Zeitaufwand von mehreren Stunden verursachte. Die Zuverlässigkeit des Trägheitsantriebs war durch die relativ kurze Standzeit der Wolfram-Wolfram-Gleitkontakte begrenzt. Die Weiterentwicklung des Mikroskopkopfs erfolgte mit der Motivation, die Zuverlässigkeit des Trägheitsantriebs zu erhöhen, zu seinem Betrieb auf ein Beheizen der Piezo-Antriebselemente vollständig verzichten zu können und eine zweite Bewegungsachse des Trägheitsantriebs zu realisieren. Abbildung 5.19 zeigt eine Zeichnung des neu entwickelten Mikroskopkopfs, mit dem diese Ziele erreicht wurden.

Als der für die Zuverlässigkeit des Trägheitsantriebs wichtigste Konstruktionsaspekt erwies sich die Ausführung der Gleitkontakte. Verschleißende Laufflächen können über mehrere Mechanismen zu einem Festklemmen des Schlittens führen. Häufig erhöht sich durch Oberflächenverschleiß die zur Überwindung der Haftreibung notwendige Kraft, bis diese größer wird als die erreichbaren Trägheitskräfte. Auch liegengebliebener Abrieb kann den Motorlauf beeinträchtigen. Schließlich kann eine durch Einschleifen der Gleitflächen veränderte Auflagegeometrie zum Festklemmen des Schlittens an bestimmten Positionen führen. Beim neu entwickelten Mikroskopkopf gleitet ein graphitbeschichteter Macor-Schlitten auf Halbrundstäben aus Wolframcarbid-Cobalt-Hartmetall (Hartmetall Sorte K-20F, 92 % Wolframcarbid, 8 % Cobalt, geschliffen [64]). Diese Gleitflächen

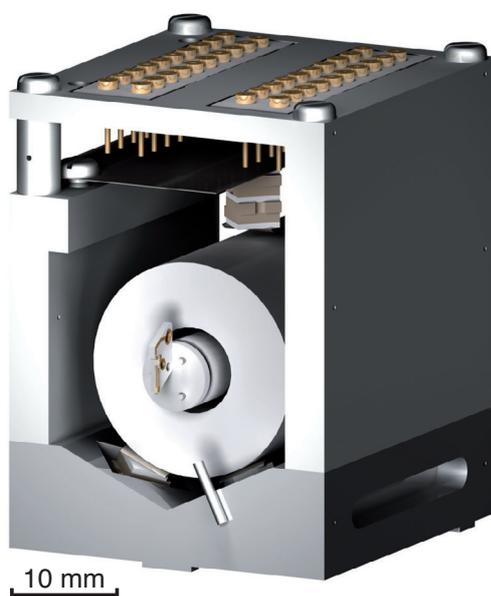


Abbildung 5.19: Zeichnung des neu entwickelten Mikroskopkopfs.

erwiesen sich als sehr haltbar. Verschleißbedingte Funktionsbeeinträchtigungen des Trägheitsmotors wurden nicht beobachtet. Die Oberfläche des zylindrischen Macor-Schlittens wird vor der Graphitbeschichtung mit Schleifpapier Körnung 1000 von Hand geglättet. Zur Graphitbeschichtung wird Graphitlack (Kontakt Chemie Graphit 33 [65]) aus einer Sprühdose sehr dünn aufgebracht. Nach einer Trockenzeit von vier Stunden wird die Graphitschicht mittels eines Papiertuchs (Kimtech Science Präzisionstuch [66]) aufpoliert. Es ergibt sich eine metallisch glänzende Graphitschicht. Vor dem Einbau wird der Schlitten mittels einer Heizplatte eine Stunde lang bei einer Temperatur von 120 °C ausgeheizt.

Als piezoelektrische Antriebs Elemente kommen zu Stapeln verklebte Scherplatten (Materialbezeichnung PIC255, Nickel-Elektroden, PI Ceramic [67]) zur Anwendung. Die Grundfläche der Scherplatten ist quadratisch und hat eine Kantenlänge von 4 mm, ihre Höhe beträgt 1 mm. Der Aufbau der Piezostapel ist in Abb. 5.20 gezeigt. Ein Piezostapel besteht aus zwei Teilstapeln. Jeweils 2 Scherplatten sind mit leitfähigem Epoxidharz-Klebstoff E41 10 zu einem Teilstapel aneinandergefügt. Die beiden Teilstapel sind mit um 90° gegeneinander verdrehten Deformationsrichtungen miteinander verklebt. Macor-Platten bewirken die erforderliche elektrische Isolation der Teilstapel voneinander und des Piezostapels insgesamt von seiner Umgebung. Eine Wolframcarbid-Cobalt-Gleitschiene ist auf die Oberseite des Stapels geklebt. Alle nicht elektrisch leitenden Verklebungen innerhalb der Piezostapel sind mit Epoxidharzklebstoff EPK-1C realisiert. Abbildung 5.21 zeigt ein Foto eines Piezostapels. Die Anschlussdrähte (Kupferdraht AWG 32 mit Polyimid-Isolierung) sind direkt mit den Scherplatten-Elektroden verlötet.

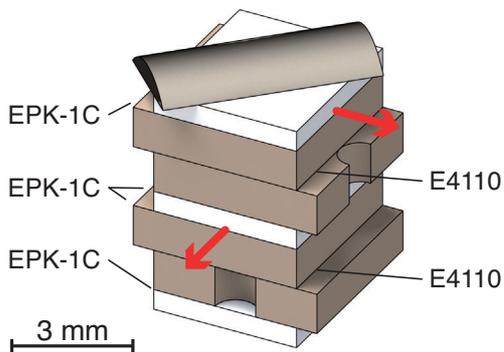


Abbildung 5.20: Zeichnung eines im neu entwickelten Mikroskopkopf eingesetzten Piezostapels. Die weißen Macor-Platten dienen der elektrischen Isolation. Die Deformationsrichtungen der beiden Teilstapel sind mit roten Pfeilen eingezeichnet.

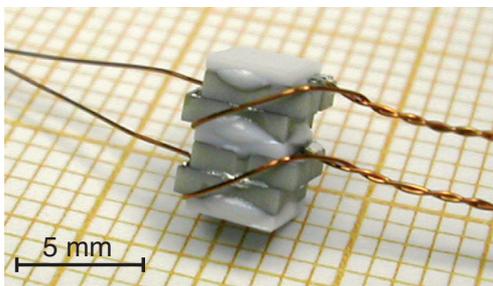


Abbildung 5.21: Fotografische Ansicht eines im neu entwickelten Mikroskopkopf eingesetzten Piezostapels mit angelöteten Anschlussleitungen.

In Abb. 5.22 sind Chassis und Andruckmechanik des Mikroskopkopfs mit angebrachten Piezostapeln sowie der auf den Gleitschienen der Piezostapel gelagerte Schlitten mit eingebautem Scanner zu sehen. Die Andruckmechanik umfasst eine Blattfeder aus Edelstahlblech der Stärke 0,1 mm zur Erzeugung der Andruckkraft, deren Befestigungsmechanismus und einen Piezostapel, über den die Andruckkraft auf den Schlitten übertragen wird. Die Oberfläche der Blattfeder ist durch Feinsandstrahlen mit Glasperlen aufgeraut, um eine dauerhafte Verklebung mit dem Piezostapel zu ermöglichen. Die Blattfeder ist mittels zweier Schrauben befestigt. Die Schrauben drücken die Blattfeder gegen eine Hervorhebung an der Seitenwand und ermöglichen so die Einstellung der Andruckkraft. Durch die Doppelfunktion der Schrauben entsteht ein besonders einfacher teile- und raumsparender Aufbau der Andruckmechanik. Gleichzeitig werden die Schrauben durch Federkräfte der Blattfeder gesichert. Dem auf die vier Gleitschienen am Chassis gedrückten Schlitten verbleibt ein Rotationsfreiheitsgrad um seine Rotationsachse und ein Translationsfreiheitsgrad entlang dieser Achse. Über den Translationsfreiheitsgrad wird die Annäherung der Spitze an die Probe, über den Rotationsfreiheitsgrad die Verschiebung der am Schlitten exzentrisch positionierten Spitze parallel zur Probenebene realisiert.

Um den Schlitten gemäß beider Freiheitsgrade bewegen zu können, müssen die Piezostapel Bewegungen sowohl parallel zur Rotationsachse des Schlittens, als auch senkrecht dazu ausführen können. Die Piezostapel wie in Abb. 5.20 gezeigt

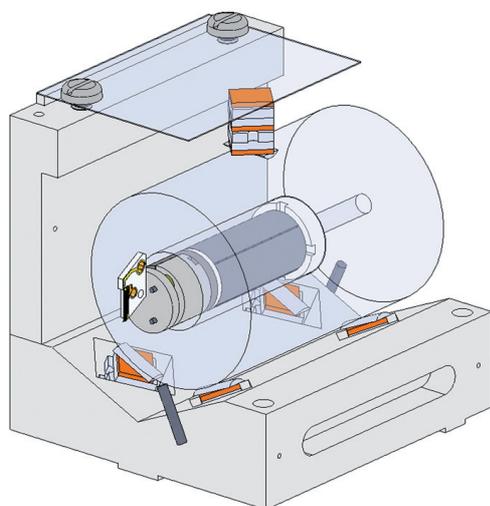


Abbildung 5.22: Zeichnung von Chassis und Andruckmechanik des Mikroskopkopfs mit den Piezostapeln und dem auf den Gleitschienen gelagerten Schlitten.

realisieren zwei zueinander senkrechte Bewegungsrichtungen. Die Stapel sind an Chassis und Andruckmechanik so angebracht, dass die Deformationsrichtungen der beiden Teilstapel jeweils einen Winkel von 45° mit der Rotationsachse des Schlittens einschließen. Die gewünschten Antriebsbewegungen parallel oder senkrecht zur Rotationsachse entstehen durch Kombination der Auslenkungen beider Piezostapel. Durch Vertauschung der Polung eines Teilstapels gegenüber dem anderen werden zwei zueinander senkrecht stehende Gesamtauslenkungen erreicht. Im Vergleich zu isolierter Nutzung der Bewegung jeweils eines Teilstapels für eine Bewegungsrichtung des Schlittens ist bei dieser Bauart die Gesamthöhe der Piezostapel bei gleichbleibender Gesamtauslenkung je Spannungseinheit um den Faktor $1/\sqrt{2}$ kleiner, einhergehend mit erhöhter Steifigkeit der Piezostapel. Die Verschaltung der Piezostapel ist in den Abbildungen C.1 und C.2 beschrieben, ihre Ansteuerung zur Realisierung der Translation und Rotation des Schlittens geht aus dem Schaltplan der passiven Schnittstelle (Abb. B.14) hervor.

Da der Schlitten besonders einfach aufgebaut ist, muss der Scanner nicht getrennt vom Schlitten austauschbar sein. Der Scanner kann mit dem Schlitten verklebt werden und ist so kaum der Gefahr der Lockerung ausgesetzt, die bei wieder auf-trennbaren Verbindungen unter dem Einfluss von Temperaturzyklen häufig besteht. Die Art der Anbringung des Scanners am Schlitten geht aus Abb. 5.23 hervor. Das Piezoröhrchen klebt an einer zylindrischen Montageplatte aus Macor, die mit Nuten und einer konzentrischen Bohrung zur Durchführung der Hochspannungszuleitungen versehen ist (vgl. Abb. 5.24b). Die Montageplatte ist mit dem Schlittenkörper verklebt. Die Hochspannungszuleitungen für den Scanner sind nahe dem fixierten Ende des Piezoröhrchens angelötet. Sie verlaufen durch die vom freien Ende wegführende Bohrung im Schlittenkörper nach außen. Die

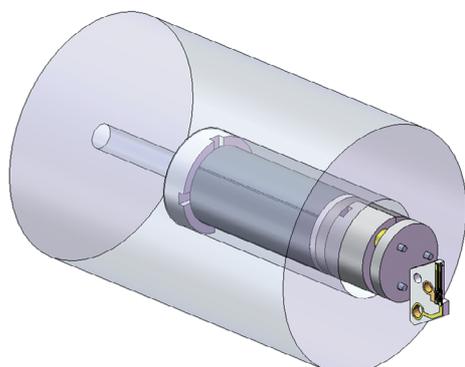


Abbildung 5.23: Zeichnung des Schlittens mit angebrachtem Scanner.

Bohrung entlüftet gleichzeitig das Innere des Piezoröhrchens.

Der qPlus-Kraftsensor war vormals fest mit dem Scanner verklebt. Zum Austausch des Kraftsensors musste die Verklebung der Stimmgabel mit dem Aluminiumoxid-Substrat gelöst werden. Der neu entwickelte Stecksockel für den Kraftsensor (s. Abb. 5.24) erleichtert den Sensortausch. Der Stecksockel besteht aus einer dünnen zylindrischen Macor-Grundplatte mit drei Bohrungen, in die Steckstifte aus Platin-Iridium-Draht (90 % Pt, 10 % Ir) eingeklebt sind. Das Aluminiumoxid-Substrat des Scanners ist mit dieser Grundplatte verklebt. Die elektrische Verbindung der Steckstifte mit den Anschlüssen des Sensorsubstrats wird mittels kurzer verlöteter Drähte hergestellt. Die am freien Ende des Scanners angebrachte Steckfassung besteht aus einem Titan- und einem Macor-Teil. Drei vollvergoldete Messingbuchsen mit Berylliumkupfer-Kontaktfedern (Metall-DIL-Carrier Art.-Nr. MC 08.3 SGG SC U, MPE-Garry GmbH [68]) nehmen die Steckstifte des Sockels auf. Das Titanteil der Fassung wird zur Abschirmung des Sockels vom Scanner auf Erdpotential gelegt. Die Anschlussleitungen der Fassung sind mit der geschlossenen Seite der Messingbuchsen verlötet. Stecksockel und Fassung weisen zusammen eine geringe Masse und Bauhöhe auf. Zum Zeitpunkt des Schreibens handelt es sich bei dem Stecksockel um eine noch junge Entwicklung. Die bisherige Erprobung brachte vielversprechende Resultate.

Abbildung 5.25 zeigt fotografische Ansichten des neu entwickelten Mikroskopkopfs und einiger seiner Baugruppen. Abgebildet ist ein Prototyp, der noch nicht mit dem Kraftsensor-Stecksockel ausgestattet ist. In Abb. 5.25a ist der Schlitten mit graphitbeschichteter Außenfläche zu sehen. Die geringe Stärke der Graphitschicht ist an der verbleibenden Transparenz zu erkennen. Chassis und Andruckmechanik mit angebrachten Piezostapeln sind in Abb. 5.25b dargestellt. In Abb. 5.25c wurde der Schlitten in seine Führung eingelegt. Abbildung 5.25d schließlich zeigt den Mikroskopkopf in Gesamtansicht.

Der neue Mikroskopkopf stellte eine wesentliche Verbesserung der Anlage dar.

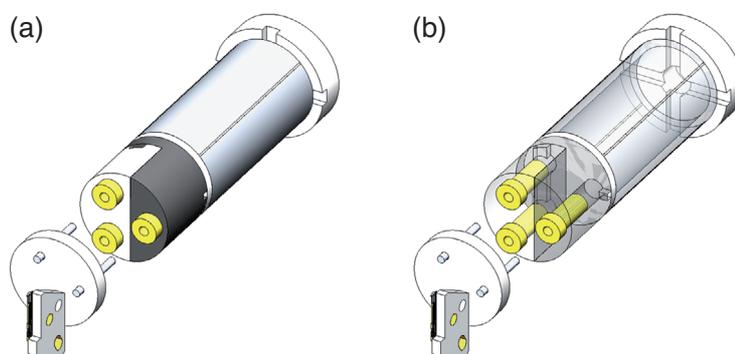


Abbildung 5.24: Zeichnung des Scanners mit abgezogenem Sensor-Stecksockel mit opaker (a) und transparenter (b) Darstellung des Piezoröhrchens sowie einiger Teile der Fassung.

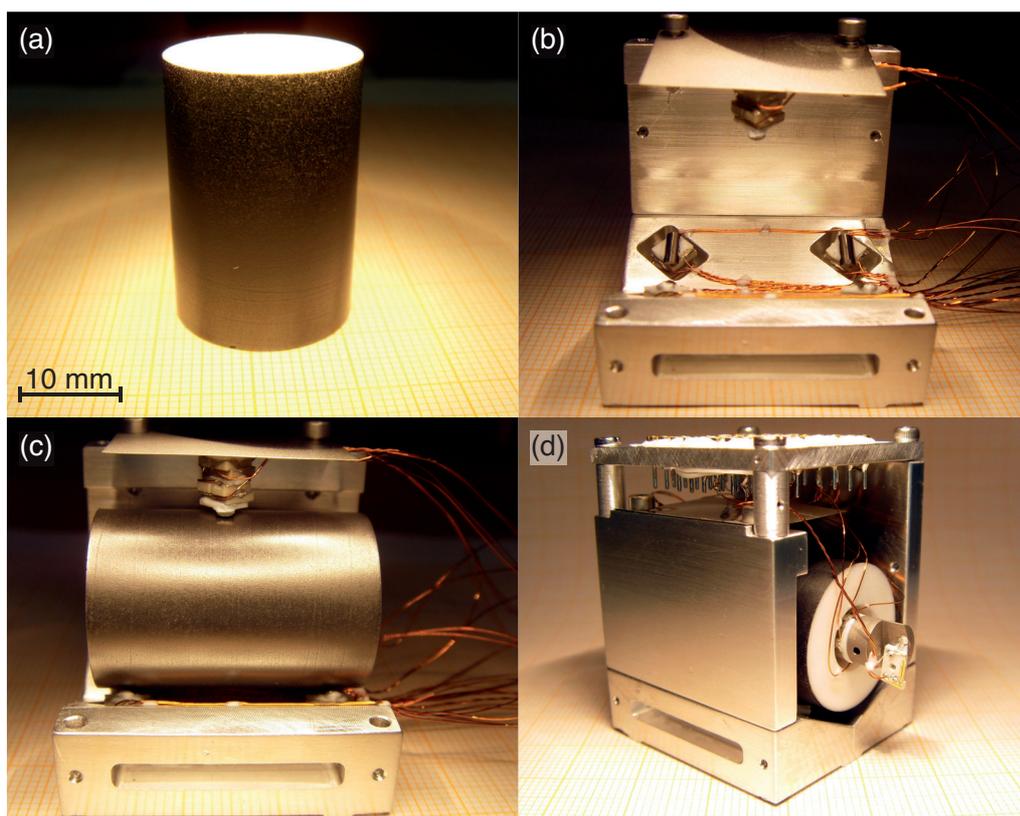


Abbildung 5.25: Fotografische Ansichten des neu entwickelten Mikroskopkopfs. Abgebildet ist ein Prototyp mit provisorischer Führung der Scanner-Zuleitungen und fest angebrachtem qPlus-Kraftsensor.

Sowohl die Translation, als auch die Rotation des Schlittens funktionierten auch bei Heliumtemperatur zuverlässig. Eine Rotationsbewegung war mit einer nur sehr geringen, insbesondere aber stets reproduzierbaren Translation des Schlittens verbunden. Konkurrierende Konstruktionen mehrachsiger Trägheitsmotoren haben häufig mit großen Bewegungen der Spitze in andere als die jeweils angesteuerte Richtung zu kämpfen. Die mit der hier vorgestellten Konstruktion erreichte saubere Trennung der Bewegungsrichtungen ist ein Verdienst der Verwendung eines zylindrischen Schlittens, der so gelagert ist, dass genau die beiden mechanischen Freiheitsgrade verbleiben, die der gewünschten Schlittenbewegung entsprechen. Zur Bewegung des Trägheitsmotors war auch bei Heliumtemperatur kein Beheizen der piezoelektrischen Antriebselemente notwendig. Die Vermeidung der vormals mit Motorbewegungen häufig verbundenen thermischen Drift beschleunigte die Grobannäherung der Spitze an die Probe erheblich, sie beanspruchte meist nur noch wenige Minuten. Die neue Möglichkeit, die Spitze parallel zur Probenebene zu verschieben, brachte eine sogar noch größere Effektivitätssteigerung. Eine Spitzenpräparation durch Feldemission führt in der Regel zu lokalen Veränderungen der Probe, die das Anfahren einer neuen Probenstelle erforderlich machen. Hierzu wurde vormals die Probe mittels eines Manipulators des Transfersystems verschoben. Dazu musste der Kupferzylinder unter Erwärmung auf eine Temperatur von etwa 80 K auf Transferposition gebracht und nach dem Verschieben der Probe wieder eingekühlt werden. Dieser Prozess beanspruchte mehrere Stunden. Mit dem neuen Trägheitsantrieb kann eine neue Probenposition in wenigen Minuten erreicht werden. Der zweiachsige Trägheitsantrieb ermöglicht allerdings nicht nur eine Steigerung der Effizienz, er eröffnet auch grundlegend neue experimentelle Perspektiven. Probenstrukturen wie etwa Korngrenzen können durch seitliches Verschieben der Spitze in der Probenebene zur rastersondenmikroskopischen Untersuchung angefahren werden.

6 Untersuchung der LaAlO₃-SrTiO₃-Heterostruktur

Die Entdeckung eines metallischen, zweidimensionalen Elektronensystems an der LaAlO₃-SrTiO₃-Grenzfläche [1–3] warf die Frage nach der mikroskopischen Struktur von Elektronensystemen an Grenzflächen komplexer Oxide auf. Theoretische Modelle [69–72] beschrieben eine Elektronenbesetzung grenzflächennaher Ti 3*d*-Orbitale als Ursache der metallischen Leitfähigkeit der LaAlO₃-SrTiO₃-Grenzfläche. Die elektronische Zustandsdichte ist eine grundlegende charakteristische Größe von Elektronensystemen, die sowohl berechnet als auch gemessen werden kann und somit einen Vergleich theoretischer Modelle mit experimentellen Befunden ermöglicht. Die Zielsetzung der vorliegenden Arbeit war die Bestimmung der elektronischen Zustandsdichte von LaAlO₃-SrTiO₃-Doppellagen mittels Rastertunnelspektroskopie. Dies gelang mit der in Abb. 1.1 auf Seite 7 skizzierten Versuchsanordnung [7].

6.1 Probenherstellung

Die vier Einheitszellen dicken LaAlO₃-Filme wurden mittels Laserpulsepitaxie auf TiO₂-terminierten (001)-Oberflächen [73, 74] von SrTiO₃-Einkristallen abgeschieden. Die Deposition wurde jeweils bei einer Substrattemperatur von 780 °C und einem Sauerstoff-Hintergrunddruck von $8 \cdot 10^{-5}$ mbar vorgenommen. Das Filmwachstum wurde mittels RHEED kontrolliert. Die Abkühlung erfolgte über 2,5 Stunden bei einem Sauerstoff-Hintergrunddruck von 400 mbar und umfasste einen einstündigen Oxidationsschritt bei einer Proben temperatur von 600 °C [55].

Zur tunnelmikroskopischen Untersuchung wurden die Proben auf einem Proben-träger des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops befestigt und eine elektrisch leitfähige Verbindung zwischen der LaAlO₃-SrTiO₃-Grenzfläche und dem Proben-träger wurde hergestellt. Die verwendete Anordnung ist in Abb. 6.1 skizziert.

Das etablierte Verfahren zur elektrischen Kontaktierung von LaAlO₃-SrTiO₃-Grenzflächen besteht in der Definition von Elektrodenflächen als fotolithografisches Negativ mittels auf den LaAlO₃-Film aufgetragenen Fotolacks, einer Ab-

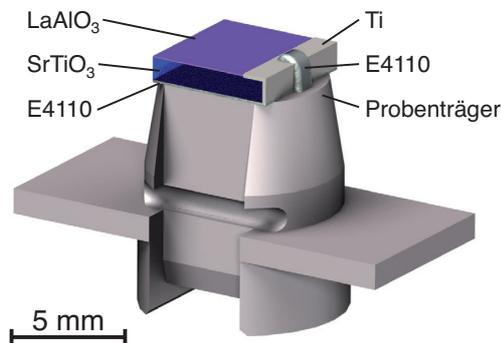


Abbildung 6.1: Skizze einer LaAlO_3 - SrTiO_3 -Probe auf einem Probenträger des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops mit kontaktierter Grenzfläche.

tragung des LaAlO_3 -Films durch Ionenätzen und schließlich der Aufbringung von Gold als Elektrodenmaterial durch Kathodenzerstäubung [2]. Dieses Verfahren wurde modifiziert, um eine Kontamination der LaAlO_3 -Filmoberflächen durch Rückstände des Fotolacks zu vermeiden und um die Oberflächenpräparation durch Heizen zu ermöglichen. Die in Abb. 6.2 gezeigten Fotografien illustrieren die zur Grenzflächenkontaktierung durchgeführten Schritte. Die Proben wurden zunächst mittels elektrisch leitfähigen Epoxidharzklebstoffs E4110 auf einen Probenträger aufgeklebt (Abb. 6.2a). Mittels einer Schattenmaske aus Aluminiumfolie wurde als Elektrodenfläche ein Streifen entlang einer Probekante definiert (Abb. 6.2b). Die Schattenmaske wurde am Probenträger mit Leitsilber (Leitsilber G3303A [75]) fixiert. Innerhalb des durch die Schattenmaske definierten Streifens wurde das SrTiO_3 -Substrat durch Argon-Ionenätzen (3 cm Ionenquelle, Commonwealth Scientific Corporation [76]; Beschleunigungsspannung 500 V, Strahlstrom 10 mA, Ätzzeit 3 min) freigelegt und mittels Elektronenstrahlverdampfens (Telemark 568 UHV-Elektronenstrahlverdampfer [77]; Strahlstrom 200 mA, Depositionszeit 10 min) mit Titan als Kontaktmaterial bedeckt (Abb. 6.2c). Abbildung 6.2d zeigt die Probe nach Entfernen der Schattenmaske. Der Bedampfungswinkel bei der Titandeposition betrug 45° gegenüber der Probenoberfläche, so dass auch die an die Elektrodenfläche anschließende Probenflanke mit Titan bedeckt wurde. Das Titan stellt somit direkt den Kontakt zwischen Grenzfläche und Probenträger her. Zusätzlich wurde die Titan-Elektrode mittels einer Brücke aus leitfähigem Epoxidharzklebstoff E4110 mit dem Probenträger verbunden (s. Abb. 6.1). Die Aufbringung des Kontaktmetalls durch Elektronenstrahlverdampfen vermeidet die bei Kathodenzerstäubung gegebene Gefahr der Unterwanderung der Schattenmaske. Titan als Elektrodenmaterial weist bei erhöhten Temperaturen eine weit geringere Neigung zur Oberflächendiffusion als Gold auf. Titan-Elektroden erwiesen sich als geeignet für die durchgeführte Probenpräparation durch Heizen.

Wird die so kontaktierte Probe in das Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop eingebaut, so ergibt sich insgesamt die in Abb. 6.3 dargestellte Verschaltung. Die

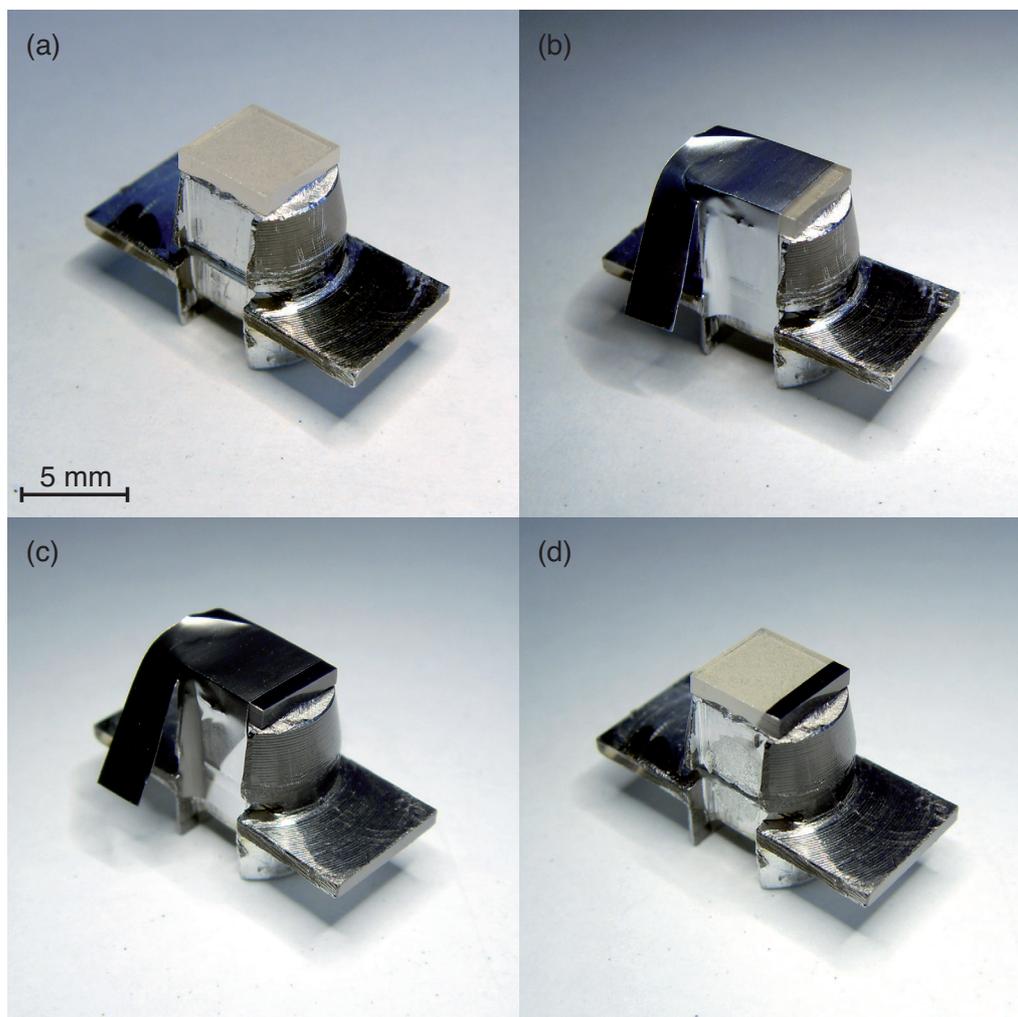


Abbildung 6.2: Fotografische Dokumentation von Teilschritten der Grenzflächenkontaktierung mittels einer Titan-Elektrode. Die auf den Probenträger aufgeklebte Probe (a) wurde mit einer Schattenmaske aus Aluminiumfolie versehen (b). Nach dem Ionenätzen wurde die Titan-Elektrode aufgebracht (c) und die Schattenmaske entfernt (d).

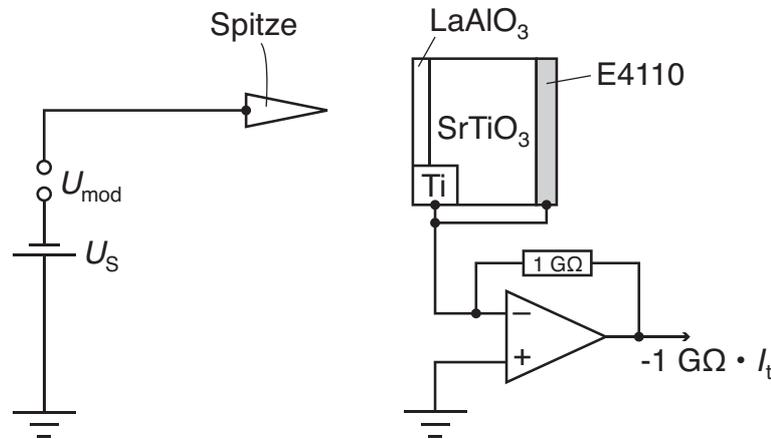


Abbildung 6.3: Verschaltung der kontaktierten LaAlO_3 - SrTiO_3 -Probe zur Messung des zur Grenzfläche fließenden Tunnelstroms (vereinfacht).

Titan-Elektrode und damit die Grenzfläche der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostruktur liegen zusammen mit dem leitfähigem Epoxidharzklebstoff E4110 an der Probenrückseite (und dem Probenträger) auf Erdpotential und damit auf dem Potential U_S gegenüber der Spitze.

6.2 Probenpräparation durch Heizen

Die Kontaktierung der Proben und ihr Transfer in das Vakuumsystem des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops waren mit Luftexposition verbunden. Um einen reproduzierbaren Zustand der LaAlO_3 -Filmoberflächen herzustellen, wurden die Proben vor der rastersondenmikroskopischen Untersuchung im Probenpräparationssystem des Mikroskops auf eine Temperatur von $\approx 400^\circ\text{C}$ bei einem Sauerstoffdruck von 10^{-2} mbar und einem Hintergrunddruck undefinierter Fremdgase von $\approx 5 \cdot 10^{-7}$ mbar geheizt. Der Sauerstoffhintergrunddruck während des Heizens ist notwendig, um eine Bildung von Sauerstoff-Leerstellen in den LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen zu vermeiden. Zum Heizen wurde die Probe im Brennpunkt des Halogenglühlampen-Reflektors angeordnet und die Glühlampe für eine Stunde mit einer Leistung von 40 W betrieben. Danach wurde die Heizung durch schrittweises Zurückfahren der Heizleistung über eine Zeitspanne von acht Minuten abgestellt. Die Sauerstoffzufuhr wurde mit Erreichen einer Heizleistung von 0 W unterbrochen.

Mit dieser Präparationsmethode sind atomar saubere Probenoberflächen nicht er-

reichbar. Schon die zusammen mit dem Sauerstoff eingetragenen Fremdgase verursachen eine Adsorbatbelegung der Filmoberflächen. Es zeigte sich, dass auf der LaAlO_3 -Oberfläche verbleibende Adsorbate reproduzierbarer Rastertunnelspektroskopie nicht prinzipiell im Wege stehen. Die Oberflächenreinigung durch Heizen erwies sich als nicht zwingend notwendig, um stabiles Tunneln erreichen zu können, schien stabiles Tunneln jedoch wahrscheinlicher zu machen.

6.3 Untersuchte Proben

Die in den Abschnitten 6.5 – 6.7 vorgestellten Messdaten wurden an den in Tabelle 6.1 aufgeführten LaAlO_3 - SrTiO_3 -Proben gemessen. Die Tabelle gibt einen Überblick über die jeweils zur Grenzflächenkontaktierung verwendeten Elektrodenmaterialien, die zur Oberflächenpräparation verwendeten Heizparameter und die jeweils angewandte Art der Tunnelstromdetektion. Zur Grenzflächenkontaktierung von Probe 5 wurde im Unterschied zu den anderen Proben eine Goldelektrode durch Kathodenerstäubung (Agar Sputter Coater Mod. 108 [78], Depositionszeit 200 s) aufgebracht. Die sonstigen Prozess-Schritte zur Kontaktierung von Probe 5 entsprechen dem in Abschnitt 6.1 beschriebenen Verfahren. Außer bei Probe 2 erfolgte die Tunnelstromdetektion bei allen Proben gemäß Abb. 6.3 durch Messung des von der Probe abfließenden Stroms. Probe 2 verfügte im Unterschied zu den anderen Proben über ein kontaktiertes Backgate, der Tunnelstrom wurde hier über den zur Spitze fließenden Strom detektiert. Details hierzu finden sich in Anhang F. Die LaAlO_3 -Filmdicke beträgt bei allen Proben jeweils vier Einheitszellen, die Filmdeposition erfolgte mit den in Abschnitt 6.1 angegebenen Parametern. Die Substratpräparation und die Filmdeposition zur Herstellung der untersuchten Proben wurden überwiegend von Stefan Paetel und Christoph Richter durchgeführt.

Da Sauerstoff-Leerstellen, falls vorhanden, in SrTiO_3 zu metallischer Leitfähigkeit führen, wurde besonderes Augenmerk auf einen möglichen Einfluss der in Abschnitt 6.2 beschriebenen Oberflächenpräparation durch Heizen auf die elektronischen Eigenschaften der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen gerichtet. Auf TiO_2 -terminierte SrTiO_3 -Substrate angewandt führte die Heizprozedur mit den in Abschnitt 6.2 angegebenen Parametern zu keiner in Transportmessungen nachweisbaren Leitfähigkeit des SrTiO_3 (elektrischer Widerstand $> 2 \cdot 10^{10} \Omega$ zwischen drahtgebondeten Kontakten). Weiterhin wurden an mehreren LaAlO_3 - SrTiO_3 -Proben nach deren rastersondenmikroskopischen Untersuchung Transportmessungen durchgeführt. Abbildung 6.4 zeigt typische hierbei erhaltene Charakteristiken. Die Transportkennlinien unterschiedlicher Proben wiesen eine nur geringe Streuung auf und zeigten durchweg die zu erwartenden Merkmale [2]. Die

Proben-Nr.	Grenzflächenkontaktierung	Heizparameter	Tunnelstromdetektion
1	Ti-Elektrode	$P = 40 \text{ W}$ $p_{\text{O}_2} = 10^{-2} \text{ mbar}$	über die Probe
2	Ti-Elektrode	nicht geheizt	über die Spitze
3	Ti-Elektrode	$P = 40 \text{ W}$ $p_{\text{O}_2} = 10^{-2} \text{ mbar}$	über die Probe
4	Ti-Elektrode	$P = 40 \text{ W}$ $p_{\text{O}_2} = 10^{-2} \text{ mbar}$	über die Probe
5	Au-Elektrode	nicht geheizt	über die Probe

Tabelle 6.1: Übersicht über die bei den untersuchten Proben jeweils zur Grenzflächenkontaktierung verwendeten Elektrodenmaterialien, die zur Oberflächenpräparation verwendeten Heizparameter und die jeweils angewandte Art der Tunnelstromdetektion.

Flächendichte der Ladungsträger von Probe 3, bestimmt mittels einer Hall-Messung, betrug $3 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ bei Raumtemperatur und $2 \cdot 10^{13} \text{ cm}^{-2}$ bei Heliumtemperatur, wobei mit unterschiedlichen Kontaktanordnungen an dieser Probe gemessene $R(T)$ -Kennlinien auf eine leichte Inhomogenität hindeuteten. Aufgrund der Transportcharakteristiken der Proben kann davon ausgegangen werden, dass die Oberflächenpräparation nach der in Abschnitt 6.2 beschriebenen Methode die elektronischen Eigenschaften der untersuchten LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen nicht veränderte.

6.4 Spitzenpräparation

Eine Präparation der Iridium-Spitze mittels Feldemission bei Spannungen bis $U_S = 400 \text{ V}$ und Emissionsströmen bis zu mehreren Mikroampere, während sich die Spitze in der Nähe der LaAlO_3 -Filmoberfläche befand, war für reproduzierbare Resultate topografischer Abbildung der Proben mittels Rastertunnelmikroskopie und der Rastertunnelspektroskopie notwendig. Zur Feldemission wurde die Spitze gegenüber gewöhnlicher Tunneldistanz um einige 100 nm von der Probenoberfläche entfernt und die Spannung U_S schrittweise auf höchstens 400 V gesteigert, bis im Idealfall der Emissionsstrom von mehreren Mikroampere auf Bruchteile eines Mikroamperes abfiel [29]. Durch die Feldemissionsprozedur wurde die Probe meist lokal am Ort der Spitze beschädigt. Mitunter zeigten nach einer Feldemission aufgenommene topografische Bilder größere Materialansammlungen am Ort der Feldemission. Daher wurde die Spitze zur Feldemission stets

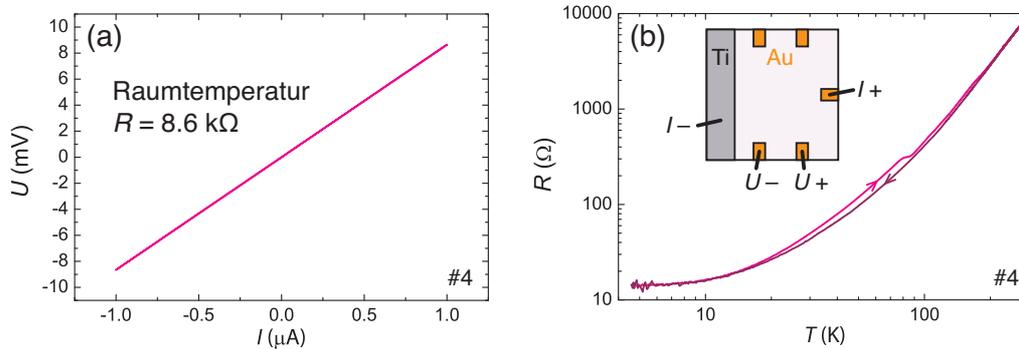


Abbildung 6.4: Gemessene $U(I)$ - (a) und $R(T)$ -Kennlinie (b) von Probe 4. Die in (b) eingefügte Skizze zeigt die für beide Messungen verwendete Kontaktanordnung. Die in der $R(T)$ -Kennlinie bei ansteigender Temperatur erkennbaren Stufen traten bei mehreren der untersuchten Proben auf (Transportmessungen durchgeführt von Stefan Paetel).

in einer Entfernung von mindestens mehreren Mikrometern von zu untersuchenden Probenbereichen platziert. Es ist nicht zu erwarten, dass die Feldemission über der LaAlO_3 -Filmoberfläche in einer atomar sauberen metallischen Spitze resultiert. Wiederholte Spitzenpräparation durch Feldemission ermöglichte jedoch eine topografische Abbildung der Probenoberflächen mittels Rastertunnelmikroskopie sowie stabiles Tunneln, also die Reduktion spontaner Fluktuationen des Tunnelstroms I_t und des differentiellen Tunnel-Leitwerts $\partial I_t / \partial U_S$ auf ein Maß, das eine Aussage von Tunnelspektren über die elektronische Zustandsdichte der Probe zuließ.

6.5 Topografieabbildung

Abbildung 6.5 zeigt rastersondenmikroskopische Topografiebilder von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostrukturen. Sowohl mittels Frequenzmodulations-Kraftmikroskopie als auch mittels Rastertunnelmikroskopie kann die bekannte aus dem leichten Fehlschnitt der SrTiO_3 -Substrate resultierende Stufen- und Terrassenstruktur der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen aufgelöst werden. Die Stufenhöhe von $\approx 4 \text{ \AA}$ entspricht der Höhe einer SrTiO_3 -Einheitszelle. Zur z -Kalibrierung des Rastersondenmikroskops wurde die Stufenhöhe im kraftmikroskopischen Bild in Abb. 6.5a herangezogen. Das Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopiebild zeigt eine topografische Rauheit von $0,7 \text{ \AA}_{\text{rms}}$. Möglicherweise trägt eine Variation der Schwingungsamplitude des Cantilevers aufgrund von Dissipation zur abgebilde-

ten Rauheit bei. Die topografische Rauheit des rastertunnelmikroskopischen Bildes in Abb. 6.5c von $1 \text{ \AA}_{\text{rms}}$ kann mit adsorbatinduzierten lokalen Variationen der Tunnelbarrieren-Höhe zusammenhängen. Während der rastertunnelmikroskopischen Messung erfolgte keine mechanische Schwingungsanregung des Cantilevers.

6.6 Spektroskopie

Bei der Tunnelspektroskopie wird der normierte differentielle Leitwert $\text{NDC}(U_S)$ als Maß für die Zustandsdichte der Probe $D_S(\mu_S + eU_S)$ bestimmt. Zur Aufzeichnung eines Tunnelspektrums wird zunächst die Spitze durch Vorwahl der entsprechenden x - und y -Koordinatenwerte oberhalb der gewünschten Probenstelle positioniert. Der Spitzen-Probenabstand wird so eingestellt, dass bei einer vorgewählten Tunnelspannung $U_{S,\text{stab}}$, der Stabilisierungsspannung, ein bestimmter Tunnelstrom $I_{t,\text{stab}}$, der Stabilisierungsstrom, fließt. Zur Stabilisierung des Spitzen-Probenabstandes wird die Tunnelspannung $U_{S,\text{stab}}$ eingestellt und die z -Regelschleife aktiviert, wobei als Sollwert des Tunnelstroms $I_{t,\text{stab}}$ gewählt wird. Sobald sich eine konstante z -Höhe eingestellt hat, bei welcher der Tunnelstrom dem Stabilisierungsstrom $I_{t,\text{stab}}$ entspricht, wird die Raumposition der Spitze relativ zur Probe durch Deaktivierung der z -Regelschleife fixiert, die Stabilisierungsprozedur ist beendet. Nach erfolgter Stabilisierung werden bei festgehaltener Spitzenposition Verläufe des Tunnelstroms $I_t(U_S)$ und des differentiellen Leitwerts $\partial I_t / \partial U_S(U_S)$ simultan aufgezeichnet, wobei die Spannung U_S das Intervall $(U_{S,\text{min}}, U_{S,\text{max}})$ nacheinander in auf- und absteigender Richtung durchläuft. Die Zeitdauer je Durchlaufrichtung betrug für alle in der vorliegenden Arbeit gezeigten Spektren 120 Sekunden. Tunnelspektren der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostruktur wurden ausschließlich in Probenbereichen aufgezeichnet, in denen die Stufen- und Terrassenstruktur der Doppellagen mittels topografischer Rastertunnelmikroskopie aufgelöst werden konnte. Eine mechanische Schwingungsanregung des Cantilevers erfolgte weder während der Spitzenstabilisierung, noch während der Aufzeichnung von Tunnelspektren. Abbildung 6.6 zeigt Auftragungen des Tunnelstroms $I_t(U_S)$, des differentiellen Leitwerts $\partial I_t / \partial U_S(U_S)$ und des normierten differentiellen Leitwerts $\text{NDC}(U_S)$ eines typischen Tunnelspektrums, gemessen mit der in Abb. 6.3 skizzierten Anordnung an einer LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellage mit vier Einheitszellen LaAlO_3 . Der in Abb. 6.6b aufgetragene differentielle Leitwert ist mittels des Synchrongleichrichters gemessen. Die dynamische Messung mittels des Synchrongleichrichters und eine numerische Differentiation des Tunnelstroms $I_t(U_S)$ nach der Tunnelspannung U_S lieferten konsistente Resultate für den differentiellen Leitwert $\partial I_t / \partial U_S(U_S)$ (vgl. Abb. 6.7).

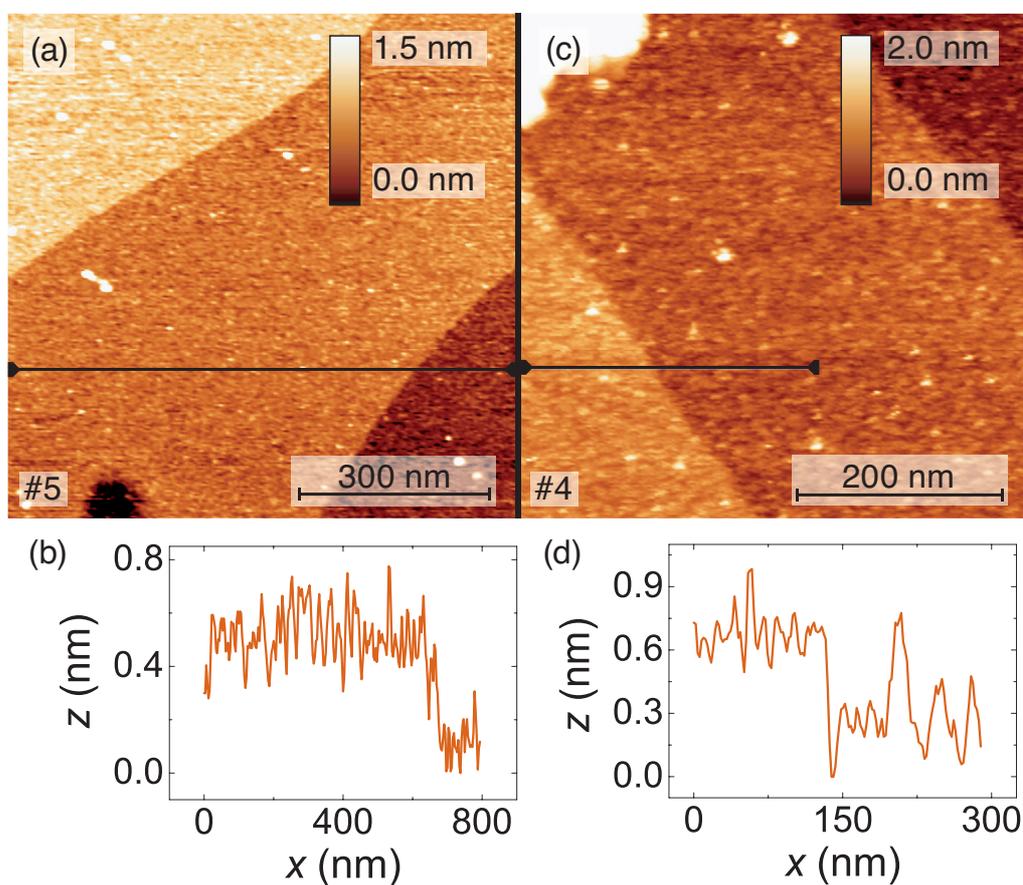


Abbildung 6.5: Rastersondenmikroskopische Topografiebilder von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostrukturen. (a) Topografisches Frequenzmodulations-Rasterkraftmikroskopie-Bild des LaAlO_3 -Films, aufgezeichnet mit einer Rastergeschwindigkeit von 16 nm/s , einer Tunnelspannung $U_s = 0,1 \text{ V}$ und einer Frequenzverschiebung $\Delta f = -5 \text{ Hz}$. Die Eigenfrequenz des Cantilevers betrug $24296,8 \text{ Hz}$, die Güte 17832 , die Amplitude des frei schwingenden Cantilevers $1,8 \text{ \AA}$. (b) Profil entlang der in (a) eingezeichneten Linie. (c) Rastertunnelmikroskopisches Topografiebild, gemessen auf der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostruktur mit einer Rastergeschwindigkeit von 5 nm/s , einer Tunnelspannung $U_s = 2 \text{ V}$ und einem Tunnelstrom-Sollwert von 10 pA . (d) Profil entlang der in (c) eingezeichneten Linie. Alle Daten wurden bei einer Temperatur von $4,7 \text{ K}$ aufgezeichnet (aus Ref. [7]).

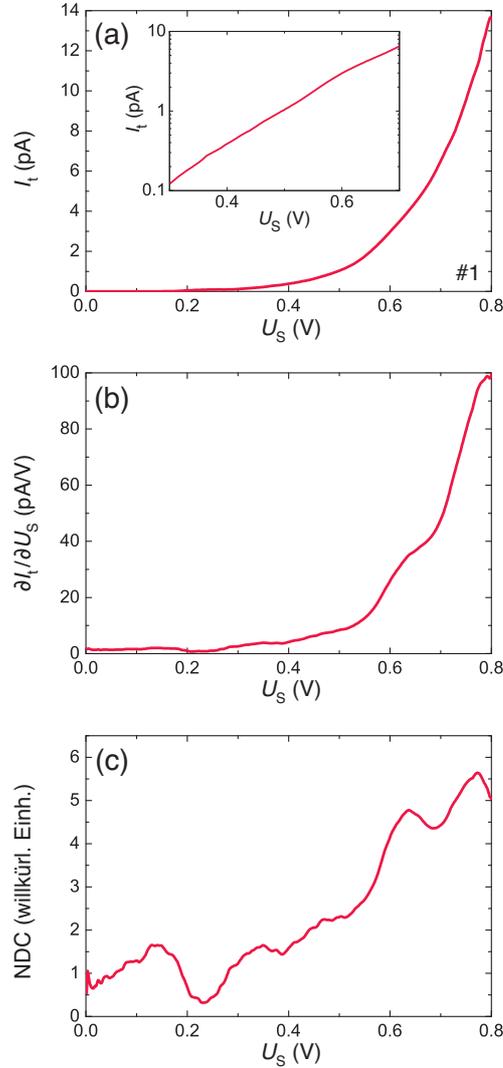


Abbildung 6.6: Gemessene Verläufe des Tunnelstroms $I_t(U_S)$ **(a)**, des differentiellen Leitwerts $\partial I_t / \partial U_S(U_S)$ **(b)** und des normierten differentiellen Leitwerts $NDC(U_S) = (\partial I_t / \partial U_S) / (I_t / U_S + \zeta)(U_S)$ mit $\zeta = 1$ pA/V **(c)** eines Tunnel-spektrums der LaAlO₃-SrTiO₃-Heterostruktur. Die Spitze war in bezogen auf die Terrassenbreite weiter Entfernung zu topografischen Stufen positioniert. Die Messung wurde bei 4,7 K bei festgehaltenem Spitzen-Probenabstand durchgeführt. Stabilisierungsparameter: $U_{S,stab} = 0,8$ V, $I_{t,stab} = 12$ pA. Die gezeigten Daten sind jeweils über ein Spannungsintervall von 75 mV gemittelt.

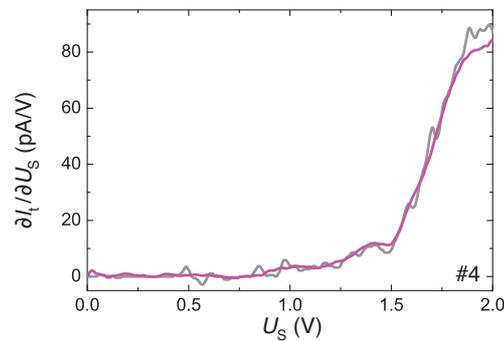


Abbildung 6.7: Vergleich der Verläufe des differentiellen Leitwerts $\partial I_t/\partial U_S(U_S)$ eines Tunnelspektrums der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostruktur, gemessen mittels des Synchrongleichrichters (violett) und bestimmt durch numerische Differentiation (grau). Die Spitze war in bezogen auf die Terrassenbreite weiter Entfernung zu topografischen Stufen positioniert. Die Messung wurde bei 4,7 K bei festgehaltenem Spitzen-Probenabstand durchgeführt. Stabilisierungsparameter: $U_{S,\text{stab}} = 2,4 \text{ V}$, $I_{t,\text{stab}} = 70 \text{ pA}$. Die gezeigten Daten sind jeweils über ein Spannungsintervall von 75 mV gemittelt. Der gemessene Verlauf des Tunnelstroms $I_t(U_S)$ wurde vor der numerischen Differentiation über ein Spannungsintervall von 29 mV gemittelt.

Gemessene Verläufe des Tunnelstroms $I_t(U_S)$ und des differentiellen Leitwerts $\partial I_t/\partial U_S(U_S)$ können von einer Reihe von Störeinflüssen geprägt sein. Die Frage, unter welchen Voraussetzungen ein Tunnelspektrum $\text{NDC}(U_S)$ tatsächlich die Zustandsdichte der Probe $D_S(\mu_S + eU_S)$ charakterisiert und nicht von anderen Einflussgrößen dominiert ist, war für die vorliegende Arbeit von zentraler Bedeutung. Oxidgrenzflächen waren zuvor noch nicht mittels Rastertunnelspektroskopie bei zur Grenzfläche senkrechter Tunnelrichtung untersucht worden. Als besondere Schwierigkeit erwiesen sich hierbei häufig auftretende Fluktuationen des Tunnelstroms oder des differentiellen Leitwerts in der Form von Welligkeit oder von Sprüngen dieser Größen bei festgehaltenen äußeren Parametern. Fluktuationen des Tunnelstroms und des differentiellen Leitwerts traten auf Zeitskalen von Sekundenbruchteilen bis hin zu mehreren Minuten auf. Fluktuationen auf kürzeren Zeitskalen verursachten Rauschen, Fluktuationen auf längeren Zeitskalen Hysteresen in den Tunnelspektren. Wird die elektronische Zustandsdichte der Probe als zeitlich unveränderlich angenommen, so müssen Veränderungen des differentiellen Tunnel-Leitwerts bei konstant gehaltener Tunnelspannung anderen Einflüssen als der Proben-Zustandsdichte zugeschrieben werden. Unabhängig von ihrer konkreten Ursache stören spontane Fluktuationen des Tunnelstroms oder

des differentiellen Tunnel-Leitwerts eine Messung des Leitwerts als Funktion der Tunnelspannung, indem sie die spektroskopische Auflösung herabsetzen oder indem sie spektroskopische Merkmale hervorbringen, die nicht mit der Proben-Zustandsdichte zusammenhängen. Die wichtigste Voraussetzung für die Aufzeichnung von über die Proben-Zustandsdichte aussagekräftigen Tunnelspektren war daher stabiles Tunneln, d. h. die weitgehende Abwesenheit von spontanen Fluktuationen des Tunnelstroms und des differentiellen Leitwerts. Schwankungen in diesen Größen zeigten sich zwar meist, jedoch nicht immer, in Rauheit und Hysterese aufgezeichneter Tunnelspektren. In eine Beurteilung der Aussagekraft einer tunnelspektroskopischen Messung ging daher neben dem Erscheinungsbild der Verläufe $I_t(U_S)$ und $\partial I_t/\partial U_S(U_S)$ auch die qualitative Beobachtung dieser Größen während der Datenaufzeichnung am Oszilloskop ein.

Weiterhin wurden während einer Mess-Sitzung bei festgehaltener Spitzenposition spontan auftretende Änderungen der Tunnelbedingungen nicht immer anhand von Fluktuationen des Tunnelstroms oder des differentiellen Leitwerts offensichtlich. Mitunter zeigte sich der Einfluss spontan veränderlicher Tunnelbedingungen erst in unterschiedlichem Erscheinungsbild aufeinanderfolgender Spektren, selbst wenn diese für sich genommen rauscharm und von nur geringer Hysterese geprägt waren. Spektroskopische Merkmale, die sich in aufeinanderfolgenden Spektren unterscheiden, können nicht zur Charakterisierung der Zustandsdichte herangezogen werden. Ergeben mit unveränderten Parametern während einer Mess-Sitzung wiederholte Messungen qualitativ unterschiedliche Tunnelspektren, so muss davon ausgegangen werden, dass Merkmalen der Spektren dieser Sitzung andere Einflussgrößen als die Zustandsdichte der Probe zugrunde liegen.

Wie beschrieben, konnten stabiles Tunneln und konsistente spektroskopische Resultate durch wiederholte Spitzenpräparation mittels Feldemission erreicht werden. Nach Positionierung der Spitze über einer neuen Probenstelle wurde die Spitze stets für eine Stunde stabilisiert. In dieser Zeit kam ein Kriechen des Scannerpiezos zum Erliegen und ein zunächst moderat fluktuierender Tunnelstrom stabilisierte sich mitunter. Verglichen mit den Verhältnissen bei nicht durch Heizen präparierten Proben schien sich mit Proben, die der beschriebenen Heizprozedur unterzogen worden waren, mit höherer Wahrscheinlichkeit stabiles Tunneln einzustellen. Allgemein war stabiles Tunneln umso seltener zu erreichen, je kleiner der Spitzen-Probenabstand und je größer die Tunnelspannung war. Um einen möglichst großen Energiebereich spektroskopisch zu erschließen, wurden Tunnelspektren mit unterschiedlichen Spitzen-Probenabständen aufgezeichnet. Die im Bereich kleiner Energien sehr kleinen Tunnel-Leitwerte erforderten kleine Spitzen-Probenabstände. Im Bereich größerer Energien wirkten sich relativ große Spitzen-Probenabstände positiv auf die Stabilität des Tunnelstroms aus. Instabi-

les Tunneln verursachte häufig hysteretische oder verrauschte Spektren. Stellte sich jedoch stabiles Tunneln ein, so konnten Tunnelspektren mit geringer Hysterese und hoher Auflösung aufgezeichnet werden. Diese Tunnelspektren zeigten charakteristische Merkmale mit beachtlicher Reproduzierbarkeit.

Bei der Untersuchung der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostruktur mit den beschriebenen Methoden muss von einer Adsorbatbelegung sowohl der LaAlO_3 -Filmoberfläche als auch der Spitze ausgegangen werden. Mit der Vorstellung, verschiedene Adsorbatkonfigurationen bedingten unterschiedliche Höhen der Tunnelbarriere, können Fluktuationen des Tunnelstroms mit spontanen Änderungen instabiler Adsorbatkonfigurationen in Verbindung gebracht werden. Die Barrierenhöhe beeinflusst auch die Spannungsabhängigkeit der Tunnelwahrscheinlichkeit und damit die globale Gestalt von Tunnelspektren. Unterschiedliche Barrierenhöhen führen bei der Spitzenstabilisierung mit gegebenen Parametern $U_{\text{S,stab}}$ und $I_{\text{t,stab}}$ zu unterschiedlichen Spitzen-Proben-Abständen und damit am Ort der Probe zu unterschiedlich starken von der Spitze ausgehenden elektrischen Feldern. Zunächst schwer einschätzbar war, welche Rolle Adsorbate über eine mögliche Teilnahme ihrer elektronischen Zustände an Tunnelprozessen oder über Anregungen bei inelastischen Tunnelprozessen für die Tunnelspektroskopie spielen würden. Neben Adsorbaten könnten sich auch eine eventuelle räumliche Inhomogenität der Probe oder eine als Funktion der Energie stark variierende Zustandsdichte der Spitze auf die spektroskopischen Resultate auswirken. Abbildung 6.8 zeigt, dass die charakteristischen Merkmale der Tunnelspektren mit mehreren Proben reproduzierbar waren. Da davon auszugehen ist, dass bei diesen Messungen unterschiedliche Konfigurationen der Adsorbate im Bereich des Tunnelspalts sowie unterschiedliche Spitzenkonfigurationen vorlagen, können die beobachteten spektroskopischen Merkmale nicht Adsorbaten oder der elektronischen Zustandsdichte der Spitze zuzuschreiben sein.

Die Bedeutung der Tunnelspaltkonfiguration für die Spektroskopie kann anhand der in Abb. 6.8g und h gezeigten Spektren beschrieben werden. Dort sind Verläufe des normierten differentiellen Leitwerts aufgetragen, die an derselben Probenstelle und mit nominell gleichen Spitzen-Probenabständen gemessen wurden. Nach der Aufzeichnung des Spektrums in Abb. 6.8g veränderte sich anscheinend die Konfiguration des Tunnelspalts. Die auf die Aufzeichnung des Spektrums in Abb. 6.8g folgenden Messungen waren von zunehmenden Fluktuationen des Tunnelstroms und des differentiellen Tunnel-Leitwerts begleitet, so dass die charakteristischen spektroskopischen Merkmale kaum mehr aufgelöst wurden. Während weiterer Messungen verringerten sich die Fluktuationen des Tunnelstroms und des differentiellen Tunnel-Leitwerts wieder, was der Ausbildung einer neuen, stabilen Konfiguration des Tunnelspalts zugeschrieben werden kann. Das in Abb. 6.8h gezeigte, mit dieser Konfiguration gemessene Spektrum unterscheidet sich

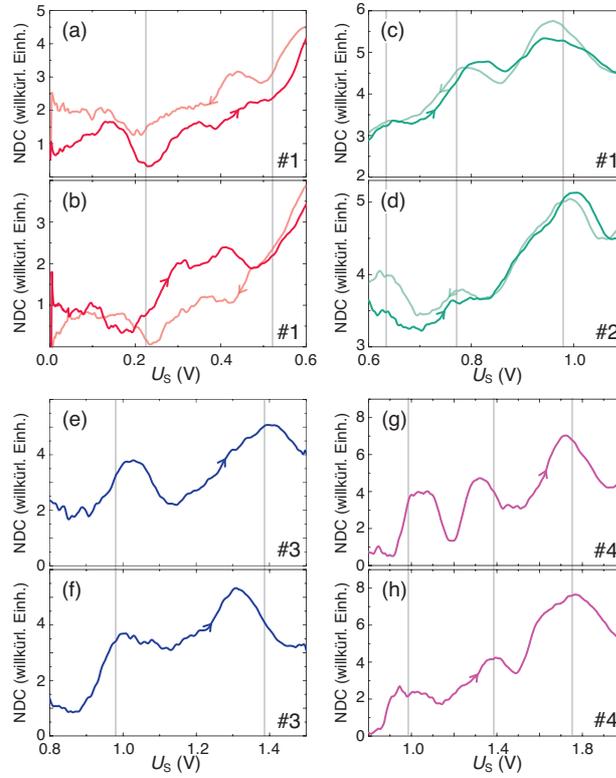


Abbildung 6.8: Vergleich der Verläufe des normierten differentiellen Leitwertes $NDC(U_S) = (\partial I_t / \partial U_S) / (I_t / U_S + \zeta)(U_S)$ mit $\zeta = 1 \text{ pA/V}$ von an den Proben 1–4 gemessenen Tunnelspektren der $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Heterostruktur. Die Spitze war jeweils in bezogen auf die Terrassenbreite weiter Entfernung zu topografischen Stufen positioniert. Die Messungen wurden bei 4,7 K bei jeweils festgehaltenen Spitzen-Probenabständen durchgeführt. Die verschiedenen Farben kennzeichnen unterschiedliche Spitzen-Probenabstände. Im Folgenden werden die Stabilisierungsparameter und die Parameter des Synchrongleichrichters der Datensätze jeweils in der Reihenfolge $U_{S,\text{stab}}$, $I_{t,\text{stab}}$, \dot{U}_{mod} und f_{mod} angegeben: (a)&(b) 0,8 V, 12 pA, 5 mV_{rms}, 77 Hz. (c) 1 V, 12 pA, 5 mV_{rms}, 77 Hz. (d) 1 V, 12 pA, 10 mV_{rms}, 161 Hz. (e)&(f) 1,5 V, 30 pA, 2,83 mV_{rms}, 977 Hz. (g)&(h) 2,4 V, 70 pA, 5 mV_{rms}, 77 Hz. Die in (g) und (h) gezeigten Spektren wurden an derselben Probenstelle gemessen. In Abb. 6.9a ist das in (a) gezeigte Spektrum mit einer roten, das in (c) gezeigte Spektrum mit einer blauen und das in (h) gezeigte Spektrum mit einer violetten Linie aufgetragen. Die gezeigten Daten sind jeweils über ein Spannungsintervall von 75 mV gemittelt. Graue Hilfslinien sind an den gleichen Positionen wie in Abb. 6.9a eingezeichnet (aus Ref. [7]).

in seiner globalen Form vom Spektrum in Abb. 6.8g. Jedoch treten in beiden Spektren charakteristische Merkmale bei nahezu den gleichen Tunnelspannungen auf, unabhängig von der Tunnelspaltkonfiguration.

Trotz der für $U_S < 0,5$ V üblicherweise sehr kleinen Tunnel-Leitwerte (s. Abb. 6.6a) und des damit verbundenen relativ kleinen Signal-Rauschverhältnisses der Tunnelstromdetektion konnten gelegentlich auch im Energiebereich von 0 bis 0,5 eV Merkmale der Proben-Zustandsdichte aufgelöst werden. Die in Abb. 6.8a und b gezeigten Spektren weisen zwar eine relativ auffällige Hysterese auf, teilen jedoch charakteristische Merkmale. Für Tunnelspannungen $U_S > 1,5$ V wurde stabiles Tunneln nur selten erreicht. Spektren mit einer hohen Auflösung zwischen $U_S = 1,5$ V und $U_S = 2$ V, wie in Abb. 6.8g und h gezeigt, wurden nur in einer Mess-Sitzung erhalten.

Im nun folgenden Abschnitt wird anhand eines Vergleichs der Tunnelspektren mit in DFT berechneten elektronischen Zustandsdichten gezeigt, dass der Tunnelstrom bei den oben beschriebenen Messungen von unbesetzten Elektronenzuständen an der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche getragen wurde. Beim Durchtunneln des adsorbatbelegten LaAlO_3 -Films traten sehr kleine Tunnel-Leitwerte und häufig instabiles Tunneln auf. Mit der Spitzenpräparation durch Feldemission und der Probenpräparation durch Heizen waren Fluktuationen des Tunnelstroms soweit eingrenzbare, dass zusammen mit der rauscharmen Tunnelstromdetektion und der durch die geringe thermische Drift¹ des Mikroskops ermöglichten langen Zeitdauern spektroskopischer Messungen eine experimentelle Charakterisierung der Zustandsdichte von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen möglich war. Für den Tunnelspannungsbereich $0 \text{ V} \leq U_S \leq 2 \text{ V}$, in dem Elektronen aus der Spitze in unbesetzte Probenzustände tunneln, konnten charakteristische Merkmale der Tunnelspektren identifiziert und deren Reproduzierbarkeit gezeigt werden. Die für $U_S < 0$ beobachteten Tunnel-Leitwerte waren etwa fünf Dekaden kleiner als für $U_S > 0$ bei nominell unverändertem Spitzen-Probenabstand. Daher wurde die elektronische Zustandsdichte im Bereich unbesetzter Probenzustände untersucht.

¹ Das tunneltmikroskopische Topografiebild in Abb. 6.5c auf Seite 91 zeigt, dass die thermische Drift des Mikroskops in z -Richtung weit geringer sein kann als es dem in Referenz [17] angegebenen Wert von 7 fm/s entspricht. In Abb. 6.5c sind topografische Rohdaten ohne Hintergrundabzug dargestellt. Mit der spezifizierten Driftgeschwindigkeit von 7 fm/s hätte während der mehr als sieben Stunden beanspruchenden Bildaufzeichnung in z -Richtung eine Strecke von 1,8 Å und damit etwa eine halbe Einheitszellenhöhe überwunden werden können. Bei der Aufzeichnung des rastertunneltmikroskopischen Bildes kam am Probenhalter des Kupferzylinders eine Saphir-Isolationsplatte zur Anwendung. Bislang ist noch nicht erwiesen, ob Teflon-Isolationsplatten eine zusätzliche Relativbewegung zwischen Spitze und Probe verursachen.

6.7 Ergebnisse und Diskussion

Abbildung 6.9a zeigt drei repräsentative Tunnelspektren, die mit unterschiedlichen Spitzen-Probenabständen auf zwei Proben gemessen wurden und zusammen den Spannungsbereich zwischen 0 und 2 V abdecken. Die charakteristischen Hauptmerkmale der Tunnelspektren bestehen in klaren lokalen Maxima bei $\approx 0,6$ V, $\approx 0,8$ V, ≈ 1 V, $\approx 1,4$ V und $\approx 1,8$ V.

Um die Elektronenzustände, die den gemessenen Tunnelstrom tragen, zu identifizieren und die Rolle elektronischer Korrelationen an der Grenzfläche einzuschätzen, wird die gemessene Zustandsdichte mit Vorhersagen der DFT verglichen. Natalia Pavlenko berechnete unabhängig von den Experimenten die elektronische Zustandsdichte von LaAlO₃-SrTiO₃-Doppellagen in lokaler Dichtenäherung (*local density approximation*, LDA) und in LDA+*U* unter Verwendung von Superzellen, die vier Einheitszellen LaAlO₃, SrTiO₃-Schichten (≈ 1 nm), vier Einheitszellen LaAlO₃ und eine Vakuumschicht ($\approx 1,3$ nm) umfassen. Eine Skizze der Schichtstruktur der Superzellen und weitere Details zu den DFT-Rechnungen sind in Anhang D gegeben. Die Rechnung ergibt, dass die elektronische Rekonstruktion zu einer Dotierung von O 2*p*-Zuständen der an das Vakuum angrenzenden AlO₂-Schicht mit Löchern und von Ti 3*d* *t*_{2g}-Zuständen an der Grenzfläche mit Elektronen führt. Experimentell erweisen sich ausschließlich die Grenzflächen als elektrisch leitend. Im Energiebereich von 0,5 bis 2 eV tragen zur totalen Zustandsdichte der Superzelle ausschließlich Elektronenzustände der TiO₂-Schichten bei, wobei der Verlauf der totalen Zustandsdichte im Wesentlichen von den Ti 3*d* *t*_{2g}-Zuständen der Grenzflächen-TiO₂-Schichten der Superzelle geprägt ist. Unterhalb von $\approx 0,5$ eV tragen O 2*p*-Zustände der Oberfläche, oberhalb von $\approx 2,2$ eV La 5*d*- und oberhalb von $\approx 2,8$ eV die Ti 3*d* *e*_g-Zustände zur totalen Zustandsdichte bei.

In Abb. 6.9b ist die in LDA berechnete Ti 3*d*-Zustandsdichte der Grenzflächen-TiO₂-Schichten der Superzelle aufgetragen. Während die charakteristischen lokalen Maxima des gemessenen Spektrums bei $\approx 0,8$ V, $\approx 1,4$ V und $\approx 1,8$ V auch in der berechneten Zustandsdichte vorhanden sind, bringt die LDA-Rechnung die experimentellen Strukturen bei $\approx 0,6$ V und ≈ 1 V nicht hervor. Die LDA+*U*-Rechnung berücksichtigt lokale Coulomb- und Austausch-Wechselwirkungsparameter $U = 2$ eV und $J = 0,8$ eV in der Ti 3*d*-Schale. Die in LDA+*U* berechnete Ti 3*d*-Zustandsdichte der Grenzflächen-TiO₂-Schichten ist in Abb. 6.9c aufgetragen. Mittels der Parameter U und J modellierte interorbitale Wechselwirkungen verursachen in der LDA+*U*-Zustandsdichte zwei zusätzliche lokale Maxima bei $\approx 0,6$ eV und ≈ 1 eV. Bemerkenswerterweise handelt es sich hierbei um gerade die Strukturen, die experimentell beobachtet wurden, in der LDA-Zustandsdichte jedoch fehlen.

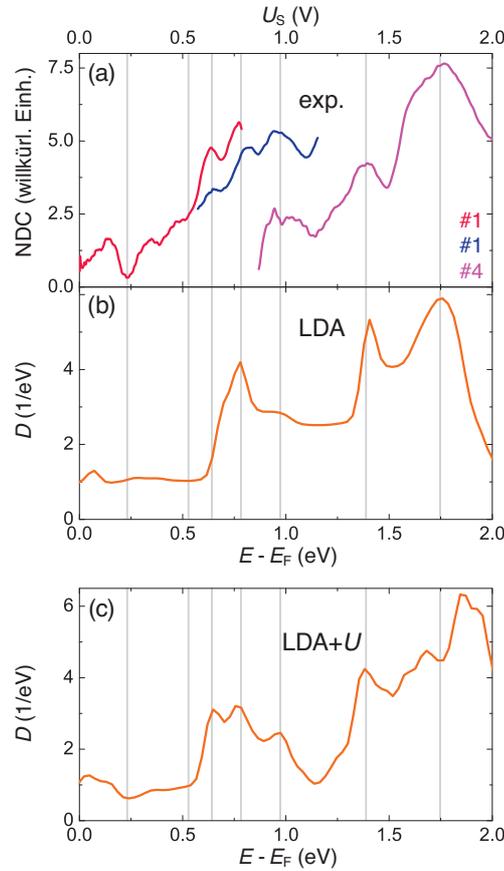


Abbildung 6.9: Vergleich von Verläufen des normierten differentiellen Leitwerts von Tunnelspektren der $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Heterostruktur mit in LDA und LDA+ U berechneten spektralen Zustandsdichten. **(a)** Verläufe des $\text{NDC}(U_S) = (\partial I_t / \partial U_S) / (I_t / U_S + \zeta)(U_S)$ mit $\zeta = 1 \text{ pA/V}$, gemessen bei $4,7 \text{ K}$ mit jeweils festgehaltenem Spitzen-Probenabstand an Probenstellen in bezogen auf die Terrassenbreite weiter Entfernung zu topografischen Stufen. Die verschiedenen Farben kennzeichnen unterschiedliche Spitzen-Probenabstände (violett: $I_{t,\text{stab}} = 70 \text{ pA}$, $U_{S,\text{stab}} = 2,4 \text{ V}$; blau: $I_{t,\text{stab}} = 12 \text{ pA}$, $U_{S,\text{stab}} = 1 \text{ V}$; rot: $I_{t,\text{stab}} = 12 \text{ pA}$, $U_{S,\text{stab}} = 0,8 \text{ V}$). Alle Spektren wurden mit $\hat{U}_{\text{mod}} = 5 \text{ mV}_{\text{rms}}$ und $f_{\text{mod}} = 77 \text{ Hz}$ gemessen. Die gezeigten Daten sind jeweils über ein Spannungsintervall von 75 mV gemittelt. **(b)** Ti $3d$ -Zustandsdichte der Grenzflächen- TiO_2 -Schichten, berechnet in LDA für eine Superzelle mit der in Abb. D.1 auf Seite 143 skizzierten Schichtstruktur. **(c)** Ti $3d$ -Zustandsdichte der Grenzflächen- TiO_2 -Schichten, berechnet in LDA+ U . In (a), (b) und (c) sind jeweils die Positionen charakteristischer Merkmale des normierten differentiellen Leitwerts mit grauen Hilfslinien markiert (aus Ref. [7]).

Die hervorragende Übereinstimmung der in $LDA+U$ berechneten und mittels Rastertunnelspektroskopie gemessenen Zustandsdichten selbst in Details legt nahe, dass der Tunnelstrom tatsächlich von den Zuständen getragen wird, die gemäß der Rechnung im untersuchten Energiebereich relevant sind. Für Energien zwischen 0,5 und 2 eV sind dies die $Ti\ 3d\ t_{2g}$ -Zustände, wobei die markanten Strukturen der Zustandsdichte hauptsächlich auf $Ti\ 3d_{xz}$ - und $Ti\ 3d_{yz}$ -Zustände zurückgehen. Die mobilen Elektronen an der Grenzfläche besetzen $Ti\ 3d\ t_{2g}$ -Zustände, die laut DFT einzigen im Bereich der Fermi-Energie verfügbaren Grenzflächen-Zustände.

Weiterhin wird die experimentelle Zustandsdichte wesentlich besser von der in $LDA+U$ berechneten Zustandsdichte angenähert, als von der in LDA erhaltenen Zustandsdichte. Dies zeigt, dass das zweidimensionale Elektronensystem an der $LaAlO_3$ - $SrTiO_3$ -Grenzfläche korreliert ist mit signifikanten Werten von U und J für die $Ti\ 3d$ -Orbitale. In diesem Sinne handelt es sich bei dem Elektronensystem um eine zweidimensionale Elektronenflüssigkeit.

Das Elektronensystem an der $LaAlO_3$ - $SrTiO_3$ -Grenzfläche besitzt damit eine wesentlich andere mikroskopische Struktur als zweidimensionale Elektronengase an Halbleitergrenzflächen. Wie in Abb. 6.10 illustriert, sind die Elektronen an der $LaAlO_3$ - $SrTiO_3$ -Grenzfläche nicht in einem rein durch Bandverbiegung gegebenen Potentialtopf eingeschlossen, sondern in mehreren Schichten von Potentialtöpfen, die jeweils durch die Coulomb-Potentiale der Ti-Ionen in den TiO_6 -Oktaedern gegeben sind. Eine zusätzliche Bandverbiegung bewirkt, dass eine Besetzung dieser Potentialtöpfe nur in grenzflächennahen TiO_2 -Schichten stattfindet. Im Unterschied zu zweidimensionalen Elektronengasen an Halbleitergrenzflächen ist das Elektronensystem an der $LaAlO_3$ - $SrTiO_3$ -Grenzfläche korreliert.

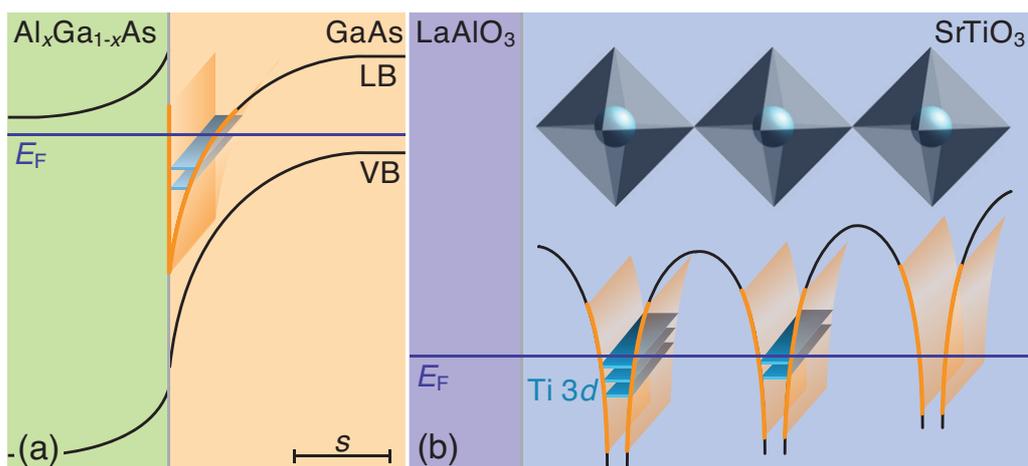


Abbildung 6.10: Illustration der Konfigurationen zweidimensionaler Elektronensysteme an Halbleitergrenzflächen und der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche. **(a)** An der Halbleitergrenzfläche bildet sich ein Elektronengas in einem durch Bandverbiegung entstehenden Potentialtopf aus. Die Breite des Potentialtopfs ist von der elektronischen Abschirmlänge s bestimmt und beträgt in der Regel einige zehn Nanometer. Die Elektronenzustände können näherungsweise als Zustände freier, in diesem Potential eingeschlossener Elektronen beschrieben werden. **(b)** An der Oxidgrenzfläche ist das Einschlusspotential durch das Coulomb-Potential der Titan-Ionen in den TiO_6 -Oktaedern und in geringerem Umfang durch Bandverbiegung gegeben. Die Elektronen sind somit in weit schmalere Potentialtöpfe eingeschlossen, als es an Halbleitergrenzflächen der Fall ist. Die stationären Elektronenzustände können als $\text{Ti } 3d t_{2g}$ -Zustände charakterisiert werden, die ein parallel zur Grenzfläche ausgedehntes zweidimensionales Elektronensystem bilden. Aufgrund der elektronischen Korrelationen der Oxidgitter bilden die Elektronen eine Elektronenflüssigkeit (aus Ref. [7]).

7 Zusammenfassung und Ausblick

In der vorliegenden Arbeit wurde erstmals ein Elektronensystem an der Grenzfläche zweier komplexer Oxide erfolgreich mittels Rastertunnelspektroskopie bei zur Grenzfläche senkrechter Tunnelrichtung untersucht. Den besonderen sich bei dieser Materialklasse ergebenden Herausforderungen wurde mit umfangreichen instrumentellen Entwicklungsarbeiten begegnet. Die erhaltenen Messergebnisse ermöglichten eine Verifikation theoretischer Modelle der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostruktur. Der Vergleich gemessener mit in DFT berechneter Zustandsdichten stützte die Aussagen von DFT-Rechnungen über Grenzflächen komplexer Oxide und zeigte, dass das Elektronensystem an der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche durch $\text{LDA}+U$ besser beschrieben wird, als durch LDA. Damit konnte das Grenzflächen-Elektronensystem als eine zweidimensionale Elektronenflüssigkeit charakterisiert werden, die sich wesentlich von den bekannten zweidimensionalen Elektronengasen an Halbleitergrenzflächen unterscheidet. Unterschiede sind die Art des zweidimensionalen Einschlusses in wenige Schichten sehr schmaler atomarer Potentialtöpfe und das Vorliegen elektronischer Korrelationen. Elektronensysteme an Grenzflächen komplexer Oxide sind nicht nur von der Wegnahme eines Translationsfreiheitsgrads der Elektronen, sondern auch von Einflüssen der Oxidgitter geprägt und können grundlegend neue Eigenschaften aufweisen.

Mit ihrem enormen Potential, neue Effekte hervorzubringen und neue Erkenntnisse zu ermöglichen, bleiben Oxidgrenzflächen Gegenstand aktueller Forschung. Am Lehrstuhl bereits begonnen wurde die Untersuchung der spektralen Zustandsdichte von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen als Funktion der Ladungsträgerdichte. Die Ladungsträgerdichte wird dabei über einen Gatekontakt an der Probenrückseite, ein Backgate, beeinflusst. Dies bringt zusätzliche instrumentelle Voraussetzungen mit sich, die noch im Rahmen der vorliegenden Arbeit geschaffen wurden (s. Anhang F).

Eine Vielzahl weiterer Untersuchungen der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Heterostruktur mittels Rastersondenmikroskopie, die zum Verständnis von Oxidgrenzflächen beitragen könnten, ist denkbar. Die Veränderlichkeit des elektrischen Flächenwiderstands von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzflächen als Funktion der Stärke von Gatefeldern oder der LaAlO_3 -Schichtdicke [2] könnte damit zusammenhängen, dass sich mit zunehmender mittlerer Flächendichte der Ladungsträger zusammenhängende leitfähige Gebiete bilden, die bei abnehmender Ladungsträgerdichte un-

terbrochen werden. Pfade eines Transportstroms entlang LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzflächen könnten abgebildet werden, indem mittels einer geladenen Spitze die Ladungsträgerdichte lokal verringert wird [79]. Weiterhin ist es vorstellbar, über die bei Kraftmikroskopie mit einer geladenen Spitze auftretende Dissipation lokale Aussagen über die Beweglichkeit von Ladungsträgern zu gewinnen [80], die im Prinzip mit tunnelspektroskopischen Daten kombinierbar wären.

Die vorliegende Arbeit leistete einen Beitrag zum Verständnis von Oxidgrenzflächen. Ich wünsche mir, dass diese Ergebnisse als Beispiel für das Potential rastersondenmikroskopischer Untersuchungen komplexer Oxide in Zukunft weitere aussagekräftige Experimente inspirieren.

A Berechnung des Ladungstransports durch realistisch geformte Tunnelbarrieren

Betrachtet werden zwei metallische, durch einen Vakuumpalt getrennte Tunnel-Elektroden. In Abschnitt A.1 wird zunächst das Tunnelmatrix-Element \mathcal{M} nach Gleichung 3.10 (Seite 29) für den Fall einer rechteckigen Tunnelbarriere und innerhalb der Tunnel-Elektroden freier Elektronen angegeben. Dieses Tunnelmatrix-Element lässt sich in vereinfachter Form für Tunnelbarrieren mit kontinuierlichen Ortsverläufen der potentiellen Energie verallgemeinern. In Abschnitt A.2 wird der Ortsverlauf der potentiellen Energie eines Elektrons in der Barrierenregion unter Berücksichtigung der Bildladungskräfte, die auf das Elektron einwirken, formuliert. Damit lässt sich der Tunnelstrom numerisch auswerten (Abschnitt A.3). Für konstante Zustandsdichten beider Tunnel-Elektroden zeigt sich im Bereich kleiner Spannungen eine annähernd lineare, im Bereich größerer Spannungen eine annähernd exponentielle Abhängigkeit des Tunnelstroms von der Spannung.

A.1 Tunnelmatrix-Element für ebene Wellen

Rechteckige Tunnelbarriere: Betrachtet wird eine Anordnung zweier Tunnel-Elektroden in gegenüber den beim Rastertunnelmikroskop vorliegenden Verhältnissen vereinfachter Geometrie. Die Spitze sei modelliert als eine den negativen Halbraum bis $z = 0$, die Probe als eine den positiven Halbraum für $z \geq d$ einnehmende Elektrode. Die Vakuumregion erstreckt sich von $z = 0$ bis $z = d$ (s. Abb. A.1a). Innerhalb der Barrierenregion verlaufe die Trennfläche ∂S , die den Raumbereich S , der die Probe und einen daran angrenzenden Teil der Barrierenregion umfasst, begrenzt. Die Spitze und die Probe bestehen aus demselben Material, dessen Elektronensystem ein Gas freier Elektronen sei. Die potentielle Energie V eines Elektrons hängt geometriebedingt nur von z ab. $V(z)$ beschreibe

eine rechteckige Tunnelbarriere der Höhe V_0 und der Breite d (s. Abb. A.1b). Der Hamiltonoperator des Gesamtsystems sei $\hat{H} = \hat{T} + \hat{V}$. Die Hamiltonoperatoren der im Sinne der Tunneltheorie von Bardeen separat betrachteten Elektronensysteme von Spitze und Probe seien $\hat{H}_T = \hat{T} + \hat{V}_T$ und $\hat{H}_S = \hat{T} + \hat{V}_S$, mit Verläufen $V_T(z)$ und $V_S(z)$ der potentiellen Energie, wie sie in den Abbildungen A.1c und A.1d skizziert sind. Für Wellenvektoren $\mathbf{k} \parallel \mathbf{z}_0$ und Zustandsenergien $E < V_0$ lauten die stationären Zustände der Spitze und der Probe

$$\psi_T(\mathbf{r}) = \begin{cases} c e^{ikz} + c \left(\frac{2k}{k+ik} - 1 \right) e^{-ikz} & \text{für } z < 0 \\ c \frac{2k}{k+ik} e^{-\kappa z} & \text{für } z > 0 \end{cases} \quad (\text{A.1})$$

$$\psi_S(\mathbf{r}) = \begin{cases} c \frac{2k}{k-ik} e^{\kappa(z-d)} & \text{für } z < d \\ c e^{ik(z-d)} + c \left(\frac{2k}{k-ik} - 1 \right) e^{-ik(z-d)} & \text{für } z > d. \end{cases}$$

Dabei ist $k \equiv \sqrt{2mE}/\hbar$ und $\kappa \equiv \sqrt{2m(V_0 - E)}/\hbar$. Mit der Normierungskonstanten

$$c \equiv \left(s \cdot \frac{\hbar k}{m} \int_{-\infty}^{\infty} dx \int_{-\infty}^{\infty} dy \right)^{-1/2}$$

entspricht in $\psi_T(\mathbf{r})$ und in $\psi_S(\mathbf{r})$ der Term $\propto e^{ikz}$ jeweils einer sich in positiver z -Richtung ausbreitenden ebenen Welle der Wahrscheinlichkeitsstromstärke $1/s$. Das Betragsquadrat des Tunnelmatrix-Elementes \mathcal{M} nach Gleichung 3.10 ergibt sich für die Zustände nach Gleichung A.1 zu

$$|\mathcal{M}|^2 \approx \frac{\hbar^2}{s^2} \cdot e^{(-2\kappa d + 2 \ln \left(\frac{4k\kappa}{k^2 + \kappa^2} \right))} \equiv \frac{\hbar^2}{s^2} \cdot P(V_0, E).$$

Der zweite Faktor dieses Ausdrucks wurde mit der bekannten Tunnelwahrscheinlichkeit [81] für die rechteckige Tunnelbarriere $P(V_0, E)$ identifiziert. Auch der stark vereinfachte Term

$$P(V_0, E) \approx e^{-2\kappa d} \quad (\text{A.2})$$

liefert eine qualitativ korrekte Beschreibung der Tunnelwahrscheinlichkeit [81], obwohl der Vereinfachung eine grobe Näherung zugrunde liegt. Damit ergibt sich für das Betragsquadrat des Tunnelmatrix-Elementes der Ausdruck

$$|\mathcal{M}|^2 \approx \frac{\hbar^2}{s^2} \cdot e^{-2\kappa d} = \frac{\hbar^2}{s^2} \cdot e^{-2 \frac{\sqrt{2m(V_0 - E)}}{\hbar} d}. \quad (\text{A.3})$$

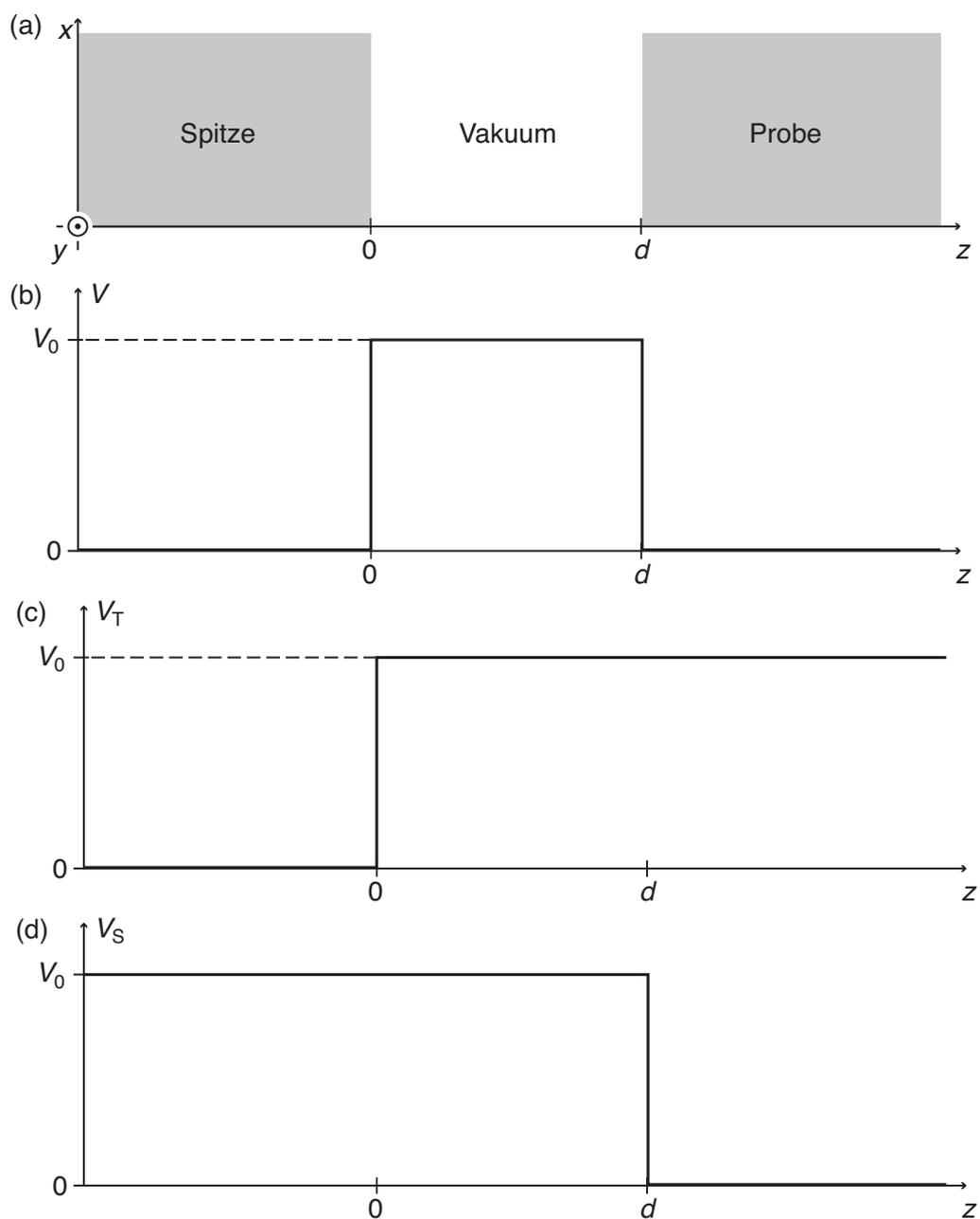


Abbildung A.1: Skizze der betrachteten Anordnung von Spitze und Probe und des sie trennenden Vakuumspalts (a), des Verlaufs der potentiellen Energie eines Elektrons für die vollständige Anordnung (b), sowie für die Spitze (c) und die Probe (d) in separater Betrachtung nach Bardeen.

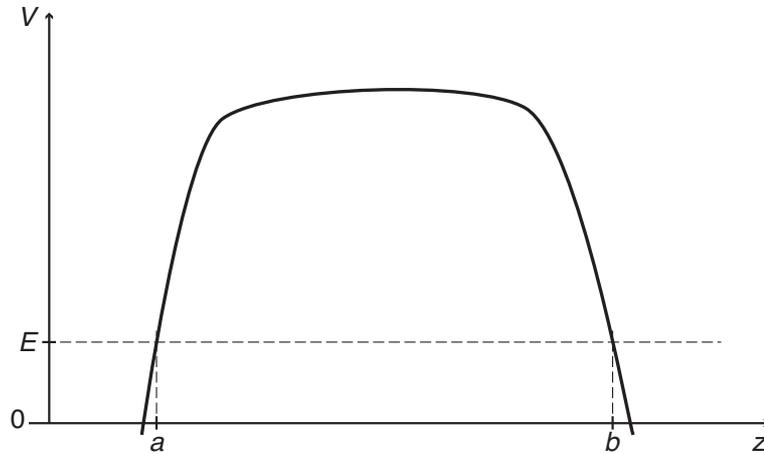


Abbildung A.2: Skizze eines kontinuierlichen Verlaufs $V(z)$ der potentiellen Energie. Ist die Zustandsenergie E kleiner als der Maximalwert von $V(z)$, so stellt $V(z)$ eine Tunnelbarriere dar. Die klassischen Umkehrpunkte a und b sind durch die Bedingung $V(a) = V(b) = E$ gegeben.

Verallgemeinerte Tunnelbarriere: Für eine durch einen kontinuierlichen Ortsverlauf $V(z)$ der potentiellen Energie gegebene Tunnelbarriere (s. Abb. A.2) lässt sich die vereinfachte Tunnelwahrscheinlichkeit P nach Gleichung A.2 mit der *effektiven Barrierenhöhe* $\eta(z, E) \equiv V(z) - E$ und den *klassischen Umkehrpunkten* a und b mit $V(a) = V(b) = E$ (s. Abb. A.2) verallgemeinern zu [81]

$$P(E) = e^{-2 \frac{\sqrt{2m}}{\hbar} \int_a^b dz \sqrt{\eta(z, E)}}.$$

Das Betragsquadrat des Tunnelmatrix-Elementes nach Gleichung A.3 lautet damit

$$|\mathcal{M}(E)|^2 \approx \frac{\hbar^2}{s^2} \cdot e^{-2 \frac{\sqrt{2m}}{\hbar} \int_a^b dz \sqrt{\eta(z, E)}} \approx \frac{\hbar^2}{s^2} \cdot e^{-2 \frac{\sqrt{2m}}{\hbar} \sqrt{(b-a)} \int_a^b dz \eta(z, E)}, \quad (\text{A.4})$$

wobei für das Integral über $\eta^{1/2}$ eine Näherung aus Ref. [82] angewandt wurde, die für realistische Verläufe der effektiven Barrierenhöhe $\eta(z, E)$ lediglich vernachlässigbare Abweichungen mit sich bringt.

A.2 Tunnelbarriere unter Berücksichtigung der Bildladungs-Kräfte

Bei der Rastertunnelmikroskopie liegt der Spitzen-Probenabstand d in der Größenordnung eines Nanometers. Neben den potentiellen Energien aufgrund des Antidiffusionsfelds E_a und der Spannung U_S spielt auf dieser Längenskala die potentielle Energie aufgrund von Bildladungs-Kräften eine wichtige Rolle in der Formgebung des Verlaufs $V(z)$ der potentiellen Energie eines Elektrons im Raumbereich zwischen Spitze und Probe und damit der Tunnelbarriere. Für die in Abb. A.1a gezeigte Anordnung wird der Ortsverlauf $V(z)$ der potentiellen Energie mit Termen $V_{b,T}$ und $V_{b,S}$ für die potentielle Energie eines Elektrons aufgrund der Bildladungs-Kraft durch die Spitze und die Probe, dem Term $(W_S - W_T)/d \cdot z$ für die potentielle Energie aufgrund des Antidiffusionsfelds, und dem Term $-eU_S/d \cdot z$ für die potentielle Energie aufgrund der äußeren Spannung an der Probe gegenüber der Spitze angegeben. Mit der elektrischen Feldkonstanten ϵ_0 lauten die Ausdrücke für die potentielle Energie aufgrund der Bildladungs-Kräfte (s. Abb. A.3) [83]

$$V_{b,T}(z) = -\frac{e^2}{16\pi\epsilon_0} \cdot \frac{1}{z} \text{ und}$$

$$V_{b,S}(z) = -\frac{e^2}{16\pi\epsilon_0} \cdot \frac{1}{d-z}.$$

Die potentielle Energie $V(z)$ eines Elektrons im Raumbereich zwischen Spitze und Probe bei hinreichender Entfernung¹ von beiden Elektroden² ergibt sich damit zu

$$V(z, U_S, d) = -\frac{e^2}{16\pi\epsilon_0} \cdot \frac{1}{z} - \frac{e^2}{16\pi\epsilon_0} \cdot \frac{1}{d-z} + \frac{W_S - W_T}{d}z - \frac{eU_S}{d}z.$$

Für ein Elektron mit der Energie E ist die effektive Barrierenhöhe (s. Abb. A.3)

$$\eta(z, E, U_S, d) = -\frac{e^2}{16\pi\epsilon_0} \left(\frac{1}{z} + \frac{1}{d-z} \right) + \frac{W_S - W_T - eU_S}{d}z + W_T + eU_S - (E - \mu_S). \quad (\text{A.5})$$

¹ Bis zu Abständen des Elektrons von der Elektrodenoberfläche in der Größenordnung der Thomas-Fermi-Abschirmlänge des Elektrodenmaterials ist der Verlauf der potentiellen Energie unter anderem einem hier nicht betrachteten Einfluss der Dipolschicht an der Elektrodenoberfläche [84] unterworfen. ² Bei der betrachteten Anordnung zweier planparalleler Elektroden erzeugt jede Bildladung eine weitere Bildladung in der jeweils gegenüberliegenden Elektrode. Dieser Effekt hat nur geringen Einfluss auf den Verlauf der potentiellen Energie [83] und wurde hier vernachlässigt.

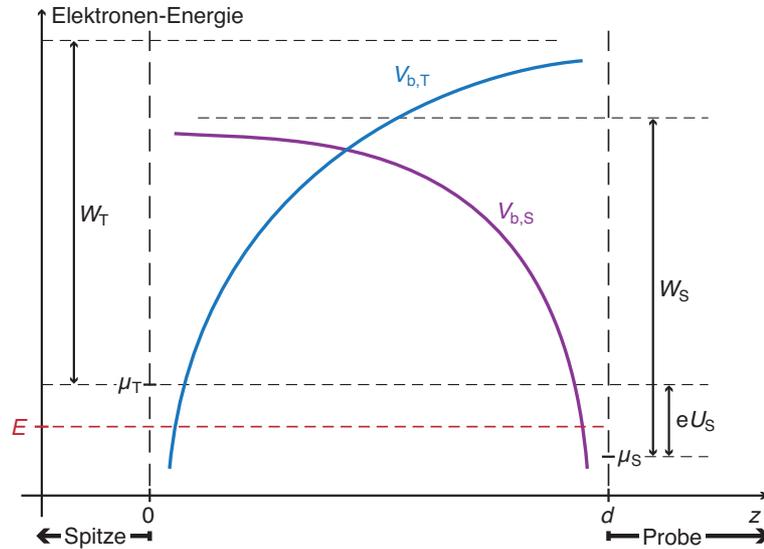


Abbildung A.3: Skizze der Ortsverläufe $V_{b,T}(z)$ und $V_{b,S}(z)$ der potentiellen Energie aufgrund der Bildladungs-Kräfte durch die Spitze und die Probe, modelliert als planparallele Elektroden.

A.3 Numerische Auswertung des Tunnelstroms

Mit Gleichung A.5 für die effektive Barrierenhöhe kann das Betragsquadrat des Tunnelmatrix-Elementes nach Gleichung A.4 als Funktion der Zustandsenergie E , der Spannung U_S an der Probe gegenüber der Spitze und des Spitzen-Probenabstandes d angegeben werden. Damit wird für konstante Zustandsdichten der Spitze und der Probe, $D_T \equiv 1/J$ und $D_S \equiv 1/J$ und mit $\varepsilon = E - \mu_S$ der Tunnelstrom nach Gleichung 3.11 zu

$$I_t(U_S, d) = \frac{2\pi e}{\hbar} \frac{1}{J^2} \int_0^{eU_S} d\varepsilon |\mathcal{M}(U_S, \varepsilon, d)|^2. \quad (\text{A.6})$$

Im Folgenden wird der Tunnelstrom nach dieser Gleichung für $W_T = W_S = 5 \text{ eV}$ numerisch ausgewertet. Zur Vereinfachung des Integrals in Gleichung A.4 für das Tunnelmatrix-Element wurden für die klassischen Umkehrpunkte die festen Werte $a = 0,13 \text{ nm}$ und $b = d - 0,13 \text{ nm}$ angenommen. Abbildung A.4 zeigt Auftragungen der effektiven Barrierenhöhe $\eta(z, U_S, d = 1 \text{ nm})$ nach Gleichung A.5 für Elektronen der Energie $E = \mu_S$ (Abb. A.4a) und der Energie $E = \mu_T$ (Abb. A.4b). Der Tunnelstrom als Funktion der Spannung U_S ist für $d = 1 \text{ nm}$ und $D_T = D_S = 1/J$ in Abb. A.5 aufgetragen. Im Bereich kleiner Spannungen $|U_S| < 0,5 \text{ V}$ ist die Abhängigkeit $I_t(U_S, d = \text{const.})$ nahezu linear, im

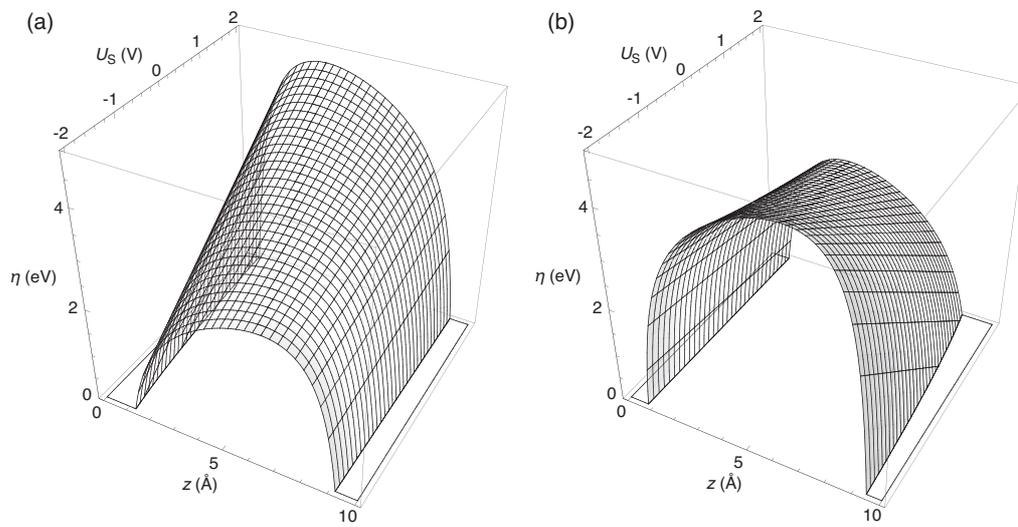


Abbildung A.4: Auftragungen der effektiven Barrierenhöhe $\eta(z, U_S, d = 1 \text{ nm})$ für Elektronen der Energie $E = \mu_S$ **(a)** und der Energie $E = \mu_T$ **(b)**.

Bereich größerer Spannungen $|U_S| > 1 \text{ V}$ nahezu exponentiell. Die Auftragung von $I_t(U_S = 1 \text{ V}, d)$ für $D_T = D_S = 1/J$ in Abb. A.6 zeigt die exponentielle Abhängigkeit des Tunnelstroms vom Spitzen-Probenabstand d .

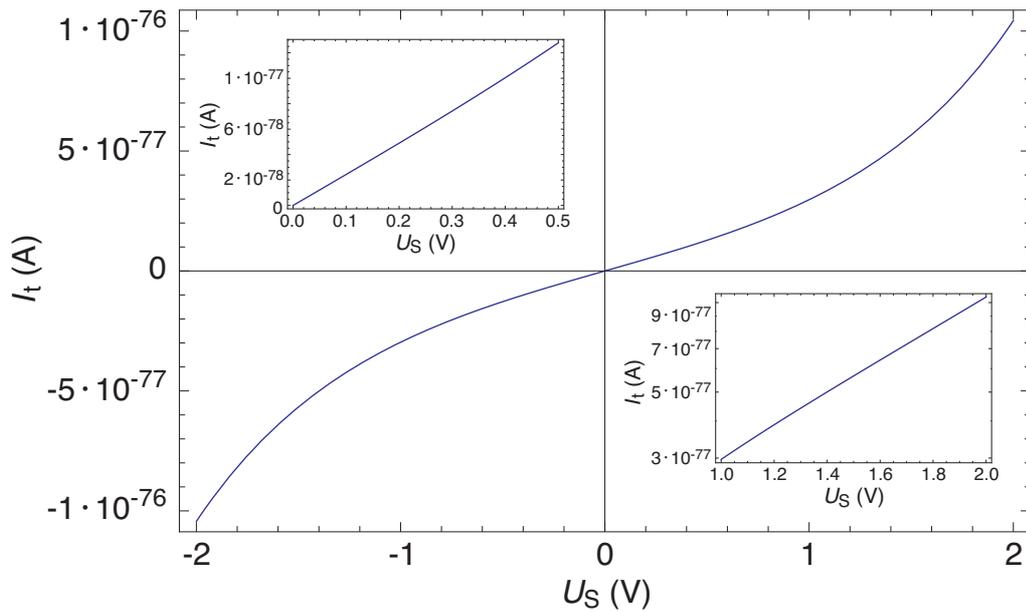


Abbildung A.5: Auftragungen des mit Hilfe von Gleichung A.6 berechneten Tunnelstroms $I_t(U_S, d = 1 \text{ nm})$. Der Tunnelstrom verhält sich als Funktion der Spannung U_S nahezu linear für $|U_S| < 0,5 \text{ V}$ (vgl. links oben eingefügte lineare Auftragung) und nahezu exponentiell für $|U_S| > 1 \text{ V}$ (vgl. rechts unten eingefügte halblogarithmische Auftragung). Die sehr kleinen Werte für den Tunnelstrom ergeben sich aufgrund der gewählten Normierung der Wellenfunktionen der Ausgangs- und Zielzustände (vgl. Gleichung A.1) sowie aufgrund der sehr kleinen gewählten Zustandsdichten $D_T = D_S = 1/J$.

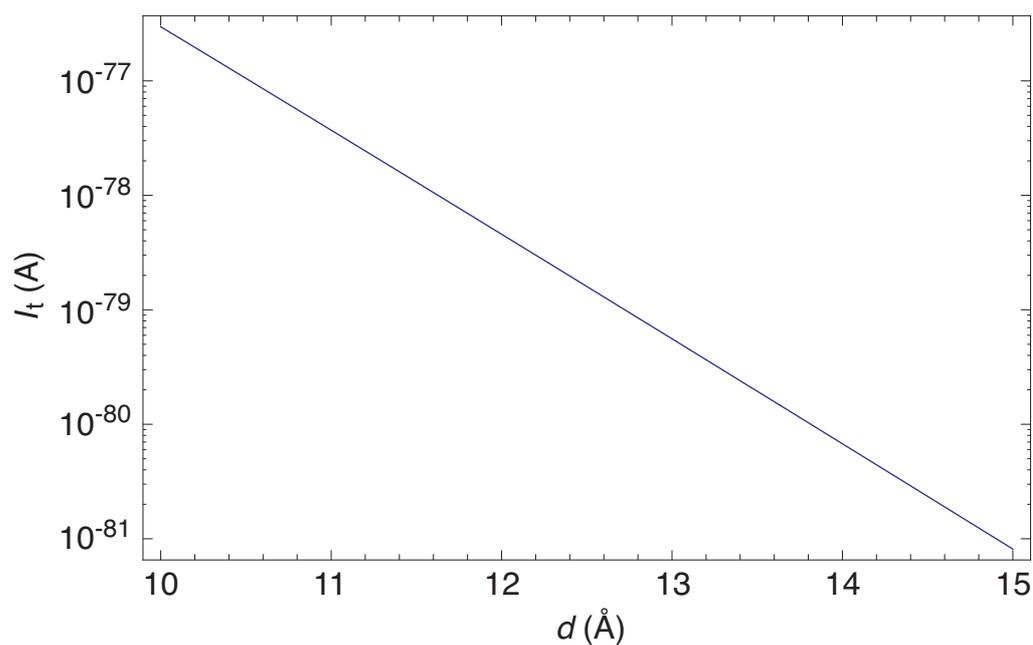


Abbildung A.6: Auftragung des mit Hilfe von Gleichung A.6 berechneten Tunnelstroms $I_t(U_S = 1 \text{ V}, d)$. Der Tunnelstrom hängt exponentiell von Spitzen-Probenabstand d ab. Die sehr kleinen Werte für den Tunnelstrom ergeben sich aufgrund der gewählten Normierung der Wellenfunktionen der Ausgangs- und Zielzustände (vgl. Gleichung A.1) sowie aufgrund der sehr kleinen gewählten Zustandsdichten $D_T = D_S = 1/J$.

B Schaltpläne von Einzelgeräten der Mikroskop-Elektronik

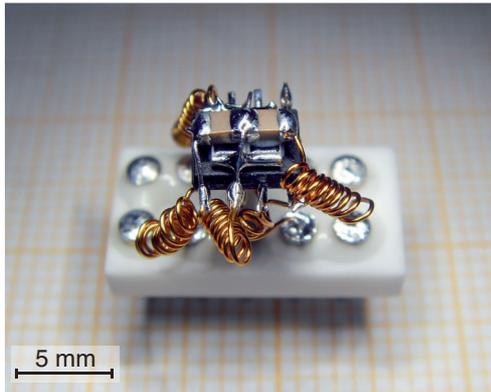


Abbildung B.1: Fotografische Ansicht eines Transimpedanzverstärkers zur Auslenkungsdetektion des qPlus-Sensors im Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop. Die gezeigte Einheit umfasst nicht den Rückkoppelwiderstand des Transimpedanzverstärkers, dieser befindet sich auf der Unterseite des Mikroskopkopf-Deckels.

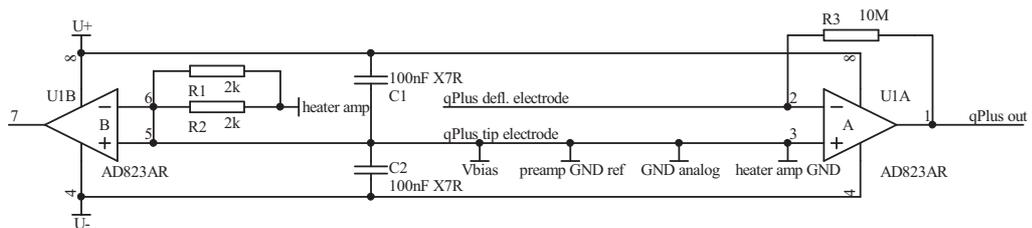


Abbildung B.2: Schaltplan des Transimpedanzverstärkers für die qPlus-Auslenkungsdetektion.

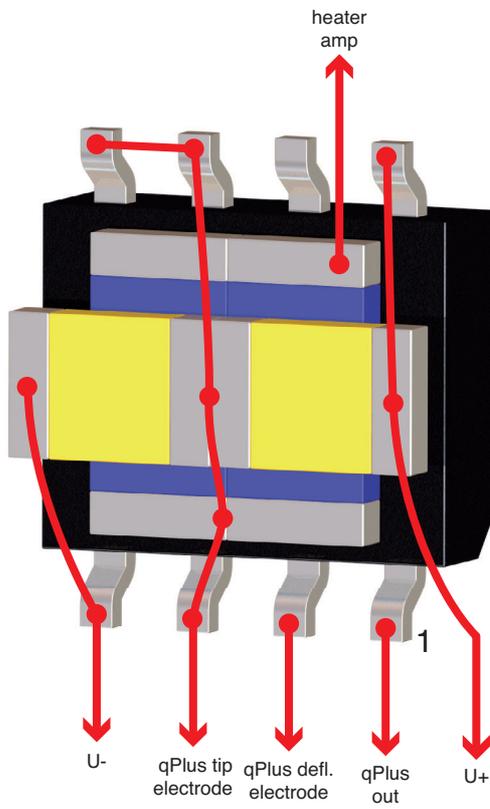


Abbildung B.3: Skizze des fliegenden Aufbaus des Transimpedanzverstärkers für die qPlus-Auslenkungsdetektion. Das schwarze SO8-Gehäuse beinhaltet den Operationsverstärker AD823AR. Die SMD-Heizwiderstände sind mit blauen, die SMD-Überbrückungskondensatoren mit gelben Gehäusen eingezeichnet. Die Verklebungen zwischen den Komponenten sind mit Epoxidharzklebstoff EPK-1C realisiert. Die roten Linien symbolisieren Leitungsverbindungen. Die Leitungen bestehen aus Phosphorbronzedraht AWG 32 mit Polyimid-Isolierung (Lakeshore WSL-32-100 [85]). Die Leitungen an den Pins 1 und 2 sind 2 cm, alle weiteren Leitungen 5 cm lang.

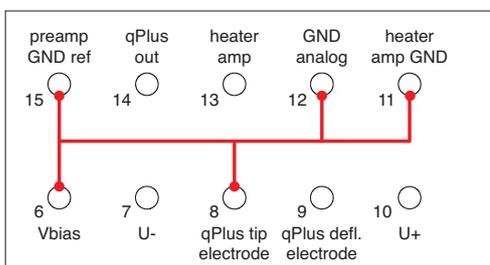


Abbildung B.4: Skizze des Stecksockels des Transimpedanzverstärkers für die qPlus-Auslenkungsdetektion (Aufsicht). Die rot eingezeichneten Verbindungsleitungen sind auf der Unterseite des Sockels eingelötet.

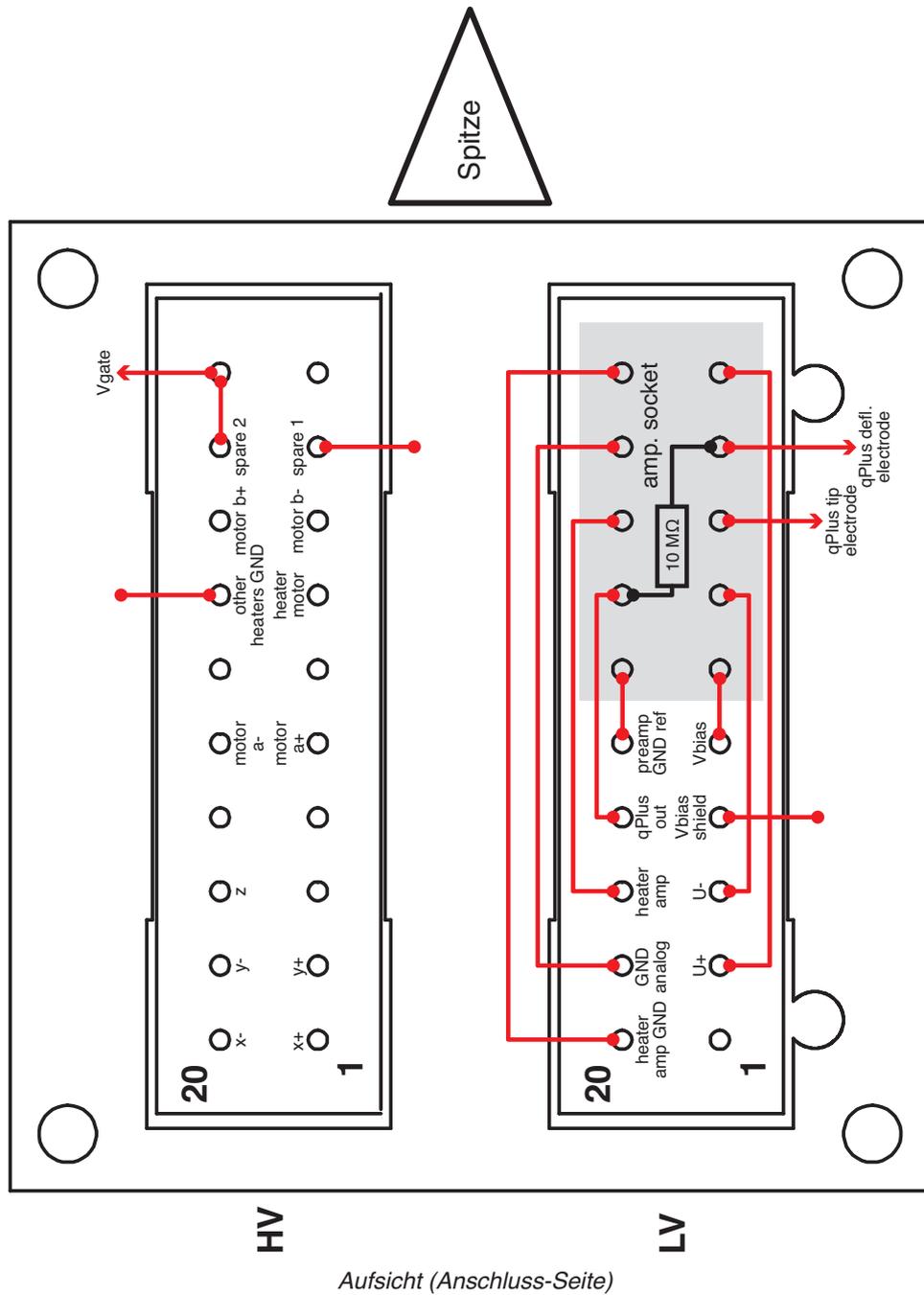


Abbildung B.5: Skizze zur Pinbelegung und Verschaltung der Steckverbinder am Mikroskopkopf-Deckel. Die rot eingezeichneten Verbindungsleitungen und der $10\text{ M}\Omega$ -Rückkoppelwiderstand liegen auf der Unterseite des Deckels (Lötseite).

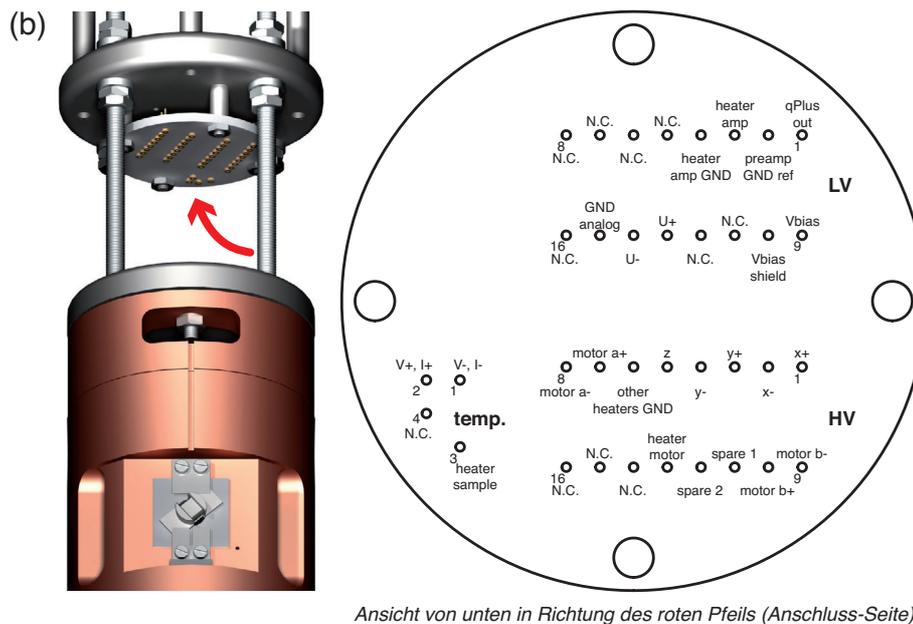
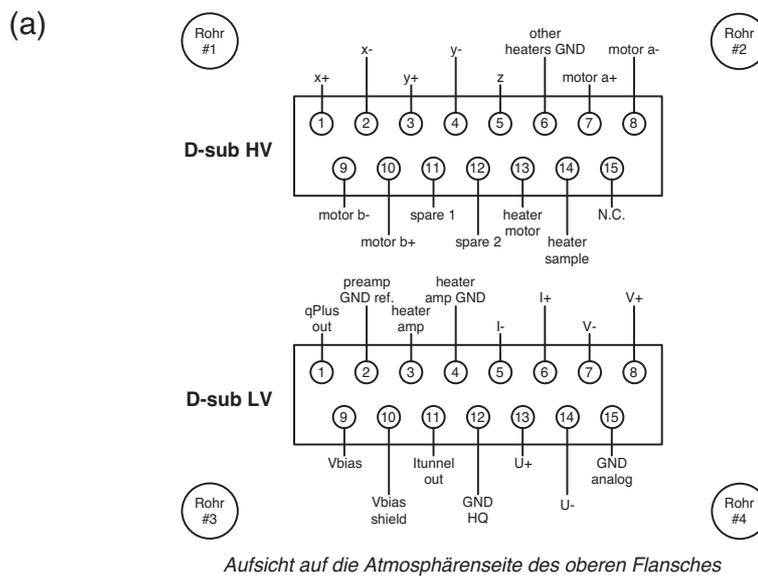


Abbildung B.6: Übersicht über die Pinbelegung der elektrischen Anschlüsse an der Oberseite (a) und der Unterseite (b) des Pendelgestänges. In Teilabbildung (a) sind die für die Kabelführung genutzten Stützrohre des Pendelgestänges mit der in Tabelle B.3 geltenden Nummerierung eingezeichnet. Das Koaxialkabel für den Tunnelstrom ist an der Steckverbinderplatte an der Unterseite des Pendelgestänges vorbei direkt zu separaten Pins an der Oberseite des Kupferzylinders geführt.

Kabel	Ader	Funktion	Pin # Pendel HV	Pin # Mikroskop HV
P-TP 1	1	x+	1	1
P-TP 1	2	x-	2	20
P-TP 2	1	y+	3	2
P-TP 2	2	y-	4	19
P-TP 3	1	z	5	18
P-TP 3	2	other heaters GND	6	14
P-TP 4	1	motor a+	7	5
P-TP 4	2	motor a-	8	16
P-TP 5	1	motor b-	9	8
P-TP 5	2	motor b+	10	13
P-TP 6	1	spare 1	11	9
P-TP 6	2	spare 2	12	12
P single	1	heater motor	13	7
			14	
			15	
			16	

Tabelle B.1: Verbindungsplan des Adapterkabels, welches den HV-Steckverbinder an der Unterseite des Pendelgestänges (s. Abb. B.6b) mit dem HV-Steckverbinder am Mikroskopkopf-Deckel (s. Abb. B.5) verbindet. Die Abkürzung „P-TP“ bezeichnet Twisted-Pair-Kabel, die Abkürzung „P single“ Einzelleiter aus Kupferdraht AWG 32 mit Polyimid-Isolierung.

Kabel	Ader	Funktion	Pin # Pendel LV	Pin # Mikr. LV
Teflon Koax 1	innen	qPlus out	1	17
Teflon Koax 1	Schirm	preamp GND ref.	2	16
P-TP 1	1	heater amp	3	18
P-TP 1	2	heater amp GND	4	20
			5	
			6	
			7	
			8	
Teflon Koax 2	innen	Vbias	9	5
Teflon Koax 2	Schirm	Vbias shield	10	4
			11	
			12	
P-TT 1	1	U+	13	2
P-TT 1	2	U-	14	3
P-TT 1	3	GND analog	15	19
			16	

Tabelle B.2: Verbindungsplan des Adapterkabels, welches den LV-Steckverbinder an der Unterseite des Pendelgestänges (s. Abb. B.6b) mit dem LV-Steckverbinder am Mikroskopkopf-Deckel (s. Abb. B.5) verbindet. Die Abkürzung „P-TP“ bezeichnet Twisted-Pair-Kabel, die Abkürzung „P-TT“ Twisted-Triplett-Kabel aus Kupferdraht AWG 32 mit Polyimid-Isolierung. Die Bezeichnung „Teflon Koax“ steht für Koaxialkabel mit PTFE-Isolierung (RF-MINI COAX 50-1 [86]).

Rohr # 1				
Kabel	Ader	Funktion	Pin # D-sub HV	Pin # Macor
T-TP 1	weiß	x+	1	HV 1
T-TP 1	schwarz	x-	2	HV 2
T-TP 2	weiß	y+	3	HV 3
T-TP 2	schwarz	y-	4	HV 4
T-TP 3	weiß	z	5	HV 5
T-TP 3	schwarz	other heaters GND	6	HV 6
Rohr # 2				
Kabel	Ader	Funktion	Pin # D-sub HV	Pin # Macor
T-TP 4	weiß	motor a+	7	HV 7
T-TP 4	schwarz	motor a-	8	HV 8
P-TP 1	gold	motor b-	9	HV 9
P-TP 1	grün	motor b+	10	HV 10
P-TP 2	gold	spare 1	11	HV 11
P-TP 2	grün	spare 2	12	HV 12
P-TP 3	gold	heater motor	13	HV 13
P-TP 3	grün	heater sample	14	temp 3
Rohr # 3				
Kabel	Ader	Funktion	Pin # D-sub LV	Pin # Macor
T-TP 5	weiß	qPlus out	1	LV 1
T-TP 5	schwarz	preamp GND ref.	2	LV 2
Rohr # 4				
Kabel	Ader	Funktion	Pin # D-sub LV	Pin # Macor
P-TP 4	gold	heater amp	3	LV 3
P-TP 4	grün	heater amp GND	4	LV 4
P-TP 5	gold	I-	5	temp 1
P-TP 5	grün	I+	6	temp 2
P-TP 6	gold	V-	7	temp 1
P-TP 6	grün	V+	8	temp 2
T-TT 1	weiß	U+	13	LV 13
T-TT 1	weiß	U-	14	LV 14
T-TT 1	schwarz	GND analog	15	LV 15
Mitte 1				
Kabel	Leiter	Funktion	Pin # D-sub LV	Pin # Macor
Teflon Koax 1	innen	Vbias	9	LV 9
Teflon Koax 1	Schirm	Vbias shield	10	LV 10
Mitte 2				
Kabel	Leiter	Funktion	Pin # D-sub LV	Pin # Macor
Teflon Koax 2	innen	Itunnel out	11	N/A
Teflon Koax 2	Schirm	GND HQ	12	N/A

Tabelle B.3: Verkabelungsplan des Pendelgestänges. Die Kabel verbinden die D-sub-UHV-Stromdurchführungen im CF-Flansch an der Oberseite des oberen UHV-Membranbalgs (s. Abb. B.6a) mit den Steckverbindern an der Unterseite des Pendelgestänges (s. Abb. B.6b). Die Abkürzung „T-TP“ bezeichnet Twisted-Pair-Kabel, die Abkürzung „T-TT“ Twisted-Triplet-Kabel aus PTFE-isoliertem versilbertem Kupferdraht AWG 30 [86]. Die Abkürzung „P-TP“ bezeichnet Twisted-Pair-Kabel aus Phosphorbronzedraht AWG 32 mit Polyimid-Isolierung (Lakeshore WDT-32-25). Die Bezeichnung „Teflon Koax“ steht für Koaxialkabel mit PTFE-Isolierung (RF-MINI COAX 50-1 [86]). Mit Ausnahme der beiden Koaxialkabel verlaufen alle Kabel in den in Abb. B.6a gekennzeichneten Rohren des Pendelgestänges, die beiden Koaxialkabel sind außerhalb der Rohre geführt. Das Koaxialkabel für den Tunnelstrom ist an der Steckverbinderplatte an der Unterseite des Pendelgestänges vorbei direkt zu separaten Pins an der Oberseite des Kupferzylinders geführt.

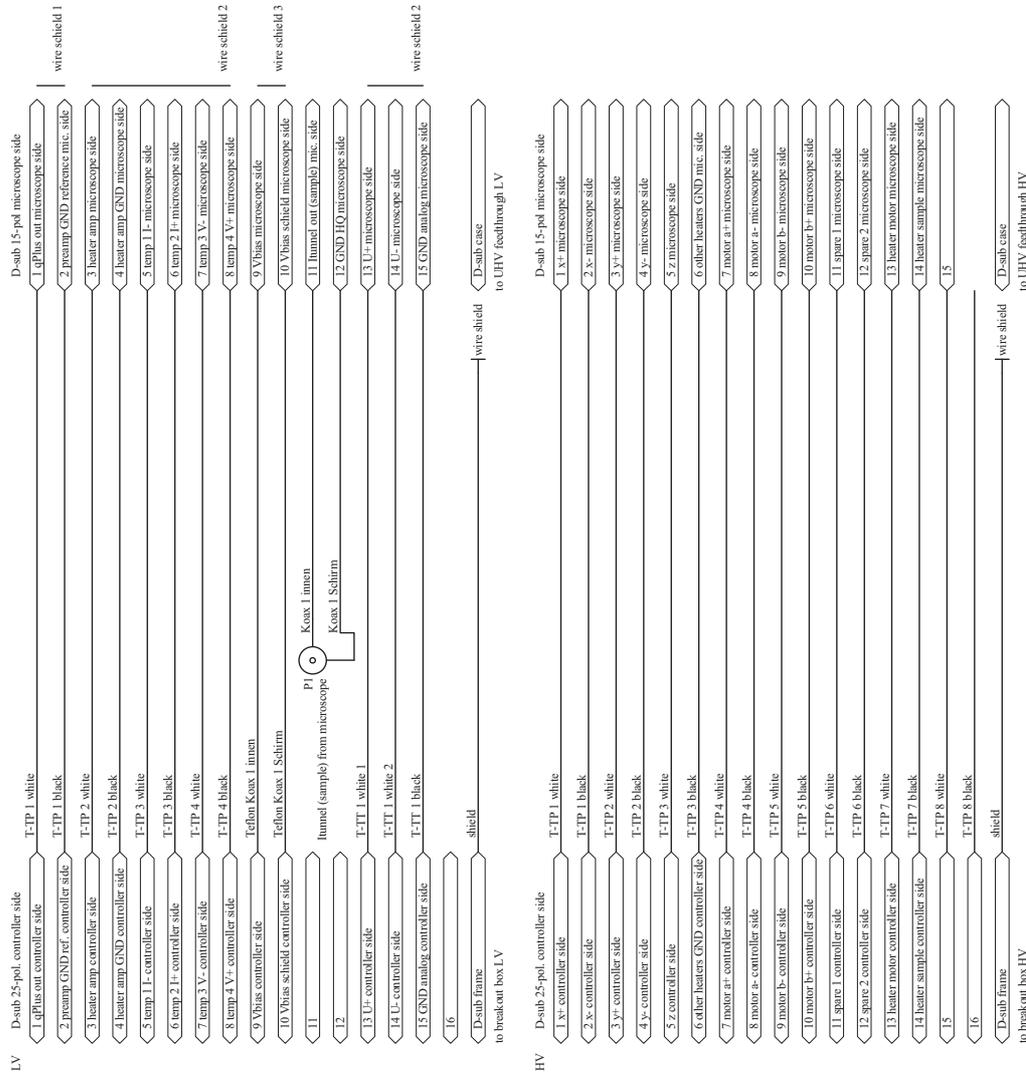


Abbildung B.7: Schaltplan der Adapterkabel, welche die Verbindung zwischen den D-sub-UHV-Stromdurchführungen im CF-Flansch an der Oberseite des oberen UHV-Membranbalgs und den Breakout-Boxen herstellen. Die Abkürzung „T-TP“ bezeichnet Twisted-Pair-Kabel, die Abkürzung „T-TT“ Twisted-Triplet-Kabel aus PTFE-isoliertem versilbertem Kupferdraht AWG 30 [86]. Die Bezeichnung „Teflon Koax“ steht für Koaxialkabel mit PTFE-Isolierung (RF-MINI COAX 50-1 [86]).

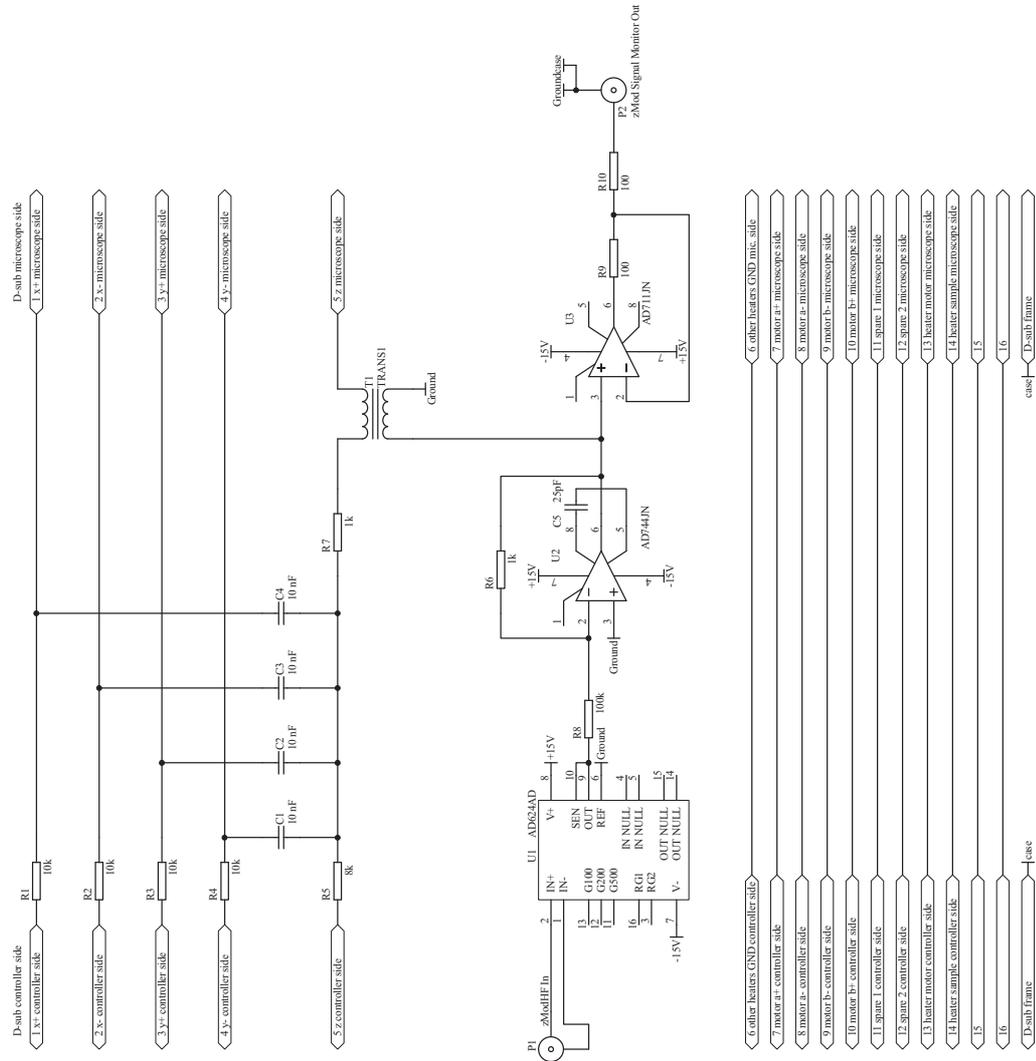


Abbildung B.8: Schaltplan der Breakout-Box HV. Nicht eingezeichnet sind die bei jeder integrierten Schaltung für die Versorgungsspannungen eingesetzten 100 nF-Überbrückungskondensatoren.

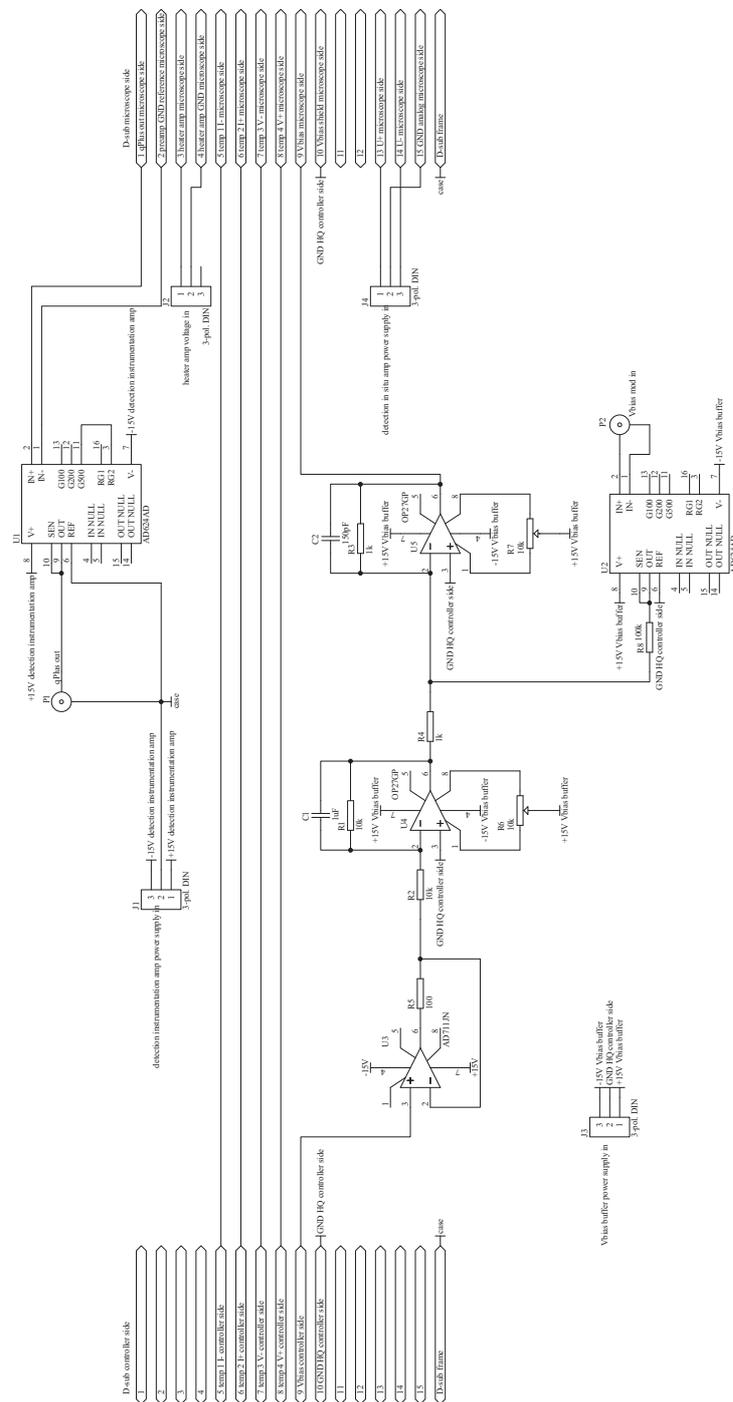


Abbildung B.9: Schaltplan der Breakout-Box LV – measurement (current via sample). Nicht eingezeichnet sind die bei jeder integrierten Schaltung für die Versorgungsspannungen eingesetzten 100 nF-Überbrückungskondensatoren.

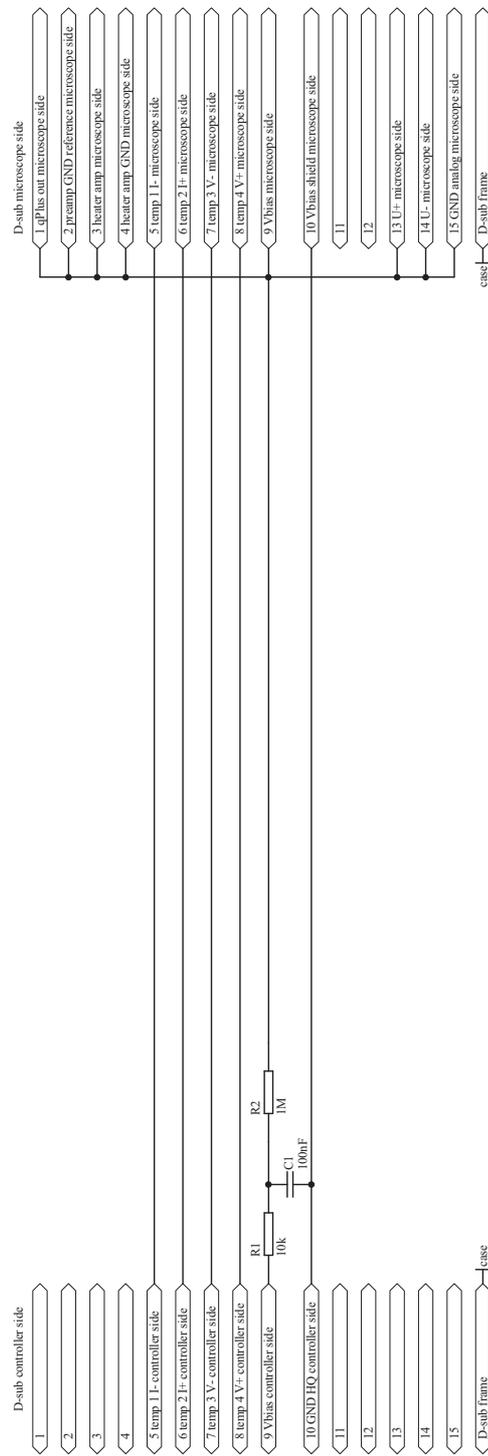


Abbildung B.11: Schaltplan der Breakout-Box LV – field emission.

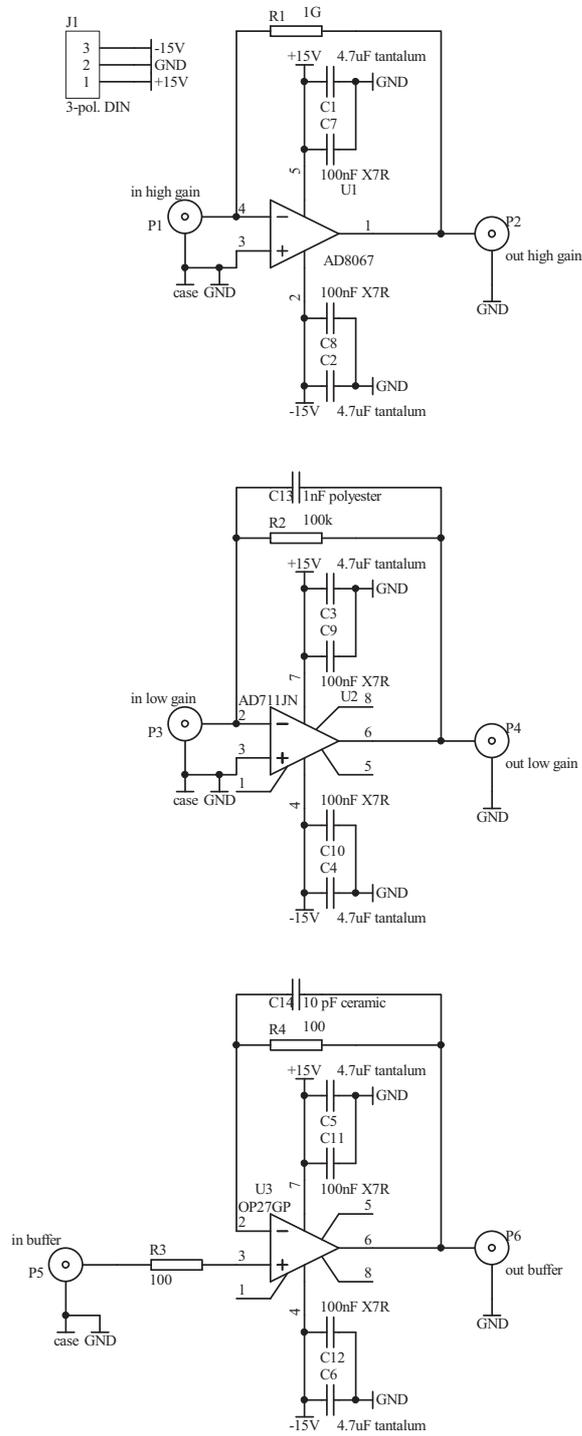


Abbildung B.12: Schaltplan des Eigenbau-Transimpedanzverstärkers zur Tunnelstromdetektion.

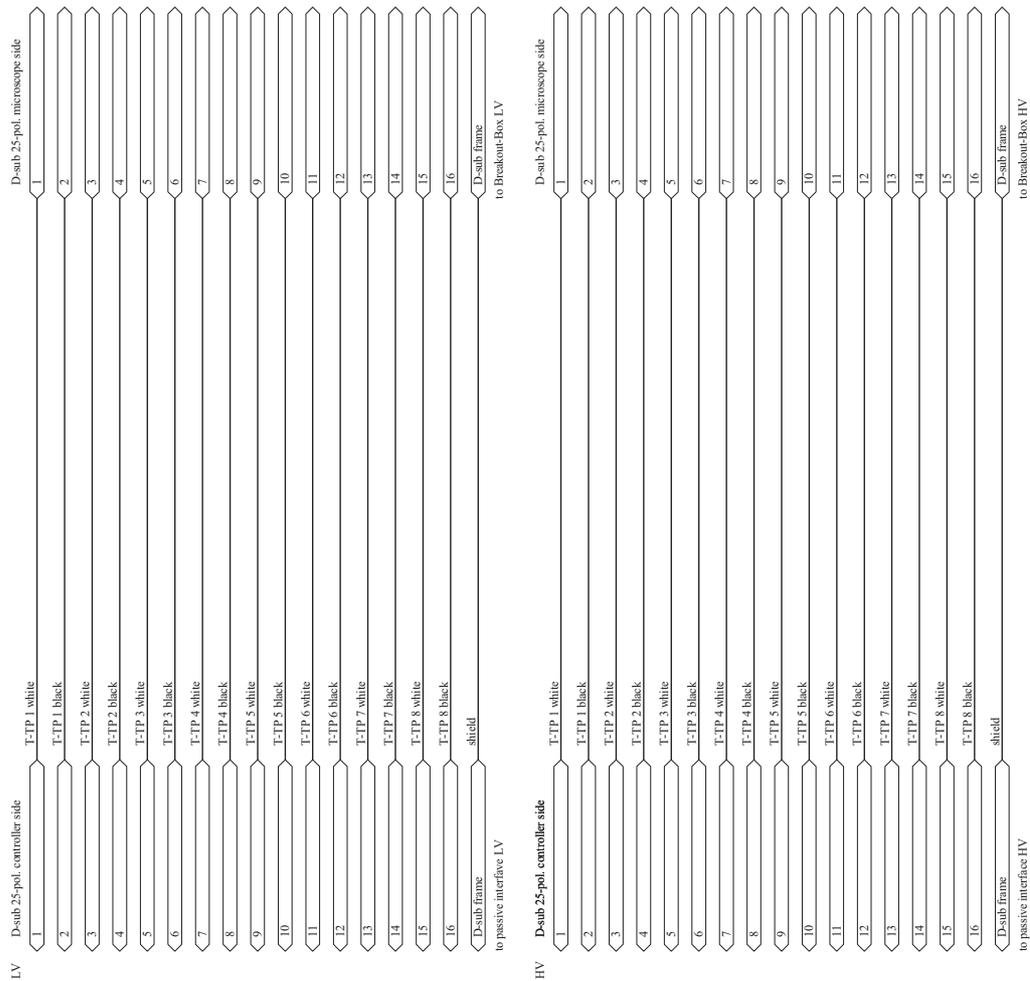


Abbildung B.13: Schaltplan der Kabel, welche die Verbindung zwischen den Breakout-Boxen und der passiven Schnittstelle herstellen. Die Abkürzung „T-TP“ bezeichnet Twisted-Pair-Kabel aus PTFE-isoliertem versilbertem Kupferdraht AWG 30 [86]

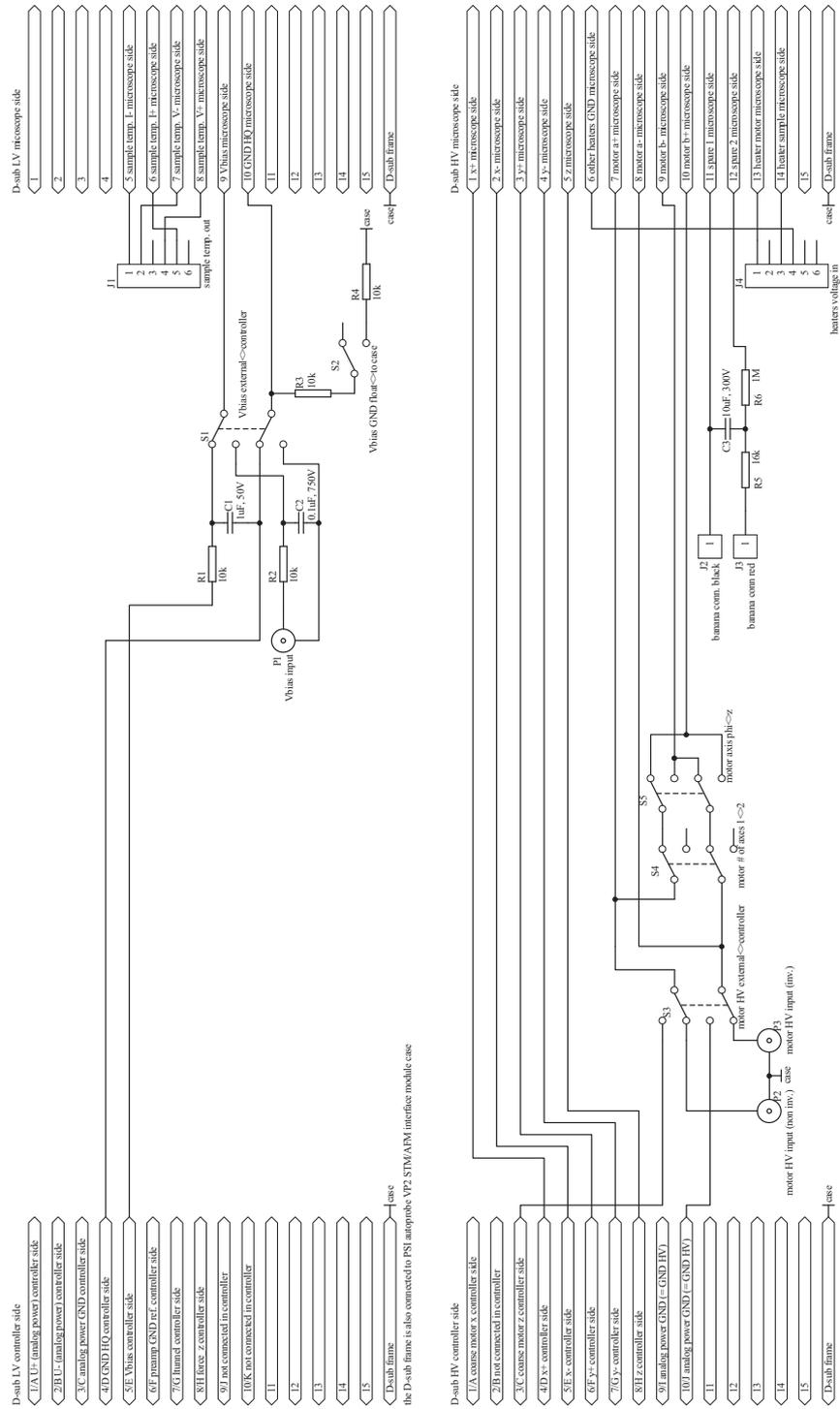


Abbildung B.14: Schaltplan der passiven Schnittstelle.

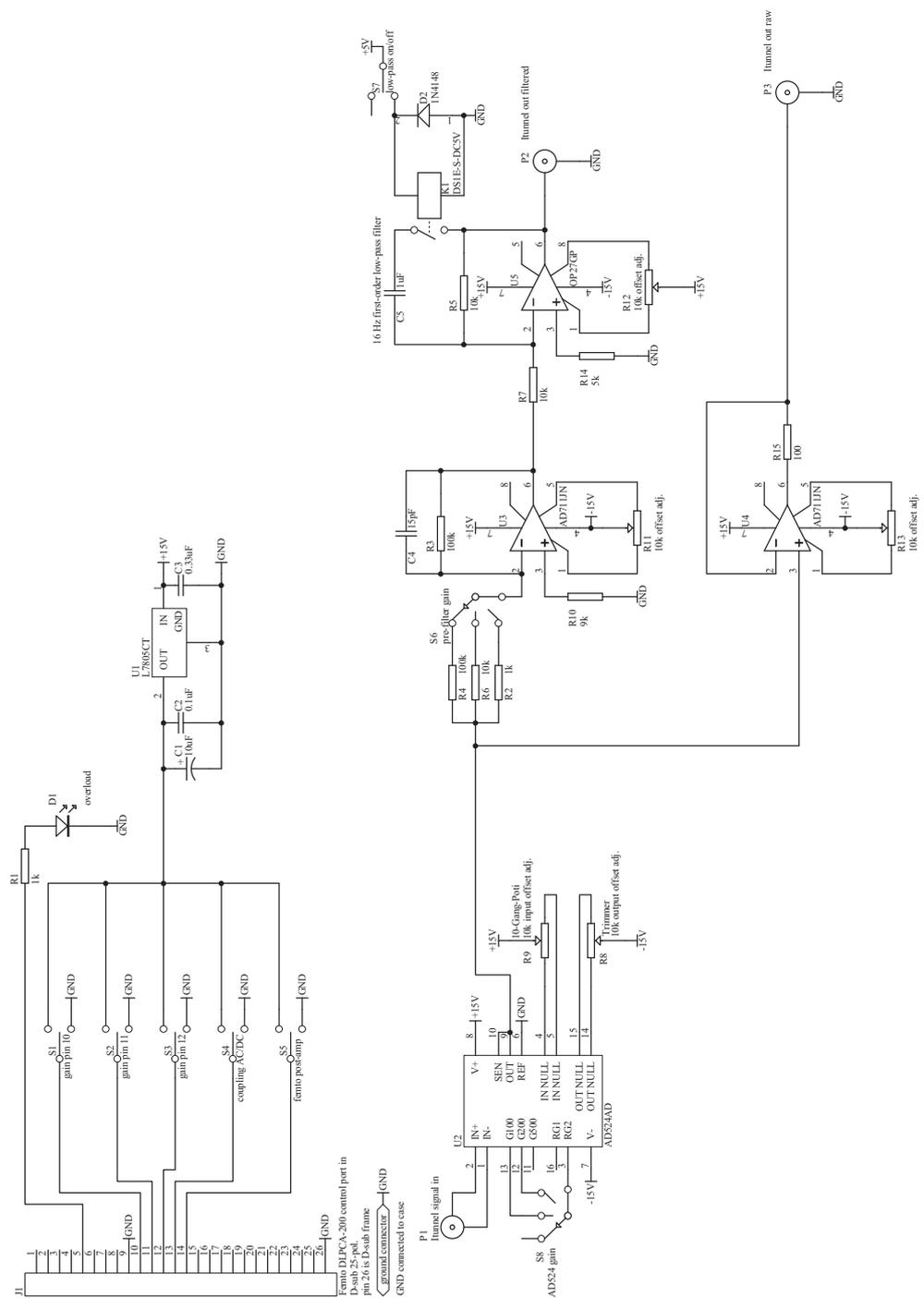


Abbildung B.15: Schaltplan der Tunnelstromsignal-Aufbereitungselektronik. Nicht eingezeichnet sind die bei jeder integrierten Schaltung für die Versorgungsspannungen eingesetzten 100 nF-Überbrückungskondensatoren.

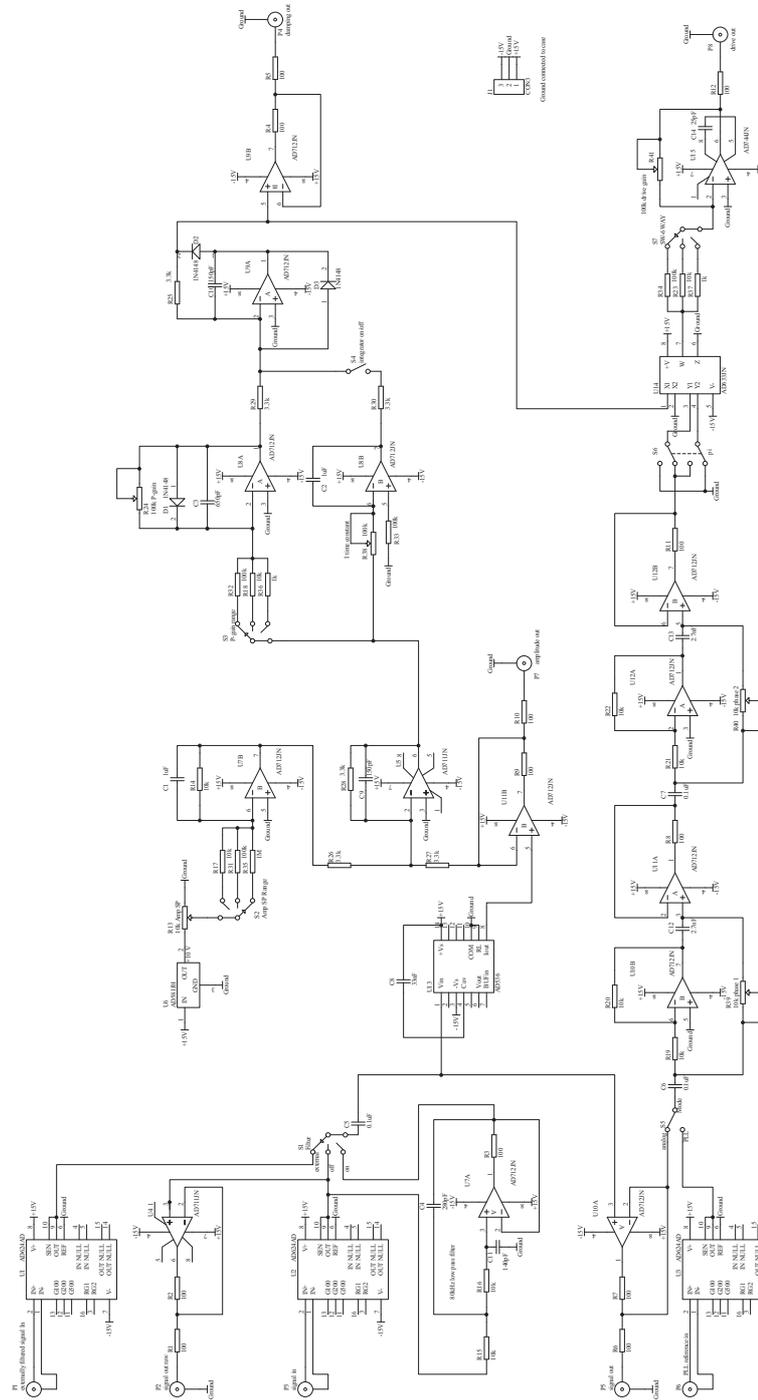


Abbildung B.16: Schaltplan der Amplitudenregelungselektronik. Nicht eingezeichnet sind die bei jeder integrierten Schaltung für die Versorgungsspannungen eingesetzten 100 nF-Überbrückungskondensatoren.

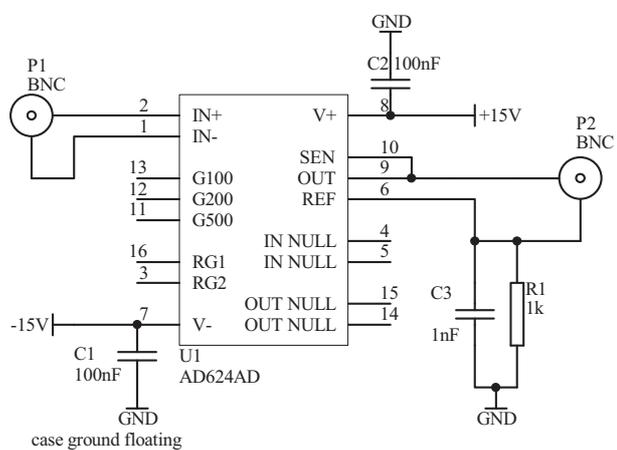


Abbildung B.17: Schaltplan der Instrumentenverstärker-Schaltung.

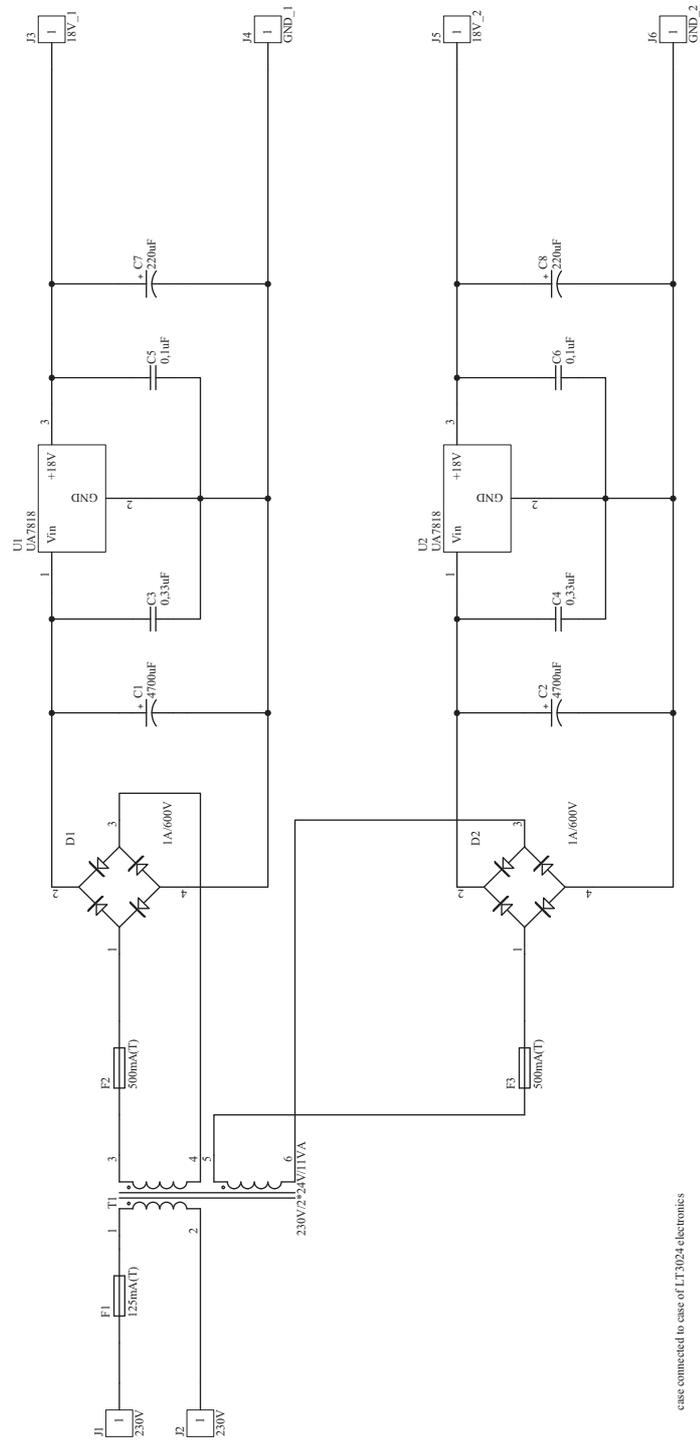


Abbildung B.18: Schaltplan der Transformator-Platine der rauscharmen Netzteil.

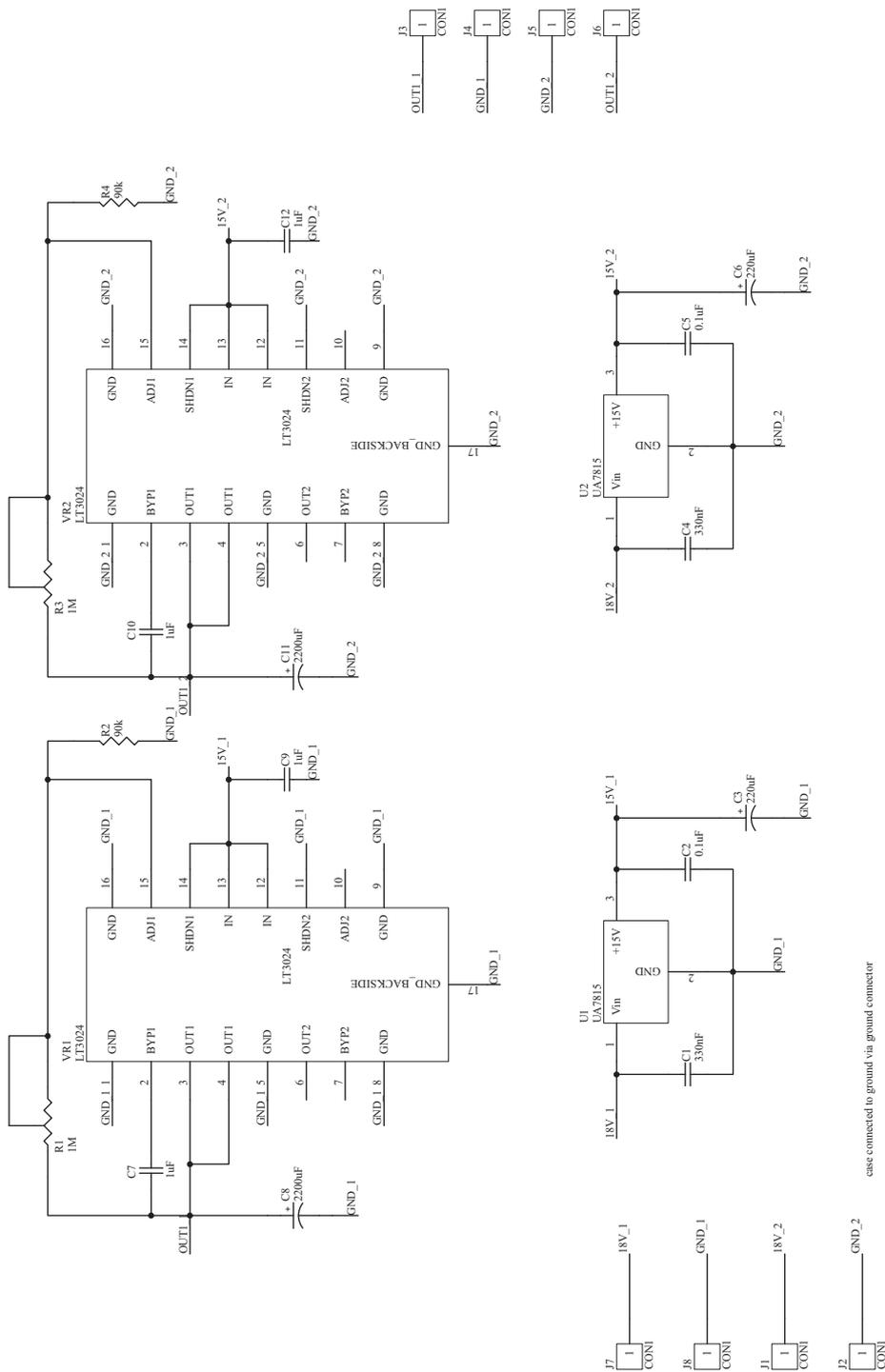


Abbildung B.19: Schaltplan der Regler-Platine der rauscharmen Netzteile.

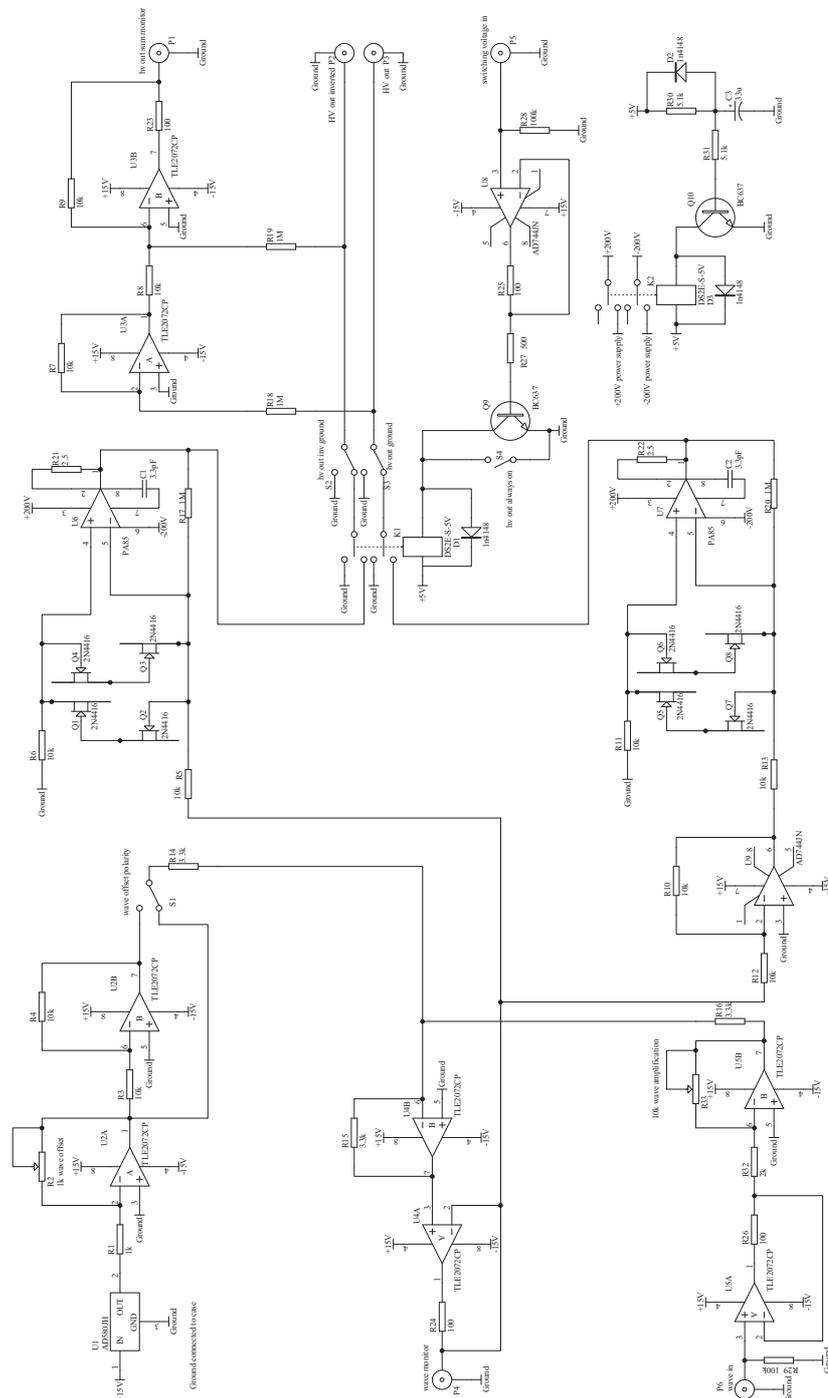


Abbildung B.20: Schaltplan der Hochspannungs-Verstärkers zum Betrieb des Trägheitsmotors. Nicht eingezeichnet sind die bei jeder integrierten Schaltung für die Versorgungsspannungen eingesetzten 100 nF-Überbrückungskondensatoren.

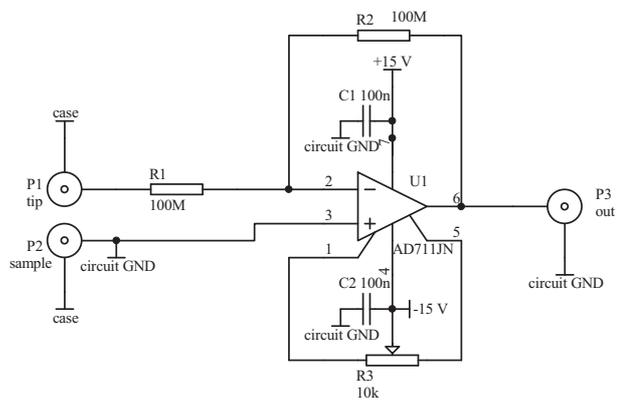


Abbildung B.21: Schaltplan der Tunnelkontaktsimulations-Testschaltung.

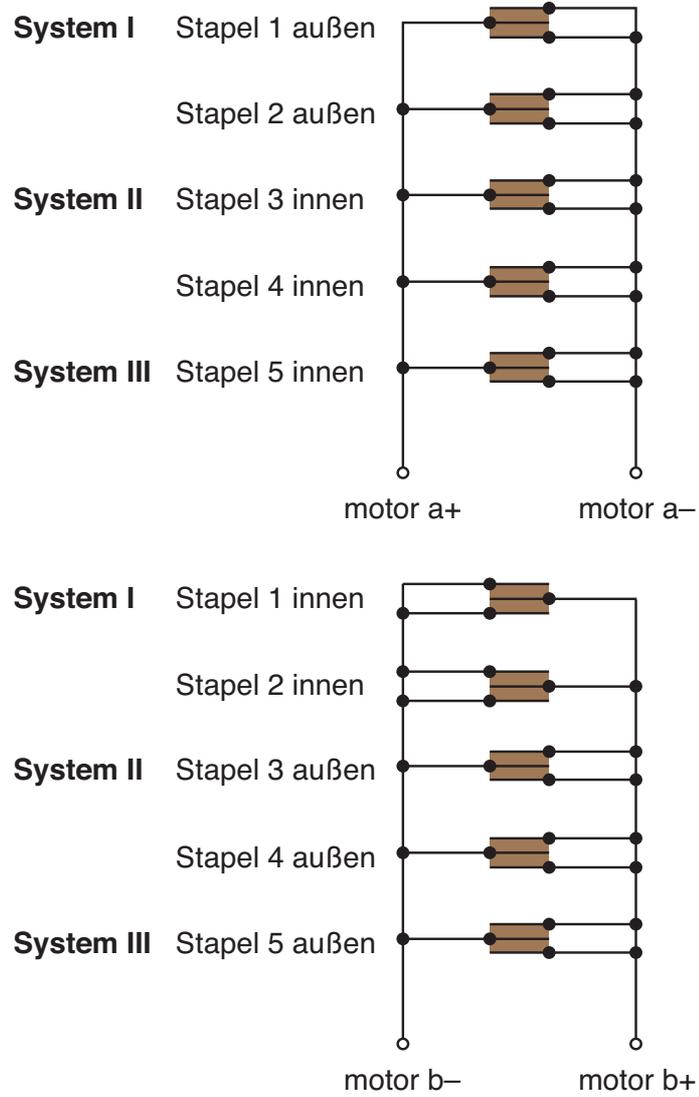


Abbildung C.2: Skizze zur Verschaltung der Piezostapel im neu entwickelten Mikroskopkopf.

D Details zu den DFT-Rechnungen

Die spektralen Zustandsdichten der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen wurden mittels des WIEN2k-Programmpakets [87] für Superzellen mit der in Abb. D.1 skizzierten Schichtstruktur berechnet. Für die LDA-Rechnung wurden 120 k -Punkte (15 k -Punkte im irreduziblen Teil der ersten Brillouinzone), für die LDA+ U -Rechnung [88] 600 k -Punkte (21 k -Punkte im irreduziblen Teil der ersten Brillouinzone) verwendet. Die LDA+ U -Rechnung berücksichtigt lokale Coulomb- und Austausch-Wechselwirkungsparameter $U = 2$ eV und $J = 0,8$ eV in der Ti $3d$ -Schale. Um eine unechte Vermischung der La f -Zustände mit den Ti $3d$ -Bändern zu vermeiden, wurde für die La f -Zustände nach Ref. [89] ein großes U von 8 eV eingeführt. Die Rechnungen umfassten eine strukturelle Relaxation entlang aller Kristallachsen.

Abbildung D.2 zeigt die totale Zustandsdichte der Superzelle (grün), die Zustandsdichte der Grenzflächen- TiO_2 -Schichten (grau) und die Ti $3d$ -Zustandsdichte der Grenzflächen- TiO_2 -Schichten (orange), berechnet mittels LDA (Abb. D.2a) und mittels LDA+ U (Abb. D.2b). Während die Ti $3d t_{2g}$ -Zustände der Grenzflächen- TiO_2 -Schichten den Verlauf der totalen Zustandsdichte im Energiebereich von 0,5 bis 2 eV im Wesentlichen prägen und die markanten lokalen Maxima zwischen $\approx 0,6$ eV und ≈ 1 eV erzeugen, erfährt das lokale Maximum bei 1,4 eV eine beträchtliche Erhöhung durch Beiträge der angrenzenden TiO_2 -Schicht. Im experimentellen Resultat (Abb. 6.9a auf Seite 99) scheint dieses lokale Maximum schwächer gewichtet zu sein, als in der totalen Zustandsdichte in Abb. D.2b. Dies könnte damit zusammenhängen, dass der Tunnelstrom hauptsächlich von Ti $3d t_{2g}$ -Zuständen der Grenzflächen- TiO_2 -Schicht getragen wird.

Abbildung D.3 zeigt die einzelnen Orbitalbeiträge zur Ti $3d$ -Zustandsdichte der Grenzflächen- TiO_2 -Schichten, berechnet mittels LDA (Abb. D.3a) und LDA+ U (Abb. D.3b).

Gemäß der DFT-Rechnungen tragen bei Energien zwischen 0,5 und 2 eV ausschließlich Ti $3d t_{2g}$ -Zustände zur totalen Zustandsdichte der zur Modellierung der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen verwendeten Superzelle bei. Bei Energien $< 0,5$ eV tragen auch O $2p$ -Zustände der an Vakuum angrenzenden AlO_2 -Schichten bei und könnten an Tunnelprozessen beteiligt sein. Abbildung D.4 vergleicht

gemessene Verläufe des NDC (Abb. D.4a) mit der O $2p$ -Zustandsdichte der äußersten AlO_2 -Schichten und der Ti $3d$ -Zustandsdichte der Grenzflächen- TiO_2 -Schichten der Superzelle, berechnet in LDA+ U (Abb. D.4b).

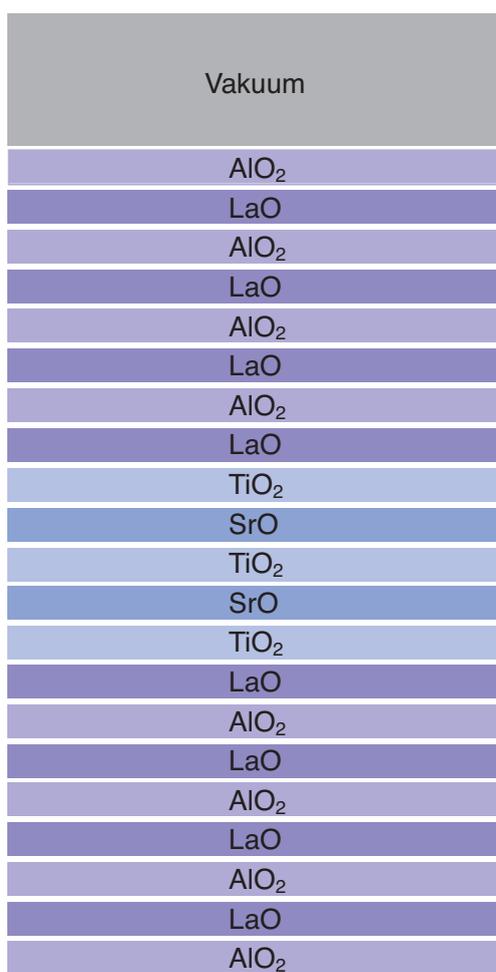


Abbildung D.1: Skizze der Schichtstruktur der für die DFT-Rechnungen verwendeten Superzellen (nach Ref. [7]).

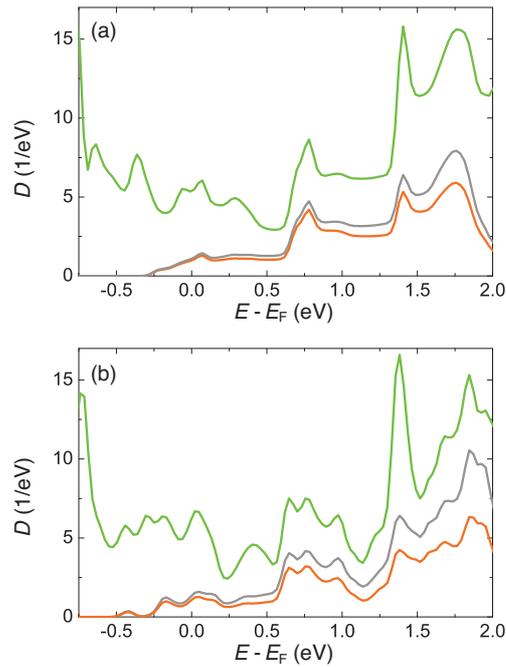


Abbildung D.2: Berechnete totale Zustandsdichten der in Abb. D.1 skizzierten Superzelle und Zustandsdichten der Grenzflächen-TiO₂-Schichten. Jeweils gezeigt sind die totale Zustandsdichte der kompletten Superzelle (grün), die Zustandsdichte der Grenzflächen-TiO₂-Schichten (grau) und die Ti 3*d*-Zustandsdichte der Grenzflächen-TiO₂-Schichten (orange). Man beachte, dass die partiellen Zustandsdichten aus Integration über nicht überlappende Muffin-Tin-Kugeln hervorgehen, wobei die verbleibenden Zwischenräume vernachlässigt werden. Daher ist die Summe der partiellen Zustandsdichten kleiner als die totale Zustandsdichte. **(a)** In LDA berechnete Zustandsdichten. **(b)** In LDA+*U* berechnete Zustandsdichten (aus Ref. [7]).

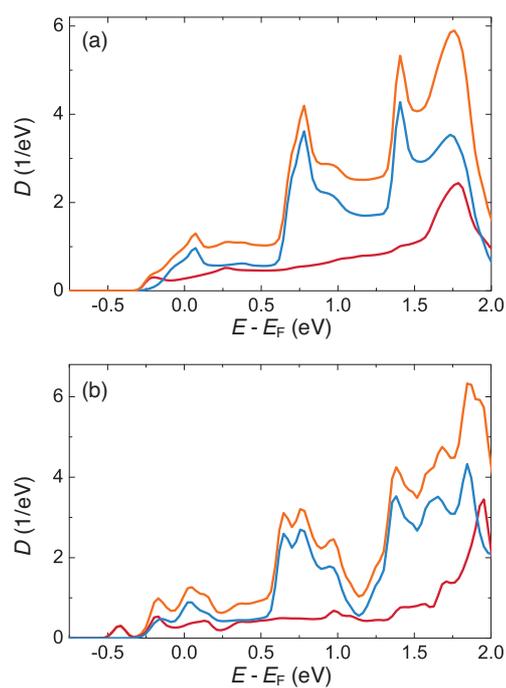


Abbildung D.3: Auftragungen der Orbitalbeiträge zu den berechneten Ti $3d$ -Zustandsdichten der Grenzflächen-TiO₂-Schichten. Die totale Ti $3d$ -Zustandsdichte (orange) enthält Beiträge von Ti $3d_{xy}$ -Orbitalen (rot) und Ti $3d_{xz} + 3d_{yz}$ -Orbitalen (blau). **(a)** In LDA berechnete Zustandsdichten. **(b)** In LDA+ U berechnete Zustandsdichten (aus Ref. [7]).

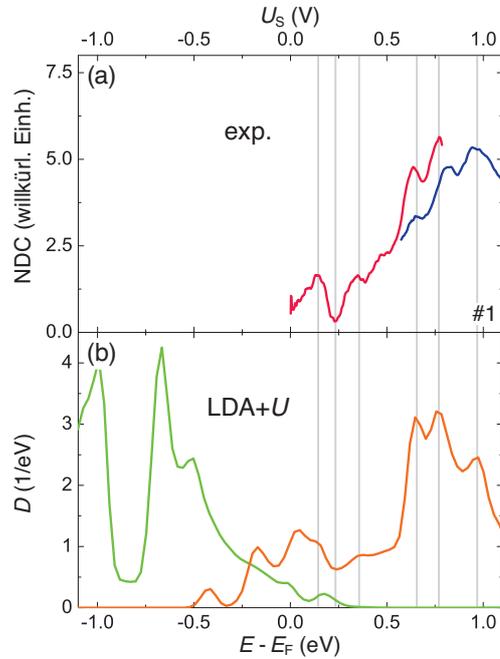


Abbildung D.4: Vergleich gemessener Tunnelspektren mit in LDA+ U berechneten Zustandsdichten. **(a)** Verläufe des $NDC(U_S) = (\partial I_t / \partial U_S) / (I_t / U_S + \zeta)(U_S)$ mit $\zeta = 1$ pA/V, gemessen bei 4,7 K mit jeweils festgehaltenem Spitzen-Probenabstand an Probenstellen in bezogen auf die Terrassenbreite weiter Entfernung zu topografischen Stufen. Die verschiedenen Farben kennzeichnen unterschiedliche Spitzen-Probenabstände (blau: $I_{t,stab} = 12$ pA, $U_{S,stab} = 1$ V; rot: $I_{t,stab} = 12$ pA, $U_{S,stab} = 0,8$ V). Beide Spektren wurden mit $\hat{U}_{mod} = 5$ mV_{rms} und $f_{mod} = 77$ Hz gemessen. Die gezeigten Daten sind jeweils über ein Spannungsintervall von 75 mV gemittelt. Die Spektren sind auch in Abb. 6.9a aufgetragen. **(b)** Ti 3d-Zustandsdichte der Grenzflächen-TiO₂-Schichten (orange) und O 2p-Zustandsdichte der äußersten an das Vakuum angrenzenden AlO₂-Schichten (grün), berechnet in LDA+ U für eine Superzelle mit der in Abb. D.1 skizzierten Schichtstruktur. In (a) und (b) sind jeweils die Positionen charakteristischer Merkmale der berechneten Ti 3d-Zustandsdichte mit grauen Hilfslinien markiert (aus Ref. [7]).

E Berechnete Zustandsdichten von Volumen-LaAlO₃ und -SrTiO₃

Abbildung E.1 zeigt die totalen Zustandsdichten von Volumen-LaAlO₃ (Abb. E.1a) und Volumen-SrTiO₃ (Abb. E.1b), berechnet in LDA. Die Zustandsdichten wurden unter Verwendung des WIEN2k-Programmpakets berechnet mit 3000 k -Punkten (84 k -Punkte im irreduziblen Teil der ersten Brillouin-Zone) im Falle der LaAlO₃-Zustandsdichte und 3375 k -Punkten (120 k -Punkte im irreduziblen Teil der ersten Brillouin-Zone) im Falle der SrTiO₃-Zustandsdichte. Die Zustandsdichte der LaAlO₃-SrTiO₃-Heterostruktur unterscheidet sich von den Zustandsdichten beider Ausgangsmaterialien.

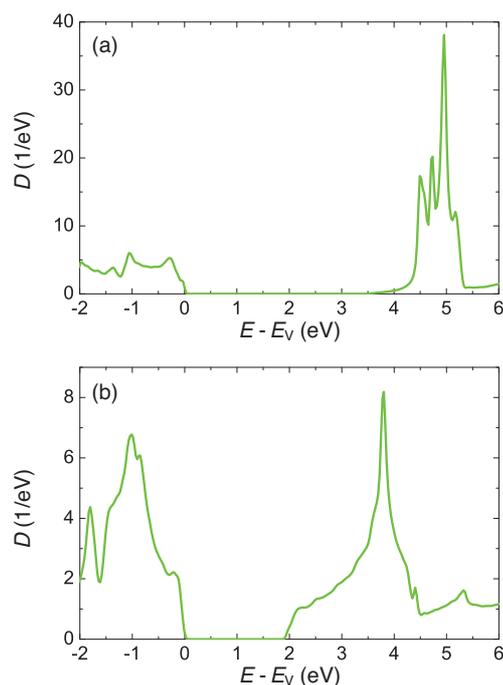


Abbildung E.1: Auftragerungen der Zustandsdichten von Volumen-LaAlO₃ (a) und Volumen-SrTiO₃ (b), berechnet in LDA (aus Ref. [7]).

F Messaufbau zur Untersuchung von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen mit Backgate

In zukünftigen Experimenten soll die Zustandsdichte von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen als Funktion der Ladungsträgerdichte untersucht werden. Die Ladungsträgerdichte soll dabei über einen Gatekontakt an der Probenrückseite, ein Backgate, beeinflusst werden. Die experimentellen Voraussetzungen hierzu wurden noch im Rahmen der vorliegenden Arbeit geschaffen. Der Messaufbau zur Untersuchung von LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen mit Backgate umfasst einen modifizierten Probenträger zur getrennten Kontaktierung der Grenzfläche und des Backgates sowie eine Elektronik zur Tunnelstromdetektion über den zur Spitze fließenden Strom anstatt über den von der Grenzfläche abfließenden Strom. Mittels dieses Aufbaus wurde an Probe 2 das in Abb. 6.8d gezeigte Tunnelspektrum mit einer Gatespannung $U_{\text{gate}} = 0 \text{ V}$ gemessen.

Der modifizierte Probenträger ermöglicht eine Messung des zur LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche fließenden Tunnelstroms, während das Backgate mit Spannungen bis zu mehreren hundert Volt gegenüber der Grenzfläche beaufschlagt ist. Eine LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellage mit kontaktierter Grenzfläche und kontaktiertem Backgate ist in Abb. F.1 skizziert. Der Probenträger besteht aus zwei elektrisch voneinander isolierten Hälften, von denen eine mit der Grenzfläche, die andere mit dem Backgate elektrisch verbunden ist. Die beiden Hälften sind mit elektrisch isolierendem Epoxidharzklebstoff EPK-1C miteinander verklebt. Das Backgate wird durch die Schicht elektrisch leitenden Epoxidharzklebstoffs E4110, mit dem die Probe am Probenträger angebracht ist, gebildet.

Die untere der beiden Blattfedern des Probenhalters am Kupferzylinder ist in zwei elektrisch voneinander isolierte Hälften geteilt (s. Abb. 5.10). Eine der beiden Hälften ist auf dem Potential U_{gate} gegenüber der Laborerde. Wird der zweigeteilte Probenträger in den Probenhalter des Kupferzylinders eingebaut, so entsteht mit der in Abb. 5.2 dargestellten Konfiguration der Mikroskop-Elektronik insgesamt die in Abb. F.2a gezeigte Anordnung, die sich jedoch als ungeeignet erwies. Bei den verwendeten Proben mit einer Fläche von $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm}$ und einer Dicke von 1 mm ergab sich aufgrund der bei tiefen Temperaturen sehr großen Dielektri-

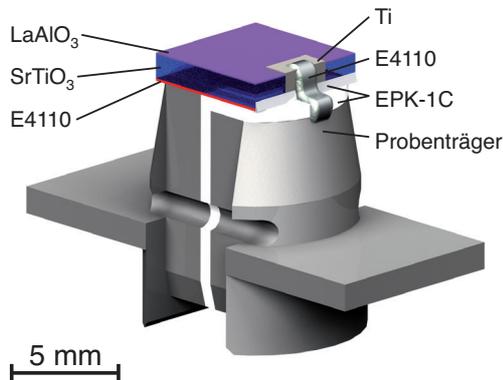


Abbildung F.1: Skizze einer LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellage mit kontaktierter Grenzfläche und kontaktiertem Backgate.

zitätskonstanten von SrTiO_3 eine elektrische Kapazität C_{g-i} zwischen Backgate und Grenzfläche von etwa drei Nanofarad. Wegen dieser großen Kapazität wirkte sich Spannungsrauschen in der Gatespannung gemäß $I = C_{g-i} \cdot \dot{U}_{\text{gate}}$ in extrem hohem Rauschen im zur Grenzfläche fließenden Strom aus. Wird hingegen der Tunnelstrom über den zur Spitze fließenden Strom detektiert, so ergeben sich aus Rauschen in U_{gate} keine Auswirkungen auf das Tunnelstromsignal. Die neu entwickelte *Breakout-Box LV – measurement (current via tip)* (Schaltplan in Abb. B.10), die anstelle der *Breakout-Box LV – measurement (current via sample)* angeschlossen werden kann, realisiert hierfür die in Abb. F.2b gezeigte Verschaltung. Um die Grenzfläche auf einem festen Bezugspotential für die Gatespannung halten zu können, wird die Spitze mit der Tunnelspannung $-U_S$ gegenüber der Laborerde beaufschlagt. Die Tunnelspannungs-Modulation erfolgt grenzflächenseitig, um kapazitive Anteile im Tunnelstromsignal klein zu halten. Die zur Grenzfläche fließende Summe aus dem Tunnelstrom und dem zwischen Gate-Elektrode und Grenzfläche fließendem Leckstrom I_{leak} wird als Kontrollgröße mit einer Grenzfrequenz von 0,16 Hz detektiert.

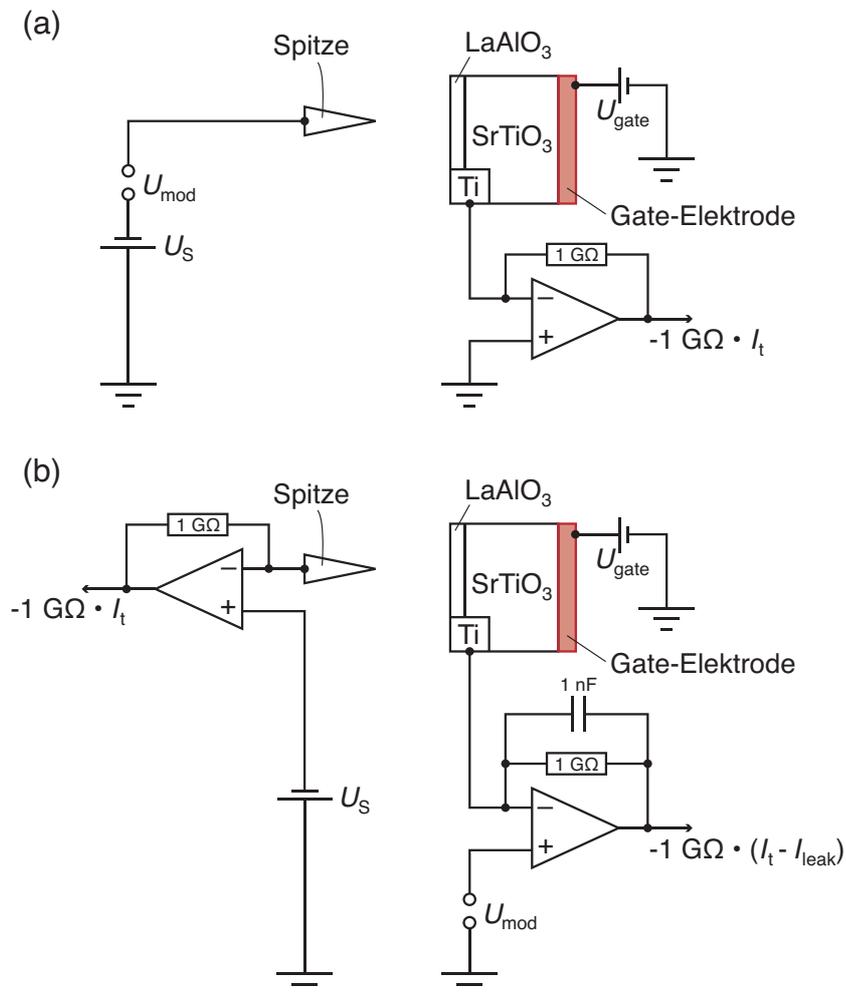


Abbildung F.2: Schaltpläne zur Tunnelstromdetektion über die Probe (a) und über die Spitze (b) im Vergleich (vereinfacht). Die Tunnelstromdetektion über die Probe ermöglicht simultane Kraftmikroskopie, die Tunnelstromdetektion über die Spitze die Untersuchung von Proben mit großer Kapazität zwischen der Grenzfläche und der Gate-Elektrode.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Skizze der experimentellen Anordnung zur Untersuchung des Elektronensystems an der LaAlO_3 - SrTiO_3 -Grenzfläche mittels Rastertunnelspektroskopie.	7
2.1	Skizzen der Einheitszellen von LaAlO_3 und SrTiO_3	11
2.2	Skizze der Schichtstruktur einer LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellage.	13
2.3	Skizze der Verläufe des elektrostatischen Potentials innerhalb des LaAlO_3 -Films einer LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellage entlang der c -Achse für unterschiedliche Valenzelektronen-Verteilungen.	14
2.4	Auftragungen des gemessenen Flächenleitwerts und der gemessenen Flächendichte der Ladungsträger der Grenzfläche in LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellagen als Funktion der LaAlO_3 -Filmdicke.	15
3.1	Querschnitts-Skizze einer Rastersondenmikroskopie-Spitze in der Nähe einer Probenoberfläche.	17
3.2	Skizze der mechanischen Komponenten eines Rastersondenmikroskops.	19
3.3	Skizze eines Cantilevers, wie er in der Rasterkraftmikroskopie verwendet wird.	21
3.4	Skizze eines in der Nähe einer Probe schwingenden Cantilevers.	22
3.5	Darstellung des thermodynamischen Gleichgewichts von Spitze und Probe bei einer Temperatur von 0 K.	25
3.6	Skizze einer Anordnung von Spitze und Probe mit einer äußeren Spannung und der zugehörigen Zustandsdichten.	26
3.7	Skizzen des Verlaufs der potentiellen Energie eines Elektrons für die vollständige Anordnung von Spitze und Probe und eines sie trennenden Vakuumpalts, sowie für die Spitze und die Probe in separater Betrachtung nach Bardeen.	28
4.1	Skizze von Vakuumanlage und Kühlsystem des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops im Querschnitt.	35
4.2	Fotografische Außenansicht von Vakuumsystem und Dewar-Gefäß des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops.	36
4.3	Fotografische Ansicht eines qPlus-Sensors mit Iridiumspitze.	37

4.4	Schematische Aufsicht auf die Stirnflächen der Stimmgabelzinken und Schaltplan des zur Auslenkungsdetektion verwendeten Transimpedanzverstärkers.	38
4.5	Schaltplan der Messanordnung zur Bestimmung des Signal-Rauschverhältnisses der qPlus-Auslenkungsdetektion.	41
4.6	Spektrum der leitwertbezogenen Leistungsdichte des Detektions-Ausgangssignals für $R = 10 \text{ M}\Omega$	41
4.7	Auftragung des experimentell ermittelten Signal-Rauschverhältnisses der qPlus-Auslenkungsdetektion als Funktion des Rückkoppelwiderstands R	42
4.8	Vereinfachter Übersichtsplan des Tieftemperatur-Rastersondenmikroskops mit den elektronischen Kernkomponenten und einer schematischen Darstellung von Mikroskopkopf und Probe.	44
4.9	Blockschaltbild der Amplituden-Regelschleife.	45
5.1	Rastertunnelmikroskopisches Topografiebild einer Graphitoberfläche.	51
5.2	Vereinfachter Übersichts-Schaltplan der Mikroskop-Elektronik.	55
5.3	Spektrum der leitwertbezogenen Leistungsdichte des Tunnelstromdetektions-Ausgangssignals bei Messung des Tunnelstroms über die Probe.	58
5.4	Spektrum der leitwertbezogenen Leistungsdichte des Auslenkungsdetektions-Ausgangssignals bei Raumtemperatur.	59
5.5	Spektrum der leitwertbezogenen Leistungsdichte des Auslenkungsdetektions-Ausgangssignals bei 4,7 K.	60
5.6	Zeichnung der Kernkomponenten des neu entwickelten Probentransfersystems.	62
5.7	Fotografische Ansicht der drei in der Präparationskammer agierenden Manipulatoren.	63
5.8	Zeichnung des neu entwickelten Kupferzylinders.	64
5.9	Detailansicht des Probenhalters am Kupferzylinder.	65
5.10	Fotografische Ansicht des Kupferzylinders mit eingebautem Probenträger durch ein Sichtfenster der Vakuumkammer.	65
5.11	Übersichts-Skizze des Vakuumsystems und der Manipulatoren des Probentransfersystems.	68
5.12	Fotografische Ansicht von Präparationskammer und Ladeschleuse.	69
5.13	Fotografische Ansicht eines Probenträgers, gehalten vom Probeneinbauwerkzeug.	70
5.14	Skizze der Heizanordnung des Probenpräparationssystems.	71
5.15	Fotografische Ansicht der Heizanordnung des Probenpräparationssystems.	72
5.16	Skizze einer piezoelektrischen Scherplatte.	73

5.17	Skizze zum Funktionsprinzip des Trägheitsmotors.	74
5.18	Zeitverläufe der Antriebsspannung des Trägheitsmotors.	75
5.19	Zeichnung des neu entwickelten Mikroskopkopfs.	76
5.20	Zeichnung eines im neu entwickelten Mikroskopkopf eingesetzten Piezostapels.	77
5.21	Fotografische Ansicht eines im neu entwickelten Mikroskopkopf ein- gesetzten Piezostapels.	77
5.22	Zeichnung von Chassis, Andruckmechanik und Schlitten des Mikro- skopkopfs.	78
5.23	Zeichnung des Schlittens mit angebrachtem Scanner.	79
5.24	Zeichnungen des Scanners mit abgezogenem Sensor-Stecksockel. . .	80
5.25	Fotografische Ansichten des neu entwickelten Mikroskopkopfs. . . .	80
6.1	Skizze einer $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Probe auf einem Probenträger des Tief- temperatur-Rastersondenmikroskops mit kontaktierter Grenzfläche. .	84
6.2	Fotografische Dokumentation von Teilschritten der Grenzflächenkon- taktierung mittels einer Titan-Elektrode.	85
6.3	Verschaltung der kontaktierten $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Probe zur Messung des zur Grenzfläche fließenden Tunnelstroms (vereinfacht).	86
6.4	Gemessene Transportcharakteristiken von Probe 4.	89
6.5	Rastersondenmikroskopische Topografiebilder von $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ - Heterostrukturen.	91
6.6	Gemessene Verläufe des Tunnelstroms, des differentiellen Leitwerts und des normierten differentiellen Leitwerts eines Tunnelspektrums der $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Heterostruktur.	92
6.7	Vergleich der Verläufe des differentiellen Leitwerts eines Tunnelspek- trums der $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Heterostruktur, gemessen mittels des Syn- chrotrichrichters und bestimmt durch numerische Differentiation. .	93
6.8	Vergleich der Verläufe des normierten differentiellen Leitwerts von an verschiedenen Proben gemessenen Tunnelspektren der $\text{LaAlO}_3\text{-}$ SrTiO_3 -Heterostruktur.	96
6.9	Vergleich von Verläufen des normierten differentiellen Leitwerts von Tunnelspektren der $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Heterostruktur mit in LDA und $\text{LDA}+U$ berechneten spektralen Zustandsdichten.	99
6.10	Illustration der Konfigurationen zweidimensionaler Elektronensysteme an Halbleitergrenzflächen und der $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Grenzfläche. .	101
A.1	Skizze der Anordnung von Spitze und Probe und des sie trennenden Vakuumpalts und der Verläufe der potentiellen Energie eines Elek- trons für die vollständige Anordnung sowie für die Spitze und die Probe in jeweils separater Betrachtung nach Bardeen.	107

A.2	Skizze einer Tunnelbarriere, die durch einen kontinuierlichen Ortsverlauf der potentiellen Energie gegeben ist.	108
A.3	Skizze der Ortsverläufe $V_{b,T}(z)$ und $V_{b,S}(z)$ der potentiellen Energie aufgrund der Bildladungs-Kräfte durch die Spitze und die Probe, modelliert als planparallele Elektroden.	110
A.4	Auftragungen der effektiven Barrierenhöhe $\eta(z, U_S, d = 1 \text{ nm})$ für Elektronen der Energie $E = \mu_S$ und der Energie $E = \mu_T$	111
A.5	Auftragungen des berechneten Tunnelstroms $I_t(U_S, d = 1 \text{ nm})$	112
A.6	Auftragung des berechneten Tunnelstroms $I_t(U_S = 1 \text{ V}, d)$	113
B.1	Fotografische Ansicht eines Transimpedanzverstärkers zur Auslenkungsdetektion des qPlus-Sensors im Tieftemperatur-Rastersondenmikroskop.	116
B.2	Schaltplan des Transimpedanzverstärkers für die qPlus-Auslenkungsdetektion.	116
B.3	Skizze des fliegenden Aufbaus des Transimpedanzverstärkers für die qPlus-Auslenkungsdetektion.	117
B.4	Skizze des Stecksockels des Transimpedanzverstärkers für die qPlus-Auslenkungsdetektion.	117
B.5	Skizze zur Pinbelegung und Verschaltung der Steckverbinder am Mikroskopkopf-Deckel.	118
B.6	Übersicht über die Pinbelegungen der elektrischen Anschlüsse des Pendelgestänges.	119
B.7	Schaltplan der Adapterkabel, welche die Verbindung zwischen den D-sub-UHV-Stromdurchführungen im CF-Flansch an der Oberseite des oberen UHV-Membranbalgs und den Breakout-Boxen herstellen.	123
B.8	Schaltplan der Breakout-Box HV.	124
B.9	Schaltplan der Breakout-Box LV – measurement (current via sample).	125
B.10	Schaltplan der Breakout-Box LV – measurement (current via tip).	126
B.11	Schaltplan der Breakout-Box LV – field emission.	127
B.12	Schaltplan des Eigenbau-Transimpedanzverstärkers zur Tunnelstromdetektion.	128
B.13	Schaltplan der Kabel, welche die Verbindung zwischen den Breakout-Boxen und der passiven Schnittstelle herstellen.	129
B.14	Schaltplan der passiven Schnittstelle.	130
B.15	Schaltplan der Tunnelstromsignal-Aufbereitungselektronik.	131
B.16	Schaltplan der Amplitudenregelungselektronik.	132
B.17	Schaltplan der Instrumentenverstärker-Schaltung.	133
B.18	Schaltplan der Transformator-Platine der rauscharmen Netzteile.	134
B.19	Schaltplan der Regler-Platine der rauscharmen Netzteile.	135

B.20	Schaltplan des Hochspannungs-Verstärkers zum Betrieb des Trägheitsmotors.	136
B.21	Schaltplan der Tunnelkontaktsimulations-Testschaltung.	137
C.1	Skizze zu den Bezeichnungen der Piezosysteme des neu entwickelten Mikroskopkopfs.	139
C.2	Skizze zur Verschaltung der Piezostapel im neu entwickelten Mikroskopkopf.	140
D.1	Skizze der Schichtstruktur der für die DFT-Rechnungen verwendeten Superzellen.	143
D.2	Totale Zustandsdichten der Superzelle mit vier Einheitszellen LaAlO_3 auf SrTiO_3 und Zustandsdichten der Grenzflächen- TiO_2 -Schichten, berechnet in LDA und LDA+ U	144
D.3	Auftragungen der Orbitalbeiträge zu den berechneten Ti $3d$ -Zustandsdichten der Grenzflächen- TiO_2 -Schichten.	145
D.4	Vergleich gemessener Tunnelspektren mit in LDA+ U berechneten Zustandsdichten.	146
E.1	Auftragungen der Zustandsdichten von Volumen- LaAlO_3 und Volumen- SrTiO_3 , berechnet in LDA.	147
F.1	Skizze einer LaAlO_3 - SrTiO_3 -Doppellage mit kontaktierter Grenzfläche und kontaktiertem Backgate.	150
F.2	Vereinfachte Schaltpläne zur Tunnelstromdetektion über die Probe und über die Spitze im Vergleich.	151

Tabellenverzeichnis

6.1	Übersicht über die bei den untersuchten Proben jeweils zur Grenzflächenkontaktierung verwendeten Elektrodenmaterialien, die zur Oberflächenpräparation verwendeten Heizparameter und die jeweils angewandte Art der Tunnelstromdetektion.	88
B.1	Verbindungsplan des Adapterkabels, welches den HV-Steckverbinder an der Unterseite des Pendelgestänges mit dem HV-Steckverbinder am Mikroskopkopf-Deckel verbindet.	120
B.2	Verbindungsplan des Adapterkabels, welches den LV-Steckverbinder an der Unterseite des Pendelgestänges mit dem LV-Steckverbinder am Mikroskopkopf-Deckel verbindet.	121
B.3	Verkabelungsplan des Pendelgestänges.	122

Literaturverzeichnis

- [1] Ohtomo, A. und H. Y. Hwang: *A high-mobility electron gas at the LaAlO₃/SrTiO₃ heterointerface*. Nature (London), 427:423, 2004.
- [2] Thiel, S., G. Hammerl, A. Schmehl, C. W. Schneider und J. Mannhart: *Tunable quasi-two-dimensional electron gases in oxide heterostructures*. Science, 313:1942, 2006.
- [3] Reyren, N., 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. Müller, J. M. Triscone und J. Mannhart: *Superconducting interfaces between insulating oxides*. Science, 317:1196, 2007.
- [4] Koinuma, H.: *Chemistry and electronics of oxides from carbon dioxide to perovskite*. Thin Solid Films, 486:2, 2005.
- [5] Binnig, G., H. Rohrer, Ch. Gerber und E. Weibel: *Surface studies by scanning tunneling microscopy*. Phys. Rev. Lett., 49:57, 1982.
- [6] Feenstra, R. M.: *Scanning tunneling spectroscopy*. Surf. Sci., 299-300:965, 1994.
- [7] Breitschaft, M., V. Tinkl, N. Pavlenko, S. Paetel, C. Richter, J. R. Kirtley, Y. C. Liao, G. Hammerl, V. Eyert, T. Kopp und J. Mannhart: *Two-dimensional electron liquid state at LaAlO₃-SrTiO₃ interfaces*. Phys. Rev. B, 81:153414, 2010.
- [8] Ando, T., A. B. Fowler und F. Stern: *Electronic properties of two-dimensional systems*. Rev. Mod. Phys., 54:437, 1982.
- [9] Klitzing, K. v., G. Dorda und M. Pepper: *New method for high-accuracy determination of the fine-structure constant based on quantized Hall resistance*. Phys. Rev. Lett., 45:494, 1980.
- [10] Mimura, T., S. Hiyamizu, T. Fujii und K. Nanbu: *A new field-effect transistor with selectively doped GaAs/n-Al_xGa_{1-x}As heterojunctions*. Jpn. J. Appl. Phys., 19:L225, 1980.

- [11] Wolovelsky, M., Y. Goldstein und O. Millo: *Scanning tunneling spectroscopy of a two-dimensional electron gas on the surface of ZnO*. Phys. Rev. B, 57:6274, 1998.
- [12] Morgenstern, M., J. Klijn, Chr. Meyer und R. Wiesendanger: *Real-space observation of drift states in a two-dimensional electron system at high magnetic fields*. Phys. Rev. Lett., 90:056804, 2003.
- [13] Salemink, H. W. M., H. P. Meier, R. Ellialtioglu, J. W. Gerritsen und P. R. M. Mural: *Tunnel spectroscopy of the AlGaAs-GaAs heterostructure interface*. Appl. Phys. Lett., 54:1112, 1989.
- [14] Perraud, S., K. Kanisawa, Z. Z. Wang und T. Fujisawa: *Direct measurement of the binding energy and Bohr radius of a single hydrogenic defect in a semiconductor quantum well*. Phys. Rev. Lett., 100:056806, 2008.
- [15] Feenstra, R. M., D. A. Collins, D. Z. Y. Ting, M. W. Wang und T. C. McGill: *Interface roughness and asymmetry in InAs/GaSb superlattices studied by scanning tunneling microscopy*. Phys. Rev. Lett., 72:2749, 1994.
- [16] Suzuki, K., K. Kanisawa, C. Janer, S. Perraud, K. Takashina, T. Fujisawa und Y. Hirayama: *Spatial imaging of two-dimensional electronic states in semiconductor quantum wells*. Phys. Rev. Lett., 98:136802, 2007.
- [17] Hembacher, S.: *Simultane Rasterkraft- und Rastertunnelmikroskopie bei 5 K im Ultrahochvakuum*. Dissertation, Universität Augsburg, 2003.
- [18] Hembacher, S., F. J. Giessibl und J. Mannhart: *Force microscopy with light-atom probes*. Science, 305:380, 2004.
- [19] Giessibl, F. J.: *High-speed force sensor for force microscopy and profilometry utilizing a quartz tuning fork*. Appl. Phys. Lett., 73:3956, 1998.
- [20] Giessibl, F. J.: *Atomic resolution on Si(111)-(7×7) by noncontact atomic force microscopy with a force sensor based on a quartz tuning fork*. Appl. Phys. Lett., 76:1470, 2000.
- [21] Binnig, G. und D. P. E. Smith: *Single-tube three-dimensional scanner for scanning tunneling microscopy*. Rev. Sci. Inst., 57:1688, 1986.
- [22] Pohl, D. W.: *Dynamic piezoelectric translation devices*. Rev. Sci. Inst., 58:54, 1987.

- [23] Hayward, S. A., F. D. Morrison, S. A. T. Redfern, E. K. H. Salje, J. F. Scott, K. S. Knight, S. Tarantino, A. M. Glazer, V. Shuvaeva, P. Daniel, M. Zhang und M. A. Carpenter: *Transformation processes in LaAlO₃: neutron diffraction, dielectric, thermal, optical, and Raman studies*. Phys. Rev. B, 72:054110, 2005.
- [24] Lim, S., S. Kriventsov, T. N. Jackson, J. H. Haeni, D. G. Schlom, A. M. Balbashov, R. Uecker, P. Reiche, J. L. Freeouf und G. Lucovsky: *Dielectric functions and optical bandgaps of high-K dielectrics for metal-oxide-semiconductor field-effect transistors by far ultraviolet spectroscopic ellipsometry*. J. App. Phys., 91:4500, 2002.
- [25] Abramov, Yu. A., V. G. Tsirelson, V. E. Zavodnik, S. A. Ivanov und I. D. Brown: *The chemical bond and atomic displacements in SrTiO₃ from X-ray diffraction analysis*. Acta Cryst., B51:942, 1995.
- [26] Benthem, K. van und C. Elsässer: *Bulk electronic structure of SrTiO₃: experiment and theory*. J. App. Phys., 90:6156, 2001.
- [27] Nakagawa, N., H. Y. Hwang und D. A. Muller: *Why some interfaces cannot be sharp*. Nature Mater., 5:204, 2006.
- [28] Binnig, G., C. F. Quate und Ch. Gerber: *Atomic force microscope*. Phys. Rev. Lett., 56:930, 1986.
- [29] Chen, Julian: *Introduction to scanning tunneling microscopy*. Oxford University Press, New York, 2. Auflage, 2008.
- [30] Giessibl, F. J.: *Advances in atomic force microscopy*. Rev. Mod. Phys., 75:949, 2003.
- [31] Albrecht, T. R., P. Grütter, D. Horne und D. Rugar: *Frequency modulation detection using high-Q cantilevers for enhanced force microscope sensitivity*. J. Appl. Phys., 69:668, 1991.
- [32] Giessibl, F. J.: *A direct method to calculate tip-sample forces from frequency shifts in frequency-modulation atomic force microscopy*. Appl. Phys. Lett., 78:123, 2001.
- [33] Kittel, C.: *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg, 12. Auflage, 1999.
- [34] Bardeen, J.: *Tunneling from a many-particle point of view*. Phys. Rev. Lett., 6:57, 1961.

- [35] Gottlieb, A. D. und L. Wesoloski: *Bardeen's tunneling theory as applied to scanning tunneling microscopy: a technical guide to the traditional interpretation*. Nanotechnology, 17:R57, 2006.
- [36] Cohen-Tannoudji, C., B. Diu und F. Laloë: *Mécanique quantique*. Hermann, éditeurs des sciences et des arts, 1973.
- [37] Giaever, I.: *Energy gap in superconductors measured by electron tunneling*. Phys. Rev. Lett., 5:147, 1960.
- [38] Feenstra, R. M., J. A. Stroscio und A. P. Fein: *Tunneling spectroscopy of the Si(111)2 × 1 surface*. Surf. Sci., 181:295, 1987.
- [39] Stroscio, J. A. und W. J. Kaiser (Herausgeber): *Scanning tunneling microscopy*. Academic Press, Inc., 1993.
- [40] Micro Crystal AG, Mühlestrasse 14, CH-2540 Grenchen, Schweiz.
- [41] Henkel AG & Co. KGaA, Henkelstraße 67, D-40191 Düsseldorf, Deutschland.
- [42] Epoxy Technology, Inc., 14 Fortune Drive, Billerica, MA 01821, USA.
- [43] Giessibl, F. J., H. Bielefeldt, S. Hembacher und J. Mannhart: *Calculation of the optimal imaging parameters for frequency modulation atomic force microscopy*. Appl. Surf. Sci., 140:352, 1999.
- [44] Giessibl, F. J., S. Hembacher, H. Bielefeldt und J. Mannhart: *Subatomic features on the silicon (111)-(7×7) surface observed by atomic force microscopy*. Science, 289:422, 2000.
- [45] Hembacher, S., F. J. Giessibl, J. Mannhart und C. F. Quate: *Revealing the hidden atom in graphite by low-temperature atomic force microscopy*. PNAS, 100:12539, 2003.
- [46] Hembacher, S., F. J. Giessibl, J. Mannhart und C. F. Quate: *Local spectroscopy and atomic imaging of tunneling current, forces, and dissipation on graphite*. Phys. Rev. Lett., 94:056101, 2005.
- [47] Herz, M., Ch. Schiller, F. J. Giessibl und J. Mannhart: *Simultaneous current-, force-, and work-function measurement with atomic resolution*. Appl. Phys. Lett., 86:153101, 2005.
- [48] Ternes, M., C. P. Lutz, C. F. Hirjibehedin, F. J. Giessibl und A. J. Heinrich: *The force needed to move an atom on a surface*. Science, 319:1066, 2008.

- [49] Gradshteyn, I. S. und Ryzhik I. M.: *Table of integrals, series and products*. Academic Press, 6. Auflage, 2000.
- [50] Analog Devices, Inc., One Technology Way, P.O. Box 9106, Norwood, MA 02062-9106, USA.
- [51] Agilent Technologies, Inc., 5301 Stevens Creek Blvd, Santa Clara, CA 95051, USA.
- [52] Hembacher, S., F. J. Giessibl und J. Mannhart: *Evaluation of a force sensor based on a quartz tuning fork for operation at low temperatures and ultrahigh vacuum*. Appl. Surf. Sci., 188:445, 2002.
- [53] Veeco Instruments, Inc., 1 Terminal Dr., Plainview, NY 11803, USA.
- [54] Nanosurf AG, TENUM Zentrum, Grammetstrasse 14, CH-4410 Liestal, Schweiz.
- [55] Thiel, S.: *Study of interface properties in LaAlO₃/SrTiO₃ heterostructures*. Dissertation, Universität Augsburg, 2009.
- [56] Meyer, G.: *A simple low-temperature ultrahigh-vacuum scanning tunneling microscope capable of atomic manipulation*. Rev. Sci. Instrum., 67:2960, 1996.
- [57] Femto Messtechnik GmbH, Paul-Lincke-Ufer 34, D-10999 Berlin, Deutschland.
- [58] Stanford Research Systems, Inc., 1290-D Reamwood Ave., Sunnyvale, CA 94089, USA.
- [59] Signal Recovery, AMETEK Advanced Measurement Technology, Spectrum House, 1 Millars Business Centre, Fishponds Close, Wokingham, RG41 2TZ, United Kingdom.
- [60] Corning Inc., One Riverfront Plaza, Corning, NY 14831-0001, USA.
- [61] Osram GmbH, Hellabrunner Straße 1, D-81543 München, Deutschland.
- [62] Breitschaft, M.: *Dissipationsmessung mit atomarer Auflösung mittels Rasterkraftmikroskopie im Ultrahochvakuum und bei Heliumtemperatur*. Diplomarbeit, Universität Augsburg, 2006.
- [63] Cirrus Logic, Inc., 2901 Via Fortuna, Austin, TX 78746, USA.

- [64] HHT - Hartmetall und Hartstofftechnik, Dieter Widmann, Dieselstrasse 18, D-89160 Dornstadt, Deutschland.
- [65] CRC Industries Deutschland GmbH, Südring 9, D-76473 Iffezheim, Deutschland.
- [66] Kimberly-Clark Professional, Carl-Spaeter-Straße 17, D-56070 Koblenz-Rheinhafen, Deutschland.
- [67] PI Ceramic GmbH, Lindenstrasse, D-07589 Lederhose, Deutschland.
- [68] MPE-Garry GmbH, Schäfflerstraße 13, D-87629 Füssen, Deutschland.
- [69] Pavlenko, N. und T. Kopp: *Structural relaxation and metal-insulator transition at the interface between SrTiO₃ and LaAlO₃*. arXiv:0901.4610, 2009.
- [70] Pentcheva, R. und W. E. Pickett: *Avoiding the polarization catastrophe in LaAlO₃ overlayers on SrTiO₃ through polar distortion*. Phys. Rev. Lett., 102:107602, 2009.
- [71] Schwingenschlögl, U. und C. Schuster: *Exponential decay of relaxation effects at LaAlO₃/SrTiO₃ heterointerfaces*. Chem. Phys. Lett., 467:354, 2009.
- [72] Schwingenschlögl, U. und C. Schuster: *Interface relaxation and electrostatic charge depletion in the oxide heterostructure LaAlO₃/SrTiO₃*. EPL, 86:27005, 2009.
- [73] Kawasaki, M., K. Takahashi, T. Maeda, R. Tsuchiya, M. Shinohara, O. Ishiyama, T. Yonezawa, M. Yoshimoto und H. Koinuma: *Atomic control of the SrTiO₃ crystal surface*. Science, 266:1540, 1994.
- [74] Koster, G., B. L. Kropman, G. J. H. M. Rijnders, D. H. A. Blank und H. Rogalla: *Quasi-ideal strontium titanate crystal surfaces through formation of strontium hydroxide*. Appl. Phys. Lett., 73:2920, 1998.
- [75] Plano GmbH, Ernst-Befort-Strasse 12, D-35578 Wetzlar, Deutschland.
- [76] Commonwealth Scientific Corporation, 500 Pendleton St., Alexandria, VA 22314, USA.
- [77] Telemark, Inc., 20936 Cabot Blvd., Hayward, CA 94545, USA.
- [78] Agar Scientific Ltd., Unit 7, M11 Business Link, Parsonage Lane, Stansted, Essex, CM24 8GF, United Kingdom.

- [79] Topinka, M. A., B. J. LeRoy, R. M. Westervelt, S. E. J. Shaw, R. Fleischmann, E. J. Heller, K. D. Maranowski und A. C. Gossard: *Coherent branched flow in a two-dimensional electron gas*. Nature (London), 410:183, 2001.
- [80] Denk, W. und D. W. Pohl: *Local electrical dissipation imaged by scanning force microscopy*. Appl. Phys. Lett., 59:2171, 1991.
- [81] Nolting, W.: *Grundkurs theoretische Physik 5/1*. Springer-Verlag, 5. Auflage, 2002.
- [82] Simmons, J. G.: *Generalized formula for the electric tunnel effect between similar electrodes separated by a thin insulating film*. J. App. Phys., 34:1793, 1963.
- [83] Chen, Julian: *Introduction to scanning tunneling microscopy*. Oxford University Press, New York, 1. Auflage, 1993.
- [84] Lang, N. D. und W. Kohn: *Theory of metal surfaces: charge density and surface energy*. Phys. Rev. B, 1:4555, 1970.
- [85] Lake Shore Cryotronics, Inc., 575 McCorkle Blvd, Westerville, OH 43082-8699, USA.
- [86] Telemeter Electronic GmbH, Joseph-Gänsler-Straße 10, D-86609 Donauwörth, Deutschland.
- [87] Blaha, P., K. Schwarz, G. K. H. Madsen, D. Kvasnicka und J. Luitz: *WIEN2k*. K. Schwarz, Vienna University of Technology, Vienna, Austria, 2001.
- [88] Anisimov, V. I., I. V. Solovyev, M. A. Korotin, M. T. Czyżyk und G. A. Sawatzky: *Density-functional theory and NiO photoemission spectra*. Phys. Rev. B, 48:16929, 1993.
- [89] Okamoto, S., A. J. Millis und N. A. Spaldin: *Lattice relaxation in oxide heterostructures: LaTiO₃/SrTiO₃ superlattices*. Phys. Rev. Lett., 97:056802, 2006.

Danksagungen

Meinem Doktorvater Prof. Dr. Jochen Mannhart danke ich für die interessante und herausfordernde Aufgabenstellung, die intensive Betreuung und Förderung, die er mir in den vergangenen Jahren hat zukommen lassen, für sein Vertrauen, für seine Art, zu motivieren, und für die großartigen Forschungsbedingungen am Lehrstuhl.

Prof. Dr. Armin Reller danke ich für die Übernahme des Zweitgutachtens zur vorliegenden Arbeit.

Prof. Dr. Dirk Grundler danke ich für die Übernahme des Drittgutachtens zur vorliegenden Arbeit.

Prof. Dr. Thilo Kopp danke ich für große Unterstützung und seine Bereitschaft, meine vielen Fragen zu beantworten.

Dr. Natalia Pavlenko danke ich für die angenehme Zusammenarbeit.

Priv.-Doz. Dr. Volker Eyert danke ich besonders für seine Beiträge in Fragen zu DFT-Rechnungen.

Dipl.-Phys. Veronika Tinkl danke ich besonders für ihre experimentellen Beiträge und für interessante Diskussionen.

Dr. Stefan Paetel danke ich für seine ständige Bereitschaft, mit seiner großen Erfahrung mit der $\text{LaAlO}_3\text{-SrTiO}_3$ -Heterostruktur auf meine Fragen einzugehen und insbesondere für die Herstellung eines großen Teils der von mir untersuchten Proben.

Dipl.-Phys. Christoph Richter danke ich für seine praktische Einführung in die Laserpulsepitaxie, die mir sehr viel Freude bereitet hat, für die Implementierung numerischer Differentiations-Algorithmen und viele interessante Diskussionen.

Dr. Yang Liao danke ich für seine Denkanstöße zur Durchführung der tunnelmikroskopischen Experimente und zur Berechnung des normierten differentiellen Tunnel-Leitwerts sowie für angenehme Gespräche.

Meinem zeitweiligen Bürokollegen Dr. Andreas Schmehl danke ich besonders für erhellende Diskussionen und seine kreativen wie fundierten Beiträge in instrumentellen Fragen.

Dr. Rainer Held danke ich für viele Diskussionen und ermunternde Gespräche

sowie für seine Vorschläge zum Text dieser Arbeit.

Für Gespräche und Diskussionen danke ich Dr. Siegfried Graser, Dr. German Hammerl, Dr. Cameron Hughes, Dr. Florian Loder, Dipl.-Phys. Stefan Meir, Priv.-Doz. Dr. Christof Schneider und Dipl.-Phys. Cyril Stephanos.

Dipl.-Ing. (FH) Alexander Herrnberger danke ich für den Aufbau der rauscharmen Spannungsversorgungen des Rastersondenmikroskops und für viele ergebnisreiche Diskussionen

Dipl.-Ing. (FH) Klaus Wiedenmann danke ich für viele angenehme Gespräche und strukturierte Diskussionen zu Konstruktionsfragen sowie für seine Hilfe bei der Umsetzung von Modifikationen am Vakuumsystem des Rastersondenmikroskops.

Birgitta Eisenschmid und Eleonore Saladie danke ich für sehr zuvorkommende Hilfe unter Anderem in organisatorischen und administrativen Belangen.

Den Mitarbeitern der feinmechanischen Werkstatt danke ich für ihre Beratung bei der Konstruktion und für die Anfertigung feinmechanischer Teile.

Allen nicht namentlich genannten Mitarbeitern des Lehrstuhls danke ich für die große Hilfsbereitschaft und die angenehme wie produktive Atmosphäre.

Prof. Dr. John Kirtley danke ich für spaßerfüllte und produktive Wochen im Labor, sein gedankliches und handwerkliches Mitwirken an meinem Projekt, viele besondere Gespräche und seine ehrlichen Urteile.

Prof. Dr. Franz J. Gießibl danke ich für seine besondere Anteilnahme und Beratung und seine herzlichen Einladungen. Die angenehmen und inspirierenden Aufenthalte in den Regensburger Laboren habe ich in guter Erinnerung.

Prof. Dr. Jascha Repp danke ich für seine informativen Laborführungen, für motivierende Gespräche und für fundierte Empfehlungen zur Tunnelstromdetektion.

Dr. Stefan Hembacher danke ich für sein fortdauerndes Interesse, seine Besuche, die positiven und inspirierenden Gespräche und sein erfahrenes Urteil zu instrumentellen Aspekten des Rastersondenmikroskops.

Lebenslauf

Martin Andreas Breitschaft

geboren am 10. November 1979 in Augsburg
verheiratet, ein Kind
deutsche Staatsangehörigkeit

Schulbildung

1990 – 1999 Maria-Theresia-Gymnasium mit Abitur, Augsburg
1986 – 1990 St. Anna Grundschule, Augsburg

Wehrdienst

9/99 – 6/00 Wehrdienst bei der Bundeswehr

Studium

10/00 – 10/06 Studium der Physik an der Universität Augsburg,
Abschluss mit Diplom in Physik
09/03 – 06/04 Auslandsstudium als Erasmus-Stipendiat in Lille, Frankreich

Promotion

seit 11/06 Wissenschaftlicher Angestellter an der Universität Augsburg

