

Tunnelströme durch Al_2O_3 -Schichten bei Kontakten verschiedener Austrittsarbeiten

Von H. G. HURST und W. RUPPEL

Institut für Angewandte Physik der Technischen Hochschule Karlsruhe

(Z. Naturforschg. **19 a**, 573—579 [1964]; eingegangen am 7. März 1964)

Herrn Professor Dr. E. JUST zum 60. Geburtstag gewidmet

The tunneling current through Al_2O_3 -layers of a thickness varying between 30 and 100 Å was measured for In-Al₂O₃-Al, Al-Al₂O₃-Al, and Au-Al₂O₃-Al layer cells. The dependence of the observed current on the applied voltage, the thickness of the Al_2O_3 -layer, and temperature is in agreement with an analysis of tunneling currents through insulating films by STRATTON. By comparing the experimental data with the analytical expressions the following values are derived for the metal-Al₂O₃ work function: In: 0.55 eV; Al: 0.77 eV; Au: 1.6 eV.

Dünne Isolatorschichten zeigen einen spezifischen Widerstand, der erheblich unter dem des gleichen Materials bei größerem Abstand der Kontakte liegt. Das liegt daran, daß Elektronen aus Metallkontakte in dünne isolierende Schichten injiziert werden und sie durchdringen können. Bei hinreichend kleiner Austrittsarbeit des Metalls werden die Elektronen in das Leitungsband des Isolators injiziert. Der Stromfluß ist in diesem Fall begrenzt entweder durch die in dem Isolator aufgebaute Raumladung¹ oder durch die thermische Emission des Metallkontakte², die wegen der Erniedrigung der Austrittsarbeit durch die Bildkraft (SCHOTTKY-Effekt) mit wachsender Spannung zunimmt. Außer der Möglichkeit einer Injektion von Elektronen ins Leitungsband besteht bei dünnen Isolatorschichten jedoch auch die einer Injektion auf Grund des Tunneleffektes aus dem Metallkontakt durch den Isolator hindurch³. Da die Tunnelwahrscheinlichkeit stark von der Höhe des zu durchquerenden Potentialbergs abhängt, ist mit wachsender Austrittsarbeit der Metallkontakte auch ein Absinken des Tunnelstroms zu erwarten.

Tunnelströme unterscheiden sich von raumladungs- und emissionsbegrenzten Strömen in ihrer Abhängigkeit von der angelegten Spannung, von der Dicke der Isolatorschicht und von der Temperatur². Diese Abhängigkeiten weisen die Ströme durch Al₂O₃-Schichten, über die in dieser Arbeit berichtet wird, eindeutig als Tunnelströme aus. Insbesondere unterscheidet sie von raumladungsbegrenzten Strömen

eine Abhängigkeit von der Schichtdicke L , die noch stärker ist als die für raumladungsbegrenzte Ströme zu erwartende L^{-3} -Abhängigkeit. Von emissionsbegrenzten Strömen unterscheiden sie sich insbesondere durch die Temperaturabhängigkeit. Während nämlich für emissionsbegrenzte Ströme eine starke Temperaturabhängigkeit erwartet wird und auch beobachtet worden ist², zeigen die hier diskutierten Ströme die für Tunnelströme erwartete nur sehr schwache Temperaturabhängigkeit.

Über die Abhängigkeit der Tunnelströme durch Al-Al₂O₃-Al-Anordnungen von angelegter Spannung und Dicke der Schicht haben FISHER und GIAEVER⁴ berichtet. Da diese Abhängigkeiten spezifisch für die Austrittsarbeiten sein sollten, wurden die Messungen derartiger Abhängigkeiten auf andere Metallkontakte ausgedehnt, worüber in der vorliegenden Arbeit berichtet wird. Um sicher zu sein, daß in allen Fällen Tunnelströme beobachtet wurden, wurde auch jeweils die Temperaturabhängigkeit des Stroms gemessen. Berechnungen des Tunnelstroms in der Form, wie sie STRATTON⁵ vorgelegt hat, erlauben eine quantitative Diskussion der erhaltenen Resultate und damit auch eine Bestimmung der Austrittsarbeiten für verschiedene Metalle im Kontakt mit Al₂O₃.

In der vorliegenden Arbeit werden Kontakte aus Al, Au und In an Al₂O₃ untersucht. Für Austrittsarbeiten von Metallen an Al₂O₃ sind bisher folgende Daten bekannt: Für Al an Al₂O₃ haben EMTAGE und

¹ N. F. MOTT u. R. W. GURNEY, Electronic Processes in Ionic Crystals, Clarendon Press, Oxford 1940, S. 172.

² P. R. EMTAGE u. W. TANTRAPORN, Phys. Rev. Lett. **8**, 267 [1962].

³ J. FRENKEL, Phys. Rev. **36**, 1604 [1930].

⁴ J. C. FISHER u. I. GIAEVER, J. Appl. Phys. **32**, 172 [1961].

⁵ R. STRATTON, J. Phys. Chem. Sol. **23**, 1177 [1962].



TANTRAPORN² aus der Strom-Spannungs-Abhängigkeit bei SCHOTTKY-Emission 0,74 eV angegeben. STRATTON⁵ hat aus den Meßwerten von FISHER und GIAEVER⁴, wenn man eine rechteckige Potentialverteilung zugrunde legt, für die gleiche Austrittsarbeit 1,1 eV berechnet. Ferner konnte SIMMONS⁶ bezüglich der Austrittsarbeit von Au an Al_2O_3 aus Messungen der Durchschlagsspannung an Au- Al_2O_3 -Al-Anordnungen schließen, daß ihr Wert um 0,60 eV höher liegt als der entsprechende Wert für Al.

1. Experimentelles Vorgehen

a) Herstellen der Schichten und Kontakte

Auf einen Glasträger wurde im Vakuum (10^{-6} mm Hg) reines Al aufgedampft. An das Al wurde mit Leitsilber ein Zuleitungsdraht angeklebt. Die Al-Schicht wurde dann an Luft während vier bis zwölf Stunden auf $400^\circ\text{C} - 500^\circ\text{C}$ erhitzt, wobei das Al oberflächlich oxydierte. Die Wahl der Temperatur und der Erhitzungsdauer bestimmte dabei die Dicke der Oxydschicht. Auf die Al_2O_3 -Schichten wurden dann im Vakuum Al-, Au- und In-Kontakte einer Fläche von $7 \cdot 10^{-2} \text{ cm}^2$ aufgedampft (Abb. 1). Danach wurde die Schicht nicht

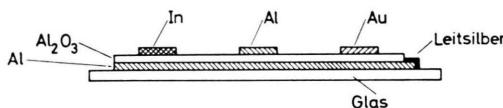


Abb. 1. Schema der benutzten Anordnung zur Beobachtung von Tunnelströmen durch Al_2O_3 bei verschiedenen Kontakten.

wieder an Luft gebracht, sondern alle elektrischen Messungen wurden im Vakuum vorgenommen. Die äußere Spannung wurde dabei zwischen die Al-Unterlage und mittels eines angedrückten Au-Drahtes an eine der zuletzt aufgedampften Metallelektroden gelegt.

b) Bestimmung der Schichtdicke

Die Dicke der Al_2O_3 -Schicht wurde aus der Kapazität der benutzten Sandwich-Anordnung bestimmt, wobei die Kapazität aus der Frequenzabhängigkeit des Widerstandes bei 100 mV äußerer Spannung im Frequenzbereich 20 Hz bis 10 kHz ermittelt wurde.

Zur Bestimmung der Dielektrizitätskonstante ϵ wurde nach WALKENHORST⁷ eine Al_2O_3 -Schicht bekannter Dicke durch anodische Oxydation eines Al-Plättchens in Ammoniumcitratlösung bei einer bestimmten Spannung hergestellt. Aus der Kapazitätsmessung an dieser Schicht ergab sich ein $\epsilon = 7,5$. Dieser Wert einer anodisch oxydierten Schicht stimmt hinreichend mit dem von BERNARD und COOK⁸ angegebenen $\epsilon = 8,4$ und dem

von FISHER und GIAEVER verwendeten $\epsilon = 8$ überein. Mit $\epsilon = 8$ ergeben sich für die Schichtdicken des Al_2O_3 Werte zwischen $3 \cdot 10^{-7}$ und $1 \cdot 10^{-6} \text{ cm}$.

c) Strom-Spannungs-Kennlinien

Die Abhängigkeit des Stroms durch die Al_2O_3 -Schicht von der angelegten Spannung bei verschiedener Schichtdicke und Temperatur wurde in einem Spannungsbereich von 5 mV bis 2 V gemessen, wobei die Spannung von einer Batterie über ein Potentiometer abgegriffen wurde. Zur Messung des Gleichstroms durch die Al_2O_3 -Schicht wurde der Spannungsabfall über mit der Schicht in Reihe liegenden Widerständen mit einem Keithley-B 200-Elektrometerverstärker bestimmt. Die Temperatur in der Schicht wurde durch einen über der Schicht angebrachten Ofen eingestellt und mit einem Thermoelement direkt an der Schicht gemessen.

Fast alle Schichten zeigten beim ersten Anlegen einer Spannung einen leichten Formierungseffekt. Während des ersten Durchlaufens des Spannungsbereichs sank der Strom leicht, blieb dann jedoch stationär und gut reproduzierbar. Es werden im folgenden stets die stationären Werte angegeben.

2. Experimentelle Ergebnisse

Als Beispiel einer Strom-Spannungs-Kennlinie zeigt Abb. 2 die Kennlinie einer $7,5 \cdot 10^{-7} \text{ cm}$ dicken Al_2O_3 -Schicht mit In- und Al-Kontakten für beide Vorzeichen der angelegten Spannung. In Abb. 2 a ist die Kennlinie in doppeltlogarithmischem, in Abb. 2 b in halblogarithmischem Maßstab dargestellt. Man erkennt aus Abb. 2 a, daß bei kleinen Spannungen der Strom linear von der Spannung abhängt. Abb. 2 b zeigt für einen mittleren Spannungsbereich eine Gerade, d. h. daß in diesem Bereich der Strom exponentiell mit der Spannung ansteigt. In einem dritten Bereich, bei den größten Spannungen, wächst der Strom schließlich stärker als exponentiell an.

Die hier für eine In-Al Al_2O_3 -Al-Anordnung gezeigte Strom-Spannungs-Abhängigkeit beschreibt qualitativ auch das Verhalten bei anderen Schichtdicken und mit Au- und Al-Kontakten.

Bei allen Schichten hängt der Strom etwas von dem Vorzeichen der angelegten Spannung ab, und zwar in einer für jeden Kontakt charakteristischen Weise. So ist bei den In-Al Al_2O_3 -Al-Schichten für Spannungen bis zu etwa 1 V der Strom größer, wenn die In-Elektrode die Anode bildet. Bei höheren Spannungen fließt ein größerer Strom, wenn die In-Elektrode Kathode ist. Auch bei den Au-Al Al_2O_3 -Al-

⁶ J. G. SIMMONS, Phys. Rev. Lett. **10**, 10 [1963].

⁷ W. WALKENHORST, Naturwiss. **34**, 373 [1947].

⁸ W. J. BERNARD u. J. W. COOK, J. Electrochem. Soc. **106**, 643 [1959].

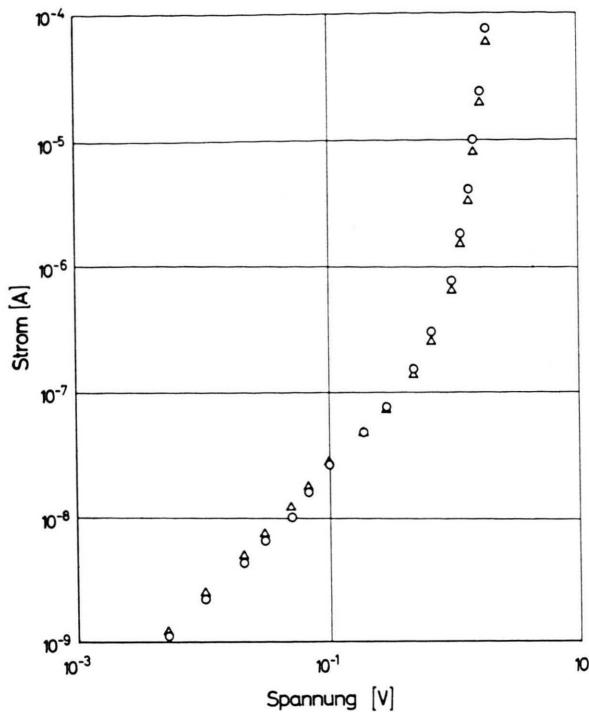


Abb. 2 a. Strom-Spannungs-Abhängigkeit einer In-Al₂O₃-Al-Anordnung. Dicke der Al₂O₃-Schicht $7,5 \cdot 10^{-7}$ cm. Fläche des In-Kontakts $7 \cdot 10^{-2}$ cm². Für die mit \triangle bezeichneten Meßwerte war der In-Kontakt Kathode, für die mit \circ bezeichneten Meßwerte war der Al-Kontakt Kathode.

Anordnungen wurde ein Wechsel des Gleichrichtungssinnes mit Änderung der angelegten Spannung beobachtet: Im Bereich kleiner und mittlerer Spannungen ist der Strom im allgemeinen größer, wenn Au die Kathode bildet; bei größeren Spannungen ist der Strom jedoch größer bei Au als Anode. Bei den Al-Al₂O₃-Anordnungen wurden ebenfalls schwache Gleichrichtungseffekte beobachtet, jedoch ließ sich keine systematische Abhängigkeit von der Spannung feststellen.

Die Abhängigkeit des Stromes von der Dicke der Al₂O₃-Schicht wurde im Bereich kleiner Spannungen, in dem der Strom linear mit der Spannung wächst, und im Bereich mittlerer Spannungen, in dem der Strom exponentiell mit der Spannung ansteigt, aufgenommen. Für den Bereich noch größerer Spannung, also der der überexponentiellen Charakteristik, wurde auf die Messung der Dickenabhängigkeit verzichtet, weil der Strom in diesem Bereich eine Tendenz zur Instabilität und zum Durchschlag zeigte. Eine mangelnde Reproduzierbarkeit der Meßwerte machte deswegen quantitative Aussagen unmöglich.

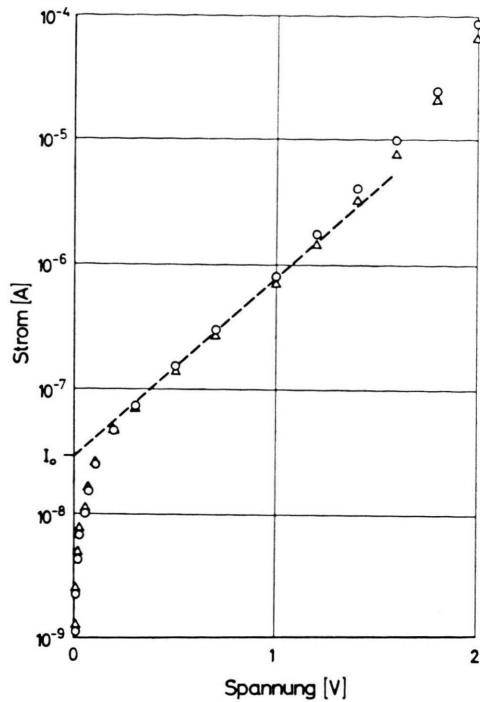


Abb. 2 b. Wie Abb. 2 a, nur mit linearer Skala der Spannung. Der auf $V=0$ extrapolierte Bereich exponentieller Abhängigkeit des Stroms von der Spannung ist durch die gestrichelte Gerade gekennzeichnet.

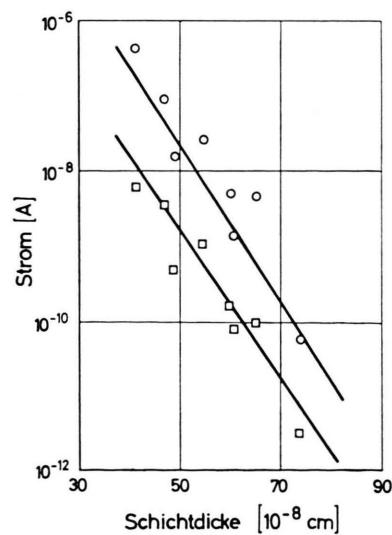
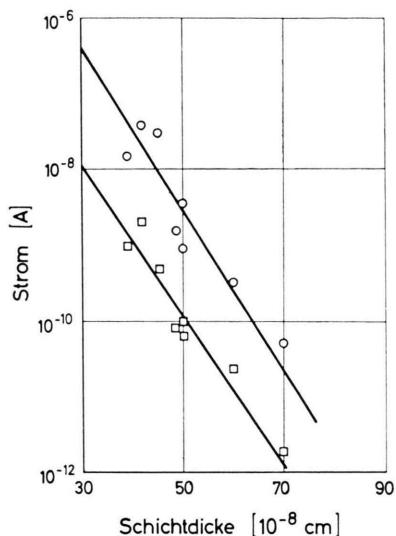
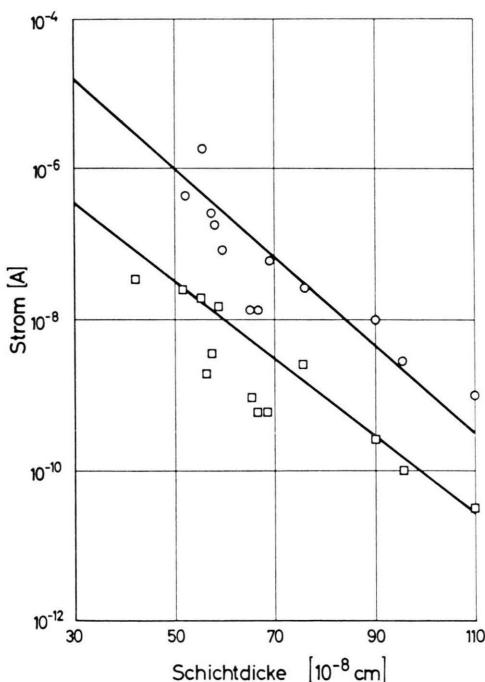


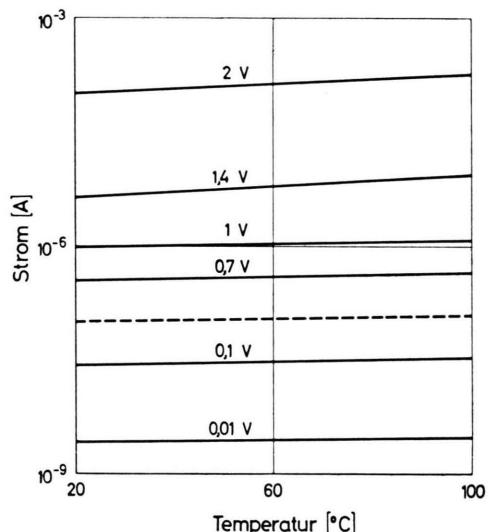
Abb. 3 a. Abhängigkeit des Stroms von der Dicke der Al₂O₃-Schicht für die Al-Al₂O₃-Al-Anordnung im Bereich linearer Spannungsabhängigkeit bei 10 mV (□) und im Bereich exponentieller, auf $V=0$ extrapoliert Spannungsabhängigkeit (○).

Abb. 3 b. Wie Abb. 3 a, jedoch für Au-Al₂O₃-Al-Anordnung.Abb. 3 c. Wie Abb. 3 a, jedoch für In-Al₂O₃-Al-Anordnung.

In den Abb. 3 a – c ist die Abhängigkeit des Stromes von der Dicke der Al₂O₃-Schicht für die drei untersuchten Kontaktmaterialien In, Au und Al wiedergegeben. Die beiden Kurven beziehen sich auf die beiden angegebenen Spannungsbereiche. Die im Bereich linearer Stromspannungsabhängigkeit gemessenen Werte wurden bei 10 mV angelegter Span-

nung gemessen. Für den Bereich der exponentiellen Strom-Spannungs-Abhängigkeit wurden im Hinblick auf die Auswertung der Meßergebnisse diejenigen Stromwerte eingetragen, die sich bei Extrapolation des Geradenstückes in der Auftragung der Abb. 2 b auf $V = 0$ ergeben.

Schließlich ist in Abb. 4 die Temperaturabhängigkeit des Stroms, hier für einen In-Kontakt und eine $7,5 \cdot 10^{-7}$ cm dicke Al₂O₃-Schicht, bei verschiedenen Spannungen in einem Bereich zwischen Zimmertemperatur und 90 °C dargestellt. Für Schichten anderer Dicken und bei den anderen Kontakten wurde der gleiche Verlauf nur bei entsprechend anderen Absolutwerten des Stroms beobachtet. In jedem Falle wurden stationäre Werte des Stroms erst nach mehrmaligem Durchlaufen des Temperaturbereichs erhalten. Die in Abb. 4 eingezeichneten Daten sind statische Stromwerte.

Abb. 4. Temperaturabhängigkeit des Stroms einer In-Al₂O₃-Al-Anordnung bei verschiedenen Spannungen. Dicke der Al₂O₃-Schicht $7,5 \cdot 10^{-7}$ cm. Die ausgezogenen Kurven sind gemessene Kurven. Die gestrichelte Kurve zeigt den nach Gl. (1) erwarteten Temperaturverlauf.

3. Auswertung der Meßergebnisse

Für eine beliebige Form des Potentials im Isolator gibt STRATTON⁵ unter der Voraussetzung einer quadratischen Energie-Impuls-Abhängigkeit $E(k)$ der Elektronen und gleicher Elektronenmassen in der Metallelektrode und im Isolator folgende Abhängigkeit der Tunnelstromdichte j von der angelegten Spannung V bei nicht zu großem V an:

$$j = j_0 [\exp(b_{11} V - b_{12} V^2)] [1 - \exp(-c_{10} V)], \quad (1)$$

wobei $j_0 = \frac{A}{(c_{10} k T)^2} \frac{c_{10} \pi k T}{\sin(c_{10} \pi k T)} \exp(-b_{10})$,
 $A = \frac{4 \pi m e (k T)^2}{h^3}$. (1 a)

Zur Gültigkeit dieser Gleichung zugrunde liegenden Reihenentwicklung ist ferner vorausgesetzt, daß

$$c_{10} \chi_0 \gg 1,$$

wobei χ_0 die Höhe des Potentialbergs im Isolator über dem FERMI-Niveau ohne angelegte Spannung ist. Die Koeffizienten b_{10} , b_{11} , b_{12} und c_{10} sind unabhängig von der angelegten Spannung. Sie sind festgelegt durch die Austrittsarbeiten der Metall-elektroden, die Dicke des zu durchtunnelnden Potentialbergs und durch die Form des Potentialbergs. Die Größe der Koeffizienten ist bei STRATTON für eine parabolische, eine dreieckige und eine rechteckige, jedesmal symmetrische Potentialverteilung explizit angegeben.

Durch geeignete Wahl von b_{10} , b_{11} , b_{12} und c_{10} soll Gl. (1) den gemessenen Werten angepaßt werden. Aus den so ermittelten Koeffizienten läßt sich dann die Austrittsarbeit bei bekannter Form der Potentialverteilung berechnen. Diejenige Potentialverteilung, die zur Deutung der Meßergebnisse herangezogen werden muß, läßt sich jedoch festlegen, da, wie aus Tab. 1 der Arbeit von STRATTON⁵ hervorgeht, für eine parabolische und dreieckige Potentialverteilung $b_{12} > 0$, während für eine rechteckige Potentialverteilung $b_{12} < 0$ ist. Aus dem bei großen Spannungen stärker als exponentiellen Ansteigen des Stroms in Abhängigkeit von der angelegten Spannung (Abb. 2 b), das für alle Schichten beobachtet wird, folgt mit Gl. (1) sofort $b_{12} < 0$, also die rechteckige Potentialverteilung.

Zur Bestimmung der Koeffizienten ist es zweckmäßig, Gl. (1) in einen Bereich kleiner und mittlerer Spannung aufzuteilen. Für kleine Spannungen, also bei linearer Abhängigkeit des Stroms von der Spannung, gilt

$$j = j_0 c_{10} V. \quad (2)$$

Für einen Bereich mittlerer Spannung ergibt sich nach Logarithmieren von Gl. (1)

$$\ln(j/j_0) = b_{11} V, \quad (3)$$

d. h. der Tunnelstrom hängt exponentiell von der Spannung ab. Aus der Steigung des Stroms in halblogarithmischer Darstellung läßt sich b_{11} ablesen.

Extrapoliert man, wie in Abb. 2 b dargestellt, den Strom dieses Bereiches exponentieller Abhängigkeit von der Spannung zu kleinen Spannungen, so erhält man nach Gl. (3) für $V=0$ unmittelbar $I_0 = j_0 F$, wobei F die Kontaktfläche ist.

Die Abhängigkeit der Tunnelstromdichte j von der Schichtdicke L der Al_2O_3 -Schicht ist durch die L -Abhängigkeit der Koeffizienten b_{10} , b_{11} , b_{12} und c_{10} bestimmt. Da für die Austrittsarbeiten $\chi_{1,2}$ vom Metall zum Al_2O_3 bei allen gemessenen L sicher gilt, daß

$$\chi_{1,2} \gg e^2 / (4 \pi \epsilon_0 L) \quad (4)$$

ist, werden die bei STRATTON⁵ angegebenen Werte dieser Koeffizienten alle proportional zu L . Insbesondere ist die L -Abhängigkeit des Stromes im linearen und auf $V=0$ extrapolierten exponentiellen Bereich durch j_0 und damit durch $\exp(-b_{10})$ gegeben. Die daneben auftretende lineare Abhängigkeit von c_{10} macht sich demgegenüber in dem untersuchten Dickenbereich nur wenig bemerkbar. Der Tunnelstrom sollte also im Bereich kleiner Spannungen und für den auf $V=0$ extrapolierten Strom des mittleren Spannungsbereichs dieselbe exponentielle Abhängigkeit von der Schichtdicke zeigen. Das ist in der Tat erfüllt, wie die in den Abb. 3 a, b und c ausgezogenen Linien zeigen. Aus der Steigung dieser Kurven ergibt sich b_{10} , während durch das Verhältnis der Größe beider Ströme und diejenige Spannung, bei der die Schichtdickenabhängigkeit im Bereich kleiner Spannungen aufgetragen ist, c_{10} bestimmt ist.

Die auf diese Art aus den Versuchsergebnissen ermittelten Werte der Koeffizienten sind in Tab. 1 für die drei verschiedenen Kontaktanordnungen angegeben.

Die Theorie STRATTONS fordert, daß für symmetrische Potentialberge $c_{10} = 2 b_{11}$. Tab. 1 zeigt, daß diese Bedingung nicht nur für die symmetrischen Al-Kontakte, sondern auch im Falle der In- und Au-Kontakte hinreichend erfüllt ist. Unter dieser Bedingung und bei Gültigkeit von Gl. (4) ergibt sich die Summe der Austrittsarbeiten der beiden Kontakte nach Tab. 1 der Arbeit von STRATTON⁵ zu

$$\chi_1 + \chi_2 = b_{10}/2 b_{11}. \quad (5)$$

Da im Falle der Al-Al₂O₃-Al-Anordnung $\chi_1 = \chi_2$, erhält man sofort die Austrittsarbeit für Al. Ist so der Wert für Al bekannt, ergeben sich die Austrittsarbeiten für Au und In aus den für die Au-Al₂O₃-Al-

	Al-Al ₂ O ₃ -Al	Au-Al ₂ O ₃ -Al	In-Al ₂ O ₃ -Al
b_{10}	$20 \cdot 10^6 \frac{L}{\text{cm}}$	$21 \cdot 10^6 \frac{L}{\text{cm}}$	$10 \cdot 10^6 \frac{L}{\text{cm}}$
b_{11}	$(6,5 \pm 0,5) \cdot 10^6 \frac{L}{\text{Volt} \cdot \text{cm}}$	$(4,4 \pm 0,5) \cdot 10^6 \frac{L}{\text{Volt} \cdot \text{cm}}$	$(3,8 \pm 0,2) \cdot 10^6 \frac{L}{\text{Volt} \cdot \text{cm}}$
b_{12}	< 0	< 0	< 0
c_{10}	$14 \cdot 10^6 \frac{L}{\text{Volt} \cdot \text{cm}}$	$9,1 \cdot 10^6 \frac{L}{\text{Volt} \cdot \text{cm}}$	$6,8 \cdot 10^6 \frac{L}{\text{Volt} \cdot \text{cm}}$
χ	$(0,77 \pm 0,06) \text{ eV}$	$(1,6 \pm 0,3) \text{ eV}$	$(0,55 \pm 0,12) \text{ eV}$
$\frac{m^*}{m}$	$5,0 \cdot 10^{-2}$	$3,6 \cdot 10^{-2}$	$1,5 \cdot 10^{-2}$

Tab. 1.

und In-Al₂O₃-Al-Anordnungen bestimmten b_{10} und b_{11} . Die so ermittelten Austrittsarbeiten sind in der vorletzten Zeile von Tab. 1 aufgeführt. Die Fehlergrenze bei der Angabe der Austrittsarbeit ist dabei durch die Fehlergrenze bestimmt, mit der b_{10} und b_{11} angegeben werden können. Die Unsicherheit in der Angabe von b_{10} ist sehr klein gegenüber der von b_{11} , die in der Tab. 1 aufgeführt ist. Obwohl die Unsicherheit des b_{11} für Au-Al₂O₃-Al und In-Al₂O₃-Al nicht größer ist als die für Al-Al₂O₃-Al, so ist doch die Angabe des χ für Au und In mit einer größeren Unsicherheit als für Al behaftet, weil in die Berechnung des χ für Au und In außer dem jeweiligen b_{11} auch das χ für Al noch mit eingeht.

Ist die Austrittsarbeit bekannt, läßt sich aus b_{10} oder b_{11} die effektive Elektronenmasse m^* bestimmen. Gl. (80) bei STRATTON⁵ zeigt die Modifikation von b_{10} und b_{11} bei Berücksichtigung einer von der freien abweichenden effektiven Elektronenmasse. Die Modifikation ist im vorliegenden Falle vernachlässigbar. Damit läßt sich aus den bei STRATTON⁵ in Tab. 1 angegebenen Ausdrücken m^* ausrechnen. Das Verhältnis der so bestimmten m^* -Werte zur freien Elektronenmasse m ist in der letzten Zeile in Tab. 1 angegeben.

Schließlich ist die Temperaturabhängigkeit des Tunnelstroms durch c_{10} mittels Gl. (1) festgelegt. Danach ist sie annähernd unabhängig von der Spannung. Sie ist in Abb. 4 für eine In-Al₂O₃-Al-Anordnung für eine beliebige Spannung als gestrichelte Kurve eingezeichnet. Alle experimentellen Kurven sollten gemäß Gl. (1) parallel zu der gestrichelten Kurve verlaufen, was außer bei den höchsten gemessenen Spannungen auch gut erfüllt ist.

4. Diskussion und Schlußfolgerungen

Die Austrittsarbeiten wurden aus den Koeffizienten b_{10} und b_{11} , also aus den Steigungen des Tunnelstroms als Funktion der Schichtdicke und der Spannung, gewonnen. Die absolute Größe des Stroms ging in die Berechnung von χ nicht ein. Setzt man die ermittelten Koeffizienten in Gl. (1) ein und vergleicht insbesondere das durch Extrapolation des Tunnelstroms im Bereich exponentieller Spannungsabhängigkeit auf $V = 0$ gewonnene j_0 mit dem nach Gl. (1 a) aus den angegebenen b_{10} - und c_{10} -Werten bestimmten j_0 , so sieht man, daß der durch Extrapolation auf $V = 0$ gewonnene Wert von j_0 bei allen Kontakten um Größenordnungen unter dem nach Gl. (1 a) erwarteten Wert liegt. Eine derartige Diskrepanz kann nach CHOW⁹ ihren Grund darin haben, daß die Schichtdicke des Al₂O₃ nicht über die ganze Kontaktfläche homogen ist. Ferner haben MEYERHOFER und OCHS¹⁰ darauf hingewiesen, daß der Tunnelstrom um Größenordnungen reduziert wird, wenn die Elektronen aus dem Metallkontakt direkt in Haftstellen in der Isolatorschicht tunnen.

Außer der absoluten Größe des Tunnelstroms ist im Rahmen der hier ausgeführten Auswertung der Meßergebnisse zunächst noch der in Abschnitt 2 beschriebene Wechsel des Gleichrichtungssinns des Tunnelstroms in Abhängigkeit von der angelegten Spannung unverständlich. Der Einfluß des Vorzeichens der angelegten Spannung auf den Tunnelstrom bei ungleichen Kontakten ist von SIMMONS¹¹ unter-

⁹ C. K. CHOW, J. Appl. Phys. **34**, 2581 [1963].

¹⁰ D. MEYERHOFER u. S. A. OCHS, J. Appl. Phys. **34**, 2535 [1963].

¹¹ J. G. SIMMONS, J. Appl. Phys. **34**, 2581 [1963].

sucht worden. Nach SIMMONS ist ein Wechsel des Gleichrichtungssinns in Abhängigkeit von der angelegten Spannung zu erwarten, und zwar derart, daß bei kleinen Spannungen ein größerer Strom fließt, wenn der Kontakt mit der kleineren Austrittsarbeit die Anode bildet und bei höheren Spannungen sich die Verhältnisse umkehren. Genau das ist aber, wie in Abschnitt 2 beschrieben, beobachtet worden, wenn man die Kontakte mit steigender Austrittsarbeit so ordnet, daß auf In erst Al und dann Au folgt. Eine quantitative Auswertung des Gleichrichtereffekts mit der Theorie SIMMONS ist jedoch nicht möglich, weil die Gleichrichtung nur schwach ist und die Streuung des Gleichrichtungsverhältnisses zu stark streut.

Die Unterschiede der Abhängigkeit des Tunnelstroms durch eine Al_2O_3 -Schicht von Schichtdicke und Temperatur bei verschiedenen Kontakten ließen sich hier auf die unterschiedlichen Austrittsarbeiten zurückführen. Es ist jedoch zu erwähnen, daß von HANDY¹² eine systematische Abhängigkeit des Tunnelstroms von dem Atomradius des Kontaktmaterials beobachtet wird. Unterschiedliche Atomradien der Kontaktmaterialien können aber die hier beschriebenen Meßergebnisse nicht erklären, da alle drei verwendeten Kontakte, In, Al und Au, einen Atomradius von 1,43 Å haben. Die von HANDY verwendeten Al_2O_3 -Schichten waren im Gegensatz zu den

hier benutzten Schichten durch Oxydation des Al bei Zimmertemperatur hergestellt, waren also dementsprechend amorph, während die hier untersuchten Schichten durch Erhitzen auf über 400 °C nach AYLMORE et al.¹³ sicher kristallin waren. Eine unterschiedliche Diffusion der Kontaktmetalle in das amorphe und kristalline Al_2O_3 ist möglicherweise der Grund dafür, daß einmal der Atomradius und einmal die Austrittsarbeit des Kontakts den wesentlichen Parameter zur Beschreibung des Tunnelstroms darstellt.

Der hier berechnete Wert von 0,77 eV für die Austrittsarbeit der Elektronen von Al in Al_2O_3 steht in guter Übereinstimmung mit dem von EMTAGE und TANTRAPORN² aus der SCHOTTKY-Emission bestimmten Wert von 0,74 eV. Der entsprechende Wert für Au liegt, ähnlich wie von SIMMONS⁶ beobachtet, um 0,8 eV höher als der für Al. Für In ergibt sich eine erheblich kleinere Austrittsarbeit, eine Beobachtung, die der von SMITH¹⁴ für den Kontakt von In an CdS entspricht. Die effektive Elektronenmasse im Al_2O_3 schließlich wird zu noch kleineren Werten als dem von FISHER und GIAEVER⁴ angegebenen $m^* = 0,1 m$ abgeschätzt.

Die Verfasser danken gerne Herrn Prof. Dr. F. STÖCKMANN für sein Interesse an der Arbeit, für Diskussionen und Durchsicht des Manuskripts.

¹² R. M. HANDY, Phys. Rev. **126**, 1968 [1962].

¹³ D. W. AYLMORE, S. J. GREGG u. W. B. JEPSON, J. Inst. Met. **88**, 204 [1960].

¹⁴ R. W. SMITH, Phys. Rev. **97**, 1525 [1955].