

### UNIVERSIDADE FEDERAL DE SANTA MARIA

Programa de Pós-graduação em Física.

# EFEITO DAS FLUTUAÇÕES NA ESPESSURA DO ISOLANTE SOBRE O TUNELAMENTO EM JUNÇÕES DE $Al/AlO_x/Al^1$

### Lucio Strazzabosco Dorneles

Tese realizada sob orientação do Prof. Luiz Fernando Schelp e apresentada ao Programa de Pós-graduação em Física em preenchimento final dos requisitos para a obtenção do grau de Doutor em Ciências.

Santa Maria 2003

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Trabalho parcialmente financiado pelo Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq) e pela Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado do Rio Grande do Sul (FAPERGS).

### UNIVERSIDADE FEDERAL DE SANTA MARIA PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

A COMISSÃO EXAMINADORA, ABAIXO ASSINADA, APROVA A TESE:

# EFEITO DAS FLUTUAÇÕES NA ESPESSURA DO ISOLANTE SOBRE O TUNELAMENTO EM JUNÇÕES DE AI/AI0x/AI

### ELABORADA POR LUCIO STRAZZABOSCO DORNELES

COMO REQUISITO PARA OBTENÇÃO DO TÍTULO DE DOUTOR EM FÍSICA

Prof. Dr. Luiz Fernando Schelp - Orientador

Prof. Dr. Luiz Fernando Schelp - Orientador

Prof. Dr. José d'Albuquerque e Castro

Prof. Dr. Dante Homero Mosca Junior

Prof. Dr. Paulo Pureur Neto

Prof. Dr. Celso Arami Marques da Silva

Santa Maria, 23 de dezembro de 2003.

À Laura e à Mariana.

# Agradecimentos

Amigos e amigas do LMMM, Aline, André, Carara, Callegari, Claudiosir, Daiene, Emerson, Felipe, Guina, Israel, João, Kelly, Janaína, Luciana, Marcelo, Márcio, Matheus, Rafael, Ricardo, Roseline, Rubem, Sabrina, Sandro, Schelp, Teco, Zero, agradeço o apoio de vocês durante o curso deste trabalho.

Gostaria também de agradecer o apoio da administração da UFSM, na pessoa dos funcionários das secretarias do Centro de Ciências Naturais e Exatas Cláudia, Geneci, Newton, Paulo, Saionara; e ao Paulino pela luta na manutenção da rede elétrica e dos equipamentos.

Em especial agradeço

- ao Schelp, pela orientação;
- ao Rubem, pelas dicas na montagem e utilização do sistema de deposição;
- ao Carara, pelas observações, opiniões e discussões sobre o trabalho;
- ao Marcelo, pela ajuda no desenvolvimento, construção e implementação dos equipamentos desenvolvidos no LMMM e na oficina mecânica do Departamento de Física, e adaptações necessárias aos equipamentos adquiridos;
- aos colegas com os quais estive ligado mais diretamente, Claudiosir (sputtering), Daiene (medidas de transporte), João (filmes magnéticos), Janaína (medidas de transporte), Matheus (troca de máscaras), e Rafael (equipamentos de medida), pela participação no desenvolvimento das várias parcelas deste trabalho;
- ao Cristiano Camacho, ao Paulo Fichtner e ao Sérgio Teixeira, do Centro de Microscopia Eletrônica da UFRGS, pelas medidas de microscopia eletrônica e de difração de raios-x;
- ao André Gündel, do Laboratório de Magnetismo da UFRGS, pelas medidas de magnetização;
- à minha família, pelo suporte em todas as horas.

"In other words, once tunneling was chosen, atomic resolution was inevitable."

 $G.\ Binnig\ and\ H.\ Rohrer,\ Rev.\ Mod.\ Phys.\ {\bf 71},\ S324\ (1999).$ 

# Resumo

Neste trabalho foram analisados os processos de transporte em junções de  $Al/AlO_x/Al$ . Amostras de multicamadas e junções túnel foram produzidas por "magnetron sputtering" a partir de alvos de Al, sendo o óxido isolante crescido por oxidação do filme metálico ativada por plasma. A espessura média da barreira túnel das multicamadas foi determinada por difração de raios-x e microscopia eletrônica de transmissão. As curvas de I versus V não lineares das junções foram medidas à temperatura ambiente, e ajustadas usando o modelo semi-clássico para interfaces simétricas e barreiras trapezoidais apresentado por Simmons, desconsiderando os efeitos do potencial imagem. Na rotina de ajuste a espessura, a altura da barreira, e também a área efetiva de tunelamento foram consideradas como parâmetros livres. Em contraste com o obtido quando a área da junção é usada para calcular a densidade de corrente, os valores da área oriundos dos melhores ajustes são algumas ordens de grandeza menores do que a área da junção, indicando que a corrente não está distribuída de maneira uniforme e se concentra em menos do que 5~%da amostra. Esta área efetiva de tunelamento corresponde a "hot spots", regiões onde, devido à flutuações na espessura da barreira, a probabilidade de tunelamento eletrônico é maior. Um crescimento exponencial da resistência normalizada pela área com a espessura é obtido pela primeira vez utilizando apenas valores das simulações das curvas I versus V. A altura da barreira de potencial aumenta com a espessura desta, aproximando-se de um valor ligeiramente menor do que do Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> massivo, em oposição ao que é obtido quando a concentração em "hot spots" não é considerada. Tomados em seu conjunto, os resultados são consistentes com o processo de tunelamento como principal mecanismo de transporte nas amostras, e indica que a área efetiva de tunelamento deve ser considerada em junções onde as interfaces não são atomicamente planas. A mesma abordagem foi aplicada, como uma primeira aproximação, em junções tunel magnéticas de  $Co/AlO_x/NiFe$ . Assim como nas junções de  $Al/AlO_x/Al$ , também há uma concentração da corrente em "hot spots", apesar de algumas diferenças relacionadas aos detalhes de sua produção.

# Abstract

We have analyzed the electron transport processes in  $Al/AlO_x/Al$  junctions. Multilayers and tunnel junctions have been produced by magnetron sputtering from an Al target, being the insulating oxide grown by glow-discharge-assisted oxidation of the metallic film. The average thickness of the tunnel barrier has been determined by x-ray diffraction and transmission electron microscopy in the multilayer samples. The nonlinear I versus V curves of the junctions have been measured at room temperature, and fitted using the semiclassical model for simmetric interfaces and trapezoidal barriers presented by Simmons, excluding the effects of image forces. In the fitting procedure the insulating barrier thickness, barrier height and also the tunneling effective area have been considered as free parameters. In contrast with what is obtained when the junction area is used to calculate the current density, the best fitting area values are some orders of magnitude smaller than the junction area, indicating that the current is not uniformly distributed and concentrates itself in less than 5 % of the sample. This effective tunneling area corresponds to "hot spots", regions where, due to fluctuations in the barrier thickness, the electron tunneling probability is larger. An exponential growth of the area normalized electrical resistance with thickness is obtained for the first time using just the values from the I versus V curve simulations. The barrier height increases with barrier thickness approaching a limit under the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> bulk value, in opposition to what is obtained when the hot spots are not taken into account. As a whole, the results are consistent with the tunneling process as the main transport mechanism in the samples, and indicate that the effective tunneling area must be considered in junctions where the interfaces are not atomically flat. As a first approximation, the same approach was applied to  $Co/AlO_x/NiFe$  magnetic tunnel junctions. As in the Al/AlO<sub>x</sub>/Al junctions, the concentration of the current in hot spots is also present, despite some differences related to the different production details.

# Sumário

1 Introdução			0	13		
<b>2</b>	Tunelamento Quântico			15		
	2.1	Grãos	condutores em meio isolante	16		
	2.2	Junçõ	es Planares	19		
		2.2.1	Modelos	19		
		2.2.2	Comparação com a experiência	26		
		2.2.3	Junções com eletrodo supercondutor	29		
		2.2.4	Junções planares magnéticas	32		
		2.2.5	Campo de rompimento do dielétrico	35		
	2.3	Tunela	amento a partir de uma ponteira - o STM	39		
	2.4	Delim	itação do problema	43		
3	$\mathbf{Pro}$	cedim	entos experimentais	47		
	3.1	Produ	ção de amostras	47		
		3.1.1	Deposição dos Filmes	49		
		3.1.2	Calibração da Taxa de Deposição	49		
		3.1.3	Multicamadas	51		
		3.1.4	Junções túnel	53		
	3.2	Carac	terização estrutural	55		
	3.3	Medid	las de magnetização	56		
		3.3.1	Indução de anisotropia nos filmes magnéticos	56		
	3.4	Medid	las de transporte	58		
		3.4.1	Ajuste dos modelos às curvas IxV experimentais	60		

4	Resultados e discussões			64
	4.1	Multic	eamadas de $\mathrm{AlO}_x/\mathrm{Al}$	64
	4.2	4.2 Junções de Al/AlO $_x$ /Al		69
	4.3	Ajuste das curvas IxV experimentais		
		4.3.1	Área da junção como parâmetro fixo	71
		4.3.2	Área como parâmetro livre	75
		4.3.3	Campo de rompimento do dielétrico	81
	4.4	Valida	de e limites da abordagem utilizada	83
4.5 Extensão para junções magnéticas		são para junções magnéticas	86	
		4.5.1	$R,$ curvas IxV e TMR em junções de $\mathrm{Co}/\mathrm{AlO}_x/\mathrm{NiFe}$	87
		4.5.2	Ajuste das curvas IxV	91
_	Carr	_1~~.		0.4
5	Con	clusõe	S	94
	5.1	Perspe	ectivas	95

# Lista de Figuras

2.1	Grãos de Co imersos em uma matriz de $Al_2O_3$	17
2.2	Esquema: dois eletrodos metálicos separados por vácuo	20
2.3	Ilustração: fluxo de corrente entre os eletrodos $\dots \dots \dots \dots \dots \dots \dots$	22
2.4	Barreira de potencial retangular	23
2.5	Corrente através filmes de óxidos	26
2.6	Comparação entre curvas IxV medidas e calculadas	27
2.7	TEM de alta resolução de uma junção	28
2.8	Altura $(\varphi_0)$ $versus$ a espessura $(s)$ da barreira de $\mathrm{AlO}_x$	29
2.9	(a) DOS de um supercondutor; (b) probabilidade de tunelamento para elétrons com spin	
	$\uparrow$ ou $\downarrow$ ; (c) condutância	31
2.10	R de uma junção túnel de CoFe/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Co em função de $H$	32
2.11	Fração de rompimentos acumulados	36
2.12	Tensão de rompimento de junções magnéticas com diferentes áreas	37
2.13	Ilustração: defeitos distribuídos aleatoriamente ao longo da barreira $\dots \dots \dots$	36
2.14	Ilustração: sistema ponteira-superfície em um STM	40
2.15	Esquema: medida nos modos corrente constante e altura constante em um STM	41
2.16	Esquema: ponteira esférica de STM	42
2.17	Intensidade da corrente de tunelamento para diferentes caminhos	42
2.18	Ilustração: perfil de corrente através de uma junção túnel	44
2.19	TEM de alta resolução de uma junção túnel	46
2.20	TEM de uma junção túnel	46
3.1	Esquema do sistema de deposição de filmes finos do LMMM $\ \ \ldots \ \ \ldots$	48
3.2	XRD a baixos ângulos de filmes de Ta	50
3.3	Gráfico de $q=4\pi\sin(\theta)/\lambda$ versus o índice dos picos de Bragg	51

3.4	Gráfico da espessura de 4 filmes de Ta <i>versus</i> o tempo de deposição	52
3.5	Esquema: processo de fabricação das multicamadas	53
3.6	Esquema: junção túnel	54
3.7	Fotos: máscaras de sombreamento	54
3.8	Medida de MxH de uma tricamada	56
3.9	Medida de MxH de uma junção	57
3.10	Esquema: sistema de medida de IxV	58
3.11	Esquema: sistema de medida de TMR com corrente DC	59
3.12	Esquema: sistema de medida de TMR com corrente AC	60
3.13	Curvas IxV de uma amostra	61
4.1	Medidas e simulações de XRD das multicamadas	65
4.2	Espessuras obtidas por XRD	66
4.3	TEM de uma multicamada	68
4.4	Resistência de folha das multicamadas	68
4.5	Curva IxV de uma junção	69
4.6	$R$ versus $T_{\rm ox}$ das junções de ${\rm Al/AlO}_x/{\rm Al}$	70
4.7	Curva IxV de uma junção e ajuste com o modelo de Simmons (área fixa) $\ .$	73
4.8	$R$ versus $t_{\rm AlOx}$ das junções de Al/AlO_x/Al (área fixa)	73
4.9	$\varphi_0$ versus $t_{\rm AlOx}$ (área fixa)	74
4.10	Curva IxV de uma junção de Al/Al O $_x/$ Al e ajuste com o modelo de Sim-	
	mons (área livre)	75
4.11	Curvas IxV de uma junção de $\mathrm{Al/AlO}_x/\mathrm{Al}$ medida e calculadas com o	
	modelo de Simmons para diferentes valores de $A_{\mathrm{eff}}$	76
4.12	Curva IxV de uma junção de $\mathrm{Al/AlO}_x/\mathrm{Al}$ e ajuste com o modelo de Sim-	
	mons (área entre $3.96 \times 10^{-4}$ e $4.04 \times 10^{-4}$ cm <sup>2</sup> )	79
4.13	$RA_{\mathrm{eff}}$ e $\varphi_0$ versus $t_{\mathrm{AlOx}}$ (janela 1.7 V)	80
4.14	$RA_{\mathrm{eff}}\ versus\ t_{\mathrm{AlOx}}\ (\mathrm{janela\ 800\ mV})$	82
4.15	$\varphi_0$ versus $t_{\rm AlOx}$ (janela 800 mV)	83
4.16	Curvas IxV antes e depois do rompimento do dielétrico	84
4.17	$E_{\rm bd}$ versus $A_{\rm eff}$ (janela 800 mV)	85
4.18	Curva IxV de uma junção de Co/AlO <sub>x</sub> /NiFe	87

4.19	$R$ $versus$ temperatura de uma junção de $\mathrm{Co/AlO}_x/\mathrm{NiFe}$	88
4.20	TMR versus temperatura	89
4.21	TMR $versus\ R$	90
4.22	TMR versus $V_{\text{bias}}$ (77 K)	91
4.23	$RA_{\text{eff}} \in \varphi_0 \text{ versus } t_{\text{AlOx}} \text{ (junções magnéticas)} \dots \dots \dots \dots \dots$	92

# Capítulo 1

# Introdução

Apesar de previsto desde os primórdios da mecânica quântica, o tunelamento quântico através de uma barreira de potencial só começou a ser estudado em sistemas artificiais na segunda metade do século passado. Nesta época, o refinamento das técnicas de preparação de filmes finos atingiu um estágio que permitiu a preparação, até certo ponto controlada, de junções de eletrodos condutores separados por camadas ultra-finas de isolante, onde o transporte de carga se dava por tunelamento. São do mesmo período também os primeiros trabalhos teóricos para explicar as características não lineares das curvas I versus V em junções. Esses modelos semi-clássicos, a despeito de algumas diferenças nas aproximações adotadas, descreveram de maneira satisfatória a linearidade obtida no limite de baixas voltagens e o afastamento deste comportamento para V maiores. Sendo a caracterização de parâmetros da barreira, tais como a espessura, via de regra trabalhosa em junções, tornou-se atrativa a idéia de obter os parâmetros ajustando os modelos às curvas IxV experimentais. Este procedimento, adotado reiteradas vezes ao longo dos últimos quarenta anos, sempre apresentou, no entanto, problemas e inconsistências que fizeram com que os resultados assim obtidos fossem tomados apenas como aproximações razoáveis.

Estabelecer se as curvas IxV podem ou não servir de critério para a identificação do tunelamento nas amostras tornou-se particularmente importante a partir de 1995, quando o tunelamento dependente de spin passou a ser intensamente estudado em junções com eletrodos magnéticos. Isto porque curvas IxV não lineares e magnetorresistência, características básicas do tunelamento dependente de spin, aparecem também na injeção de corrente polarizada em spin através de nanocontatos. A simples presença de curtos

("pin holes") entre os eletrodos, cuja ocorrência nem sempre é fácil de ser evitada, poderia fazer com que o processo difusivo de tunelamento fosse substituído pela injeção balística de cargas, sem que o comportamento qualitativo da amostra, pelo menos necessariamente, fosse alterado. Neste contexto, para que as curvas IxV possam ser adotadas como um dos critérios de identificação do tunelamento como transporte predominante, é indispensável que as curvas possam ser quantitativamente reproduzidas a partir dos modelos.

Independentemente do modelo adotado, a comparação de curvas calculadas e experimentais envolve uma conversão da corrente (quantidade que é medida) em densidade de corrente (quantidade que é calculada). Esta conversão têm sido normalmente realizada utilizando as dimensões físicas das amostras. No entanto, como o tunelamento depende da espessura através de uma exponencial, em junções onde os eletrodos e a barreira apresentam rugosidades (caso em que se enquadra a grande maioria dos sistemas), o tunelamento deveria se concentrar nas regiões de menor espessura, correspondendo a uma área efetiva de tunelamento menor do que as dimensões laterais da junção. Tal concentração ocorre em microscópios de varredura da corrente de tunelamento, e é a responsável pela resolução lateral em nível atômico, mesmo com ponteiras irregulares.

Neste trabalho, introduzimos a área na análise comparativa entre as curvas calculadas e medidas em junções de  $Al/AlO_x/Al$ . Por ser uma junção simétrica e simples, um modelo também bastante simples foi adotado para realizar o estudo, tal como descrito no capítulo 4. As motivações para tal abordagem aparecem no capítulo 2, que apresenta uma resenha das principais características do tunelamento em diferentes sistemas artificiais. Conclusões e algumas perspectivas aparecem no capítulo 5.

# Capítulo 2

# Tunelamento Quântico em Sistemas Artificialmente Estruturados

Em sua forma mais simples o tunelamento, decorrência natural dos postulados da mecânica quântica, envolve a passagem de um elétron através de uma barreira onde o potencial é maior do que sua energia total. Este fenômeno, proibido pela mecânica clássica, ocorre em sistemas que apresentam, em pelo menos uma direção, barreiras de dimensões atômicas. Ainda que tenha sido amplamente utilizado na explicação de vários fenômenos, como a emissão de partículas  $\alpha$  pelos núcleos ou a emissão fria de elétrons da superfície de metais [1], sua realização em sistemas artificialmente estruturados só ocorreu na segunda metade do século XX. No final da década de 50 ele foi identificado como mecanismo de transporte eletrônico entre grãos metálicos dispostos sobre um substrato [2] ou imersos em uma matriz isolante [3] e, não muitos anos após, também detectado em junções planares de eletrodos metálicos separados por uma fina camada de óxido [4].

Nas décadas subseqüentes se manteve o interesse da comunidade científica pelos aspectos fundamentais do tunelameno. Ele foi utilizado para estabeler os detalhes do "gap" de energia para quasipartículas em supercondutores [4, 5, 6] e para determinar o grau de polarização de spins nas bandas de ferromagnetos [7, 8]. Adicionalmente, o tunelamento começou a apresentar uma série de implicações tecnológicas. Na microeletrônica, efeitos deletérios (aumento das correntes de fuga e diminuição da vida útil em capacitores metal-óxido-semicondutor (MOS)) apareceram associados ao tunelamento quando da progressiva integração e miniaturização dos componentes. A dependência exponencial

da intensidade da corrente elétrica em função da largura da barreira permitiu, também, o posicionamento controlado de uma ponteira sobre uma superfície. Este controle serviu de ponto de partida para a obtenção de imagens com resolução atômica no espaço real [9, 10], gerando toda a tecnologia de microscopia por varredura de tunelamento (STM) e técnicas correlatas (microscopia de força atômica (STM/AFM) [11], microscopia óptica de varredura em campo próximo (SNOM) [12, 13], STM com polarização de spin (Sp-STM) [14, 15], espectroscopia por varredura de tunelamento com polarização de spin (Sp-STS) [16], STM com filtro em energia (EF-STM) [17], etc.).

Também as junções planares, com o crescente controle na sua produção, passaram a servir de base para diferentes tipos de dispositivos. Sensores de radiação com junções supercondutor-isolante-supercondutor (SIS) (efeito Josephson) [18], de temperatura com junções metal normal-isolante-metal normal (MIM) (bloqueio de Coulomb [19, 20] ou ruído elétrico [21]), de campo magnético com junções metal ferromagnético-isolante-metal ferromagnético (FM-I-FM) (tunelamento dependente de spin (SDT)) [22, 23], de pequenos deslocamentos mecânicos com junções FM-I-FM (magnetostricção de um dos eletrodos) [24] têm sido propostos. Uma das aplicações mais promissoras e com maior impacto sobre a técnica são as memórias magnéticas não-voláteis (MRAM) baseados no SDT em junções FM-I-FM, cujos protótipos estão atualmente em testes [25]. Junções túnel também se anunciam como importantes elementos em dispositivos spintrônicos [26, 27, 28, 29, 30, 31, 32, 33, 34, 35] baseados na armazenagem, transporte e processamento da carga e spin eletrônicos.

### 2.1 Grãos condutores em meio isolante

O primeiro sistema artificial onde o tunelamento foi identificado como fundamental foram filmes de Ni, Pt e Au evaporados sobre substratos de vidro [2]. A técnica de produção de granulares, dominada desde a década de 50, baseia-se na diferença entre as energias de superfície do material sendo depositado e a do substrato, o que gera um filme de carácter descontínuo (figura 2.1), cuja morfologia dependerá dos materiais, dos parâmetros de deposição e da espessura depositada. Um princípio semelhante permite a fabricação de granulares de metais dispersos em uma matriz isolante, designados cermetos.

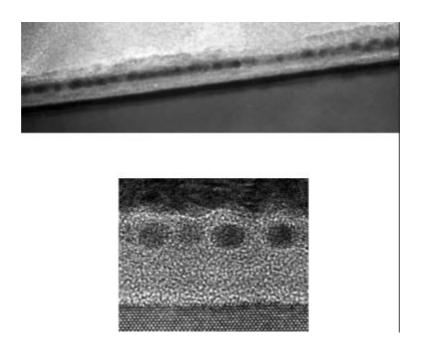


Figura 2.1: Grãos de Co imersos em uma matriz de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [36].

Como a resistência elétrica diminui com o aumento da temperatura (transporte termicamente ativado), foi cogitado durante algum tempo que o transporte fosse por emissão termiônica. Atualmente está estabelecido que a contribuição da emissão para o transporte torna-se relevante apenas para distâncias entre partículas maiores do que  $\simeq 80~\text{Å}$  à temperatura ambiente, situação em que o tunelamento é desprezível. A dependência da resistência com a temperatura decorre não do processo de tunelamento entre sucessivos grãos, dependente apenas fracamente da temperatura, mas do número de grãos com cargas disponíveis ao tunelamento. Admitindo que este número siga uma distribuição de Boltzmann, a resistência pode ser escrita como

$$R = R_0 e^{E_a/kT} (2.1)$$

onde  $E_a$  representa a energia de ativação do processo e dependerá, em primeira aproximação, do tamanho dos grãos [37, 38, 39].

Ainda que a equação descreva qualitativamente os dados experimentais, o tunelamento em sistemas granulares não é particulamente adequado para revelar os detalhes deste processo. Dado o grande número de partículas presente em uma amostra macroscópica, a diferença de potencial entre dois grãos sucessivos será sempre baixa, independentemente da tensão aplicada sobre a mesma. Apenas os elétrons próximos ao nível de Fermi estarão envolvidos no processo túnel e, como os grãos têm mesma composição e nenhum pode

atuar como filtro, todo e qualquer papel desempenhado pela densidade de estados (DOS) eletrônicos é perdido. Adicionalmente, tanto o tamanho das partículas (que determina o número de partículas participando do transporte e o limite de bloqueio de Coulomb) quanto a distância entre grãos (determinando, atraves de uma exponencial a probabilidade de tunelamento) apresentam não um valor único, mas uma distribuição mais ou menos larga em torno de um valor médio.

Nos sistemas granulares ocorreu também a primeira demonstração de que o tunelamento quântico é diferente para spins "up" e "down". A dependência com o spin do tunelamento se revela no efeito de magnetorresistência observado, primeiramente, em granulares de Ni dispersos em uma matriz de SiO<sub>2</sub> [40]. Na ausência de um campo externo H os momentos nos grãos estão aleatoriamente orientados, seja pelas flutuações térmicas dos momentos (quando a amostra está na fase superparamagnética) seja pela dispersão dos eixos de anisotropia (quando a amostra está abaixo da temperatura de bloqueio). Na presença de um campo magnético externo, um alinhamento paralelo entre os momentos nos grãos é progressivamente estabelecido, aumentando o número de estados desocupados próximos ao nível de Fermi para spins "up" ou para spins "down", o que reduz a resistência.

Mesmo para aplicações os sistemas granulares apresentam limitações como resistências extremamente altas. Nos dispositivos "single-electron tunneling" (SET) [41] há um bom controle do tunelamento, mas o limite atual de resolução lateral de estruturas faz com que a temperatura de bloqueio de Coulomb, na qual a sua performance se baseia, seja bem abaixo do ponto de liquefação de He (4.2 K). Quanto às propriedades magnéticas, aplicações são limitadas pelo superparamagnetismo à temperatura ambiente e pelos altos campos de saturação envolvidos. Esforços têm sido desenvolvidos para suplantar estas limitações utilizando acoplamentos magnéticos entre grãos para aumento da temperatura de bloqueio superparamagnético [42]. Técnicas especiais têm sido, também, utilizadas para obter grãos de tamanhos mais homogêneos, como sistemas auto-organizados [43, 44, 45] e deposição por "cluster gun" [46].

# 2.2 Junções Planares

Junções túnel são ditas planares quando constituídas de dois eletrodos planos (metálicos ou não) separados por uma camada isolante ultra-fina, geralmente um óxido. Para ilustrar a dificuldade enfrentada na preparação deste sistema, uma barreira isolante com dimensões laterais de  $200 \times 200 \ \mu\text{m}^2$  e  $20 \ \text{Å}$  de espessura pode ser comparada a um lençol capaz de cobrir um campo de futebol com 1mm de espessura, completamente homogêneo e sem furos. Estes sistemas começaram a ser preparado de maneira controlada apenas no início dos anos sessenta, a partir da oxidação de uma fina camada de Al metálico. Entre as técnicas disponíveis estão a oxidação térmica em atmosfera de  $O_2$  [47, 48, 49, 50], e auxiliada por exposição a luz ultra-violeta [51, 52, 53, 54] ou a descarga elétrica ("glow-discharge-assisted oxidation") [55, 56, 57, 58].

Concomitantemente surgiram os primeiros modelos para o tunelamento neste tipo de sistemas.

### 2.2.1 Modelos

No tunelamento unidimensionsal de elétrons livres através do vácuo, a resistência R no limite de baixas tensões aumenta exponencialmente com a espessura da barreira [1]. Para uma barreira isolante o mesmo comportamento é obtido substituindo a altura  $\Psi$  (dada pela função trabalho no caso do vácuo) pelo valor determinado pelos primeiros estados permitidos além da banda proibida [59]. Sendo o transporte através de um isolante, é de se esperar também que R diminua com o aumento da temperatura devido ao aumento no número de elétrons termicamente ativados, ainda que de maneira mais suave do que no caso dos semicondutores [60].

Para obter uma expressão para o tunelamento além do limite de baixas tensões, vários modelos [61, 62, 63, 64] foram apresentados baseados na hipótese de que o potencial varia lentamente num intervalo equivalente ao comprimento de onda eletrônico. Neste caso, a corrente atravessando a barreira entre as superfícies de dois eletrodos de materiais similares pode ser calculada usando a aproximação semiclássica de Wentzel-Kramers-Brillouin (WKB) [65]. Nesta, a corrente de tunelamento através da barreira é dada por

$$J = \frac{4\pi e}{\hbar} \sum_{\mathbf{k}_t} \int_{-\infty}^{\infty} dE_x \rho_a(E) \rho_b(E - eV) P(E_x) [f(E) - f(E - eV)], \tag{2.2}$$

onde

$$P(E_x) = A \exp\left(-\frac{2}{\hbar} \int_0^s \left\{2m[\phi(x', V) - E_x]\right\}^{1/2} dx'\right)$$
 (2.3)

é a probabilidade de um elétron tunelar através da barreira de potencial. Nestas equações  $\rho_a(E)$  e  $\rho_b(E)$  são as densidades de estado para um determinado momento transversal  $\mathbf{k}_t$ ,  $h(=2\pi\hbar)$  é a constante de Plank, e é a carga do elétron, m sua massa, V é a tensão aplicada entre os eletrodos, E é a energia total do elétron e  $E_x(=p_x/2m)$  é sua energia cinética relativa ao movimento na direção x (modelo unidimensional),  $\phi(x,V)$  é a barreira de potencial entre os eletrodos e s a separação entre eles, conforme esquematizado pela figura 2.2.

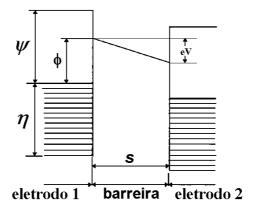


Figura 2.2: Esquema representando dois eletrodos metálicos separados por vácuo [67].

A questão central para obter a densidade de corrente é a solução das integrais que aparecem nas expressões acima. Como o fator A na equação 2.3 é dependente da energia de maneira recíproca com as densidades de estado, na aproximação WKB essas se cancelam [64, 66]. Esta é uma característica intrínseca do modelo que pode impor limitações na aplicação em situações sensíveis à densidade de estados, por exemplo, algumas junções ferromagnéticas com TMR. Tendo a equação 2.2 como ponto de partida, as diferentes propostas diferem no tipo de aproximação adotada para resolver as integrais.

Já na década de 50 Holm [61] calculou a densidade de corrente para temperatura zero e uma barreira de potencial trapezoidal (vácuo) entre contatos metálicos. Tal como observado 10 anos depois por Fisher e Giaever [67] em junções  $Al/AlO_x/Al$ , as curvas tensão *versus* corrente (IxV) no limite de baixas tensões são lineares, sendo seguidas por uma região onde a corrente varia exponencialmente com a tensão aplicada, quando esta

é comparável com a barreira de potencial do isolante.

Uma abordagem mais abrangente foi desenvolvida por Stratton [62] e outros [68] e consiste em expandir  $\ln P(E)$  para elétrons com energia  $E_x$  próximas ao nível de Fermi  $\eta$ ,

$$\ln P(E) = -[b_1 + c_1(\eta - E_x) + \dots], \qquad (2.4)$$

onde os termos quadráticos e de ordens maiores em  $(\eta - E_x)$  pode ser desconsiderados. Para uma relação parabólica entre E e p, a integração da equação 2.2 usando a expansão acima leva a

$$J = \frac{B \exp(-b_1)}{(c_1 k T)^2} \frac{\pi c_1 k T}{\sin(\pi c_1 k T)} \left[ 1 - \exp(-c_1 V) \right], \tag{2.5}$$

onde

$$B = 4\pi m e (kT)^{2}/h^{3} = 120T^{2} A/cm^{2}$$
$$b_{1} = \alpha \int_{s_{1}}^{s_{2}} (\phi - \eta)^{1/2} dx,$$
$$c_{1} = \frac{1}{2} \alpha \int_{s_{1}}^{s_{2}} (\phi - \eta)^{-1/2} dx,$$

sendo  $\phi$  e  $(s_2 - s_1)$  os parâmetros da barreira, e  $\alpha = 2(2m)^{1/2}/\hbar$  uma constante. Podese notar que o tratamento é válido para temperaturas maiores do que zero e para uma barreira de formato arbitrário. Ambos os coeficientes  $b_1$  e  $c_1$  podem ser obtidos a partir das curvas IxV medidas em diferentes temperaturas. Este formato não explícito, no entanto, torna trabalhosa a comparação do modelo com os resultados experimentais.

A influência dos parâmetros da barreira na curva IxV de forma explícita foi apresentada por Simmons [63]. Partindo da mesma aproximação WKB (equação 2.3), também considerando uma relação parabólica entre E e p, e considerando-se a densidade de corrente nos dois sentidos (líquida), a densidade de corrente é dada por

$$J = J_0 \left\{ \bar{\varphi} \exp\left(-A\bar{\varphi}^{\frac{1}{2}}\right) - (\bar{\varphi} + eV) \exp\left[-A(\bar{\varphi} + eV)^{\frac{1}{2}}\right] \right\},\tag{2.6}$$

onde

$$J_0 = e/2\pi h(\beta \Delta s)^2,$$

$$A = (4\pi \beta \Delta s/h)(2m)^{\frac{1}{2}},$$

$$\bar{\varphi} = \frac{1}{\Delta s} \int_{s_1}^{s_2} \varphi(x) dx,$$

$$\Delta s = s_2 - s_1,$$

e  $\beta = 1$  (o que equivale a considerar que  $(1/\Delta_s) \int_{s_1}^{s_2} [\varphi(x) - \bar{\varphi}]^2 dx \ll 1$ ).

A equação 2.6 pode ser interpretada como uma densidade de corrente  $J_0\bar{\varphi}\exp(-A\bar{\varphi}^{\frac{1}{2}})$  fluindo do eletrodo 1 para o eletrodo 2 e uma densidade de corrente  $J_0(\bar{\varphi}+eV)\exp[-A(\bar{\varphi}+eV)^{\frac{1}{2}}]$  fluindo do eletrodo 2 para o eletrodo 1, conforme ilustrado pela figura 2.3. Quando V=0, podemos considerar um estado de equilíbrio dinâmico, onde uma densidade de corrente de magnitude  $J_0\bar{\varphi}\exp(-A\bar{\varphi}^{\frac{1}{2}})$  flui em ambos os sentidos. Ela é válida para temperatura zero e eletrodos similares, e para compará-la com os dados experimentais é necessário explicitar o formato da barreira de potencial.

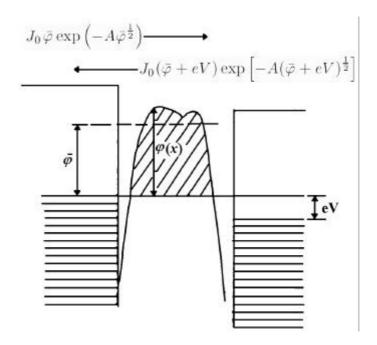


Figura 2.3: Ilustração dos fluxos de corrente entre os eletrodos dado pela equação 2.6 [63].

Admitindo-se uma barreira de formato retangular no limite de voltagens muito baixas  $(V \simeq 0, \text{ figura } 2.4(\text{a}))$  e considerando-se a altura média da barreira de potencial como  $\bar{\varphi} = \varphi_0$  e a espessura como  $\Delta s = s$ , temos

$$J = 3.16 \times 10^{10} \varphi_0^{\frac{1}{2}} (V/s) \exp(-1.025 s \varphi_0^{\frac{1}{2}}); \tag{2.7}$$

já em unidades práticas (J em A/cm², V e  $\varphi_0$  em V, e s em Å).

No limite de voltagens intermediárias  $(V < \varphi_0/e)$ , figura 2.4(b)) temos a altura média da barreira de potencial como  $\bar{\varphi} = \varphi_0 - eV/2$  e a espessura como  $\Delta s = s$ ,

$$J = (6.2 \times 10^{10}/s^2) \left\{ (\varphi_0 - V/2) \exp\left[-1.025s(\varphi_0 - V/2)^{\frac{1}{2}}\right] \right\}$$

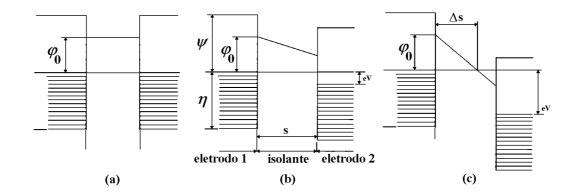


Figura 2.4: Barreira de potencial retangular em um filme isolante entre dois eletrodos metálicos [63]. (a) V=0; (b)  $V<\varphi_0/e$ ; (c)  $V>\varphi_0/e$ .

$$-(\varphi_0 + V/2) \exp\left[-1.025s(\varphi_0 + V/2)^{\frac{1}{2}}\right]. \tag{2.8}$$

Para voltagens altas  $(V > \varphi_0/e)$ , figura 2.4(c) a altura média da barreira de potencial é dada por  $\bar{\varphi} = \varphi_0/2$  e a espessura por  $\Delta s = s\varphi_0/eV$ ,

$$J = 3.38 \times 10^{10} (F^2/\varphi_0) \left\{ \exp\left(-0.689 \varphi_0^{\frac{1}{2}}/F\right) - \left(1 + \frac{2V}{\varphi_0}\right) \exp\left[-0.689 \frac{\varphi_0^{\frac{1}{2}}}{F} \left(1 + \frac{2V}{\varphi_0}\right)^{\frac{1}{2}}\right] \right\},$$
(2.9)

com F = V/s.

Nas equações 2.7 e 2.8 foi usada a aproximação  $\beta=1$ , que leva a um erro máximo de 6 % quando  $V=\varphi_0/e$  e menor que 1 % quando  $V=0.75\varphi_0/e$ , diminuindo para valores menores de V; na equação 2.9 foi usado o valor  $\beta=23/24$ , independente de V [63].

As expressões acima podem ser extendidas para temperaturas diferentes de zero [69], considerando apenas os elétrons em níveis de energia próximos ao nível de Fermi. Note que a dependência é similar à do modelo de Stratton. Usando as equações 2.7, 2.8 ou 2.9 para representar J(V,0), temos

$$J(V,T)/J(V,0) = \pi BkT / \sin(\pi BkT)$$

$$J(V,T) = J(V,0) \left\{ 1 + \frac{1}{6} (\pi BkT)^2 \cdots \right\}$$

$$J(V,T) = J(V,0) \left\{ 1 + \left[ 3 \times 10^{-9} (\Delta sT)^2 / \bar{\varphi} \right] + \cdots \right\},$$
(2.10)

onde  $\Delta s$ está expressa em Å,  $\bar{\varphi}$ está expresso em V, eTestá expressa em K.

No limite de  $V \leq \varphi_0/e$ , onde  $\bar{\varphi} = \varphi_0 - V/2$  e  $\Delta s = s$  temos

$$J(V,T) = J(V,0) \left\{ 1 + \left[ 3 \times 10^{-9} s^2 T^2 / (\varphi_0 - V/2) \right] \right\}, \tag{2.12}$$

e no limite de  $V \ge \varphi_0/e$ , onde  $\bar{\varphi} = \varphi_0/2$  e  $\Delta s = s\varphi_0/V$  temos

$$J(V,T) = J(V,0) \left[ 1 + \left( 6 \times 10^{-9} s^2 \varphi_0 T^2 / V^2 \right) \right]. \tag{2.13}$$

As equações de Simmons podem também ser extendidas para o caso de eletrodos dissimilares [70, 71] se o formato trapezoidal para a barreira é aceito.

Ainda dentro da aproximação WKB, outras rotas podem ser tomadas. Uma delas, apresentada por Brinkman-Dynes-Rowell [64], envolve admitir uma barreira trapezoidal e resolver numericamente as integrais sem nenhuma das aproximações adotadas, seja por Stratton, seja por Simmons.

Fora da aproximação WKB, e considerando-se que os limites entre os eletrodos metálicos e a barreira são extremamente planos, é possível fixar condições de contorno nas interfaces e assim obter uma expressão para a densidade de corrente,

$$J \propto \int_{-\infty}^{\infty} f(\Delta E_F) \exp\left(-\frac{2}{\hbar} \int_0^s \{ [\varphi(x, V) - E_x] 2m \}^{1/2} dx \right) [f(E) - f(E - eV)] dE_x, \quad (2.14)$$

com

$$\varphi(x,V) = \varphi_1 + (x/s)(\varphi_2 - eV - \varphi_1),$$

e

$$f(\Delta E_F) = \frac{16(E_x - \Delta E_F)^{\frac{1}{2}}}{E_x^{\frac{1}{2}}} \left[ \left( \frac{\varphi_2 - E_x}{\varphi_1 - E_x} \right)^{\frac{1}{2}} + \frac{[(\varphi_2 - E_x)(\varphi_1 - E_x)]^{\frac{1}{2}}}{E_x} + \frac{(E_x - \Delta E_F)}{[(\varphi_2 - E_x)(\varphi_1 - E_x)]^{\frac{1}{2}}} + \left( \frac{\varphi_1 - E_x}{\varphi_2 - E_x} \right)^{\frac{1}{2}} \left( \frac{E_x - \Delta E_F}{E_x} \right) \right]^{-1},$$

onde o termo  $f(\Delta E_F)$  ( $\Delta E_F = E_{F2} - E_{F1}$  é a diferença na energia de Fermi dos dois metais) mantém uma dependência indireta com a DOS dos eletrodos [64]. Nesta expressão para J, Xiang et al. [72, 73, 74, 75] introduziram a dependência da DOS dos eletrodos com a orientação relativa das suas magnetizações e com a tensão aplicada, através da função  $N(E_x)$  dada por

$$\begin{cases} N_{1\uparrow}(E_x)N_{2\uparrow}(E_x-eV) + N_{1\downarrow}(E_x)N_{2\downarrow}(E_x-eV) & \text{magnetizações paralelas} \\ N_{1\uparrow}(E_x)N_{2\downarrow}(E_x-eV) + N_{1\downarrow}(E_x)N_{2\uparrow}(E_x-eV) & \text{magnetizações anti-paralelas} \end{cases}$$

o que permite sua aplicação no estudo de junções com eletrodos ferromagnéticos.

De uma maneira mais rigorosa, J pode ser obtida através da solução analítica da equação de Schrödinger, como apresentado no trabalho de Shu et al. [76]. Neste caso, a exemplo do que acontece com as equações de Stratton e a anterior, o formato não explícito torna trabalhosa a comparação com a experiência.

Nas formulações apresentadas não está discutido o efeito das cargas imagem do elétron durante o tunelamento entre os eletrodos, o qual foi incluído nos modelos considerando que as interfaces eletrodo-barreira são planas. Nesta aproximação, o potencial imagem  $V_i(x)$  sobreposto à barreira de potencial é dado por [70]

$$V_i \propto \frac{s}{x(s-x)}. (2.15)$$

A principal contribuição deste termo consiste em "arredondar" a barreira, originalmente trapezoidal, que fica efetivamente menor. Este efeito é tanto menor quanto maior a constante dielétrica do isolante. Em sistemas com geometria mais complicada o potencial imagem também pode ser calculado [77, 78, 79, 80, 81, 82], embora as expressões obtidas não sejam tão simples quanto a equação 2.15.

Os modelos apresentados, dentro da aproximação WKB, podem ser usados para descrever o tunelamento em sistemas com eletrodos constituidos de materiais diferentes, consideradas as diferenças na altura da barreira de potencial nas duas interfaces metalisolante. O modelo de Brinkman-Dynes-Rowell considera também, ainda que de maneira indireta, os efeitos da DOS dos eletrodos sobre o tunelamento. Xiang et al. extenderam sua aplicação para o estudo de junções túnel com eletrodos ferromagnéticos. A formulação de Simmons, ainda que não comtemple estas contribuições, permite uma correlação direta das equações com os resultados experimentais (os parâmetros da barreira aparecem de forma explícita) e tem sido usada no estudo de junções túnel ferromagnéticas [83, 84, 85, 86, 87, 88, 89].

Os modelos podem ser também aplicados em outros sistemas, como por exemplo o STM. Tais aplicações, bem como outros modelos desenvolvidos a partir do interesse específico no STM, serão discutidos em detalhe em uma seção posterior.

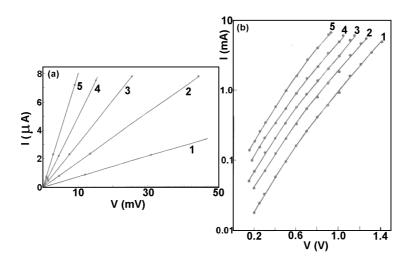


Figura 2.5: Corrente através filmes de óxidos de diferentes áreas, com proporção 5:4:3:2:1, conforme indicado. (a) A baixas tensões a corrente através do óxido é proporcional a tensão aplicada. (b) A tensões mais altas, a corrente cresce exponencialmente com a tensão aplicada [67].

# 2.2.2 Comparação com a experiência

Algumas características do transporte por tunelamento foram estabelecidas no trabalho original de Fisher e Giaever [67], em junções planares de  $Al/AlO_x/Al$ . No limite de baixas tensões, a corrente elétrica através do isolante é proporcional à tensão aplicada, conforme mostrado na figura 2.5(a). Para tensões mais altas o comportamento é exponencial, como aparece no item (b) da figura 2.5. A resistência elétrica, medida no limite de baixas tensões, apresenta uma pequena redução com o aumento da temperatura e, embora de maneira não tão nítida, aumenta exponencialmente com o aumento na espessura do óxido. A importância deste trabalho é ser o primeiro a mostrar resultados convincentes caracterizando o transporte por tunelamento, qualitativamente de acordo com os modelos apresentados anteriormente. No entanto, discrepâncias relevantes aparecem quando uma análise quantitativa é realizada.

Numericamente, os valores de corrente obtidos a partir do modelo de Holm com as espessuras medidas têm magnitudes muito menores do que os observados por Fisher e Giaver. Estes são reproduzidos quando é usada no cálculo uma barreira de vácuo de espessura igual a 1/3 da espessura medida através de capacitância, ou ainda, quando considerada a massa efetiva do elétron no isolante como sendo 1/9 de m. Do ponto de vista matemático, estas duas modificações são equivalentes, uma vez que o expoente da equação 2.3, que determina o valor da corrente, varia linearmente com a espessura da barreira e com a raiz quadrada da massa do elétron. A idéia de alterar a massa

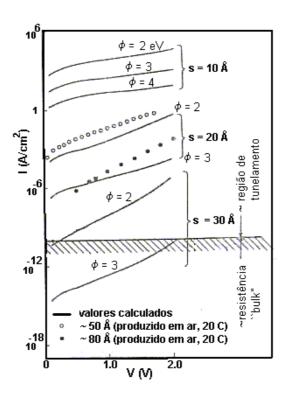


Figura 2.6: Comparação entre curvas IxV medidas (símbolos), e calculadas para eletrodos separados por vácuo (linhas) [67].

efetiva pode ser plausível, uma vez que não há razão para a massa efetiva manter-se na barreira, mas a correção da espessura é mais dificilmente aceitável. Entretanto, como pode ser visto na figura 2.6, mesmo com tais considerações não é possível reproduzir alguns detalhes do comportamento observado. A magnitude da corrente elétrica medida na junção com espessura de  $\simeq 50~\text{Å}$  (circunferências brancas) é bem reproduzida pelo cálculo para uma barreira de 2 eV e 20 Å. Equivalentemente, o cálculo para uma barreira de 2 eV e 32 Å deveria reproduzir a medida na junção com espessura de  $\simeq 80~\text{Å}$  (círculos pretos). E podemos observar que mesmo o cálculo para uma barreira de 30 Å mostrado na figura subestima os valores medidos em algumas ordens de grandeza. Estas discrepâncias também não podem ser explicadas pela inclusão de correções para os efeitos das cargas imagem. Dito de outra forma, o aumento na resistência deveria ser muito maior quando a espessura vai de 50 para 80 Å, o que pode advir tanto da incorreta determinação de parâmetros da barreira (como a espessura, obtida a partir de medidas de capacitância a baixa freqüência neste trabalho) quanto de deficiências no modelo.

Ao longo dos últimos 40 anos houve um grande refinamento tanto das técnicas de produção de filmes quanto de sua caracterização estrutural, o que permite hoje a construção

de camadas isolantes muito finas, mesmo de forma epitaxial, e a sua visualização com resolução subnanométrica [90, 91], como exemplificado pela figura 2.7. Mesmo com tais

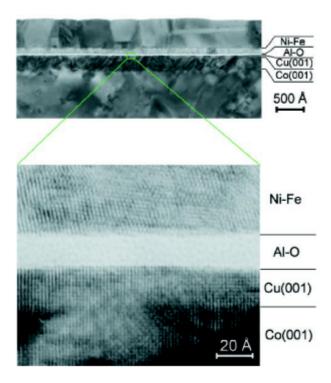


Figura 2.7: Microscopia eletrônica de transmissão de alta resolução de uma junção com estrutura  $Ni_{80}Fe_{20}$  (100 Å) /  $AlO_x$  (18 Å) / Cu(001) (20 Å) / Co(001) (200 Å) [90].

avanços, dificuldades ainda permanecem quando valores calculados e experimentais são justapostos. A primeira dificuldade envolve o fato que os parâmetros obtidos ajustando os modelos aos dados experimentais depende da janela de voltagem utilizada, o que indica que aproximações do modelo não apresentam a mesma validade ao longo da janela de tensão. A dependência exponencial da resistência com a espessura da barreira, obtida pelo ajuste das curvas IxV experimentais, não aparece ou é pouco nítida. Também, ao se plotar a altura da barreira em função da espessura, ambas extraídas dos ajustes, frequentemente uma diminuição da altura com aumento da espessura é encontrada, como exemplificado na figura 2.8. Este comportamento não apenas não encontra nenhuma justifica física, como poderia sugerir a existência de vínculos espúrios entre estas quantidades nos modelos [92, 93]. Todas essas limitações fizeram com que, a despeito de citados em vários trabalhos, nenhum resultado quantitativo tenha sido até hoje baseado em valores de parâmetros da barreira obtidos pelo ajuste de dados experimentais, independentemente do modelo. Como veremos mais tarde, parte destas dificuldade podem ser suplantadas

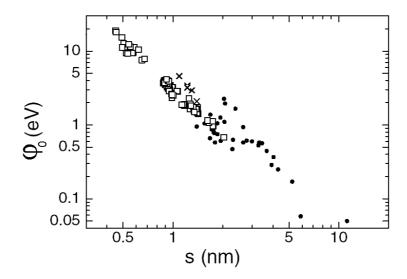


Figura 2.8: Altura da barreira de potencial  $(\varphi_0)$  versus a espessura da barreira de AlO<sub>x</sub> (s), parâmetros obtidos a partir do ajuste do modelo de Simmons às curvas IxV experimentais [94].

reavaliando a área efetiva de tunelamento.

### 2.2.3 Junções com eletrodo supercondutor

Na década de 70 junções túnel com eletrodo supercondutor passaram a ser usadas para medir a polarização de spin PS de metais ferromagnéticos [7]. Para esta medida é utilizada a separação dos estados de energia em um supercondutor na presença de um campo magnético [95, 96]. A partir de medidas da condutância dI/dV em função da tensão  $V_{\text{bias}}$  aplicada sobre junções de Al-AlO<sub>x</sub>-FM (FM = Fe, Co, Ni) onde o eletrodo de Al é mantido abaixo da temperatura crítica  $T_c$ , é possível obter uma relação entre o número de elétrons no nível de Fermi com spin paralelo à magnetização local  $N_{\uparrow}(E_F)$ , e o número de elétrons com spin anti-paralelo  $N_{\downarrow}(E_F)$ ,

$$PS = \frac{N_{\uparrow}(E_F) - N_{\downarrow}(E_F)}{N_{\uparrow}(E_F) + N_{\downarrow}(E_F)}.$$

Partindo do caso mais simples, de tunelamento entre um supercondutor com gap de energia  $2\Delta$  e um metal normal, podemos definir a condutância normalizada  $\sigma$  como sendo

$$\sigma(V) = \frac{\left(\frac{dI}{dV}\right)_{S}}{\left(\frac{dI}{dV}\right)_{N}} = \int_{-\infty}^{\infty} \rho_{S}(E) \left(\frac{\beta e^{\beta(E+eV)}}{(1+e^{\beta(E+eV)})^{2}}\right) dE, \tag{2.16}$$

onde  $(dI/dV)_S$  é a condutância a uma temperatura abaixo de  $T_c$  e  $(dI/dV)_N$  é a con-

dutância no estado normal,

$$\rho_{\rm S}(E) = \frac{|E|}{(E^2 - \Delta^2)^{1/2}} \quad , \qquad |E| \ge \Delta,$$

e

$$\rho_{\rm S}(E) = 0$$
 ,  $|E| < \Delta$ .

O segundo termo na equação 2.16 é uma função simétrica em relação ao máximo localizado em E=-eV. A magnitude do máximo é proporcional a 1/T, e a T=0 a função transforma-se em uma função  $\delta$ , levando a  $\sigma(V)_{T=0}=\rho_{\rm S}(eV)$ . A temperaturas acima de 0, porém bem abaixo de  $T_c$ , a condutância ainda reflete a função densidade de estados. Neste caso os picos se mostrarão alargadados pelo efeito da temperatura, e uma medida de  $\sigma$  versus  $(eV/\Delta)$  mostra dois picos simétricos em relação a eV=0, posicionados em  $eV=\Delta$ .

Quando um campo magnético é aplicado, cada um desses picos se separa em dois, relativos aos estados de energia dos elétrons com spin  $\uparrow$  e elétrons com spin  $\downarrow$ . A diferença de energia para cada spin é  $\pm \mu H$  ( $\mu$  é o momento magnético do elétron), e a curva de  $\sigma$  versus  $(eV/\Delta)$  apresentará quatro picos posicionados em  $(-eV - \mu H)/\Delta$ ,  $(-eV + \mu H)/\Delta$ ,  $(eV - \mu H)/\Delta$  e  $(eV + \mu H)/\Delta$ , tal como representado na figura 2.9(a).

Para extender esta análise para o tunelamento entre um supercondutor e um metal ferromagnético, a equação 2.16 deve ser modificada com a inclusão de dois termos independentes, um para cada estado de spin. Esta generalização tem como hipóteses principais que o spin é conservado durante o tunelamento, não existe espalhamento spin-órbita, e que embora tenhamos uma probabilidade de tunelamento para cada estado ( $\uparrow$  e  $\downarrow$ ), ambas permanecem constantes no intervalo de energia de interesse. Assim

$$\sigma(V) = \int_{-\infty}^{\infty} a\rho_{\rm S}(E + \mu H) \frac{\beta e^{\beta(E+eV)}}{(1 + e^{\beta(E+eV)})^2} dE$$
$$+ \int_{-\infty}^{\infty} (1 - a)\rho_{\rm S}(E - \mu H) \frac{\beta e^{\beta(E+eV)}}{(1 + e^{\beta(E+eV)})^2} dE, \tag{2.17}$$

onde a é definido como a fração de elétrons que tunelam com spin alinhados com o campo magnético externo, ou seja,  $a = N_{\uparrow}(E_F)/(N_{\uparrow}(E_F) + N_{\downarrow}(E_F))$ . A partir desta relação podemos reescrever a polarização de spin como sendo

$$PS = \frac{N_{\uparrow}(E_F) - N_{\downarrow}(E_F)}{N_{\uparrow}(E_F) + N_{\downarrow}(E_F)} = 2a - 1.$$
 (2.18)

A curva de  $\sigma$  versus  $eV/\Delta$  neste caso apresentará também quatro picos simétricos em relação a eV=0; no entanto, com o peso diferente devido às diferentes probabilidades de tunelamento a e (1-a), as alturas relativas dos picos serão diferentes.

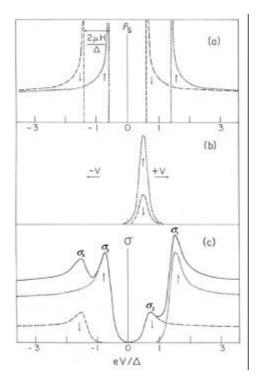


Figura 2.9: (a) Densidade de estados do supercondutor; (b) peso dado pela probabilidade de tunelamento para elétrons com spin \(\gamma\) (pontilhada) e com spin \(\psi\) (tracejada); (c) condutância normalizada para elétrons com spin \(\gamma\) (pontilhada), com spin \(\psi\) (tracejada), e a soma de ambas (sólida) [96].

Nas figuras 2.9(a)-(b) são apresentados os termos presentes nas integrais da equação 2.17, e na figura 2.9(c) um gráfico de  $\sigma(V)$  versus  $eV/\Delta$ . Utilizando-se os valores de condutância nos picos  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$ ,  $\sigma_3$  e  $\sigma_4$ , podemos obter a probabilidade de tunelamento

$$a = (\sigma_4 - \sigma_2)/(\sigma_4 - \sigma_2 + \sigma_1 - \sigma_3),$$
 (2.19)

o que permite calcular a polarização de spin no metal ferromagnético a partir da equação 2.18. Os valores encontrados para Fe, Co e Ni são +44%, +34% e +11%, respectivamente [96]. Medidas em junções semelhantes, feitas mais recentemente [97] e considerando os efeitos do espalhamento spin-órbita, levam a valores de +45%, +42% e +31% para o Fe, Co e Ni, respectivamente.

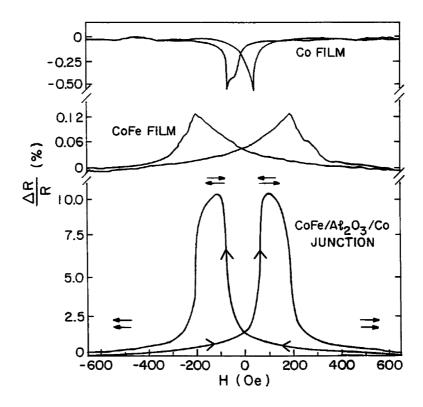


Figura 2.10: Variação da resistência de uma junção túnel de CoFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co, de um filme de Co, e de um filme de CoFe, em função de H (medida a 295 K) [83].

# 2.2.4 Junções planares magnéticas

Na década de 90, altos valores percentuais de magnetorresistência túnel (TMR) foram observados a temperatura ambiente em junções túnel com eletrodos ferromagnéticos [83, 98], o que motivou o estudo destes sistemas sob vários aspectos [99].

O comportamento da R através da junção em função de H pode ser exemplificado pela figura 2.10. Nela são apresentados uma medida de R em uma junção de CoFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co, um filme de CoFe, e um filme de Co. O valor da resistência apresenta uma transição brusca quando, sob a ação do campo externo, o alinhamento entre as magnetizações nos dois eletrodos evolui de um alinhamento paralelo para outro antiparalelo, o que ocorre quando vindo da saturação, o campo externo assume valor entre os campos coercivos dos filmes de CoFe e de Co.

Em medidas de R versus V é observado um pico pronunciado na região de baixas tensões da curva, não previsto nos modelos, e denominado anomalia "zero-bias" (ZBA). Este efeito é mais pronunciado em baixas temperaturas, aparecendo de forma menos definida em temperaturas próximas da temperatura ambiente, e vários modelos foram

propostos recentemente para explicá-lo [74, 100, 101]. Embora conhecido há muito tempo [102], não existe consenso quanto à sua origem, que poderia estar relacionada com a presença de partículas metálicas ou impurezas magnéticas na barreira [103].

Assim como a magnetorresistência gigante [104], a TMR tem sua origem na polarização de spin da corrente elétrica. Se o tunelamento quântico acontece com a conservação do spin, o número de estados disponíveis no segundo eletrodo será diferente para alinhamento paralelo ou anti-paralelo das magnetizações. Dito de outra forma, sendo o eixo de quantização dado pela direção de magnetização do eletrodo, um elétron "up" saindo do primeiro eletrodo terá disponíveis estados "down" no segundo eletrodo se as magnetizações são anti-paralelas.

Para quantificar o efeito da TMR, parte-se do grau de polarização de spin nos materiais magnéticos. Se os eletrodos possuem polarizações de spin  $PS_1$  e  $PS_2$ , definidas por

$$PS_i = \frac{N_{\uparrow}(E_F) - N_{\downarrow}(E_F)}{N_{\uparrow}(E_F) + N_{\downarrow}(E_F)},$$

sendo  $N_{\uparrow}$  e  $N_{\downarrow}$  os estados para spin majoritários e minoritários no nível de Fermi, quando esta orientação evolui de uma configuração anti-paralela para uma paralela, a variação da resistência será dada pela relação de Jullièrè [105]

$$TMR = \frac{R_{AP} - R_P}{R_{AP}} = \frac{2 PS_1 PS_2}{1 + PS_1 PS_2}.$$
 (2.20)

Se o tunelamento é o principal mecanismo de transporte e não há processos de "spin flip", o valor máximo da TMR dependerá fundamentalmente da polarização nos eletrodos. Se os eletrodos são do mesmo material a resistência no alinhamento anti-paralelo é maior do que aquela com alinhamento paralelo. Com polarizações de sinais opostos uma situação inversa pode ocorrer. Note que valores percentuais de TMR relativamente altos podem ser obtidos com polarizações de 20% ou 30% facilmente encontradas em materiais comuns como Fe, Ni, Co ou suas ligas. Medidas recentes de polarização de spin a baixa temperatura ( $\sim 0.25 \text{ K}$ ) [97] trazem  $PS_1 = 45\%$  para o Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub> (NiFe) e  $PS_2 = 42\%$  para o Co. Usando a equação 2.20, obtemos o valor limite de TMR = 32% para uma junção de Co/isolante/NiFe.

Como a TMR dependente da *PS* nos eletrodos é fundamental a determinação desta quantidade. A polarização pode ser calculada por métodos computacionais "ab initio" [106], ou medida em junções com eletrodos supercondutor (ver seção anterior), através

das reflexões de Andreev [107, 108, 109] em nanocontato entre um supercondutor e o material magnético (injeção balística de elétrons no supercondutor), ou espectroscopia de fotoemissão com resolução de spin [110]. É importante notar que diferentes técnicas podem ser sensíveis a conjuntos diferentes de densidades de estados eletrônicos, levando a valores não necessariamente iguais, e que a própria maneira de definir a polarização de spin pode ser motivo de debate [111].

Quando contrastada com os valores da polarização de spin de seus eletrodos, a TMR de junções pode ser reduzida por uma série de fatores extrínsecos, relacionados com peculiaridades estruturais das amostras. Impurezas nas interfaces ou no interior da barreira isolante podem induzir a processos de "spin flip", como mostrado para Au em junções de Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/NiFe [114], Cu [115] em junções de Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co ou Cu em junções de Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/NiFe [90]. A própria polarização do magneto na interface pode ser alterada pela interação deste seja com impurezas (como Cr [116] ou Ru [117]) seja com o material da barreira. Materiais com densidades de estados maiores para spin minoritários no nível de Fermi, como o Co, deveriam em princípio apresentar TMR negativa em junções de Co/Isolante/Fe. Isto não ocorre e ilustra o papel desempenhado no tunelamento por elétrons "s" não polarizados, e por hibridizações "sp-d" entre átomos de Al e de Co na interface [118, 119]. Tal tipo de efeito pode ser detectado alterando o material isolante. Em junções de Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/LSMO (La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MO<sub>3</sub>) é observada TMR positiva, coerente com o fato de ambas a  $PS_{\text{Co}}$  [97] e a  $PS_{\text{LSMO}}$  [110] serem positivas. Quando os mesmos eletrodos são usados em junções de Co/SrTiO<sub>3</sub>/LSMO, é observada uma TMR negativa, compatível com uma polarização negativa para o Co [120, 121].

Sendo a TMR vinculada à polarização de spin é natural que a atenção tenha se voltado aos meio-metais [122]. Esta classe de materiais não apresenta spins minoritários no nível de Fermi, possui polarização de 100%, e se caracteriza por bandas "d" estreitas e ausência de elétrons "s" no nvel de Fermi. Muitos óxidos de metais de transição e ligas são preditos como sendo meio-metais, sendo portanto candidatos ideais para fonte de elétrons polarizados em spin. Este é o caso das manganitas LSMO e LCMO (La<sub>0.7</sub>Ca<sub>0.3</sub>MO<sub>3</sub>), ligas de Heusler como NiMnSb [123, 124], de compostos como CrO<sub>2</sub> e da magnetita Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>. A constatação experimental do grau de polarização teórico é mais controversa [125, 126] e se, por um lado, uma polarização de 100 % foi obtida a baixa temperatura para o CrO<sub>2</sub>, este

valor não passa de 80 % para o caso do LSMO [107, 110]. O caso da magnetita é particularmente representativo, pois o carácter meio-metálico parece estar estreitamente ligado as peculiaridades estruturais e estequiométricas do óxido. Defeitos estruturais e/ou deficiências estequiométricas do óxido levariam a formação de contornos ou paredes antifase com acoplamentos anti-ferromagniticos que destroem a polarização [127].

Ainda que resultados auspiciosos tenham já sido obtidos com junções com meio-metais, uma série de dificuldades instrumentais ainda persistem. As manganitas, por exemplo, exigem altas pressões de oxigênio e altas temperaturas (> 700°C) o que torna sua integração com outros materiais difícil. O composto  $CrO_2$ , por seu turno, é metaestável e deve ser sintetizado a altas pressões de  $O_2$ .

Do ponto de vista das aplicações, a troca de informações entre dispositivos spintrônicos e dispositivos baseados em semicondutores, assim como a sua integração em um único elemento, são de grande interesse. Apesar das dificuldades, tais como incompatibilidade estrutural e funcionamento restrito à baixas temperatura, é possível desenvolver semicondutores ferromagnéticos [128]. Ou ainda, utilizar junções túnel não apenas como elemento de memória ou de processamento [35], mas também como a ponte de integração entre metais ferromagnéticos (fundamentais para o funcionamento à temperatura ambiente) e semicondutores (N).

O coeficiente de injeção de correntes polarizada em spin  $(\gamma)$  desde um FM para um N é muito baixo  $(\gamma \leq 0.1\%)$ , devido às diferenças nas condutividades do semicondutor  $(\sigma_N)$  e do ferromagneto  $(\sigma_F)$  [129]: tipicamente  $\sigma_N \ll \sigma_F$ . É previsto teoricamente a possibilidade de controlar  $\gamma$  através da resistência de uma barreira túnel inserida na interface FM-N [130, 131, 132], o que permitiria alcançar altos coeficiente de injeção de spin, já observado em junções de MnAs/AlAs/Ga<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>As a baixas temperaturas [133].

# 2.2.5 Campo de rompimento do dielétrico

As junções túnel se rompem quando sujeitas a tensões elétricas não muito grandes, tipicamente menores que 2 V, fenômeno que também é observado em outros sistemas, tais como capacitores metal-óxido-semicondutor (MOS). O campo de rompimento do dielétrico Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pode ser estimado [134] como sendo da ordem de 1 GV/m e, sendo a espessura típica do isolante de 2 nm, este campo pode ser facilmente atingido. Pela importância

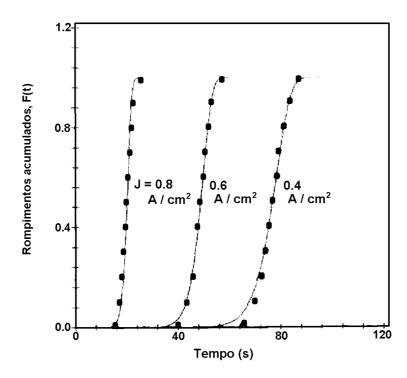


Figura 2.11: Fração de rompimentos acumulados, para diferentes correntes aplicadas (círculos) [135].

tecnológica da compreensão do fenômeno, o comportamento estatístico do rompimento tem sido estudado intensivamente e de maneira sistemática em MOS, e mais recentemente, também em junções. Dado o carácter estatístico, é necessário que um grande número de eventos seja induzido. Em MOS é possível estudar entre  $10^2-10^3$  eventos de rompimento em um mesmo dispositivo.

A indução ao rompimento do dielétrico pode ser feita de diferentes maneiras, e os tipos de teste mais utilizados são: (i) manter o dielétrico sob ação de uma densidade de corrente (tensão) constante e observar o tempo até o rompimento ou; (ii) aplicar uma rampa de corrente (tensão) sobre o dielétrico e observar o valor de corrente (tensão) do rompimento. Ambas produzem resultados equivalentes, que podem ser representados pela figura 2.11, onde é mostrada a distribuição temporal da fração de elementos que se rompem ao longo do tempo em um teste do tipo (i). O formato desta distribuição tem um carácter geral, uma vez que distribuições com a mesma forma também são observadas em testes do tipo (ii) onde a variável aleatória, em lugar do tempo, pode ser a densidade de corrente ou a tensão.

Como pode ser observado na figura, quando são aplicadas densidades de correntes maiores a distribuição se desloca para tempos menores. Este também é um carácter

geral da distribuição, aparencendo de maneira equivalente em testes do tipo (ii). Quando é aplicada uma rampa de corrente (tensão) mais lenta, a distribuição se desloca para valores de densidade de corrente (tensão) menores. Uma outra variável que causa efeito semelhante é a área do dispositivo. Tanto em testes do tipo (i) quanto do tipo (ii), comparando-se dispositivos com áreas diferentes, a distribuição relativa aos de área maior é deslocada para valores menores da variável aleatória, seja ela tempo, densidade de corrente ou tensão.

A partir dos dados estatísticos sobre o fenômeno de rompimento pode-se estabelecer algumas de suas características. Primeiramente, podemos observar diretamente que dispositivos com áreas maiores se rompem com mais facilidade, em ambos os tipos de teste, o que caracteriza um processo aleatório. Uma segunda característica é que o rompimento é um fenômeno local. A área onde ele acontece pode ser estimada como sendo da ordem de

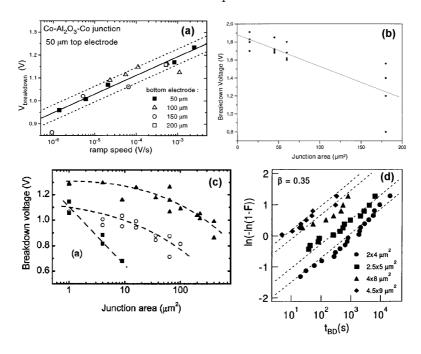


Figura 2.12: (a) Tensão de rompimento de junções de  $\text{Co/Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$  com diferentes áreas em função da velocidade da rampa de tensão aplicada [136]. (b) Tensão de rompimento de junções de  $\text{Co/Al}_2\text{O}_3/\text{NiFe}$  em função da área física da junção. Medidas feitas usando uma rampa de tensão com velocidade constante [54]. (c) Tensão de rompimento de junções de  $\text{Co/Al}\text{O}_x/\text{Co}$  em função da área física. Medidas feitas usanda uma rampa de corrente com velocidade constante. A barreira isolante foi produzida a partir de um filme de Al oxidado por 2 min (retângulos), 8 min (circunferências) e 14 min (triângulos) [142]. (d) Fração de junções que se rompem em função do tempo para o rompimento. Medidas feitas a tensão constante de 1.35 V, em um total de 96 junções (4 grupos de áreas diferentes, cada um com 24 junções) [144].

 $10^{-12}$  cm<sup>2</sup> [135]. Pode também ser observada diretamente usando, por exemplo, um filme de cristal líquido sobre o dispositivo [136] ou microscopia de força atômica [137], levando a valores da ordem de  $10^{-11}$  cm<sup>2</sup>. Esta característica local permitiu o desenvolvimento

da técnica de "self-healing" [138, 139], que prolonga a vida útil do capacitor ao permitir que um grande número de rompimentos aconteçam sem deteriorar suas características. Ela consiste em isolar a área danificada pelo rompimento imediatamente após ele acontecer, utilizando para isso um eletrodo metálico muito fino que será destruído durante o processo de rompimento do dielétrico, isolando esta região. Como a área afetada em cada evento é muito menor do que a área total do capacitor, uma grande quantidade de rompimentos pode ser observada antes do dispositivo apresentar modificações substanciais. "Self-healing" também pode ser constatado em junções túnel [94, 140, 141].

Mais recentemente, o rompimento do dielétrico também tem sido abordado em junções túnel [54, 136, 140, 141, 142, 143, 144, 145], uma vez que a sua utilização tecnológica pressupõe que elas possam operar por períodos de tempo de vários anos. A abordagem estatística pode ser problemática, devido ao reduzido número de amostras normalmente disponíveis. O processo de fabricação de junções túnel ainda não atinge escalas industriais como no caso de capacitores MOS, e tipicamente o número final de amostras passíveis de serem analisadas é sempre menor do que o número inicialmente previsto, pois muitas junções são "queimadas" de maneira descontrolada, tanto durante o processo de produção quanto durante o processo de medida.

Os resultados de alguns estudos representativos em junções túnel são apresentados na figura 2.12. Embora o número de amostras estudas seja muito menor, é possível observar aqui também as características já observadas nos estudos em MOS. Quando rampas de tensão com velocidades diferentes são aplicadas (figura 2.12(a)), as amostras sujeitas às rampas mais lentas se rompem em tensões mais baixas. Este comportamento é interpretado como efeito da deterioração pelo uso, pois as rampas mais lentas mantém o dielétrico sob tensão por um tempo maior.

Como mostrado nas figuras 2.12(b-d), dispositivos com áreas maiores se rompem com mais facilidade quando sujeitos ao mesmo tipo de teste. Assim como no caso de MOS a interpretação deste efetito se baseia no modelo de que os pontos frágeis (onde o rompimento provavelmente ocorre) estão aleatóriamente distribuídos ao longo da barreira, como pode ser exemplificado pela ilustração da figura 2.13. Junções com áreas maiores terão uma maior probabilidade de possuir pontos frágeis, aumentando as chances de ocorrência de rompimento.

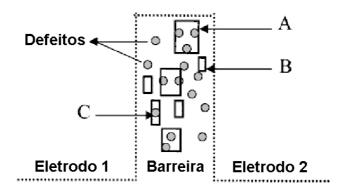


Figura 2.13: Defeitos distribuídos aleatoriamente ao longo da barreira isolante [54]. Junções com áreas maiores (A) possuem mais chances de conter defeitos do que junções com áreas menores (B ou C).

#### 2.3 Tunelamento a partir de uma ponteira - o STM

O interesse pelo efeito de tunelamento quântico foi focado em um sistema diferente das junções túnel na década de 80, a partir da demonstração de Binnig-Rohrer-Gerber-Weibel [9]. A realização de experimentos de tunelamento através do vácuo de maneira controlada permitiu desenvolver o STM [10].

Em um STM, uma ponteira é mantida a alguns Å da superfície a ser analisada. Quando existe uma diferença de potencial V, mesmo pequena, entre a ponteira e a superfície, ocorrerá o transporte entre ambas pelo efeito de tunelamento. A corrente medida entre a superfície e a ponteira será aproximadamente da forma  $I = f(V) \exp\left(-s\sqrt{\bar{\phi}}\right)$ , onde f(V) contém a densidade de estados local conjunta da ponteira e da superfície,  $\bar{\phi}$  é a altura média da barreira de potencial em eV e s é a distância entre a ponteira e o objeto em Å. A primeira medida confirmando este comportamento exponencial da corrente elétrica I (ou da resistência R) em função da distância entre a ponteira e a amostra foi obtida por Binnig  $et\ al.\ em\ 1982\ [9].$ 

Como a transmissividade decresce exponencialmente com a distância de tunelamento (em vácuo, um fator 10 a cada Å), a corrente através da ponteira flue quase que totalmente pelos átomos da ponta (figura 2.14), e na melhor das hipóteses apenas de um orbital específico de um único átomo. A concentração da corrente em um filamento é o que permite resolução lateral de dimensões atômicas [146].

O controle do deslocamento da ponteira com precisão da ordem de Å se dá através de atuadores baseados no efeito piezoelétrico. A varredura da superfície pela ponteira permite obter imagens tridimensionais pelo STM, o que pode ser feita de duas maneiras

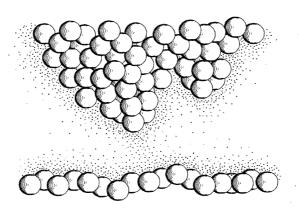


Figura 2.14: Representação do sistema ponteira-superfície em um STM. A segunda ponta mostrada está deslocada por volta de duas camadas atômicas, e carrega menos corrente por um fator  $10^{-6}$  [146].

diferentes (esquema mostrado na figura 2.15).

Mantendo-se a ponteira parada e variando a tensão em relação à superfície, são observadas curvas IxV lineares para baixas tensões e exponenciais para tensões mais altas, assim como nas junções túnel. Mas o STM apresenta diferenças em relação às junções túnel e, entre as principais, podemos citar o controle da distância de separação ponteira-amostra, o material constituinte da separação (ou a ausência deste, no caso de vácuo) e a área através da qual a corrente flui.

Para calcular a corrente de tunelamento em um STM, a principal modificação a ser introduzida nos modelos consiste em levar em conta a área efetiva através da qual acontece o transporte. Como os modelos existentes para o tunelamento em junções túnel consideram as interfaces eletrodo-barreira-eletrodo planas (tratamento unidimensional), é preciso considerar o efeito de um dos eletrodos (ponteira) não ser plano. Admitindo-se que a ponteira possui a ponta esférica, conforme representado na figura 2.16, tanto o tratamento semiclássico (deduzido a partir da aproximação WKB) quanto o tratamento quântico podem ser utilizados, e exemplos podem ser encontrados nos trabalhos de Bono e Good [78], de Das e Mahanty [147], e de Tersoff-Hamann [148, 149].

No trabalho de Bono e Good, são introduzidas correções para a barreira de potencial devido às cargas imagens do elétron durante o tunelamento, na superfície da amostra e na ponta. Ainda, uma vez que as funções trabalho da ponta e da amostra são diferentes, são consideradas as cargas imagem relativas às cargas estáticas em excesso na ponta. A corrente de tunelamento flui através da barreira numa região cilíndrica de seção transversal igual a  $\pi R^2$  e altura d. A condutância calculada no limite de baixas tensões (região

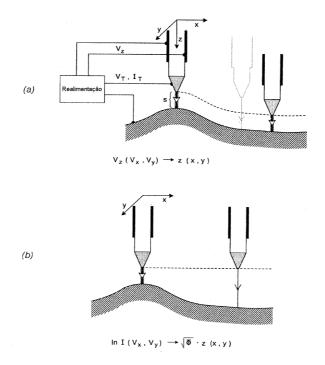


Figura 2.15: Medida nos modos (a) corrente constante e (b) altura constante. No modo de corrente constante, um estágio de ralimentação permite mapear a morfologia da superfície, uma vez que a corrente de tunelamento (e a distância da ponta à superfície) é mantida constante durante a varredura. No modo de altura constante (que pode ser usado onde os desníveis na superfície são da ordem de poucos Å) a ponteira é mantida numa altura fixa z enquanto as diferentes correntes (e as diferentes distâncias da ponta à superfície) são medidas [146].

onde a curva IxV é linear) apresenta um comportamento exponencial com a separação ponta-superfície, conforme observado experimentalmente, bem como leva a valores de resistência na mesma faixa observada (referência [9]). Considerando-se que a função trabalho dos constituintes da ponta e da superfície tenha valores entre 4 e 5.5 eV, são previstas variações da corrente entre 0.86 e 0.96 décadas/Å, respectivamente, para uma ponta de raio de curvatura de 10 Å. Estes valores estão em concordância com os valores observados experimentalmente, de aproximadamente uma ordem de grandeza a cada Å.

Das e Mahanty investigaram a distribuição de corrente através da barreira, empregando diferentes trajetórias de integração para calcular a corrente de tunelamento. Para uma ponta de raio de curvatura de 10 Å distante 5 Å da superfície, foram calculadas as correntes através de diferentes trajetórias ao longo da barreira e comparadas com a corrente através da direção axial, onde ela é mais intensa. Conforme representado na figura 2.17, é prevista a concentração da corrente ao longo desta trajetória mais curta. O valor de  $\chi=0.5$  ( $\chi$  é a relação entre a corrente em uma determinada trajetória e a corrente na trajetória axial) para trajetórias distantes 1.7 Å da trajetória principal garantiria uma

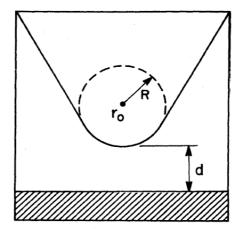


Figura 2.16: Representação de um ponteira de STM com a ponta de forma esférica, com raio de curvatura R e centro de curvatura localizado em  $\vec{r}_0$ . A distância entre a ponta e a superfície é d [148].

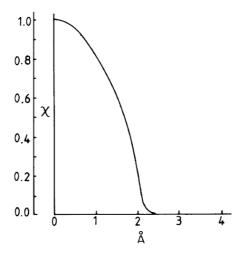


Figura 2.17: Relação entre a intensidade da corrente de tunelamento através de um determinado caminho e a intensidade da corrente através do caminho axial entre a ponta e a superfície da amostra, distantes 5 Å [147].

resolução lateral da ordem de 3.4 Å.

No tratamento quântico de Tersoff-Hamann, a corrente de tunelamento é calculada a partir do formalismo de Bardeen [150], e dada por

$$I = \frac{2\pi e}{\hbar} \sum_{\mu,\nu} f(E_{\mu}) [1 - f(E_{\nu} + eV)] |M_{\mu,\nu}|^2 \delta(E_{\mu} - E_{\nu}), \qquad (2.21)$$

onde f(E) é a distribuição de Fermi, V é a tensão aplicada,  $M_{\mu,\nu}$  é o elemento da matriz de tunelamento entre os estados  $\psi_{\mu}$  da ponta e  $\psi_{\nu}$  da superfície, e  $E_{\mu}$  é a energia do estado  $\psi_{\mu}$  na ausência de tunelamento. Considerando-se o limite de baixas tensões aplicadas entre a ponteira e a superfície e baixas temperaturas, razoáveis para experimentos típicos, e

considerando ainda que a ponteira é um ponto localizado em  $\vec{r}_0$ , é possível obter que

$$I \propto \sum_{\nu} |\psi_{\nu}(\vec{r_0})|^2 \delta(E_{\nu} - E_F),$$

ou seja, a corrente é proporcional a densidade de carga de estados com energia igual a energia de Fermi  $(E_F)$  na posição  $\vec{r}_0$ . Assim, uma imagem de microscopia obtida com o método de corrente constante é um mapa da densidade de estados no nível de Fermi. Os resultados obtidos através da equação 2.21, utilizando a estrutura eletrônica detalhada da superfície e aproximada da ponteira (figura 2.16), estão em excelente concordância com as medidas experimentais para as reconstruções  $2 \times 1$  e  $3 \times 1$  da superfície do Au(110), utilizando-se uma ponteira com raio de curvatura R igual a 9 Å. A resolução lateral prevista é de aproximadamente  $[(2\text{Å})(\text{R}+\text{d})]^{1/2}$  (5.3 Å se a ponta estiver a 5 Å da superfície), da mesma ordem do valor de 3.4 Å obtido a partir do tratamento semi-clássico.

Esta concordância também é observada por Seine et al. [151] quando comparando o modelo de Tersoff-Hamann com o modelo de Simmons extendido para 3D (considerando o formato da ponteira), no estudo de superfícies de Au em vácuo e em ar.

#### 2.4 Delimitação do problema

Muitos dos aspectos fundamentais do tunelamento em geral, e do tunelamento em junções planares, foram elucidados de maneira satisfatória nos últimos anos, e os avanços teóricos e nas aplicações são hoje inquestionáveis. No entanto, os tratamentos para a corrente de tunelamento em função dos parâmetros da barreira e da diferença de potencial entre os eletrodos apresentam discrepâncias e inconsistências quando contrastados com os dados experimentais. Por um lado os valores de espessura de barreira obtidos ajustando os modelos aos dados experimentais não concordam com aqueles medidos por diferentes técnicas. Por outro lado, quando as curvas IxV de várias junções são ajustadas, a dependência exponencial da resistência com a espessura freqüentemente não emerge e, quando o faz, não é nítida. Estas dificuldades persistem mesmo em sistemas simples onde as simplificações adotadas nos modelos são razoáveis.

Uma possibilidade simples e pouco explorada é que o problema decorra da conversão da densidade de corrente, quantidade que é calculada em todos os modelos, tanto semiclássicos como não, em corrente elétrica, quantidade que é efetivamente medida. Esta conversão é normalmente realizada através da área física da junção. Admitindo-se, no entanto, que exista rugosidade nas interfaces metal-isolante, a forte dependência da corrente de tunelamento com a espessura ( $\simeq 6$  ordens de grandeza a cada 10 Å com altura de barreira de 2 eV) faria o transporte concentrar-se em regiões onde a separação entre os eletrodos é menor, como exemplificado pela figura 2.18. Em tal situação, a área efetiva de tunelamento seria menor do que a área física da junção, e as densidades de corrente maiores. Existe na literatura um conjunto de resultados e evidências que suporta esta hipótese. São eles:

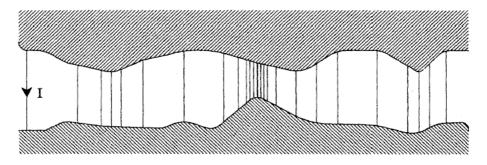


Figura 2.18: Esquema ilustrando o perfil de corrente através de uma junção túnel[146].

- No trabalho de Fisher e Giaever [67], com junções de eletrodos simétricos e sem risco de super ou sub-oxidação, os resultados experimentais são melhor descritos se no lugar da espessura medida um valor bem menor é aceito. Introduzindo o conceito de "pontos quentes" onde a corrente se concentra, os mesmo valores de corrente geram densidades de corrente maiores o que, para as mesmas resistêcias no limite de baixas tensões, implicaria em menores espessuras. A introdução da idéia de "hot spots" levaria os dados experimentais mais próximo daqueles calculados.
- Quando os modelos semi-clássicos são usados para reproduzir curvas IxV obtidas em uma posição fixa em ponteiras de STM, há uma nítida tendência em direção a valores menores para a espessura da barreira, normalmente vácuo ou ar. Isto parece refletir o fato de que, ao estimar as dimenões da ponteira que geram a área de tunelamento, é mais fácil chegar a valores próximos dos reais.
- Foi mostrado recentemente [152] que as espessuras obtidas por difração de raios-X são maiores do que as determinadas a partir de ajustes das curvas IxV, em junções

túnel de NiFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co. Se a hipótese de tunelamento concentrado em regiões é aceita, a discrepância entre os valores da espessura da barreira medidos e aqueles adequados para a reprodução das curvas IxV deixa de ser relevante. Técnicas como difração de raios-X e medidas de capacitância a baixa frequências fazem uma prova ao longo de toda a junção, sendo sensíveis aos valores médios da espessura. Este valores serão sempre maiores do as espessuras tuneladas pelos portadores de carga, que se relacionam com o limite inferior da espessura. No caso de técnicas locais como microscopia eletrônica de alta resolução, como exemplificado na figura 2.19, a região mapeada pode simplesmente não ser representativa da amostra como um todo. Como exemplificado na figura 2.20, no entanto, é comum observar em imagens com menor resolução (e que abrangem regiões maiores da amostra) irregularidades na espessura da barreira que favoreceriam fortemente a tese de concentração da corrente, .

- Em estudos do rompimento do dielétrico em capacitores a área afetada pela descarga é estimada em  $10^{-12} 10^{-11}$  cm<sup>2</sup> [135, 136, 137] o que permitiu o desenvolvimento da técnica de "self-healing". Nestas regiões é observado material fundido (metal e óxido), o que indica que altas temperaturas são atingidas durante o processo, eventualmente acima de 2000 K. Segundo o modelo de Ridley [155], para o rompimento induzido pelo movimento de íons em SiO<sub>2</sub>, a corrente se concentra em regiões onde a espessura do óxido é menor devido à protuberâncias na interface com o eletrodo metálico. As dimensões nanoscópicas deste canal implicam em uma grande densidade de corrente, e também uma grande quantidade de calor dissipado nesta região.
- A análise de grandes áreas da superfície com alta resolução, realizadas com STM, indentificaram que flutuações na espessura de barreiras de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ou CoO<sub>x</sub> sobre Co Estas regiões concentram a corrente de tunelamento [156, 157, 158, 159, 160, 161] em uma área que é apenas uma pequena fração da superfície total da junção.
- Experimentos com a inversão da magnetização induzida por corrente [162, 163], mostraram que a corrente de inversão depende pouco do campo magnético aplicado sobre a amostra. Estes resultados sugerem que a corrente através da junção esteja concentrada em "hot-spots" onde a densidade de corrente, e o campo magnético

local gerado por elas, é maior.

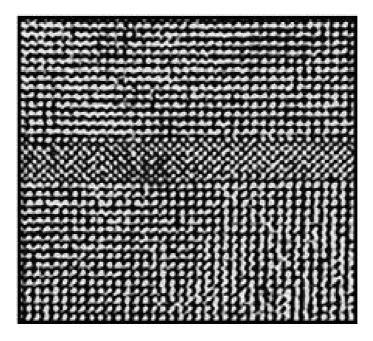


Figura 2.19: TEM de alta resolução da seção transversal de uma junção túnel com eletrodos magnéticos de óxido de manganês separados por um filme isolante de titanato de estrôncio [153].

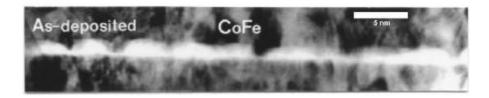


Figura 2.20: TEM da seção transversal de uma junção túnel com eletrodos de  $Co_{90}Fe_{10}$  com barreira de óxido de Al [154].

Neste trabalho utilizamos a aproximação semi-clássica para o tunelamento para ajustar as curvas IxV medidas em junções planares de Al/AlOx/Al a temperatura ambiente. A partir das considerações acima expostas tratamos, em contraste com os procedimentos apresentados na literatura, a área de tunelamento como uma variável desconhecida e usamos o valor da área física da junção apenas como um limite superior para a área efetiva de tunelamento.

# Capítulo 3

# Procedimentos experimentais

As amostras foram produzidas a partir de filmes finos de materiais puros, crescidos por "magnetron sputtering" sobre substratos de Si ou vidro. De acordo com o tipo de caracterização estrutural, magnética ou elétrica buscada, foram produzidas bicamadas, multicamadas e junções túnel constituídas de filmes na faixa de espessuras entre 0.5 e 100 nm.

Foram efetuadas medidas de difração de raios-X (XRD), microscopia eletrônica de transmissão (TEM), magnetometria (MxH) de amostra vibrante (VSM) e de gradiente de campo alternado (AGM), magnetorresistência (TMR, na faixa de temperaturas entre 10 e 300 K) e transporte (IxV). Parte destas medidas (XRD, VSM, IxV e TMR) foi realizada no Laboratório de Magnetismo e Materiais Magnéticos da UFSM (LMMM), sendo o restante obtido através de colaborações com o Laboratório de Magnetismo da UFRGS (LAM) e o Centro de Microscopia Eletrônica da UFRGS (CME).

## 3.1 Produção de amostras

Todas as amostras foram produzidas no sistema de deposição de filmes finos do LM-MM. Os filmes são crescidos a partir de alvos de materiais puros (graus de pureza na faixa de 99 a 99.99 %), maciços ou sinterizados a frio a partir de pós puros. Os alvos maciços e os pós foram adquiridos em comércio especializado, e a sinterização foi feita no LMMM, em pressões típicas de 40 ton sobre um alvo de 2 in. Um esquema do sistema de deposição pode ser visto na figura 3.1, representando alguns dos seus principais componentes.

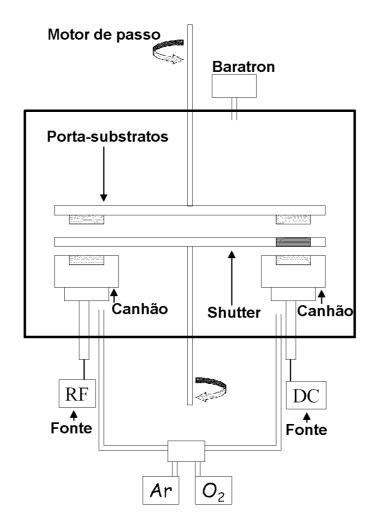


Figura 3.1: Esquema do sistema de deposição de filmes finos do LMMM, usado para deposição de filmes na faixa de espessuras entre 0.5 e 1000 nm. Montado sobre um sistema de vácuo BAK 600 BALZERS com duas bombas de vácuo (rotativa e difusora), possui dois motores de passo SLO SYN WARNER ELECTRIC com resoluções de 40000 passos/volta (porta-substratos) e 10000 passos/volta (shutter), dois controladores de fluxo de gás 1179A MKS (Ar e  $O_2$ ) para a faixa 0-120 sccm, medidor de pressões BARATRON MKS para a faixa 0-100 mTorr, dois canhões AJA para alvos de 2 in, uma fonte de alimentação RF5S RFPP (RF) e uma fonte de alimentação MDX500 ADVANCED ENERGY (DC), permitindo deposição a partir de alvos de materiais isolantes e condutores.

#### 3.1.1 Deposição dos Filmes

O sistema de vácuo possui duas bombas de vácuo BALZERS (rotativa e difusora), capazes de diminuir a pressão na câmara até o limite de  $\sim 8 \times 10^{-7}$  Torr. A partir do estabelecimento da pressão de base é iniciada a rotina de deposição, sendo o primeiro passo reduzir o fluxo de bombeamento através de um estrangulamento (persiana) localizado entre a bomba difusora e a câmara. Para um fluxo específico de gás injetado próximo aos canhões, esta persiana permite ajustar a pressão de deposição na câmara. Durante a deposição, valores típicos de fluxo e pressão são 40 sccm e 5 mTorr, respectivamente.

A espessura dos filmes é controlada através do tempo de exposição do substrato ao plasma, considerando-se que mantidos os valores de fluxo de gás, pressão, distância alvosubstrato e corrente (DC) ou potência (RF), a taxa de deposição será constante. Para garantir a uniformidade dos filmes, o substrato é mantido em movimento com velocidade constante durante a deposição, de forma que cada porção dele seja exposta a todas as regiões do plasma e por um mesmo tempo. Este movimento, em combinação com o campo magnético do canhão, permite também a indução de um eixo preferencial de magnetização nos filmes magnéticos. Como só existe a possibilidade de rotação do porta-substratos, persistirá uma falta de uniformidade na direção perpendicular à do movimento. Assume-se que a amostra será uniforme nesta direção numa região de até 1/2 in distante do centro do substrato, quando este é mantido a 50 mm do alvo.

#### 3.1.2 Calibração da Taxa de Deposição

O controle na espessura é um elemento chave para a reprodutibilidade das amostras, e é obtido pelo controle do tempo de exposição do substrato ao plasma. Para crescer um filme de 50 Å, com uma taxa de deposição de 2 Å/s, precisamos manter o substrato exposto ao plasma por 25 s; como o shutter expõe uma região de 3050 passos ao plasma, precisamos mover o substrato com uma velocidade de 122 passos/s (3050passos  $\frac{2 \text{ Å/s}}{50 \text{ Å}}$ ) sobre o canhão. Nesta faixa de velocidades, podemos controlar o tempo de exposição em  $\simeq 0.2 \text{ s}$ , o que corresponderia a uma variação de espessura de  $\simeq 0.4 \text{ Å}$ . Para um filme de 500 Å o controle de espessura cai para  $\simeq 40 \text{ Å}$ .

Para obter a taxa de deposição dos materiais, foram produzidos filmes e bicamadas, cujas espessuras foram medidas através de XRD a baixos ângulos. Na figura 3.2 é apresen-

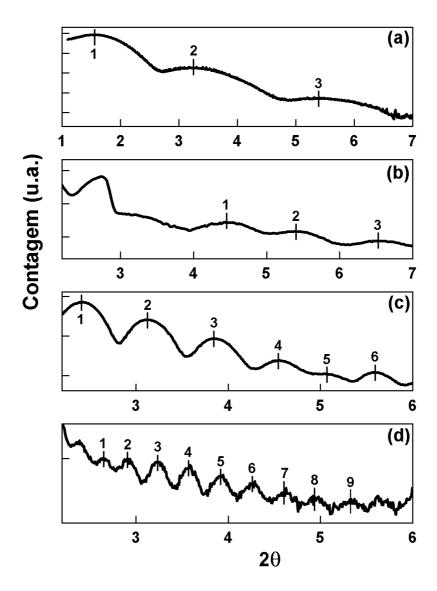


Figura 3.2: Espectros de XRD a baixos ângulos de filmes de Ta depositados sobre vidro a diferentes velocidades do porta-substratos (tempos de exposição); (a) 101 passos/s (30.2 s); (b) 60 passos/s (50.8 s); (c) 30 passos/s (101.7 s); (d) 15 passos/s (203.3 s). Os filmes foram depositados a 5 mTorr de Ar fluindo a 43 sccm, em plasma RF de 30 W.

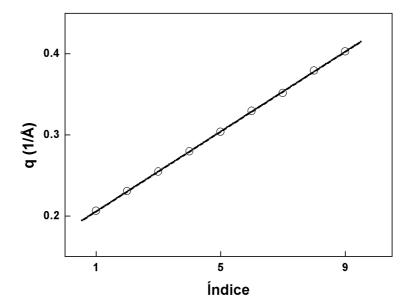


Figura 3.3: Gráfico do vetor de espalhamento  $q=4\pi\sin(\theta)/\lambda\ versus$  o índice dos picos de Bragg (circumferências) e ajuste linear com inclinação 0.02462 Å<sup>-1</sup> (linha). Relativo à medida apresentada na figura 3.2(d).

tada, como exemplo, uma medida em filmes de Ta sobre vidro. A partir da indexação dos picos de Bragg, relativos a interferência construtiva das ondas refletidas nas superfícies ar-Ta e Ta-vidro, podemos construir para cada espectro um gráfico do vetor de espalhamento  $q(=4\pi\sin(\theta)/\lambda)$  de cada pico *versus* seu índice, tal como apresentado na figura 3.3. A inclinação da reta obtida é igual a  $2\pi$  dividido pela espessura do filme (em unidades do comprimento de onda dos raios-X,  $\lambda$ ).

Na figura 3.4 é apresentada a espessura de 4 filmes de Ta versus o tempo de exposição dos substratos ao plasma. A inclinação da reta (1.24 Å/s) fornece a taxa de deposição para este alvo de Ta mantidas as condições de deposição. Este procedimento de calibração é repetido para todos os materiais utilizados neste trabalho, e recalibrações são necessárias tanto quando da confecção de um novo alvo, como quando o alvo apresenta desgaste ou há mudança de algum parâmetro.

#### 3.1.3 Multicamadas

A produção de multicamadas consiste na deposição sucessiva de vários filmes de até dois materiais diferentes, alternadamente. Foram produzidas amostras de multicamadas de  ${\rm AlO}_x/{\rm Al}$ .

As multicamadas de  $AlO_x/Al$  foram produzidas a partir da deposição sobre substratos

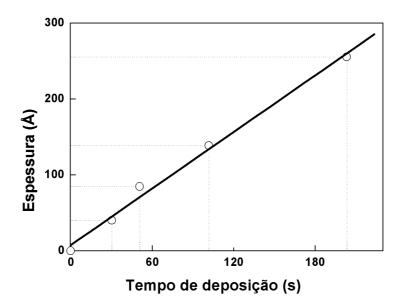


Figura 3.4: Gráfico da espessura de 4 filmes de Ta *versus* o tempo de deposição (circumferências) e ajuste linear com inclinação 1.24 Å/s (linha). Relativo às medidas apresentadas na figura 3.2.

de Si de filmes metálicos de Al, parcialmente oxidados por exposição a plasma em atmosfera rica em  $O_2$ . A espessura nominal dos filmes de Al é de 60 Å, e o processo de produção de cada bicamada se dá através de uma etapa com vários passos, listados abaixo.

- 1. O ar é bombeado da câmara até que seja atingida a pressão de base ( $\sim 1 \times 10^{-6} \text{ mTorr}$ );
- 2. É depositado um filme de Al em fluxo de Ar (5 m Torr, 45 sccm, 50 mA, 363 V DC);
- 3. O argônio é bombeado até que seja atingida a pressão de base ( $\sim 1\times 10^{-6}~\mathrm{mTorr});$
- 4. É admitido  $O_2$  na câmara, até ser atingida a pressão de 100 mTorr;
- 5. O filme é oxidado em plasma (237 mA, 263 V DC) por um tempo  $T_{\rm ox};$
- 6. É admitido ar na câmara até ser atingida a pressão de 100 Torr.

Esta rotina é repetida 13 vezes, de forma a construir uma multicamada com 13 bicamadas, tal como este esquema apresentado na figura 3.5. As amostras estudadas foram produzidas com  $T_{\rm ox}$  iguais a 10, 30 e 50 s (amostras S149B, S149C e S149D, respectivamente). Em complementação, foi produzido um filme de Al sobre substrato de Si (amostra S148A), depositado em fluxo de Ar (5 mTorr, 44 sccm, 50 mA, 363 V DC) e sem nenhuma exposição a plasma em atmosfera de  $O_2$ .

# AlO<sub>x</sub> Al AlO<sub>x</sub> Al AlO<sub>x</sub> Al Al AlO<sub>x</sub> Al

Figura 3.5: Esquema representando o processo de fabricação das amostras S149B, S149C e S149D.

#### 3.1.4 Junções túnel

Assim como a produção de multicamadas, a produção de junções túnel consiste na deposição sucessiva de filmes de diferentes materiais. Foram produzidas amostras de junções túnel de dois tipos: ferromagnéticas, com eletrodos de NiFe e Co; e não-magnéticas, com eletrodos de Al. Em ambos os tipos, os filmes foram depositados sobre substrato de vidro e a barreira isolante foi produzida a partir da oxidação em plasma de O<sub>2</sub> de um filme fino de Al.

Um esquema simplificado de uma junção túnel pode ser visto na figura 3.6. È necessário que os filmes tenham formatos especiais a fim de que possam ser efetuadas medidas de IxV e TMR, ou seja, para permitir que a corrente flua do primeiro eletrodo para o segundo eletrodo através da barreira isolante. Para a formatação dos filmes foram empregadas máscaras de sombreamento, apresentadas na figuras 3.7, posicionadas manualmente sobre o substrato de vidro durante a deposição dos filmes.

Além do formato adequado, o filme isolante precisa ser muito fino e contínuo, pressupostos básicos para que o principal mecanismo de transporte entre os eletrodos seja o tunelamento. A técnica utilizada para garantir a qualidade estrutural consiste em crescer a junção sobre um filme buffer de Ta, cuja tensão superficial permite "molhar" o substrato de vidro. Sobre este filme são crescidos o primeiro eletrodo, a camada isolante, o segundo eletrodo e um quinto filme (Cu ou Al), que terá a função de facilitar o contato elétrico

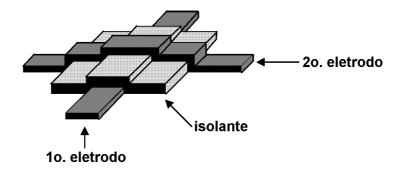


Figura 3.6: Esquema representando uma junção túnel, composta de dois eletrodos e uma barreira isolante.

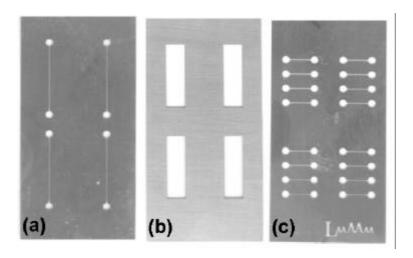


Figura 3.7: Fotos das máscaras utilizadas sobre o substrato de vidro durante a deposição dos filmes, para a produção de junções túnel.

entre os eletrodos e os equipamentos de medida.

Na tabela 3.1 está descrita a estrutura das junções túnel produzidas. Em todas elas os filmes de buffer e o primeiro eletrodo e são depositados através da máscara representada na figura 3.7(a), o filme de Al é crescido e sua oxidação é efetuada através da máscara representada na figura 3.7(b), e o segundo eletrodo é crescido através da máscara representada na figura 3.7(c) (casos especiais são informados na legenda da tabela). Cada amostra conta com 16 junções túnel produzidas sobre a mesma lamínula e nas mesmas condições de deposição.

#### 3.2 Caracterização estrutural

O fenômeno de tunelamento quântico em junções túnel é extremamento rico em efeitos, sendo todos fortemente influenciados pela região das interfaces eletrodo-barreira-eletrodo. Por isto, as análises estruturais foram focadas em dois aspectos: (i) a espessura e (ii) a rugosidade da barreira isolante. As medidas de XRD e TEM foram efetuadas nas amostras de multicamadas especialmente projetadas para estas experiências, conforme descrito anteriormente.

As medidas de XRD a baixos ângulos foram efetuadas no CME através de colaboração com o Prof. Sérgio Ribeiro Teixeira. As amostras S148A, S149B, S149C e S149D foram medidas utilizando um difratômetro Philips modelo "X'Pert MRD" na geometria  $\theta$  –  $2\theta$ , usando radiação Cu-K $_{\alpha}$ . Este equipamento apresenta um monocromador do feixe detectado e controle de movimento da amostra em três eixos, configuração melhorada em relação ao utilizado para obtenção dos espectros apresentados na figura 3.2, utilizados para a determinação da taxa de deposição de alguns materiais.

As medidas de TEM foram efetuadas no CME, através de colaboração com o Prof. Paulo Fichtner e o acadêmico M.Sc. Cristiano Camacho. As amostras S148A, S149B, S149C e S149D foram medidas utilizando um microscópio eletrônico de transmissão "JEM 2010".

#### 3.3 Medidas de magnetização

As medidas de magnetização foram efetuadas no LMMM e no LAM, neste último através de colaboração com o Prof. João Edgar Schmidt e o Dr. André Gündel. As amostras J8A, J8B, J8C e J8D foram medidas por VSM no LMMM, e as amostas J9A, J9D e J10B por AGM no LAM. Uma descrição detalhada deste último pode ser encontrada em [164, 165].

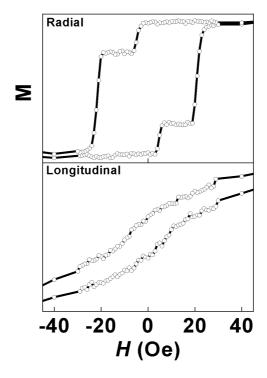


Figura 3.8: Medida da MxH por VSM a temperatura ambiente de uma tricamada  $Co/AlO_x/NiFe$  depositada sem a utilização de máscaras de sombreamento, nas direções radial e longitudinal, respectivamente perpendicular e paralela à direção do movimento do porta-substratos durante a deposição.

#### 3.3.1 Indução de anisotropia nos filmes magnéticos

Para as medidas de TMR nas junções magnéticas é importante que os campos coercivos dos eletrodos sejam diferentes, para que a partir da aplicação de um campo magnético externo seja possível obter uma configuração em que as suas magnetizações apontem em sentidos opostos. Ainda, é importante que a região de transição de M para -M seja o estreita, sendo ideais os eletrodos que apresentem um único eixo preferencial de magnetização. A deposição por "magnetron sputtering" exige que o substrato esteja sob a ação de um campo magnético relativamente intenso ( $\sim 40$  Oe). Se o material sendo

depositado é magnético, a sua combinação com o movimento relativo substrato-canhão permite induzir um eixo preferencial de magnetização no filme.

Na figura 3.8 são apresentadas duas medidas de MxH de uma tricamada  $\text{Co/AlO}_x/\text{NiFe}$  crescida sem o uso de máscaras de sombreamento. É possível identificar o eixo preferencial na direção radial, perpendicular à direção de movimento do porta-substratos em relação ao canhão durante a deposição.

Esta configuração se deteriora quando são usadas máscaras de sombreamento de aço, como exemplificado pela figura 3.9. Nela estão duas medidas de MxH de uma junção de  $\text{Co/AlO}_x/\text{NiFe}$ , que indicam que aqui não foi possível induzir uma única direção preferencial de magnetização, o que pode ser relacionado às propriedades do aço empregado na confecção das máscaras, fracamente magnético. Este problema pode ser facilmente contornado utilizando-se máscaras de sombreamento confeccionadas de material não-magnético, no nosso caso cobre.

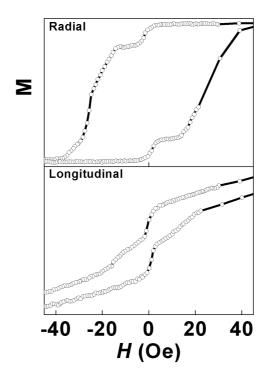


Figura 3.9: Medida da MxH por AGM a temperatura ambiente de uma junção de  $\text{Co/AlO}_x/\text{NiFe}$  com área  $\sim 10^{-3}~\text{cm}^2$  depositada com a utilização de máscaras de sombreamento de aço, nas direções radial e longitudinal, respectivamente perpendicular e paralela à direção do movimento do porta-substratos durante a deposição.

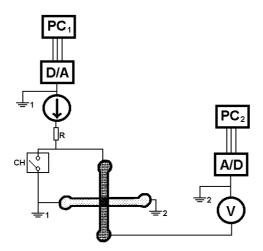


Figura 3.10: Esquema do sistema de medida de IxV. A corrente na amostra é controlada pelo computador  $PC_1$  que é interligado via interface RS-232 a uma fonte de corrente operacional na faixa 100 nA - 100 mA. A tensão sobre a amostra é armazenada pelo computador  $PC_2$  interligado via RS-232 a um multímetro com impedância de entrada na faixa 10 M- - 1 G- , para medida de tensões na faixa 10  $\mu$ V - 4 V. Os eletrodos são colocados em curto através do acionamento da chave CH.

#### 3.4 Medidas de transporte

As medidas de transporte foram efetuadas no LMMM. Diferentes montagens foram utilizadas para as medidas das curvas IxV (figura 3.10), TMR com corrente DC (figura 3.11), TMR com corrente AC (figura 3.12). Em todas elas é utilizado o esquema padrão de quatro pontas, onde a corrente é injetada na amostra através de dois eletrodos, e a tensão sobre ela é medida através de outros dois.

As medidas em junções com baixa resistência ( $\leq 10^2$  - ) são afetadas pela distribuição não-homogênea da corrente ao longo dos eletrodos, quando a resistência destes dentro da área da junção é maior do que a resistência da junção [166, 167, 168, 169, 170, 171, 172]. Nas amostras estudadas, a resistência dos eletrodos (com 9 mm de comprimento) é da ordem de  $10^3$  - , o que equivale a uma resistência de  $\simeq 25$  - a cada 0.2 mm (dimensão lateral da junção). A resistência das junções é sempre maior do que  $10^3$  - , e com estes valores podemos calcular o comprimento típico da distribuição de corrente [169]

$$l_{\text{typ}}^2 = \frac{10^3}{25} (0.2 \text{mm})^2 \simeq (1.3 \text{mm})^2.$$

Como  $l_{\text{typ}}$  é muito maior do que a dimensão lateral da junções, este efeito pode ser desconsiderado.

Ao serem conectadas ao sistema de medida, as junções túnel podem ser expostas a

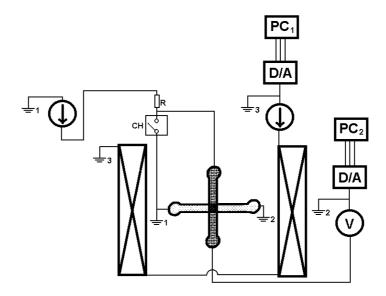


Figura 3.11: Esquema do sistema de medida de TMR com corrente DC. A corrente na amostra é gerada pela fonte de corrente. O campo magnético é controlado pelo computador PC<sub>1</sub> interligado via interface RS-232 a fonte de corrente que alimenta um sistema de bobinas de Helmholtz (campo máximo de 230 Oe). A tensão sobre a amostra é armazenada pelo computador PC<sub>2</sub> interligado via RS-232 a um multímetro com impedância de entrada na faixa 10 M- - 1 G- , para medida de tensões na faixa 10  $\mu$ V - 4 V. Os eletrodos são colocados em curto através do acionamento da chave CH. Não está representado o sistema de crio-refrigeração, que permite a medida na faixa de temperaturas 10 - 300 K.

algum tipo de transiente como, por exemplo, aqueles gerados durante o acionamento de algum equipamento ou mesmo pela tensão eletrostática existente entre o experimentador e o sistema de medida. Qualquer um destes eventos pode queimar a amostra, uma vez que a tensão de "breakdown" típica de uma junção túnel é menor do que 2 V. Para resolver este problema os eletrodos são mantidos em curto durante qualquer procedimento que possa gerar algum transiente sobre o sistema de medida, estando conectados ao sistema de medida somente durante a análise.

As curvas IxV são obtidas através da medida da tensão sobre a amostra, enquanto a corrente é variada a taxa constante (da ordem de 2.5 nA/s na faixa de tensões entre 400 – 800 mV, em uma amostra com resistência de ~ 700 k-); para comparação na figura 3.13 é mostrada uma curva IxV medida usando esta técnica (linha) sobreposta a curva IxV medida em diferentes valores de corrente (circunferências).

As curvas de TMR são obtidas através da medida da tensão sobre a amostra para uma corrente constante, enquanto o campo magnético é variado com taxa constante de 0.5 Oe/s.

Foram obtidas as curvas IxV e TMR (para diferentes valores de tensão aplicada sobre

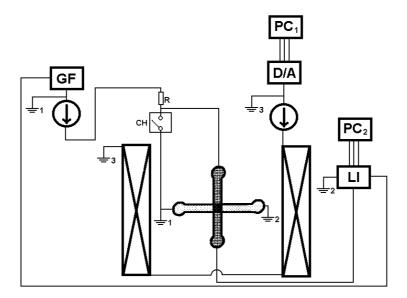


Figura 3.12: Esquema do sistema de medida de TMR com corrente AC. A corrente na amostra é controlada por um gerador de funções (GF). O computador  $PC_1$  controla via interface RS-232 a fonte de corrente que alimenta um sistema de bobinas de Helmholtz (campo máximo de 230 Oe). A tensão sobre a amostra é armazenada pelo computador  $PC_2$  interligado via RS-232 a um amplificador "lock-in" (LI), com sinal de referência enviado pelo GF. Os eletrodos são colocados em curto através do acionamento da chave CH. Não está representado o sistema de crio-refrigeração, que permite a medida na faixa de temperaturas 10 - 300 K.

a junção) de algumas das amostras produzidas<sup>1</sup>.

#### 3.4.1 Ajuste dos modelos às curvas IxV experimentais

A rotina de ajuste varia os parâmetros livres usando os métodos de Levenberg-Marquardt ou simples tentativas aleatórias (AT) [177], de forma a minimizar a função

$$\chi^2 = \frac{S}{(n-p)},$$

com

$$S = \sum_{i} (f_i - y_i)^2,$$

onde  $f_i$  é o valor da corrente calculada,  $y_i$  é o valor da corrente medida, n é o número de pontos utilizados no ajuste e p é o número de parâmetros livres. O método AT modifica o conjunto de parâmetros de maneria aleatória e compara os valores de  $\chi^2$  para ambos os conjuntos, escolhendo aquele que gera o menor valor. Neste caso, não são computadas as derivadas de  $\chi^2$ , o que torna os cálculos mais rápidos. O método de Lavenberg-Marquardt,

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>É possível efetuar as medidas de TMR e IxV na taxa de aproximadamente duas amostras por dia: seriam necessários 368 dias de trabalho *apenas para as medidas de transporte* em todas as 736 amostras produzidas.

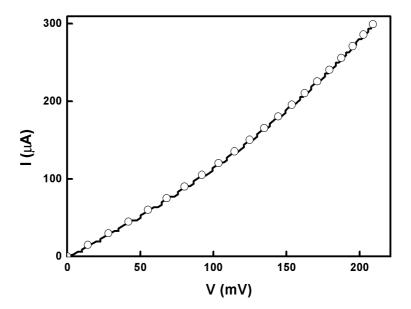


Figura 3.13: Curvas IxV de uma mesma amostra com resistência de  $\sim 1$  k- . Medida com corrente variando a taxa constante de 2.6  $\mu$ A/s (linha) e medidas em correntes diferentes efetuadas após espera de 5 s (circunferências).

por sua vez, analisa estas derivadas ao mesmo tempo que modifica dinamicamente o grau de variação dos parâmetros ao se aproximar do mínimo, progredindo para este valor de maneira mais direta às custas de mais tempo de cálculo. O método AT é usado no início das rotinas de ajuste, permitindo obter rapidamente parâmetros próximos aos que minimizam  $\chi^2$ . A partir destes, as interações são efetuadas pelo método de Lavenberg-Marquardt, até serem interrompidas quando a variação em S é menor do que  $10^{-15}$ . Sendo n tipicamente da ordem de  $10^3$ , os valores de  $\chi^2$  estão na faixa de  $10^{-18}$ .

Parâmetros confiáveis devem ser independentes dos valores escolhidos para iniciar o ajuste. A existência de mínimos locais foi descartada fazendo, em um número representativo de amostras, ajustes partindo de parâmetros com valores individuais diferentes em até algumas ordens de grandeza. Estes ajustes sempre levam, para a mesma amostra, aos mesmos parâmetros "ótimos".

Amostra	Estrutura		
J7A	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(600s)/Al(15)/TAM/NiFe(474)/Ta(98)		
J7B	${\rm Cu}(100)/{\rm Co}(420)/{\rm TAM/OX}(600s)/{\rm Al}(50)/{\rm TAM/NiFe}(474)/{\rm Ta}(98)$		
J7D	${\rm Cu}(100)/{\rm Co}(420)/{\rm TAM/OX}(600s)/{\rm Al}(100)/{\rm TAM/NiFe}(474)/{\rm Ta}(98)$		
J8A♣	Co(420)/TA/OX(600s)/Al(15)/TA/NiFe(474)/Ta(98)		
J8B <b>♣</b>	Co(420)/TA/OX(600s)/Al(25)/TA/NiFe(474)/Ta(98)		
J8C <b>♣</b>	Co(420)/TA/OX(600s)/Al(50)/TA/NiFe(474)/Ta(98)		
J8D <b>♣</b>	Co(420)/TA/OX(600s)/Al(100)/TA/NiFe(474)/Ta(98)		
J9A	${\rm Cu}(100)/{\rm Co}(420)/{\rm TAM/OX}(600s)/{\rm Al}(15)/{\rm TAM/NiFe}(474)/{\rm Ta}(98)$		
$J9B^{\diamondsuit}$	${\rm Cu}(100)/{\rm Co}(420)/{\rm TAM/OX}(600s)/{\rm Al}(15)/{\rm TAM/NiFe}(474)/{\rm Ta}(98)$		
$_{ m J9C}$	${\rm Cu}(100)/{\rm Co}(420)/{\rm TAM/OX}(600s)/{\rm Al}(25)/{\rm TAM/NiFe}(474)/{\rm Ta}(98)$		
J9D	${\rm Cu}(100)/{\rm Co}(420)/{\rm TAM/OX}(600s)/{\rm Al}(25)/{\rm TAM/NiFe}(474)/{\rm Ta}(98)$		
J10A	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(30s)/Al(10)/TAM/NiFe(474)/Ta(98)		
J10B	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(30s)/Al(15)/TAM/NiFe(474)/Ta(98)		
J10C	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(30s)/Al(20)/TAM/NiFe(474)/Ta(98)		
J10D	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(30s)/Al(25)/TAM/NiFe(474)/Ta(98)		
J11A	${\rm Cu}(100)/{\rm Co}(420)/{\rm TAM/OX}(10s)/{\rm Al}(20)/{\rm TAM/Ta}(2.5)/{\rm NiFe}(474)/{\rm Ta}(98)$		
J11B	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(20s)/Al(20)/TAM/Ta(2.5)/NiFe(474)/Ta(98)		
J11C	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(30s)/Al(20)/TAM/Ta(2.5)/NiFe(474)/Ta(98)		
J11D	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(40s)/Al(20)/TAM/Ta(2.5)/NiFe(474)/Ta(98)		
J12A	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(40s)/Al(20)/TAM/Ta(2.5)/NiFe(474)/Ta(98)		
J12B	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(50s)/Al(20)/TAM/Ta(2.5)/NiFe(474)/Ta(98)		
J12C	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(70s)/Al(20)/TAM/Ta(2.5)/NiFe(474)/Ta(98)		
J12D	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(90s)/Al(20)/TAM/Ta(2.5)/NiFe(474)/Ta(98)		

Amostra	Estrutura
J13A	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(305s)/Al(20)/TAM/Ta(2.5)/NiFe(474)/Ta(98)
J13B	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(10s)/Al(20)/TAM/Ta(5)/NiFe(474)/Ta(98)
J13C	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(305s)/Al(20)/TAM/Ta(5)/NiFe(474)/Ta(98)
J13D	${\rm Cu}(100)/{\rm Co}(420)/{\rm TAM/OX}(235s)/{\rm Al}(7.5)/{\rm TAM/Ta}(7.5)/{\rm NiFe}(474)/{\rm Ta}(98)$
J14A	${\rm Cu}(100)/{\rm Co}(420)/{\rm TAM/OX}(30s)/{\rm Al}(20)/{\rm TAM/NiFe}(474)/{\rm Ta}(98)$
J14B	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(30s)/Al(20)/TAM/Ta(5)/NiFe(474)/Ta(98)
$\rm J14C$	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(60s)/Al(20)/TAM/Ta(5)/NiFe(474)/Ta(98)
J14D	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(90s)/Al(20)/TAM/Ta(5)/NiFe(474)/Ta(98)
J15A	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(30s)/Al(20)/TAM/Ta(5)/NiFe(474)/Ta(98)
J15B	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(60s)/Al(20)/TAM/Ta(5)/NiFe(474)/Ta(98)
$_{ m J15C}$	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(60s)/Al(20)/Ta(2.5)/TAM/NiFe(474)/Ta(98)
J15D	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(60s)/Al(20)/Ta(5)/TAM/NiFe(474)/Ta(98)
J16A	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(15s)/Al(16)/TM/Al(4)/NiFe(474)/TA/Ta(98)
J16B	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(30s)/Al(16)/TM/Al(4)/NiFe(474)/TA/Ta(98)
J16C	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(45s)/Al(16)/TM/Al(4)/NiFe(474)/TA/Ta(98)
J16D	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(60s)/Al(16)/TM/Al(4)/NiFe(474)/TA/Ta(98)
J17A	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(45s)/Al(16)/TM/Al(4)/NiFe(474)/TA/Ta(98)
J17B	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(60s)/Al(16)/TM/Al(4)/NiFe(474)/TA/Ta(98)
J17C	Cu(100)/Co(420)/TAM/OX(90s)/Al(16)/TM/Al(4)/NiFe(474)/TA/Ta(98)
J17D	${\rm Cu}(100)/{\rm Co}(420)/{\rm TAM/OX}(120s)/{\rm Al}(16)/{\rm TM/Al}(4)/{\rm NiFe}(474)/{\rm TA/Ta}(98)$
J21A	Al(306)/TM/OX(10s)/Al(306)/Ta(100)
J21B	Al(306)/TM/OX(30s)/Al(306)/Ta(100)
J21C	Al(306)/TM/OX(50s)/Al(306)/Ta(100)

Tabela 3.1: Estrutura das junções túnel produzidas. Os valores entre parênteses são as espessuras nominais em Å. Também estão indicadas as trocas de máscaras (TM), trocas de alvo (TA), trocas de alvo e máscaras (TAM) e a oxidação em plasma de O₂ (OX). Os filmes foram depositados em fluxo de Ar (tipicamente 5 mTorr, 40 sccm), em plasma DC (Ta, Al e Cu) ou RF (NiFe e Co); as oxidações foram efetuadas em pressão de 100 mTorr de O₂; as trocas de máscara e alvos foram efetuadas em atmosfera ambiente. As taxas de deposição obtidas através da medida de espessura por XRD em filmes de calibração, são: 1.471 Å/s(Ta, DC), 0.777 Å/s(NiFe, RF), 2.613 Å/s(Al, DC), 0.6882 Å/s(Co, RF), 3.198 Å/s(Cu, DC).Os alvos utilizados possuem os seguintes graus de pureza: 99.9 % (Ta), 99.9 % (NiFe), 99 % (Al), 99.9 % (Co), e 99 % (Cu). ♣As junções (multicamadas) J8A, J8B, J8C e J8D foram produzidas nas mesmas condições das junções J7A, J7B e J7D, porém sem a utilização de máscaras para permitir medidas de VSM. ♦As junções J9B e J9C foram oxidadas sem exposição direta do filme de Al ao plasma.

# Capítulo 4

## Resultados e discussões

## 4.1 Multicamadas de $AlO_x/Al$

Amostras na forma de multicamadas de  $\mathrm{AlO}_x/\mathrm{Al}$  foram utilizadas para obter informações sobre o processo de formação do óxido a partir da oxidação de alumínio metálico. A estruturação do sistema em forma de multicamadas facilita a caracterização, particularmente por difração de raios-X (XRD), e permite a extensão desta para as junções, pois a preparação do óxido foi, tanto nas multicamadas como nas junções, igual.

As medidas de XRD a baixos ângulos para um filme de Al e as três multicamadas de  $AlO_x/Al$  são apresentadas na figura 4.1. No espectro do filme são observadas as franjas de Kiessing relativas à interferência entre os feixes refletidos na interface filmesubstrato e na superfície do filme. Para as multicamadas, aparece uma estrutura de picos mais complexa, com picos de Bragg superpostos às franjas devido à modulação química perpendicular ao substrato. A densidade média de elétrons dos filmes, a espessura total da amostra e o período da multicamada podem ser estimados do ângulo de reflexão interna total, posição das franjas e posição dos picos de Bragg, respectivamente. Uma informação quantitativa pode ser obtida comparando-se os detalhes dos espectros experimentais com aqueles calculados em amostras modeladas.

Dois softwares diferentes foram usados para simular os espectros de multicamadas modeladas, SUPREX [173] e IMD [174]. Em ambos, o cálculo da refletividade dos raios-X está baseado na aproximação dinâmica [175] e permite introduzir aspectos de multicamadas reais, tais como interdifusão das interfaces, flutuações nas espessuras das camadas,

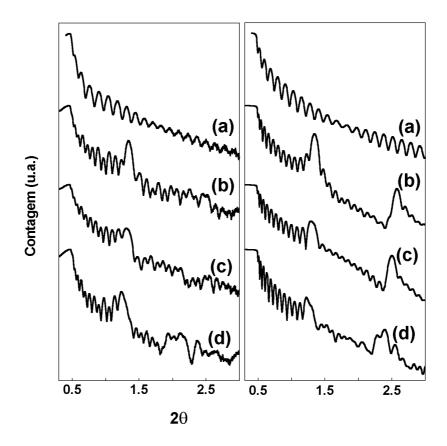


Figura 4.1: (esquerda) Medida de XRD a baixos ângulos de (a) um filme de Al e as multicamadas com a estrutura 13 × [OX( $T_{\rm ox}$ ) / Al(60 Å)] com (b)  $T_{\rm ox}=10$  s, (c)  $T_{\rm ox}=30$  s e (d)  $T_{\rm ox}=50$  s. (direita) Simulação para a estrutura (a) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(30 Å) / Al(620 Å) / SiO<sub>2</sub>(50 Å) / Si e para as multicamadas 13 × [AlO<sub>x</sub>( $t_{\rm AlOx}$ ) / Al( $t_{\rm Al}$ )] / SiO<sub>2</sub>(50 Å) / Si com (b)  $t_{\rm AlOx}=42$  Å e  $t_{\rm Al}=28$  Å, (c)  $t_{\rm AlOx}=54$  Å e  $t_{\rm Al}=18$  Å, (d)  $t_{\rm AlOx}=64$  Å e  $t_{\rm Al}=11.7$  Å.

filmes de "buffer" e passivação. Como esperado, salvo pequenas diferenças relativas à entrada de dados, ambos os programas levam a resultados similares.

Uma característica presente em todos os espectros experimentais é que a intesidade das franjas de Kiessing não decresce monotônicamente com o ângulo. No filme de Al é observado um aumento das intensidades acima de 1.7 graus, devido à interferência induzida pela camada de óxido de silício nativo sobre o substrato. Este efeito de batimento é bem reproduzido pela introdução na simulação de um "buffer" de 50 Å de SiO $_2$  sob o filme de 620 Å de Al, conforme apresentado na simulação da figura 4.1(a), lado direito.

No caso das multicamadas, as oscilações na amplitude das franjas de Kiessing são aleatórias e não são reproduzidas nem por qualquer tipo de "buffer", nem pela introdução de flutuações aleatórias nas espessuras dos filmes de Al ou  $AlO_x$ , se é tomada a média sobre um número grande de bicamadas. Por outro lado, se esta média é tomada sobre um número pequeno de bicamadas, uma ou duas vezes N, emergem oscilações na inten-

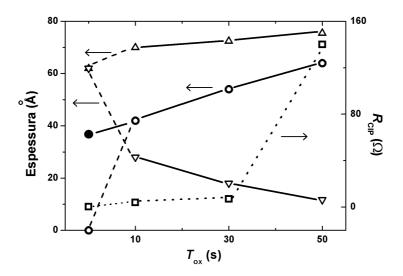


Figura 4.2: Espessuras da bicamada (triângulos), do filme de Al (triângulos invertidos), e do filme de AlO $_x$  (circunferências), extraídas dos espectros simulados. São apresentados dois valores para a espessura de AlO $_x$  para  $T_{\rm ox}=0$  s, um obtido indiretamente como detalhado no texto (circunferência), e outro obtido a partir da extrapolação da curva da espessura de AlO $_x$  versus  $T_{\rm ox}$  para  $T_{\rm ox}=0$  s (círculo preto). Resistência elétrica medida no plano do filme de Al e das multicamadas (quadrados).

sidade das franjas semelhantes às oscilações medidas. Isto nos tráz algumas informações sobre as amostras e sobre a simulação dos espectros de XRD. Em primeiro lugar, usando cadeias curtas de números aleatórios (geradas no computador através de rotinas de números pseudoaleatórios) para simular as flutuações na função de distribuição de espessuras das camadas, é virtualmente impossível ajustar o modelo aos dados experimentais, uma vez que o número de combinações de espessuras nas multicamadas é da ordem de N!. Consequentemente, não é uma surpresa que as rotinas de simulação dificilmente convirjam, e quando o fazem, o resultado não possui qualquer significado físico plausível. Em segundo lugar, o que é mais importante, as flutuações estimadas se referem a variações na espessura de uma camada de Al e/ou  $AlO_x$  e a camada subseqüente, mais do que sendo representativas da rugosidade das interfaces. Esta flutuação serve como sonda de nossa reprodutibilidade experimental na produção da barreira isolante. Uma análise do nosso arranjo experimental sugere que ela está relacionada a pequenas variações na pressão de O<sub>2</sub> cada vez que o processo de oxidação é reiniciado. A pressão durante o processo de oxidação é mantida no valor correspondente ao fundo de escala do medidor de pressão (100 mTorr), de maneira que a etapa de oxidação pode ser efetuada a pressões maiores do que a nominal.

Tendo em mente as limitações discutidas acima, podemos determinar parâmetros im-

portantes das multicamadas a partir das simulações. Usando a densidade nominal do substrato de Si, as simulações indicam uma densidade 20 % menor para o filme de Al em comparação com a densidade do material massivo (figura 4.1(a), lado direito), variação provavelmente devida a defeitos e contornos de grão. Mantendo este valor fixo nas simulações dos espectros das multicamadas, obtemos um valor da densidade do óxido também menor do que o valor da  $Al_2O_3$  massivo, o que pode estar relacionado com defeitos, mas também com variações na estequiometria do óxido.

Nos espectros das multicamadas as posições das franjas de Kiessing e dos picos de Bragg, especialmente na região próxima ao ângulo crítico, são fortemente sensíveis às espessuras dos filmes e da bicamada. As barras de erro para estes parâmetros são pequenas, uma vez que variações de frações de Å na espessura da bicamada levam a posições francamente erradas para os picos. Como pode ser visto na figura 4.2, a espessura da bicamada  $AlO_x/Al$  aumenta com o tempo de oxidação, sinalizando a incorporação de oxigênio.

A determinação direta das espessuras individuais dos filmes de alumínio  $(t_{\rm Al})$  e de óxido  $(t_{\rm AlOx})$  a partir das simulações é menos confiável, uma vez que várias características da multicamada afetam as intensidades dos picos de Bragg. Para conseguir estes valores, consideramos um fator de expansão de volume 1.27 quando  ${\rm Al}_2{\rm O}_3$  é formado a partir de Al. Tanto os espectros calculados apresentados na figura 4.1 como os dados apresentados na figura 4.2 foram obtidos desta maneira indireta, fazendo os parâmetros variarem de acordo com essa relação. Mesmo para  $T_{\rm ox}=10$  s, a espessura da bicamada aumenta de 62 Å (a espessura esperada de Al sem oxidação) para 71 Å, o que corresponde a  $t_{\rm AlOx}=40$  Å. É possível que parte desta espessura seja criada apenas com a exposição do filme de Al ao  ${\rm O}_2$ , antes da ignição do plasma, o que seria obtido pela extrapolação do comportamento de  $t_{\rm AlOx}$  versus  $T_{\rm ox}$  para  $T_{\rm ox}=0$  s. Este valor (36.8 Å) é representado na figura 4.2 pelo círculo preto. Para  $T_{\rm ox}$  maiores,  $t_{\rm Al}$  diminui rapidamente, chegando a 12 Å para  $T_{\rm ox}=50$  s. A espessura do filme de óxido, por seu turno, alcança 60 Å, o que é confirmado por imagens de TEM, como exemplificado na figura 4.3.

A consistência dos valores oriundos das medidas de XRD e TEM pode também ser verificada por medidas de resistência de folha nas multicamadas, realizadas a temperatura ambiente com a corrente no plano da amostra (CIP). Uma vez que o filme de óxido cresce às custas do filme metálico, a resistência elétrica de folha deveria crescer drasticamente

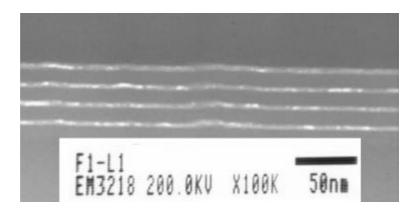


Figura 4.3: TEM da amostra S149B.

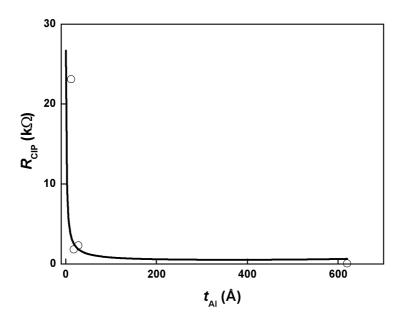


Figura 4.4: Resistência de folha medida (circunferências) e calculada a partir da expressão de Fuchs-Sondheimer (linha) [176], como função da espessura do filme de Al obtida a partir da simulação das medidas de XRD.

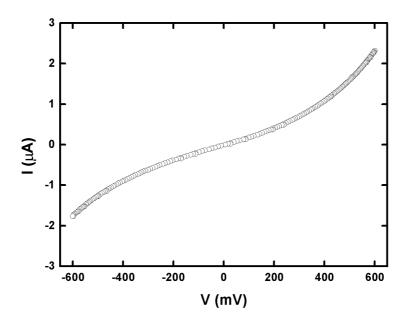


Figura 4.5: Curva IxV de uma junção medida entre -600 e 600 mV.

como função do tempo de oxidação. Como mostrado na figura 4.4, um aumento abrupto na resistividade é observado para a espessura menor de Al ( $T_{ox} = 50$  s) devido à restrição no livre caminho médio dos elétrons. Este aumento pode ser reproduzido qualitativamente usando a equação de Fuchs-Sondheimer [176], como mostrado na mesma figura.

A espessura de  $AlO_x$  como função de  $T_{ox}$  obtida das medidas de XRD, TEM e resistência de folha nas multicamadas são consistentes entre si e comparáveis àquelas obtidas a partir de medidas de capacitância a baixa freqüência no trabalho pioneiro de Fisher e Giaver [67]. No entanto é difícil aceitar que tais espessuras sejam de fato aquelas relevantes para o processo de tunelamento, tal como será discutido na próxima seção.

### 4.2 Junções de $Al/AlO_x/Al$

As curvas IxV obtidas em todas as junções de  $Al/AlO_x/Al$  seguem qualitativamente o comportamento discutido no capítulo 2, ou seja, uma relação linear no limite de voltagem baixa (poucos mV) e curvas IxV não lineares e praticamente simétricas para tensões maiores, conforme exemplificado na figura 4.5.

Os valores obtidos por XRD e TEM para a espessura de  $AlO_x$  em função do tempo de oxidação  $(T_{ox})$  dificilmente serão relevantes para o tunelamento quando camadas produzidas da mesma maneira são introduzidas em junções. Primeiramente, a probabilidade de

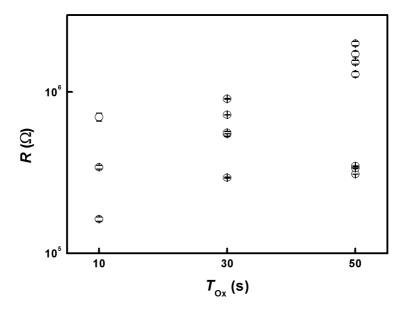


Figura 4.6: Resistência das junções de  $Al/AlO_x/Al$  no limite de baixas tensões (circunferências, com barras de erro) em função do tempo de oxidação.

tunelamento deveria ser praticamente nula para várias dezenas de Å de espessura, faixa em que se enquadram os valores que emergem da análise de XRD. Em segundo lugar, se quando  $T_{\rm ox}$  vai de 10 para 50 s a espessura média sobe de 40 para 60 Å, a resistência no limite de baixas voltagens (R) deveria seguir esta tendência. Mesmo que se possa identificar um aumento de R em meio à larga dispersão nos dados (apresentados na figura 4.6) este é menor do que duas ordens de grandeza (entre 100 k- e 6 M- ). Se as espessuras identificadas na seção anterior fossem aquelas atravessadas pelos elétrons tunelando entre os eletrodos, um aumento por um fator  $10^8$  em R deveria ser esperado. Dito de outra maneira, para a variação observada nas medidas de resistência elétrica o aumento da espessura deveria ser muito menos expressivo do que aquele detectado por difração. Tal constatação também emerge quando parâmetros da barreira são extraídos ajustando as curvas teóricas aos dados experimentais, como discutido na próxima seção.

## 4.3 Ajuste das curvas IxV experimentais

Parâmetros da barreira isolante, como espessura  $(t_{AlOx})$  e altura  $(\varphi_0)$ , podem ser obtidos ajustando os modelos aos dados experimentais. Tendo em vista a simplicidade do sistema estudado (interfaces simétricas) e a dificuldade de realizar as medidas em várias temperaturas, utilizamos a versão semi-clássica de Simmons onde o número de parâmetros

livres é pequeno. A equação utilizada vale para barreira trapezoidal e não inclui efeitos de forças imagens, para permitir a sua comparação com o caso onde esta inclusão não é possível. A validade de tais aproximações pode ou não ser confirmada *a posteriori*, e será discutida mais tarde.

#### 4.3.1 Área da junção como parâmetro fixo

A equação 2.12 (com J(V,0) dado pela equação 2.8) foi, primeiramente, aplicada da maneira usual nos ajustes das curvas IxV, ou seja, mantendo apenas  $t_{AlOx}$  (para s) e  $\varphi_0$  como parâmetros livres. A área física da junção, utilizada para converter a corrente (quantidade medida) em densidade de corrente (quantidade calculada), foi mantida constante e igual a  $4 \times 10^{-4}$  cm<sup>2</sup>. Sendo as curvas praticamente simétricas, as simulações foram realizadas apenas no primeiro quadrante, mantida fixa a polaridade dos eletrodos em todas as medidas.

É conhecido que diferentes valores para os parâmetros são obtidos quando diferentes janelas de medida são usadas para os ajustes [92], provavelmente porque as aproximações existentes no modelo de Simmons não são uniformemente válidas para toda a janela de tensões. Isto é exemplificado na tabela 4.1, e em linhas gerais se reproduz em todas as amostras. Ao fazer comparações entre diferentes amostras este problema pode ser contornado efetuando-se todos os ajustes na mesma janela de medida (entre 0 a 400 mV, no presente caso). Mesmo que a decisão sobre a janela de medida seja arbitrária por afetar os valores obtidos para cada amostra individualmente, ela permite estabelecer comparações entre diferentes amostras. Um exemplo de ajuste para uma junção é apresentado na figura 4.7.

Os valores obtidos para  $t_{\rm AlOx}$  estão na faixa entre 19 e 22 Å, como mostrado na figura 4.8. Dois aspectos desta curva merecem destaque. Em primeiro lugar não pode ser identificado, sequer grosseiramente, o comportamente exponencial de R com  $t_{\rm AlOx}$  esperado para o processo de tunelamento. Sendo o valor de R medido diretamente sobre a amostra, nos resta admitir que a perda no comportamento exponencial decorre de erros nos valores da espessura, mesmo que estes estejam em uma faixa compatível com o processo de tunelamento. Em segundo lugar os valores são menores do que a metade daqueles obtidos a partir das medidas de XRD e TEM. Esta aparente discrepância decorre

Janela de (mV)	$t_{ m AlOx}  ({ m \AA})$	$\varphi_0$ (eV)	$A_{\rm eff}~(\times 10^{-4}~{\rm cm}^2)$
400	$19.9016 \pm 0.0185701$	$1.72456 \pm 0.00320000$	$4\pm0$
600	$18.9705 \pm 0.0156084$	$1.90435 \pm 0.00307644$	$4\pm0$
800	$18.9951 \pm 0.0057733$	$1.89965 \pm 0.00106656$	$4\pm0$
1700	$25.2542 \pm 0.0235299$	$1.31267 \pm 0.00101037$	$4\pm0$
400	$19.9053 \pm 14.0028$	$1.72521 \pm 2.30659$	$4.04000 \pm 140.756$
600	$18.9740 \pm 5.11486$	$1.90506 \pm 0.966593$	$4.04000 \pm 53.767$
800	$18.9915 \pm 0.896001$	$1.89894 \pm 0.164314$	$3.96000 \pm 9.10193$
1700	$25.2478 \pm 1.36955$	$1.31237 \pm 0.062249$	$3.96000 \pm 7.95716$

Tabela 4.1: Valores obtidos para a espessura  $(t_{\rm AlOx})$  e a altura  $(\varphi_0)$  da barreira de potencial a partir do ajuste de uma mesma curva IxV medida a temperatura ambiente, em diferentes janelas de medida. Nas quatro primeiras linhas são apresentados os valores obtidos quando a área da junção é mantida constante e igual a  $4 \times 10^{-4}$  cm<sup>2</sup>, e nas quatro últimas os obtidos quando a área é livre para variar no intervalo entre  $3.96 \times 10^{-4}$  e  $4.04 \times 10^{-4}$  cm<sup>2</sup>. Note-se que para uma mesma janela, o maior efeito de deixar a área como parâmetro livre, ainda que maneira restrita, ocorre nas barras de erro.

da diferença das quantidades físicas às quais cada uma das técnicas é sensível. Enquanto a XRD mede uma espessura média ao longo de áreas relativamente grandes, as curvas IxV são sensíveis apenas às menores espessuras. A única situação em que ambas as técnicas vão gerar os mesmos valores será aquela em que as medidas de transporte são extraídas de amostras com eletrodos perfeitamente planos. Aqui a diferença reflete o fato de que a corrente deveria estar concentrada em alguns pontos da amostra. No entanto, se o transporte nas junções túnel é regulado pelas regiões onde a barreira isolante é mais fina, o uso da área como parâmetro fixo não é justificável. À exceção de junções túnel com eletrodos perfeitamente planos, a única relevância da área física será estabelecer o valor mínimo da densidade de corrente.

Ainda com relação as espessuras extraídas dos ajustes, vale notar que não há nenhuma relação nítida entre o tempo de oxidação e a espessura da barreira isolante. Assim, o procedimento usualmente adotado na literatura de construir gráficos de resistência em função do tempo de oxidação é, dentro das nossas condições experimentais, completamente desprovido de sentido.

Os valores de  $\varphi_0$  estão entre 1.4 e 1.8 eV e são apresentados na figura 4.9. Como previsível, é visível uma tendência de diminuição de  $\varphi_0$  com  $t_{AlOx}$ , o que apenas reproduz

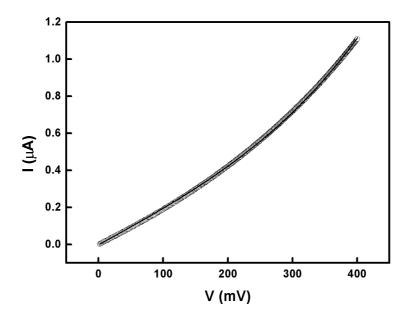


Figura 4.7: Curva IxV de uma junção da amostras J21B medida a temperatura ambiente (circunferências) e ajuste com o modelo de Simmons (linha). Os parâmetros obtidos são  $t_{\rm AlOx}=19.90$  Å  $\pm 0.02$  Å e  $\varphi_0=1.725$  eV  $\pm 0.003$  eV.

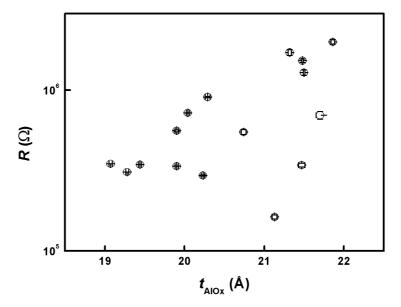


Figura 4.8: Resistência das junções de  $Al/AlO_x/Al$  no limite de baixas tensões (circunferências, com barras de erro) em função da espessura obtida a partir dos ajustes do modelo de Simmons mantida a área da junção fixa.

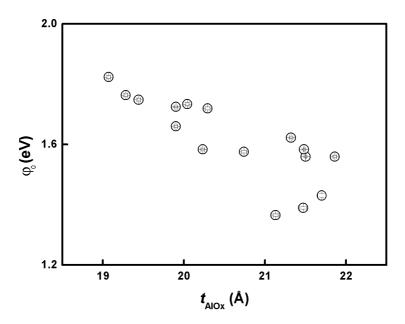


Figura 4.9: Altura da barreira de potencial (circunferências, com barras de erro) em função da espessura, ambas obtidas a partir dos ajustes do modelo de Simmons, onde foi usada a área física da junção  $(4 \times 10^{-4} \text{ cm}^2)$  para calcular a densidade de corrente.

os resultados obtidos por outros que adotam o mesmo procedimento [94]. Este resultado é particularmente problemático. Se a barreira é extremamente fina, é natural que sua altura seja menor do que aquela do óxido em forma massiva, seja porque a reduzida simetria não permite ainda a completa montagem da banda proibida, seja por diferenças morfológicas ou estequiometricas. Mas com o aumento da espessura ele deveria evoluir em direção a este valor. Não há nenhuma razão física plausível para o decréscimo da altura, com valores cada vez mais afastandos do valor massivo. Se uma evolução neste valor pode ser aceita, a tendência deveria ser de aproximar o valor de  $\varphi_0$  ao valor "bulk" do  $Al_2O_3$  para espessuras grandes. O resultado obtido é inconsistente e difícil de aceitar, e poderia estar relacionado com alguma insuficiência do modelo usado.

Usando a área física das junções para converter corrente em densidade de corrente, os parâmetros da barreira isolante extraídos dos ajustes seguem as tendência já observadas em outros trabalhos. Eles se caracterizam por (i) depender da janela de tensão utilizada, (ii) apresentar espessuras bem menores do que aquelas obtidas pelas técnicas de caracterização, (iii) não apresentar um crescimento exponencial nítido da resistência com a espessura e (iv) apresentar uma evolução da altura de barreira com a espessura que é inaceitável. Como veremos a seguir, parte destas discrepâncias desaparece quando a concentração da corrente em alguns pontos ("hot spots") é admitida e incorporada no

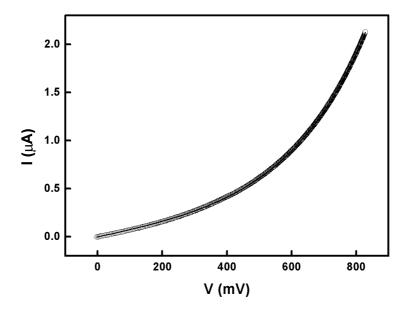


Figura 4.10: Curva IxV de uma junção da amostras J21C medida a temperatura ambiente (circunferências) e ajuste com o modelo de Simmons (linha). Os parâmetros obtidos são  $t_{\rm AlOx}=18.4~{\rm \AA}\pm0.3~{\rm \AA},\,\varphi_0=1.71~{\rm eV}\pm0.04~{\rm eV}$  e  $A_{\rm eff}=2\times10^{-5}~{\rm cm}^2\pm1\times10^{-5}~{\rm cm}^2.$ 

procedimento de ajuste.

### 4.3.2 Área como parâmetro livre

Se admitimos a concentração da corrente apenas em porções das amostras, no entanto, não há sentido em usar a área física das junções como parâmetro fixo durante os ajustes. Esta concentração é bastante provável se existem flutuações, mesmo em escala atômica, na espessura do filme de óxido das junções de  $Al/AlO_x/Al$ . Tais flutuações podem decorrer tanto de rugosidade nas interfaces como ondulações conformacionais, presentes nas microscopias das multicamadas  $AlO_x/Al$ . Seguindo esta conclusão os ajustes foram repetidos usando a mesma equação, mas introduzindo a área  $(A_{\rm eff})$  como um parâmetro livre.  $A_{\rm eff}$  representa a área efetiva, atravessada pela corrente nas regiões onde a espessura é menor e o fluxo de elétrons está concentrado.

O ajuste em uma das amostras aparece na figura 4.10, onde vemos que as curvas experimental e calculada dificilmente podem ser diferenciadas. As barras de erro são maiores do que quando a área física da junção foi mantida fixa para calcular a densidade de corrente. Além disso, a convergência só é obtida após um número muito maior de interações em comparação com o caso anterior. Pequenas variações nos parâmetros da barreira levam a grandes diferenças entre a curva medida e a calculada, como é exemplificado na figura 4.11

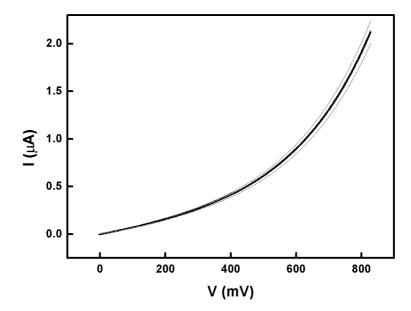


Figura 4.11: Curva IxV de uma junção da amostras J21C medida a temperatura ambiente (circunferências) e curvas calculadas com o modelo de Simmons (linha). As curvas calculadas representam o efeito da variação da área efetiva no intervalo  $A_{\rm eff}=(1.79250\pm0.1)\times10^{-5}~{\rm cm}^2$ , com os outros dois parâmetros mantidos fixos nos valores  $t_{\rm AlOx}=18.4360~{\rm \AA}~{\rm e}~\varphi_0=1.70599~{\rm eV}$ .

para o caso da  $A_{\rm eff}$ , onde a variação de 5 % neste parâmetro pode ser notada visualmente. Como a influência de  $t_{\rm AlOx}$  e  $\varphi_0$  é mais forte, são observadas diferenças da mesma ordem de grandeza quando um destes parâmentros é variado menos do que 1 %. A tabela 4.2 mostra os valores obtidos para os parâmetros da barreira ( $A_{\rm eff}$ ,  $t_{\rm AlOx}$  e  $\varphi_0$ ), quando um deles é fixado (assinalado com  $\diamondsuit$ ) em um valor ligeiramente diferente do valor "ótimo" (apresentado na primeira linha) e os outros dois ficam livres durante a rotina de ajuste. O aumento na diferença entre as curvas medida e calculada pode ser acompanhado pela variação na função  $\chi^2$ .

Há dois motivos para as barras de erro serem maiores aqui do que lá. Em primeiro lugar, as barras de erro são menores no caso anterior simplesmente por terem sido usados apenas dois parâmetros para o ajuste. Como a área física da junção é mantida fixa e igual a  $4\times 10^{-4}$  cm<sup>2</sup>, não está sendo incluída no cálculo das barras de erro a informação relativa às variações deste parâmetro. O erro na medida da área física pode ser estimado, a partir das máscaras usadas na deposição, em  $4\times 10^{-6}$  cm<sup>2</sup>. Permitindo-se que a área da junção varie no intervalo entre  $3.96\times 10^{-4}$  e  $4.04\times 10^{-4}$  cm<sup>2</sup>, obtemos o ajuste apresentado na figura 4.12. Como esperado, ele é similar ao apresentado na figura 4.7, uma vez que os parâmetros obtidos também são os mesmos. No entanto, à estes valores temos associadas barras de erro maiores, da ordem dos valores obtidos para  $t_{\rm AlOx}$  e  $\varphi_0$ , embora o valor de

$A_{\rm eff} \ (\times 10^{-5} \ \rm cm^2)$	$t_{ m AlOx}$ (Å)	$\varphi_0 \; (eV)$	$\chi^2 \ (\times 10^{-18})$
1.79249	18.4360	1.70599	6.2332
$1.89249^{\diamondsuit}$	18.4569	1.70966	6.2333
$1.69249^{\diamondsuit}$	18.4139	1.70211	6.2333
2.07852	18.4929	$1.71599^{\diamondsuit}$	6.2337
1.54596	18.3790	$1.69599^{\diamondsuit}$	6.2337
2.32581	$18.5360^{\diamondsuit}$	1.72358	6.2346
1.38333	$18.3360^{\diamondsuit}$	1.68848	6.2347

Tabela 4.2: Valores obtidos para a área efetiva de tunelamento  $(A_{\rm eff})$ , espessura  $(t_{\rm AlO_X})$  e altura  $(\varphi_0)$  da barreira de potencial, e para a função  $\chi^2$ , ajustando a equação de Simmons a uma curva IxV medida na janela até 800 mV. A primeira linha mostra os valores "ótimos" obtidos quando todos os parâmetros são permitidos variar durante o ajuste. Nas linhas seguintes estão os valores obtidos quando a um dos parâmetros (assinalado com " $\diamondsuit$ ") é fixado em um valor diferente do que minimiza  $\chi^2$ .

 $A_{\text{eff}}$  tenha ficado restrito à uma faixa muita estreita. Esta comparação também é válida para outras janelas de medida, como mostrado na tabela 4.1.

Em segundo lugar, quando é permitido à rotina de ajuste variar livremente o valor de  $A_{\rm eff}$  na equação 2.8, a corrente é proporcional à razão  $A_{\rm eff}/t_{\rm AlOx}^2$ . Quando  $V << \varphi_0$ , ela pode ser aproximada pela equação 2.7, onde J é proporcional a  $(1/t_{\rm ALOx})$ , e a corrente proporcional à razão  $A_{\rm eff}/t_{\rm AlOx}$ . Existe, portanto, uma transição para o comportamento da corrente, que de proporcional a  $A_{\rm eff}/t_{\rm AlOx}$  em V próximo de zero passa a ser proporcional a  $A_{\rm eff}/t_{\rm AlOx}^2$  em tensões maiores. Para curvas IxV medidas em uma janela de tensão baixa, a contribuição do comportamento linear ainda é grande e, como conseqüência, a rotina de ajuste não é capaz de determinar qual dos parâmetros ( $A_{\rm eff}$  ou  $t_{\rm AlOx}$ ) deve ser variado. Mantida a proporcionalidade entre eles, qualquer dupla de valores levará à mesma razão. É possível identificar com segurança esta divergência durante a rotina de ajuste. Ela é caracterizada quando o valor de  $A_{\rm eff}$  ultrapassa em algumas ordens de grandeza o valor da área física, embora ainda não tenha sido atingido um mínimo para  $\chi^2$ .

Nas curvas IxV onde a janela de tensão da medida é maior ocorre convergência que se manifesta em barras de erro cada vez menores. Os valores obtidos para  $t_{\rm AlOx}$ ,  $\varphi_0$  e  $A_{\rm eff}$  são apresentados nas tabelas 4.3 e 4.4. Na primeira estão os valores dos ajustes efetuados em curvas IxV medidas a temperatura ambiente em uma janela de 1.7 V, de 17 amostras oxidadas por 10, 30 ou 50 s. Na segunda, os valores dos ajustes efetuados em curvas

T <sub>ox</sub> (s)	$A_{\rm eff}~({\rm cm}^2)$	$t_{ m AlOx}  ({ m \AA})$	$\varphi_0$ (eV)	R ( )
10	$(1.19 \pm 0.03) \times 10^{-10}$	$11.05 \pm 0.02$	$0.898 \pm 0.002$	$(3.42 \pm 0.09) \times 10^5$
10	$(7.8 \pm 0.2) \times 10^{-11}$	$11.25 \pm 0.02$	$0.902 \pm 0.002$	$(7.0 \pm 0.4) \times 10^5$
10	$(1.51 \pm 0.03) \times 10^{-10}$	$10.77\pm0.01$	$0.890 \pm 0.001$	$(1.63 \pm 0.05) \times 10^5$
10	$(7.2 \pm 0.1) \times 10^{-11}$	$9.87 \pm 0.01$	$0.807 \pm 0.001$	$(9.9 \pm 0.2) \times 10^4$
30	$(1.22 \pm 0.07) \times 10^{-8}$	$17.11 \pm 0.05$	$1.019 \pm 0.002$	$(5.5 \pm 0.2) \times 10^5$
30	$(5.80 \pm 0.06) \times 10^{-10}$	$13.77\pm0.01$	$0.9012 \pm 0.0003$	$(2.95 \pm 0.02) \times 10^5$
30	$(2.7 \pm 0.3) \times 10^{-9}$	$15.5 \pm 0.1$	$0.967 \pm 0.003$	$(5.60 \pm 0.08) \times 10^5$
30	$(2.2 \pm 0.1) \times 10^{-9}$	$15.43 \pm 0.01$	$0.969 \pm 0.001$	$(7.23 \pm 0.02) \times 10^5$
30	$(1.81 \pm 0.08) \times 10^{-9}$	$15.43 \pm 0.05$	$0.965 \pm 0.001$	$(9.05 \pm 0.07) \times 10^5$
50	$(3.19 \pm 0.06) \times 10^{-10}$	$12.74 \pm 0.02$	$0.8881 \pm 0.0008$	$(3.376 \pm 0.003) \times 10^5$
50	$(4.26 \pm 0.09) \times 10^{-10}$	$13.14 \pm 0.02$	$0.8998 \pm 0.0008$	$(3.493 \pm 0.001) \times 10^5$
50	$(6.6 \pm 0.2) \times 10^{-10}$	$13.38 \pm 0.04$	$0.913 \pm 0.001$	$(3.102 \pm 0.002) \times 10^5$
50	$(3.54 \pm 0.06) \times 10^{-10}$	$12.85 \pm 0.02$	$0.8926 \pm 0.0007$	$(3.451 \pm 0.003) \times 10^5$
50	$(5.0 \pm 0.3) \times 10^{-9}$	$17.20\pm0.02$	$1.007 \pm 0.003$	$(1.72 \pm 0.07) \times 10^6$
50	$(8.4 \pm 0.1) \times 10^{-10}$	$15.35 \pm 0.01$	$0.946 \pm 0.001$	$(1.53 \pm 0.04) \times 10^6$
50	$(4.8 \pm 0.1) \times 10^{-9}$	$16.89 \pm 0.01$	$0.997 \pm 0.001$	$(1.29 \pm 0.05) \times 10^6$
50	$(1.1 \pm 0.1) \times 10^{-8}$	$18.3 \pm 0.1$	$1.037 \pm 0.004$	$(2.00 \pm 0.06) \times 10^6$

Tabela 4.3: Valores do tempo de oxidação  $(T_{\rm ox})$ , da área efetiva de tunelamento  $(A_{\rm eff})$ , da espessura da barreira isolante  $(t_{\rm AlOx})$ , altura da barreira de potencial  $(\varphi_0)$  e resistência no limite de baixas tensões (R).  $A_{\rm eff}$ ,  $t_{\rm AlOx}$  e  $\varphi_0$  foram obtidos a partir do ajuste das curvas IxV e R foi medida na faixa entre -40 e 40 mV.

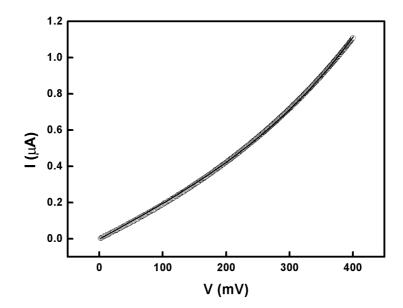


Figura 4.12: Curva IxV de uma junção da amostras J21B medida a temperatura ambiente (circunferências) e ajuste com o modelo de Simmons (linha). Neste ajuste, a área física da amostra é permitida variar entre  $3.96 \times 10^{-4} \ \mathrm{cm^2}$  e  $4.04 \times 10^{-4} \ \mathrm{cm^2}$ . O valor obtido para  $t_{\mathrm{AlOx}}$  é 19.91 Å e para  $\varphi_0$  é 1.725 eV, os mesmos que foram calculados no caso anterior. No entanto, as barras de erro são maiores e, levando-as em conta, devemos escrever  $t_{\mathrm{AlOx}} = 2 \times 10^1 \ \mathrm{Å} \pm 1 \times 10^1 \ \mathrm{Å}$  e  $\varphi_0 = 2 \ \mathrm{eV} \pm 2 \ \mathrm{eV}$ .

IxV medidas a temperatura ambiente em uma janela de 800 mV, de 9 amostras oxidadas por 30 ou 50 s. Os valores obtidos para as barras de erro são nitidamente menores para os parâmetros apresentados na primeira tabela (figura 4.13), onde a janela de medida é maior.

Os valores de  $\varphi_0$  apresentados na tabela 4.3 e figura 4.13(b) (janela de medida até 1.7 V) são da ordem de 1 eV. Este resultado indica uma inconsistência com a faixa de validade da equação 2.8 utilizada para a modelagem da curva IxV. Esta equação é válida para calcular a densidade de corrente numa faixa de tensão menor do que a altura da barreira de potencial. No entanto, os resultados referentes a este conjunto de valores são qualitativamente os mesmos que aqueles obtidos quando os ajustes são feitos nas medidas até 800 mV. Os erros introduzidos por esta aproximação parecem ser menores do que os que estão presentes quando o valor da área física da amostra é usado para calcular a densidade de corrente através da barreira isolante. Ainda assim, as análises que serão efetuadas nos parágrafos seguintes estarão baseadas nos valores apresentados na tabela 4.4 (janela de medida até 800 mV).

Os valores encontrados para  $t_{AlOx}$  estão na faixa entre 14 e 19 Å, menores do que aqueles obtidos nos ajustes com área fixa (apresentados na figura 4.8), seguindo uma

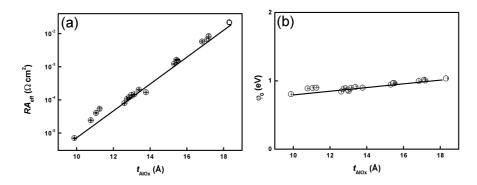


Figura 4.13: (a) Gráfico de R das junções de  $Al/AlO_x/Al$  normalizada por  $A_{\text{eff}}$  em função de  $t_{AlOx}$ . (b) Altura da barreira de potencial  $\varphi_0$  das junções de  $Al/AlO_x/Al$  em função de  $t_{AlOx}$ .  $A_{\text{eff}}$ ,  $\varphi_0$  e  $t_{AlOx}$  são obtidos a partir dos ajustes usando o modelo de Simmons para a janela de medida de 1.7 V (circunferências, com barras de erro).

tendência também observada no tratamento de dados de STM. Tal como no caso anterior, estas espessuras não variam de maneira sistemática com o tempo de oxidação. Para fazer uma análise quantitativa, devemos considerar que amostras de mesma espessura e áreas diferentes apresentariam resistências também diferentes, efeito que é descontado multiplicando-se R por  $A_{\rm eff}$ . O comportamento de  $RA_{\rm eff}$  versus  $t_{\rm AlOx}$  é apresentado na figura 4.14. A variação de aproximadamente 5 ordens de grandeza para  $RA_{\rm eff}$  é compatível com a variação de 5 Å para  $t_{\rm AlOx}$ , e podemos identificar nitidamente um crescimento exponencial do valor de  $RA_{\rm eff}$ . Esta é a primeira vez que tal comportamento emerge de parâmetros obtidos apenas de ajustes de curvas IxV. Tal comportamento exponencial, embora não seja uma condição suficiente, é uma condição necessária para o tunelamento.

Como pode ser visto na figura 4.15,  $\varphi_0$  encontra-se entre 0.9 e 1.7 eV. Pode ser identificado um crescimento com  $t_{\rm AlOx}$ , e podemos inferir mesmo uma tendência de saturação. Este comportamento é coerente com a evolução de  $\varphi_0$  para o valor observado em Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> "bulk" a medida que a espessura do óxido aumenta.

As áreas  $A_{\text{eff}}$  estão na faixa entre  $10^{-11}$  e  $10^{-5}$  cm<sup>2</sup>, o que implica em que a corrente na amostra é transportada através de regiões pequenas, na melhor das hipóteses cerca de 5 % da área física. Este valor pode ser comparado com estimativas da área efetiva de tunelamento feitas pela medida da corrente em uma barreira isolante. Neste trabalho [157], mantendo uma ponteira de STM em contato com uma camada de óxido (CoO<sub>x</sub>) são medidas ao mesmo tempo a topografia e a distribuição de corrente ao longo da barreira isolante (mantidas as tensões mecânica e elétrica constantes), com resolução lateral da

$T_{\rm ox}$ (s)	$A_{\rm eff}~({\rm cm}^2)$	$t_{ m AlOx}$ (Å)	$\varphi_0 \; (\mathrm{eV})$	R (- )
30	$(2\pm5)\times10^{-6}$	$17\pm1$	$1.5\pm0.2$	$(5.60 \pm 0.08) \times 10^5$
30	$(1\pm2)\times10^{-8}$	$15.1 \pm 0.6$	$1.19\pm0.09$	$(9.05 \pm 0.07) \times 10^5$
30	$(7\pm10)\times10^{-8}$	$15.8 \pm 0.9$	$1.3\pm0.1$	$(7.23 \pm 0.02) \times 10^5$
50	$(4\pm6)\times10^{-8}$	$14.9 \pm 0.7$	$1.2\pm0.1$	$(3.376\pm0.002) imes10^5$
50	$(1\pm1)\times10^{-7}$	$15.4 \pm 0.4$	$1.33 \pm 0.07$	$(3.102\pm0.002)\times10^{5}$
50	$(2\pm1)\times10^{-5}$	$18.4 \pm 0.3$	$1.71 \pm 0.04$	$(1.499 \pm 0.009) \times 10^6$
50	$(5\pm1)\times10^{-11}$	$13.9 \pm 0.2$	$0.87 \pm 0.02$	$(6.8 \pm 0.3) \times 10^6$
50	$(5\pm3)\times10^{-6}$	$18.5 \pm 0.2$	$1.63 \pm 0.04$	$(3.05\pm0.02)\times10^6$
50	$(6\pm4)\times10^{-8}$	$15.2 \pm 0.3$	$1.28\pm0.05$	$(3.451 \pm 0.003) \times 10^5$

Tabela 4.4: Valores do tempo de oxidação  $(T_{\rm ox})$ , da área efetiva de tunelamento  $(A_{\rm eff})$ , da espessura da barreira isolante  $(t_{\rm AlOx})$ , altura da barreira de potencial  $(\varphi_0)$  e resistência no limite de baixas tensões (R).  $A_{\rm eff}$ ,  $t_{\rm AlOx}$  e  $\varphi_0$  foram obtidos a partir do ajuste das curvas IxV e R foi medida na faixa entre -40 e 40 mV.

ordem de nanômetros. As imagens de corrente (obtidas sobre uma área de  $150 \times 150 \text{ nm}^2$ ) mostram uma distribuição bastante larga, sendo que metade da corrente é transmitida por apenas 3 % da área investigada. Ela decorre das flutuações na espessura do óxido, que pode ser estimada através de modelagem como sendo de aproximadamente 1 Å. Como este número não é o mesmo que o obtido através das imagens topográficas, as flutuações observadas (de aproximadamente 5 Å) são provenientes da topografia do filme abaixo do óxido, tendo este último espessura praticamente constante. As flutuações também poderiam ser relacionadas com pequenas flutuações na altura da barreira de potencial, mas a dependência da corrente com a altura é mais suave ( $\log I \sim t_{\rm AlOx} \sqrt{\varphi_0}$ ), o que exigiria variações locais em  $\varphi_0$  da ordem de 1-2 eV para obter a mesma distribuição de corrente. Desta forma, mesmo que pequenas variações locais em  $\varphi_0$  estejam presentes, pequenas flutuações na espessura terão uma contribuição importante para a larga distribuição de corrente observada.

#### 4.3.3 Campo de rompimento do dielétrico

As tensões de rompimento do dielétrico  $(V_{\rm bd})$  estão entre 1.5 e 1.8 V (tabela 4.5), conforme exemplificado na figura 4.16. Há uma pequena dispersão dos valores de  $V_{\rm bd}$  e

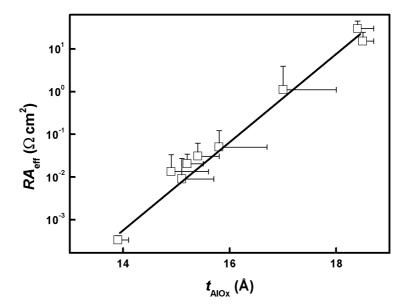


Figura 4.14: Gráfico de R das junções de Al/AlO<sub>x</sub>/Al normalizada por  $A_{\rm eff}$  em função de  $t_{\rm AlOx}$ .  $A_{\rm eff}$  e  $t_{\rm AlOx}$  são obtidos a partir dos ajustes usando o modelo de Simmons para a janela de medida de 800 mV (retângulos, com barras de erro).

não se estabelece qualquer tipo de comportamento sistemático destes valores com  $T_{ox}$ .

O reduzido número de amostras impede o uso de uma abordagem estatística para a análise destes resultados. No entanto, considerando-se a espessura e a área efetiva de tunelamento obtidas para o filme isolante a partir dos ajustes das curvas IxV, é possível interpretar o comportamento observado a partir do modelo de defeitos aleatoriamente distribuídos ao longo da barreira isolante. Esta interpretação considera que o rompimento acontece na região por onde circula a corrente. É um resultado estabelecido que o rompimento acontece mais facilmente quando densidades de corrente maiores são usadas, ou equivalentemente quando o campos elétricos mais intensos são aplicados. O campo elétrico nas regiões através das quais se dá o transporte é maior, uma vez que nestas regiões a espessura é menor. Em adição e ainda mais importante, nestas regiões a densidade de corrente é ordens de grandeza maior.

Utilizando as espessuras da barreira obtidas a partir dos ajustes das curvas IxV correspondentes (entre 14 e 19 Å, tabela 4.4), podemos calcular os campos elétricos ao qual estão sujeitas as amostras no momento do rompimento  $(E_{\rm bd})$ . Estes valores estão de acordo com os previstos teóricamente para o Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [134], da ordem de 1 GV/m. Na figura 4.17 são apresentados os valores de  $E_{\rm bd}$  em função de  $A_{\rm eff}$ . É observado uma diminuição no  $E_{\rm bd}$  em junções onde  $A_{\rm eff}$  é maior, o que é esperado tendo em vista a possível distribuíção

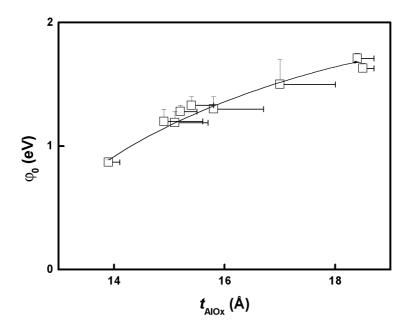


Figura 4.15: Altura da barreira de potencial  $\varphi_0$  das junções de Al/AlO<sub>x</sub>/Al em função de  $t_{\text{AlOx}}$ .  $\varphi_0$  e  $t_{\text{AlOx}}$  são obtidos a partir dos ajustes usando o modelo de Simmons para a janela de medida de 800 mV (retângulos, com barras de erro).

aleatória de defeitos ao longo da barreira.

## 4.4 Validade e limites da abordagem utilizada

Parte das discrepâncias presentes quando curvas experimentais IxV são ajustadas assumindo a área física da junção, desaparecem quando a área é deixada como parâmetro livre. A dependência exponencial do fator  $RA_{\rm eff}$  com a espessura da barreira aparece claramente, o que antes não ocorria. O comportamento da altura da barreira com o aumento da espessura, por seu turno, passa a ser justificável do ponto de vista físico. Também os campos de rompimento do dielétrico são consistentes e apresentam evoluções nítidas, ausentes em outros trabalhos. Este conjunto de resultados indica que a origem de algumas inconsistências observadas quando o modelo de Simmons é aplicado a junções planares decorre da adoção, incorreta, da área física na conversão da corrente em densidade de corrente. O uso da área física somente será justificada em duas situações; (i) quando as interfaces forem planas em nível atômico ou (ii) as dimensões laterais da junção forem nanoscópicas, e portanto comparáveis às áreas dos "hot spots". Na grande maiorias das amostras até hoje estudadas, nenhum destes requisitos é preenchido. É importante ressaltar que se a inclusão da área efetiva como quantidade desconhecida torna os resul-

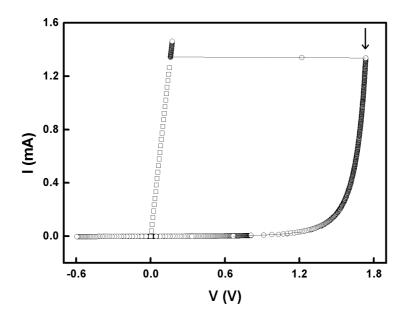


Figura 4.16: Curva IxV a partir da qual é medida a tensão de rompimento do dielétrico (circunferências). Após a tensão de rompimento (indicada pela seta) é observada a diminuição brusca da resistência elétrica, e a curva original não é recuperada em uma nova medida (retângulos).

$T_{\rm ox}$ (s)	$V_{\rm bd}$ (V)	$T_{\rm ox}$ (s)	$V_{\rm bd}$ (V)
10	1.6039	50	1.7068
10	1.6182	50	1.7624
10	1.5540	50	1.7718
10	1.5190	50	1.8182
30	1.7525	50	1.6697
30	1.7301	50	1.6644
30	1.7465	50	1.7404
30	1.7593	50	1.6870
30	1.7052	50	1.7258
50	1.6511	50	1.7565

Tabela 4.5: Valores da tensão de rompimento do dielétrico  $(V_{\rm bd})$  para amostras produzidas através de diferentes tempos de oxidação  $(T_{\rm ox})$ .  $V_{\rm bd}$  foi medido a partir da curvas IxV com rampa de corrente constante e o erro nas medidas é de  $\pm 1 \times 10^{-4}$  V.

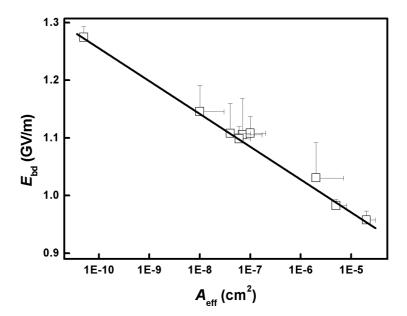


Figura 4.17: Gráfico do campo de rompimento do dielétrico  $E_{\rm bd} = V_{\rm bd}/t_{\rm AlOx}$  em função da área efetiva de tunelamento  $A_{\rm eff}$ .  $V_{\rm bd}$  é medido a partir da curvas IxV obtidas utilizando uma rampa de corrente com velocidade constante.  $t_{\rm AlOx}$  e  $A_{\rm eff}$  são os apresentados na tabela 4.4 (obtidos a partir do ajustes das curvas correspondentes).

tados obtidos com o modelo de Simmons mais plausíveis, pode-se esperar que, em maior ou menor medida, o mesmo venha a ocorrer com os outros modelos, uma vez que todos envolvem expressões para a densidade de corrente.

Uma questão de outra natureza é estabelecer até que ponto os valores individuais dos parâmetros obtidos podem ser aceitos como corretos, o que está ligado às aproximações realizadas. Evidentemente, todas as aproximações do modelo original mantém-se quando a área efetiva é usada, o que explica o fato de que os parâmetros obtidos (inclusive a área) dependem da janela de voltagem utilizada. Outras são ainda somadas quando a área é tomada como parâmetro livre.

Uma delas envolve os efeitos do potencial imagem. Estes podem ser facilmente incluídos quando as interfaces são planas levando, em geral, à modificações que são expressivas apenas para espessuras muito baixas. A extensão do cálculo do potencial imagem para situações onde, devido a flutuações na espessura, ocorre concentração da corrente não é óbvia. Ela não foi incluída neste trabalho, porque exigiria um conhecimento da rugosidade de que não dispomos. Como no caso de superfícies planas, espera-se que esta contribuição seja mais relevante a baixas espessuras, mas o limite a partir do qual estas poderiam ser desprezadas não é conhecido.

Os detalhes geométricos da flutuação na espessura são também importantes para determinar até que ponto outras duas aproximação são razoáveis. A primeira refere-se ao carácter unidimensional da equação de Simmons. Em ponteiras de STM a forma do eletrodo próximo a uma região de menor espessura é tanto mais importante quanto menor for a altura da barreira. Como fizemos os ajustes em janelas de tensão cujo limite superior está pouco abaixo das alturas de barreira obtidas é provável que erros tenham sido introduzidos. A segunda aproximação é a adoção da área efetiva de tunelamento como constante para uma amostra e independente do potencial. Esta deixa de ser razoável quando a flutuação na espessura é pequena ou quando a altura da barreira é baixa. As amostras por nós estudadas não recaem em nenhuma destas categorias, mas o procedimento adotado não seria extensível a junções com, por exemplo, óxido de tantalo ( $\varphi_0 \simeq 0.4 \text{ eV}$ ) [178].

## 4.5 Extensão para junções magnéticas

Os modelos descritos no capítulo dois têm sido reiteradas vezes aplicados a sistemas túnel com eletrodos ferromagnéticos que apresentam magnetorresistência. A importância de se obter, nestes sistemas, resultados que sejam consistentes com o mecanismo de tunelamento está ligado ao fato de que também nanocontatos (injeção balistica de elétrons polarizados em spin) entre materiais magnéticos apresentam curvas IxV não lineares, resistências macroscópicas que podem ter dependências exponenciais com a espessura e variar com a aplicação de campos magnéticos externos [179, 180, 181, 182, 183]. Como a ocorrência de curtos ("pinholes") entre eletrodos por defeitos no isolante não pode ser descartada em junções, surge a questão de se determinar o mecanismo físico dominante. Atualmente<sup>1</sup>, o único critério aceito para a diferenciação destes dois processos em junções magnéticas é a dependência da resistêcia com a temperatura. Ela diminui com o aumento da temperatura em junções túnel, enquanto aumenta para nanocontatos. Um segundo critério de diferenciação poderia ser estabelecido se nítidas curvas exponenciais de RA em função da espessura pudessem ser obtidas. Adicionalmente, a área de tunelamento é particularmente importante aqui porque a concentração da corrente é determinante na inversão da magnetização por injeção polarizada em spin [162, 163].

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup>Foi demonstrado [184], muito recentemente, que mesmo este critério pode ser satisfeito na presença de "pinholes", e que sua validade está atrelada à uma cuidadosa análise dos mecanismos de "breakdown".

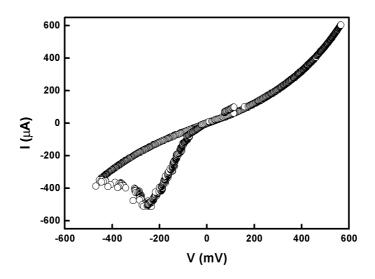


Figura 4.18: Curva IxV de uma junção magnética medida a temperatura ambiente entre -500 e 500 mV.

As junções de  $\text{Co/AlO}_x/\text{NiFe}$  estudadas apresentam eletrodos assimétricos e magnetorresistência túnel, fenômeno intrinsicamente ligado a detalhes da estrutura eletrônica dos eletrodos. Estas características do sistema e as aproximações acima discutidas fazem com que a abordagem aqui apresentada tenha um carácter ainda exploratório, servindo eventualmente para demarcar os limites do nosso procedimento.

### 4.5.1 R, curvas IxV e TMR em junções de Co/AlO<sub>x</sub>/NiFe

Uma curva IxV típica obtida em junções de  $\mathrm{Co/AlO}_x/\mathrm{NiFe}$  aparece na figura 4.18. Em contraste com o caso anterior, elas se caracterizam por apresentar, normalmente, acentuadas assimetrias e processos de avalanche bastante distintos para diferentes sinais do potencial. Este aspecto reflete as diferenças tanto da composição dos eletrodos quanto, possivelmente, diferenças na morfologia das duas interfaces, e a presença de histerese nas curvas já foi observada em outras junções magnéticas [94, 140, 185]. O campo de rompimento do dielétrico, medido da maneira adotada nas junções de  $\mathrm{Al/AlO}_x/\mathrm{Al}$ , apresentou valores menores do que os anteriores, ficando sempre próximo de 1 V. A figura 4.19 mostra o valor da resistência medido no limite de baixa voltagem de uma junção magnética, em função da temperatura. O aumento de R com a diminuição da temperatura é compatível com o esperado para o tunelamento, servindo como mais uma evidência da qualidade das junções preparadas.

Medidas de R em função de H, realizadas a várias temperaturas na mesma amostra,

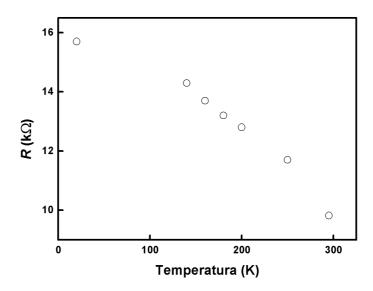


Figura 4.19: Resistência de uma junção de  $\text{Co/AlO}_x/\text{NiFe}$  no limite de baixas tensões ( $\sim 10 \text{ mV}$ ) em função da temperatura. Ela apresenta TMR de 6 % a temperatura ambiente e a barreira isolante foi produzida pela oxidação de um filme de Al de 30 Å com  $T_{\text{ox}}=30 \text{ s}$ .

são apresentadas na figura 4.20. Seu valor percentual aumenta de 6 para 12 % quando a temperatura é reduzida de seu valor ambiente para 20 K. A figura ilustra também a evolução dos campos coercivos dos filmes de NiFe e Co.

No limite de baixas tensões a TMR apresentou valores entre 1 e 8 % para diferentes amostras, a temperatura ambiente. Este valor está abaixo do previsto a partir das polarizações do Co e do NiFe (32 % a 4 K). Isto pode estar refletindo imperfeições estruturais e/ou contaminações na barreira isolante, mas é importante ressaltar que mesmo em amostras de indiscutível qualidade valores desta ordem têm sido encontrados [90]. Não há nenhuma relação clara entre a TMR no limite de baixas voltagens e os parâmetros usados na deposição da barreira isolante, como espessura do filme de Al inicialmente metálico (desde que esta se encontre entre 15 e 25 Å) ou  $T_{\rm ox}$  (desde que este não ultrapasse 2 minutos). Como mostrado na figura 4.21 para um conjunto relativamente grande de amostras, há uma certa dependência, ainda que pouco nítida, entre o valor da TMR e o valor de R da amostra. Na figura podemos identificar três regiões distintas. Para valores baixos de resistência, as junções não apresentam TMR, indicando a presença de curtos. Há uma tendência, nem sempre seguida, de junções preparadas a partir de barreiras muito finas de Al, recairem nesta área. A partir de um certo valor de R, a TMR surge e assume seus valores mais altos, diminuindo progressivamente a partir deste ponto (em torno de  $\simeq 2$  k- ) com o aumento de R. Supondo a área de tunelamento idêntica para

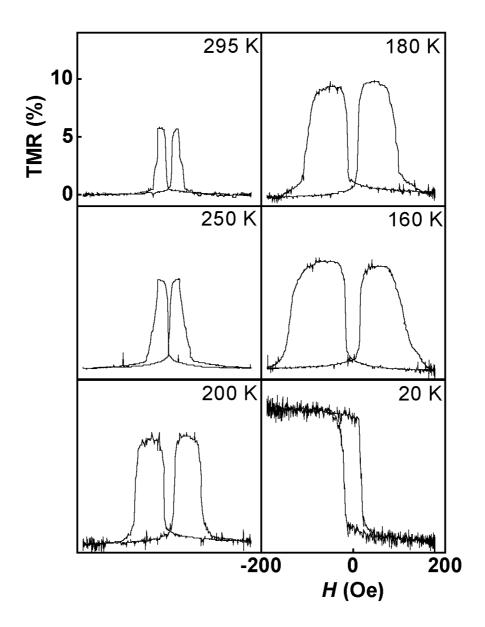


Figura 4.20: TMR no limite de baixas tensões medida em diferentes temperaturas.

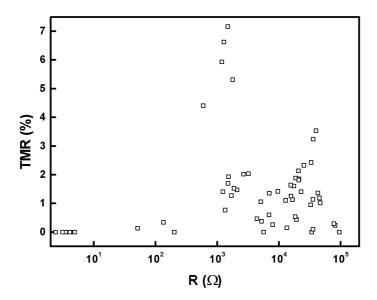


Figura 4.21: TMR no limite de baixas tensões versus R, de amostras com camadas isolantes produzidas com  $T_{ox}$  entre 20 s e 2 min.

todas as amostras, aumentos de R estarão vinculados a espessura da barreira isolante. A tendência apresentada na figura indicaria então a existência de um espessura ótima para maximização da TMR. Além desta espessura, a TMR seria reduzida, seja pela maior possibilidade de processos de inversão de spin, seja pela participação de outros processos de transportes. Se, no entanto, nas junções magnéticas, a exemplo do que ocorre nas de junções de  $Al/AlO_x/Al$ , há flutuações na espessura da barreira e concentração da corrente em "hot spots" o gráfico poderá apresentar modificações relevantes quando R for substituído por  $RA_{\rm eff}$ . Esta possibilidade justifica a tentativa de quantificar, para cada uma das amostras, o valor da área de tunelamento.

A figura 4.22 mostra curvas da magnetorresistência medida a 77 K para diferentes tensões bias. Como já largamente documentado para junções com eletrodos de materiais ferromagnéticos 3d, a TMR diminui a medida que a tensão bias ( $V_{\rm bias}$ ) aumenta. No entanto, ao contrário do que normalmente é observado, esta queda é muito mais rápida e, além de 250 mV, uma magnetoresistência com sinal invertido se faz presente. Se vincularmos o valor da magnetorresistência apenas com a polarização dos eletrodos, seríamos obrigados a admitir que ao variar  $V_{\rm bias}$  atingiríamos energias em torno do nível de Fermi onde, para um dos eletrodos, a polarização inverteria seu sinal. Isto é altamente improvável e não foi encontrado até hoje nenhuma evidência que sustente tal possibilidade. O fato de que a dependência de TMR com  $V_{\rm bias}$ , para junções com os mesmos eletrodos e mesmo isolante,

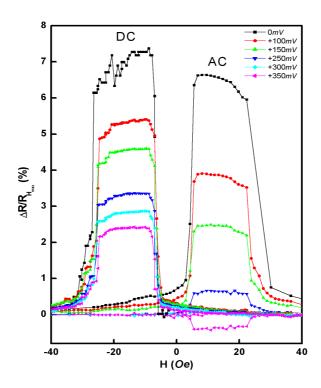


Figura 4.22: Medidas de TMR a 77 K, para diferentes tensões aplicadas sobre a amostra.

depende da maneira de preparação, sugere a interferência de características extrínsecas das amostras neste processo.

#### 4.5.2 Ajuste das curvas IxV

Para quantificar a área efetiva de tunelamento e verificar a presença de "hot spots", foram realizados, com as curvas IxV de junções magnéticas, os mesmos procedimentos descritos anteriormente. É importante notar que, mesmo que o processo de deposição da barreira isolante seja semelhante, sua presença não é óbvia nas junções magnéticas. Isto porque a morfologia da superfície de um filme de cerca de 2 nm sobre um eletrodo pode diferir daquela de um filme com várias centenas de Å. Também, ao contrário do que ocorre em  $Al/AlO_x/Al$ , o alumínio metálico disponível para oxidação nas junções é limitado pela espessura do filme de Al.

Ao realizar os ajustes das curvas IxV em  $\text{Co/AlO}_x/\text{NiFe}$ , surgem evidências de que as aproximações do modelo adotado são menos razoáveis aqui do que no caso de Al/AlO<sub>x</sub>/Al. Boa parte das amostras estudadas apresentaram nítidas assimetrias nas curvas IxV, e foram excluídas da análise. Mesmo entre as amostras com curvas aproximadamente

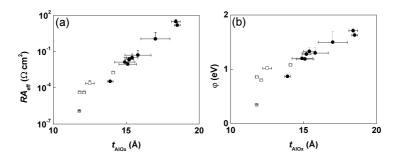


Figura 4.23: (a) Gráfico de R das junções de  $\text{Co/AlO}_x/\text{NiFe}$  normalizada por  $A_{\text{eff}}$  em função de  $t_{\text{AlOx}}$ .  $A_{\text{eff}}$  e  $t_{\text{AlOx}}$  são obtidos a partir dos ajustes usando o modelo de Simmons (retângulos abertos, com barras de erro). (b) Altura da barreira de potencial  $\varphi_0$  das junções de  $\text{Co/AlO}_x/\text{NiFe}$  em função de  $t_{\text{AlOx}}$ .  $\varphi_0$  e  $t_{\text{AlOx}}$  são obtidos a partir dos ajustes usando o modelo de Simmons (retângulos abertos, com barras de erro). Para comparação, estão representados também os dados da tabela 4.4 (círculos pretos, com barras de erro).

simétricas, os procedimentos de ajuste nem sempre convergiram, seja pela presença de ruído, seja pela limitação imposta à janela de tensões pelo rompimento.

As espessuras extraídas do procedimento de ajuste para 5 amostras de  $\text{Co/AlO}_x/\text{NiFe}$  aparecem na figura 4.23(a), junto aos valores obtidos em amostras de  $\text{Al/AlO}_x/\text{Al}$ . Os pontos seguem, razoavelmente, o comportamento exponencial observado anteriormente. Há uma nítida tendência das espessuras (retângulos abertos) serem menores, o que provavelmente está associado à limitação do processo de oxidação pelo presença do eletrodo de NiFe. Há evidências de que a menor energia de formação para o óxido de metais como o Al ou o Ta em comparação com a dos óxidos de metais como Co, Fe e Ni, possa bloquear o processo de oxidação na interface eletrodo-barreira [186, 187]. Esta idéia é compatível também com o fato que tratamentos térmicos aumentam a integridade da barreira isolante [22, 85, 154, 188, 189, 190, 191, 192, 193, 194, 195, 196, 197, 198, 199]. O bloqueio da oxidação levaria a espessuras menores, o que explicaria porque a tensão de rompimento do dielétrico aqui também é menor.

A figura 4.23(b) mostra os valores de  $\varphi_0$  também reunidos aos valores anteriormente obtidos. Seguindo o raciocínio empregado anteriormente, o processo de construção da barreira isolante pode estar em seu estágio inicial. No entanto, se admitimos o bloqueio da oxidação na interface eletrodo-barreira, o valor da barreira pode estar sendo afetado pela diferenças na estequiometria presentes.

As áreas efetivas de tunelamento estão na mesma faixa das obtidas nas junções de  $Al/AlO_x/Al$ , sendo a presença de "hot spots" também constatada em junções magnéticas preparadas sob as nossas condições experimentais. Os parâmetros obtidos, em especial

a espessura, sugerem o bloqueio da oxidação na interface Al-NiFe. Este conjunto de resultados emerge de um número restrito de amostras, devido às limitações intrínsecas do modelo utilizado, e por isso neste momento não possui mais do que um carácter exploratório. Ele sugere que a adoção do conceito de concentração da corrente devido a flutuações na espessura é promissor, desde que aplicado a modelos adequado às diferenças nas duas interfaces eletrodo-barreira e à detalhes das densidades de estados eletrônicos nos eletrodos.

# Capítulo 5

# Conclusões

Em um número representativo de junções de  $Al/AlO_x/Al$ , crescidas por "magnetron sputtering" e oxidação ativada por plasma, foram medidas as curvas IxV a temperatura ambiente. O aumento da resistência elétrica medida no limite de baixas voltagens é várias ordens de grandeza menor do que o esperado para as espessuras medidas por XRD e TEM em multicamadas de  $AlO_x/Al$  (com o isolante preparado da mesma maneira que nas junções). Isto mostra que estes valores não são relevantes para o tunelamento, ao menos nas nossas condições experimentais.

As curvas IxV foram modeladas utilizando a equação de Simmons para junções com eletrodos simétricos e barreira trapezoidal, sem a inclusão dos efeitos do potencial imagem. Com  $t_{\rm AlOx}$  e  $\varphi_0$  como parâmentros livres durante a rotina de ajuste e utilizando a área física da junção para calcular a densidade de corrente, são obtidas espessuras muito menores do que as determinadas por XRD e TEM. Mesmo assim, não é observada uma dependência clara entre o valor da resistência medido no limite de baixas tensões e  $t_{\rm AlOx}$ . Os valores extraídos para  $\varphi_0$  decrescem com o aumento da espessura. Não é possível estabelecer uma relação entre o campo de rompimento do dielétrico e os parâmetros obtidos para a barreira.

A única maneira de compatibilizar as medidas obtidas por XRD e o tunelamento é admitir que, devido à flutuações na espessura da barreira, XRD determine o valor médio e o tunelamento ocorra onde a espessura é menor. Assim, o tunelamento acontece em uma área que é necessariamente menor do que a área física, não havendo motivo para usá-la como uma constante nos modelos. Repetindo os procedimentos de ajuste e

deixando a área como parâmetro livre, chega-se a um quadro muito mais coerente. A área converge para valores que são algumas ordens de grandeza menores do que o valor da área física das junções e, na melhor das hipóteses, representam apenas 5 % desta. Eles são comparáveis aos obtidos por STM em filmes isolantes ou estimados a partir da área atingida durante o rompimento do dielétrico. A densidade de corrente apresenta um claro crescimento exponential com a diminuição na espessura do isolante. Os valores de  $\varphi_0$ , por seu turno, crescem com o aumento de  $t_{\rm AlOx}$ , com uma tendência de saturação em um valor abaixo do observado em  ${\rm Al}_2{\rm O}_3$  "bulk". Este comportamento está em oposição ao observado quando não se considera  $A_{\rm eff}$  nos ajustes.  $E_{\rm bd}$  diminui com o aumento de  $A_{\rm eff}$ , o que é compatível com o modelo de defeitos aleatoriamente distribuídos ao longo da barreira isolante. Embora isoladamente não possa ainda ser tomado como uma prova do tunelamento, esse conjunto de resultados sugere fortemente a predominância deste processo.

A inclusão da área na análise elimina boa parte das inconsistências previamente apresentadas pela equação de Simmons e sugere que suas aproximações são satisfatórias para o sistema  $Al/AlO_x/Al$ . Embora a papel desempenhado pelos "hot spots" tenha sido analisado apenas no contexto deste modelo, o conjunto dos resultados aqui apresentados mostra que sua presença deve ser considerada sempre que as junções não forem planas em nível atômico, independentemente do modelo adotado.

Quando aplicado a junções magnéticas, os procedimentos acima revelam o limite de validade das aproximações originais, e a convergência no ajuste aparece em um número bem restrito de amostras. Nestas, a altura e a espessura da barreira obtidas são menores do que no caso das junções de  $Al/AlO_x/Al$ , e as áreas são da mesma ordem de grandeza, indicando aqui também há uma distribuição não uniforme da corrente.

# 5.1 Perspectivas

Alguns fenômenos não puderam ser abordados durante o curso deste trabalho, tanto no caso das junções de  $Al/AlO_x/Al$  como no caso das junções magnéticas. Os estudos em desenvolvimento, bem como algumas propostas para um futuro próximo são discutidas a seguir.

- Extender os tratamentos para temperaturas diferentes da ambiente.
- Observar os efeitos da variação de t<sub>AlOx</sub>, φ<sub>0</sub> e A<sub>eff</sub> sobre o tunelamento, em uma faixa mais ampla de espessuras. Como foi discutido aqui, estes parâmetros só podem ser determinados a posteriori. No entanto, junções com características distintas podem ser obtidas pela produção de barreiras isolantes com T<sub>ox</sub> distintos dos usados aqui (10, 30 e 50 s). Este trabalho está em andamento e foram produzidas amostras com T<sub>ox</sub> entre 0 e 90 s, estando as medidas das curvas IxV em fase de execução. Trabalho realizado pela mestranda do PPGF Daiene de Melho Schaefer, sob orientação do professor Marcos Carara.
- Acompanhar a evolução dos parâmetros durante o processo de rompimento do dielétrico, induzido por "stress" de corrente. Este estudo está sendo desenvolvido em paralelo ao apresentado no item anterior, estando também na fase de coleta de dados.
- Usar uma equação para a modelagem das curvas IxV onde não são usadas as aproximações de Simmons. Este trabalho está em estágio inicial, estando sendo estabelecida uma colaboração com o grupo do Dr. X. C. Ma (Shenzhen University e University of Science and Technology, China) [76, 200].
- Incluir o conceito  $A_{\rm eff}$  no modelo de Brinkman-Dynes-Rowell e utilizá-lo no ajuste de curvas IxV de junções magnéticas de  ${\rm Co/AlO}_x/{\rm NiFe}$ .

# Referências Bibliográficas

- [1] GASIOROWICZ,S. **Física Quântica.** 1a. ed. Rio de Janeiro:Guanabara Dois, 1979. p.81-87.
- [2] NEUGEBAUER, C.A.; WEBB, M.B. Electrical conduction mechanism in ultrathin, evaporated metal films. **Journal of Applied Physics**, v.33, n.1, p.74-82, 1962.
- [3] ABELES,B.; COHEN,R.W.; CULLEN,G.W. Enhancement of superconductivity in metal films. **Physical Review Letters**, v.17, n.12, p.632-634, 1966.
- [4] GIAEVER, I. Energy gap in superconductors measured by electron tunneling. **Physical Review Letters**, v.5, n.4, p.147-148, 1960.
- [5] NICOL,J.; SHAPIRO,S.; SMITH,P.H. Direct measurement of the superconducting energy gap. **Physical Review Letters**, v.5, n.10, p.461-464, 1960.
- [6] GIAEVER,I. Electron tunneling between two superconductors. **Physical Review Letters**, v.5, n.10, p.464-466, 1960.
- [7] TEDROW,P.M.; MESERVEY,R. Spin-dependent tunneling into ferromagnetic nickel. **Physical Review Letters**, v.26, n.4, p.192-195, 1971.
- [8] MESERVEY,R.; TEDROW,P.M. Spin-polarized electron tunneling. **Physics Reports**, v.238, n.4, p.173-243, 1994.
- [9] BINNIG,G.; ROHRER,H.; GERBER,C.; WEIBEL,E. Tunneling through a controllable vacuum gap. **Applied Physics Letters**, v.40, n.2, p.178-180, 1982.
- [10] BINNIG,G.; ROHRER,H.; GERBER,C.; WEIBEL,E. Surface studies by Scanning Tunneling Microscopy. **Physical Review Letters**, v.49, n.1, p.57-61, 1982.
- [11] BINNIG,G.; QUATE,C.F.; GERBER,C. Atomic Force Microscope. **Physical Review Letters**, v.56, n.9, p.930-933, 1986.
- [12] POHL,D.W.; DENK,W.; LANZ,M. Optical stethoscopy: image recording with resolution  $\lambda/20$ . **Applied Physics Letters**, v.44, n.7, p.651-653, 1984.
- [13] FISCHER, U.C.; DÜRIG, U.T; POHL, D.W. Near-field optical scanning microscopy in reflection. **Applied Physics Letters**, v.52, n.4, p.249-251, 1988.
- [14] WULFHEKEL,W.; KIRSCHNER,J. Spin-polarized scanning tunneling microscopy on ferromagnets. **Applied Physics Letters**, v.75, n.13, p.1944-1946, 1999.
- [15] SCHLICKUM,U.; WULFHEKEL,W.; KIRSCHNER,J. Spin-polarized scanning tunneling microscope for imaging the in-plane magnetization. Applied Physics Letters, v.83, n.10, p.2016-2018, 2003.
- [16] BODE,M.; GETZLAFF,M.; WIESENDANGER,R. Spin-polarized vacuum tunneling into the exchange-split surface state of Gd(0001). **Physical Review Letters**, v.81, n.19, p.4256-4259, 1998.

- [17] SUTTER,P.; ZAHL,P.; SUTTER,E.; BERNARD,J.E. Energy-filtered scanning tunneling microscopy using a semiconductor tip. **Physical Review Letters**, v.90, n.16, 166101, 2003.
- [18] JOSEPHSON,B.D. The discovery of tunneling supercurrents. Revies of Moderns Physics, v.46, n.2, p.251-254, 1974.
- [19] PEKOLA, J.P.; HIRVI, K.P.; KAUPPINEN, J.P.; PAALANEN, M.A. Thermometry by arrays of tunnel junctions. Physical Review Letters, v.73, n.21, p.2903-2906, 1994.
- [20] KAUPPINEN, J.P.; PEKOLA, J.P. Coulomb blockade nanothermometer. **Microelectronic Engineering**, v.41, p.503-506, 1998.
- [21] SPIETZ,L.; LEHNERT,K.W.; SIDDIQI,I.; SCHOELKOPF,R.J. Primary electronic thermometry using the shot noise of a tunnel junction. **Science**, v.300, n.5627, p.1929-1932, 2003.
- [22] LIU,X.; REN,C.; XIAO,G. Magnetic tunnel junction field sensors with hard-axis bias field. **Journal of Applied Physics**, v.92, n.8, p.4722-4725, 2002.
- [23] GRIGORENKO,A.N.; MAPPS,D.J. Magnetic tunnel junctions with non-collinear anisotropy axes for sensor applications. Journal of Physics D: Applied Physics, v.36, n.7, p.791-797, 2003.
- [24] LÖHNDORF,M.; DUENAS,T.; TEWES,M.; QUANDT,E.; RÜHRIG,M.; WECKER,J. Highly sensitive strain sensors based on magnetic tunneling junctions. **Applied Physics Letters**, v.81, n.2, p.313-315, 2002.
- [25] Segundo o site da empresa Honeywell, protótipos de MRAM com 256 kB já foram testados e se mostraram funcionais. Disponível em: <a href="http://www.ssec.honeywell.com/aerospace/faq.html">http://www.ssec.honeywell.com/aerospace/faq.html</a>. Acesso em 19 mar. 2003.
- [26] SIMONDS,J.L. Magnetoelectronics today and tomorrow. Physics Today, v.48, n.4, p.26-32, 1995.
- [27] PRINZ,G.A. Spin-polarized transport. Physics Today, v.48, n.4, p.58-63, 1995.
- [28] PRINZ,G.A. Magnetoelectronics. Science, v.282, n.5394, p.1660-1663, 1998.
- [29] WOLF,S.A.; AWSCHALOM,D.D.; BUHRMAN,R.A.; DAUGHTON,J.M.; VON MOLNÁR,S.; ROUKES,M.L.; CHTCHELKANOVA,A.Y.; TREGER,D.M. Spintronics: a spin-based electronics vision for the future. **Science**, v.294, n.5546, p.1488-1495, 2001.
- [30] ZIESE,M.; THORNTON,M.J. Spin Electronics. 1a. ed. Berlin:Springer, 2001. 493p.
- [31] DAS SARMA, S. Spintronics. American Scientist, v.89, n.6, p.516-523, 2001.
- [32] REOHR,W.; HÖNIGSCIMID,H.; ROBERTAZZI,R.; GOGL,D.; PESAVENTO,F.; LAMMERS,S,; LEWIS,K.; ARNDT,C.; LU,Y.; VIEHMANN,H.; SCHEUERLEIN,R.; WANG,L.-K.; TROUIL-LOUD,P.; PARKIN,S.; GALLAGHER,W.; MÜLLER,G. Memories of tomorrow. **IEEE Circuits** & **Devices**, v.18, n.5, p.17-27, 2002.
- [33] GREGG,J.F.; PETEJ,I.; JOUGUELET,E.; DENNIS,C. Spin electronics a review. **Journal of Physics D: Applied Physics**, v.35, n.18, p.R121-R155, 2002.
- [34] BARTHÉLÉMY,A.; FERT,A.; CONTOUR,J-P.; BOWEN,M.; CROS,V.; DE TERESA,J.M.; HAMZIC,A.; FAINI,J.C.; GEORGE,J.M.; GROLLIER,J.; MONTAIGNE,F.; PAILLOUX,F.; PETROFF,F.; VOUILLE,C. Magnetoresistance and spin electronics. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v.242-245, n.1, p.68-76, 2002.
- [35] NEY,A.; PAMPUCH,C.; KOCH,R.; PLOOG,K.H. Programmable computing with a single magnetoresistive element. **Nature**, v.425, n.6957, p.485-487, 2003.
- [36] MAURICE, J.-L.; BRIÁTICO, J.; CARREY, J.; PETROFF, F.; SCHELP, L.F.; VAURÈS, A. Cluster obtained by sputter deposition of cobalt atoms on alumina. **Philosofical Magazine A**, v.79, n.12, p.2921-2934, 1999.

- [37] ABELES,B.;SHENG,P.;COUTTS,M.D.;ARIE,Y. Structural and electrical properties of granular metal-films. **Advances in Physics**, v.24, n.3, p.407-461, 1975.
- [38] SHENG,P.; ABELES,B.; ARIE,Y. Hopping conductivity in granular metals. **Physical Review Letters**, v.31, n.1, p.44-47, 1973.
- [39] HELMAN,J.S.; ABELES,B. Tunneling of spin-polarized electrons and magnetoresistance in granular Ni films. **Physical Review Letters**, v.37, n.21, p.1429-1432, 1976.
- [40] GITTLEMAN,J.I.; GOLDSTEIN,Y.; BOZOWSKI,S. Magnetic properties of granular nickel films. **Physical Review B**, v.5, n.9, p.3609-3621, 1972.
- [41] KASTNER,M.A. The single-electron transistor. **Reviews of Modern Physics**, v.64, n.3, p.849-858, 1992.
- [42] SKUMRYEV,V.; STOYANOV,S.; ZHANG,Y.; HADJIPANAYIS,G.; GIVORD,D.; NOGUÉS,J. Beating the superparamagnetic limit with exchange bias. **Nature**, v.423, n.6942, p.850-853, 2003.
- [43] ZANCHET,D.; MORENO,M.S.; UGARTE,D. Anomalous packing in thin nanoparticle supercrystals. **Physical Review Letters**, v.82, n.26, p.5277-5280, 1999.
- [44] DORNELES, L.S.; BORGES, J.G.; SCHELP, L.F. Spin dependent tunneling in Co/insulating granular systems: an AC approach. **Physica B**, v.320, n.1-4, p.195-198, 2002.
- [45] DENARDIN,J.C.; KNOBEL,M.; DORNELES,L.S.; SCHELP,L.F. Structural and magnetotransport properties of Co/SiO<sub>2</sub> granular systems. Submetido para publicação em **Materials Science Forum**, 2003. Disponível em: <a href="http://planeta.terra.com.br/educacao/lsdorneles/curriculum">http://planeta.terra.com.br/educacao/lsdorneles/curriculum</a>. Acesso em 25 set. 2003.
- [46] HABERLAND,H.; KARRAIS,M.; MALL,M.; THURNER,Y. Thins films from energetic cluster impact: a feasibility study. **Journal of Vacuum Science and Technology A**, v.10, n.5, p.3266-3271, 1992.
- [47] CABRERA,N.; MOTT,N.F. Theory of the oxidation of metals. **Reports on Progress in Physics**, v.12, p.163-184, 1948.
- [48] MICHEL,R.; GASTALDI,J.; ALLASIA,C.; JOURDAN,C.; DERRIEN,J. Initial interaction of oxygen with aluminium single crystal faces: a LEED, AES and work function study. **Surface Science**, v.95, p.309-320, 1980.
- [49] ARRANZ,A.; PALACIA,C. Characterization of the surface and interface species formed during the oxidation of aluminum. **Surface Science**, v.355, p.203-213, 1996.
- [50] TSUGE,H.; MITSUZUKA,T. Magnetic tunnel junctions with *in situ* naturally-oxidized tunnel barrier. **Applied Physics Letters**, v.71, n.22, p.3296-3298, 1997.
- [51] FRITZSCH,L.; KÖHLER,H.-J.; THRUM,F.; WENDE,G.; MEYER,H.-G. Preparation of Nb/Al-AlO $_x$ /Nb Josephson junctions with critical current densities down to 1 A/cm<sup>2</sup>. **Physica C**, v.296, p.319-324, 1998.
- [52] ROTTLÄNDER,P.; KOHLSTEDT,H.; DE GRONCKEL,H.A.M.; GIRGIS,E.; SCHELTEN,J.; GRÜNBERG,P. Magnetic tunnel junctions prepared by ultraviolet light assisted oxidation. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v.210, p.251-256, 2000.
- [53] BOEVE,H.; GIRGIS,E.; SCHELTEN,J.; DE BOECK,J.; BORGHS,G. Strongly reduced bias dependence in spin-tunnel junctions obtained by ultraviolet light assisted oxidation. **Applied Physics Letters**, v.76, n.8, p.1048-1050, 2000.
- [54] GIRGIS,E.; BOEVE,H.; DE BOECK,J.; SCHELTEN,J.; ROTTLÄNDER,P.; KOHLSTEDT,H.; GRÜNBERG,P. Dielectric breakdown of lithographically patterned tunnel junctions prepared by UV oxidation method. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v.222, p.133-137, 2000.

- [55] O'HANLON, J.F. Plasma anodization of metals and semiconductors. **Journal of Vacuum Science and Technology**, v.7, n.2, p.330-338, 1970.
- [56] GREINER, J.H. Josephson tunneling barriers by rf sputter etching in an oxygen plasma. **Journal** of Applied Physics, v.42, n.12, p.5151-5155, 1971.
- [57] SUN,J.J.; SOUZA,R.C.; GALVÃO,T.T.P.; SOARES,V.; PLASKETT,T.S.; FREITAS,P.P. Tunneling magnetoresistance and current distribution effect in spin-dependent tunnel junctions. **Journal of Applied Physics**, v.83, n.11, p.6694-6696, 1998.
- [58] SUN,J.J.; SOARES,V.; FREITAS,P.P. Low resistance spin-dependent tunnel junctions deposited with a vaccum break and radio frequency plasma oxidized. **Applied Physics Letters**, v.74, n.3, p.448-450, 1999.
- [59] HARRISON, W.A. Solid State Theory. New York: Dover, 1979. p.264.
- [60] KITTEL, C. Introdução à Física do Estado Sólido. 5a. ed. Rio de Janeiro: Guanabara Dois, 1978. p.204.
- [61] HOLM,R. The electric tunnel effect across thin insulator films in contacts. Journal of Applied Physics, v.22, n.5, p.569-574, 1951.
- [62] STRATTON,R. Volt-current characteristics for tunneling through insulating films. J. Phys. Chem. Solids, v.23, p.1177-1190, 1962.
- [63] SIMMONS,J.G. Generalized formula for the electric tunnel effect between similar electrodes separated by a thin insulating film. **Journal of Applied Physics**, v.34, n.6, p.1793-1803, 1963.
- [64] BRINKMAN, W.F.; DYNES, R.C.; ROWELL, J.M. Tunneling conductance of asymmetrical barriers. **Journal of Applied Physics**, v.41, n.5, p.1915-1921, 1970.
- [65] GASIOROWICZ,S. **Física Quântica.** 1a. ed. Rio de Janeiro:Guanabara Dois, 1979. p.444-446.
- [66] HARRISON, W.A. Tunneling from a independent-particle point of view. Physical Review, v.123, n.1, p.85-89, 1961.
- [67] FISHER,J.C.; GIAEVER,I. Tunneling through thin insulating layers. **Journal of Applied Physics**, v.32, n.2, p.172-177, 1961.
- [68] MURPHY,E.L.; GOOD,R.H. Thermionic emission, field emission, and the transition region. **Physical Review**, v.102, n.6, p.1464-1473, 1956.
- [69] SIMMONS,J.G. Generalized thermal J-V characteristic for the electric tunnel effect. **Journal of Applied Physics**, v.35, n.9, p.2655-2658, 1964.
- [70] SIMMONS,J.G. Electric tunnel effect between dissimilar electrodes separated by a thin insulating film. **Journal of Applied Physics**, v.34, n.9, p.2581-2590, 1963.
- [71] SIMMONS,J.G. Intrinsic fields in thin insulating films between dissimilar electrodes. **Physical Review Letters**, v.10, n.1, p.10-12, 1963.
- [72] XIANG,X.H.; ZHU,T.; DU,J.; LANDRY,G.; XIAO,J.Q. Effects of density of states on bias dependence in magnetic tunnel junctions. **Physical Review B**, v.66, n.17, 174407, 2002.
- [73] XIANG,X.H.; ZHU,T.; DU,J.; XIAO,J.Q. Conductance anomaly and density of state effects in magnetic tunnel junctions. **Journal of Applied Physics**, v.93, n.10, p.8053-8055, 2003.
- [74] XIANG,X.H.; ZHU,T.; LANDRY,G.; DU,J.; ZHAO,Y.; XIAO,J.Q. Spin-dependent conductance minima in magnetic tunnel junctions. Applied Physics Letters, v.83, n.14, p.2826-2828, 2003.
- [75] XIANG,X.H.; ZHU,T.; SHENG,F.; ZHANG,Z.; XIAO,J.Q. Recent developments in magnetic tunnel junctions. **IEEE Transactions on magnetics**, v.39, n.5, p.2770-2775, 2003.

- [76] SHU,Q.Q.; JIANG,Y.; MENG,S.; LIN,G.; MA,W.G. Exactly solvable model for metal-insulator-metal stepped boundary tunnel junctions. **Thin Solid Films**, v.414, n.1 p.136-142, 2002.
- [77] MISKOVSKY,N.M.; CUTLER,P.H.; FEUCHTWANG,T.E.; SHEPHERD,S.J.; LUCAS,A.A.; SUL-LIVAN,T.E. Effect of geometry and multiple-image interactions on tunneling and I-V characteristics of metal-vacuum-metal point-contact junctions. **Applied Physics Letters**, v.37, n.2, p.189-192, 1980.
- [78] BONO,J.; GOOD Jr.,R.H. Theoretical discussion of the scanning tunneling microscope. **Surface Science**, v.151, n.2-3, p.543-552, 1985.
- [79] NGUYEN,H.Q.; CUTLER,P.H.; FEUCHTWANG,T.E.; MISKOVSKY,N. Investigation of a new numerical method for the exact calculation of one-dimensional transmission coefficients: application to the study of limitations of the WKB approximation. **Surface Science**, v.160, n.1, p.331-352, 1985
- [80] MORAWITZ,H.; BATRA,I.P.; REINISCH,R.; HENRY,G.R. Multiple image potential effects in a simple model of the scanning tunneling microscope (STM). Surface Science, v.180, n.1, p.333-352, 1987.
- [81] PAN,L.-H.; SULLIVAN,T.E.; PERIDIER,V.J.; CUTLER,P.H.; MISKOVSKY,N.M. Three-dimensional electrostatic potential, and potential-energy barrier, near a tip-base junction. **Applied Physics Letters**, v.65, n.17, p.2151-2153, 1994.
- [82] KANTOROVICH,L.N.; FOSTER,A.S.; SHLUGER,A.L.; STONEHAM,A.M. Role of image forces in non-contact scanning force microscope images of ionic surfaces. **Surface Science**, v.445, n.2-3, p.283-299, 2000.
- [83] MOODERA,J.S.; KINDER,L.R.; WONG,T.M.; MESERVEY,R. Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film tunnel junction. **Physical Review Letters**, v.74, n.16, p.3273-3276, 1995.
- [84] MOODERA, J.S.; GALLAGHER, E.F.; ROBINSIN, K.; NOWAK, J. Optimum tunnel barrier in ferromagnetic-insulator-ferromagnetic tunneling structures. **Applied Physics Letters**, v.70, n.22, p.3050-3052, 1997.
- [85] HAN,X.-F.; OOGANE,M.; KUBOTA,H.; ANDO,Y.; MIYAZAKI,T. Fabrication of high-magnetoresistance tunnel junctions using Co<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> ferromagnetic electrodes. **Applied Physics Letters**, v.77, n.2, p.283-285, 2000.
- [86] GILLIES,M.F.; KUIPER,A.E.T.; COEHOORN,R.; DONKERS,J.J.T.M. Compositional, structural, and electrical characterization of plasma oxidized thin aluminum layers for spin-tunnel junctions. **Journal of Applied Physics**, v.88, n.1, p.429-434, 2000.
- [87] BUBBER,R.; MAO,M.; SCHNEIDER,T.; HEDGE,H.; SIN,K.; FUNADA,S.; SHI,S. ALCVD AlO<sub>x</sub> barrier layers for magnetic tunnel junction applications. IEEE Transactions on Magnetics, v.38, n.5, p.2724-2726, 2002.
- [88] DU,J.; XIANG,X.H.; LANDRY,G.; YOU,B.; HU,A.; ZHAO,H.W.; XIAO,J.Q. Investigation of magnetic tunneling junctions with wedge-shaped barrier. **Journal of Applied Physics**, v.91, n.10, p.8780-8782, 2002.
- [89] JEON,D.M.; PARK,J.W.; KIM,Y.S.; YOON,D.H.; SUH,S.J. Plasma oxidation and magnetoresistance in tunnel junction device. Thin Solid Films, v.435, p.135-138, 2003.
- [90] YUASA,S.; NAGAHAMA,T.; SUZUKI,Y. Spin-polarized resonant tunneling in magnetic tunnel junctions. **Science**, v.297, n.5579, p.234-237, 2002.
- [91] YUASA,S.; SATO,T.; TAMURA,E.; SUZUKI,Y.; YAMAMORI,H.; ANDO,K.; KATAYAMA,T. Magnetic tunnel junctions with single-crystal electrodes: A crystal anisotropy of tunnel magnetoresistance. **Europhysics Letters**, v.52, n.3, p.344-350, 2000.
- [92] ROTTLÄNDER,P.; HEHN,M.; SCHUL,A. Determining the interfacial barrier height and its relation to tunnel magnetoresistance. **Physical Review B**, v.65, n.5, 054422, 2002.

- [93] KOLLER,P.H.P.; VANHELMONT,F.W.M.; COEHOORN,R.; DE JONGE,W.J.M. Photoconductance in magnetic tunnel junctions. **IEEE Transactions on Magnetics**, v.38, n.5, p.2712-2714, 2002.
- [94] GLOOS, K.; KOPPINEN, P.J.; PEKOLA, J.P. Properties of native ultrathin aluminium oxide tunnel barriers. **Journal of Physics: Condensed Matter**, v.15, n., p.1733-1746, 2003.
- [95] MESERVEY,R.; TEDROW,P.M.; FULDE,P. Magnetic field splitting of the quasiparticle states in superconducting aluminum films. **Physical Review Letters**, v.25, n.18, p.1270-1272, 1970.
- [96] TEDROW,P.M.; MESERVEY,R. Spin polarization of electrons tunneling from films of Fe, Co, Ni, and Gd. **Physical Review B**, v.7, n.1, p.318-326, 1973.
- [97] MONSMA,D.J.; PARKIN,S.S.P. Spin polarization of tunneling current from ferromagnet/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> interfaces using copper-doped aluminum superconducting films. **Applied Physics Letters**, v.77, n.5, p.720-722, 2000.
- [98] MIYAZAKI,T.; TEZUKA,N. Giant magnetic tunneling effect in Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Fe junction. **Journal** of Magnetism and Magnetic Materials, v.139, n.3, p.L231-L234, 1995.
- [99] TSYMBAL,E.Y.; MRYASOV,O.N.; LECLAIR,P.R. Spin-dependent tunneling in magnetic tunnel junctions. **Journal of Physics: Condensed Matter**, v.15, n.4, p.R109-R142, 2003.
- [100] ZHANG,S.; LEVY,P.M.; MARLEY,A.C.; PARKIN,S.S.P. Quenching of magnetoresistance by hot electrons in magnetic tunnel junctions. **Physical Review Letters**, v.79, n.19, p.3744-3747, 1997.
- [101] CABRERA,G.G.; GARCÍA,N. Low voltage I-V characteristics in magnetic tunneling junctions. **Applied Physics Letters**, v.80, n.10, p.1782-1784, 2002.
- [102] ZELLER,H.R.; GIAVER,I. Tunneling, zero-bias anomalies, and small superconductors. **Physical Review**, v.181, n.2, p.789-799, 1969.
- [103] MOODERA,J.S.; KINDER,L.R. Ferromagnetic-insulator-ferroamgnetic tunneling: spin-dependent tunneling and large magnetoresistance in trilayer junctions (invited). **Journal of Applied Physics**, v.79, n.8, p.4724-4729, 1996.
- [104] BAIBICH,M.N.; BROTO,J.M.; FERT,A.; NGUYEN VAN DAU,F.; PETROFF,F.; EITENNE,P.; CREUZET,G.; FRIEDERICH,A.; CHAZELAS,J. Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices. **Physical Review Letters**, v.61, n.21, p.2472-2475, 1988.
- [105] JULLIÈRE,M. Tunneling between ferromagnetic films. **Physics Letters A**, v.54, n.3, p.225-226, 1975.
- [106] OLEINIK,I.I.; TSYMBAL,E.Y.; PETTIFOR,D.G. Structural and electronic properties of Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co magnetic tunnel junction from first principles. **Physical Review B**, v.62, n.6, p.3952-3959, 2000.
- [107] SOULEN JR.,R.J.; BYERS,J.M.; OSOFSKY,M.S.; NADGORNY,B.; AMBROSE,T.; CHENG,S.F.; BROUSSARD,P.R.; TANAKA,C.T.; NOWAK,J.; MOODERA,J.S.; BARRY,A.; COEY,J.M.D. Measuring the spin polarization of a metal with a superconducting point contact. **Science**, v.282, p.85-88, 1998.
- [108] UPADHYAY,S.K.; PALANISAMI,A.; LOUIE,R.N.; BUHRMAN,R.A. Probing ferromagnets with Andreev reflection. **Physical Review Letters**, v.81, n.15, p.3247-3250, 1998.
- [109] JI,Y.; STRIJKERS,G.J.; YANG,F.Y.; CHIEN,C.L.; BYERS,J.M.; ANGUELOUCH,A.; XIAO,G.; GUPTA,A. Determination of the spin polarizations of half-metallic Cro<sub>2</sub> by point contact Andreev reflection. **Physical Review Letters**, v.86, n.24, p.5585-5588, 2001.
- [110] PARK, J.-H.; VESCOVO, E.; KIN, H.-J.; KWON, C.; RAMESH, R.; VENKATESAN, T. Direct evidence for a half-metallic ferromagnet. **Nature**, v.392, n.6678, p.794-796, 1998.

- [111] MAZIN,I.I. How to define and calculate the degree of spin polarization in ferromagnets. **Physical Review Letters**, v.83, n.7, p.1427-1430, 1999.
- [112] DATTA, S.; DAAS, B. Electronic analog of the electro-optic modulator. **Applied Physics** Letters, v.56, n.7, p.665-667, 1990.
- [113] FLATTÉ,M.E.; VIGNALE,G. Unipolar spin diodes and transistors. **Applied Physics Letters**, v.78, n.9, p.1273-1275, 2001.
- [114] MOODERA,J.S.; NOWAK,J.; KINDER,L.R.; TEDROW,P.M.; VAN DE VEERDONK,R.J.M.; SMITS,B.A.; VAN KAMPEN,M.; SWAGTEN,H.J.M.; DE JONGE,W.J.M. Quantum well states in spin-dependent tunnel structures. **Physical Review Letters**, v.83, n.15, p.3029-3032, 1999.
- [115] LECLAIR,P.; SWAGTEN,H.J.M.; KOHLHEPP,J.T.; VAN DE VEERDONK,R.J.M.; DE JONGE,W.J.M. Apparent spin polarization decay in Cu-dusted Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co tunnel junctions. **Physical Review Letters**, v.84, n.13, p.2933-2936, 2000.
- [116] LECLAIR,P.; KOHLHEPP,J.T.; SWAGTEN,H.J.M.; DE JONGE,W.J.M. Interfacial density of states in magnetic tunnel junctions. **Physical Review Letters**, v.86, n.6, p.1066-1069, 2001.
- [117] LECLAIR,P.; HOEX,B; WIELDRAAIJER,H.; KOHLHEPP,J.T.; SWAGTEN,H.J.M.; DE JONGE,W.J.M. Sign reversal of spin polarization in Co/Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co magnetic tunnel junctions. **Physical Review B**, v.64, 100406(R), 2001.
- [118] STEARNS,M.B. Simple explanation of tunneling spin-polarization of Fe, Co, Ni and its alloys. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v.5, n.2, p.167-171, 1977.
- [119] HERTZ,J.A.; AOI,K. Spin-dependent tunneling from transition-metal ferromagnets. **Physical Review B**, v.8, n.7, p.3252-3256, 1973.
- [120] DE TERESA,J.M.; BARTHÉLÉMY,A; FERT,A.; CONTOUR,J.P.; LYONNET,R.; MONTAIGNE,F.; SENEOR,P.; VAURÈS,A. Inverse tunnel magnetoresistance in Co/SrTiO<sub>3</sub>/La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3</sub>: new ideas on spin-polarized tunneling. **Physical Review Letters**, v.82, n.21, p.4288-4291, 1999.
- [121] Role of metal-oxide interface in determining the spin polarization of magnetic tunnel junctions. Science, v.286, n.5439, p.507-509, 1999.
- [122] COEY,J.M.D.; CHIEN,C.L. Half-metallic ferromagnetic oxides. MRS Bulletin, v.28, n.10, p.720-724, 2003.
- [123] DE GROOT,R.A.; MUELLER,F.M.; VAN ENGEN,P.G.; BUSCHOW,K.H.J. New class of materials: half-metallic ferromagnets. **Physical Review Letters**, v.50, n.25, p.2024-2027, 1983.
- [124] RISTOIU,D.; NOZIERES,J.P.; BORCA,C.N.; KOMESU,T.; JEONG,H.K.; DOWBEN,P.A. The surface composition and spin polarization of NiMnSb epitaxial thin films. **Europhysics Letters**, v.49, n.5, p.624-630, 2000.
- [125] LI,X.W.; GUPTA,A.; XIAO,G.; QIAN,W.; DRAVID,V.P. Fabrication and properties of heteroepitaxial magnetite (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) tunnel junctions. **Applied Physics Letters**, v.73, n.22, p.3282-3284, 1998.
- [126] KIYOMURA,T.; MARUO,Y.; GOMI,M. Electrical properties of MgO insulating layers in spin-dependent tunneling junctions using Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>. **Journal of Applied Physics**, v.88, n.8, p.4768-4771, 2000.
- [127] HIBMA,T.; VOOGT,F.C.; NIESEN,L.; VAN DER HEIJDEN,P.A.A.; DE JONGE,W.J.M.; DONKERS,J.J.T.M.; VAN DER ZAAG,P.J. Anti-phase domains and magnetism in epitaxial magnetite layers. **Journal of Applied Physics**, v.85, n.8, p.5291-5293, 1999.
- [128] OHNO,H. Making nonmagnetic semiconductors ferromagnetic. **Science**, v.281, n.5379, p.951-956,

- [129] SCHMIDT,G.; FERRAND,D.; MOLENKAMP,L.W.; FILIP,A.T.; VAN WEES,B.J. Fundamental obstacle for electrical spin injection from a ferromagnetic metal into a diffusive semiconductor. **Physical Review B**, v.62, n.8, p.R4790-R4793, 2000.
- [130] RASHBA,E.I. Theory of electrical spin injection: tunnel contacts as a solution of the conductivity mismatch problem. **Physical Review B**, v.62, n.24, p.R16267-R16270, 2000.
- [131] HEERSCHE,H.B.; SCHÄPERS,T.; NITTA,J.; TAKAYANAGI,H. Enhancement of spin injection from ferromagnetic metal into a two-dimensional electron gas using a tunnel barrier. **Physical Review B**, v.64, n.16, 161307(R), 2001.
- [132] FERT,A.; JAFFRÈS,H. Conditions for efficient spin injection from a ferromagnetic metal into a semiconductor. **Physical Review B**, v.64, n.18, 184420, 2001.
- [133] CHUN,S.H.; POTASHNIK,S.J.; KU,K.C.; SCHIFFER,P.; SAMARTH,N. Spin-polarized tunneling in hybrid metal-semiconductor magnetic tunnel junctions. **Physical Review B**, v.66, n.10, 100408(R), 2002.
- [134] MCPHERSON,J.; KIM,J.-Y.; SHANWARE,A.; MOGUL,H. Thermochemical description of dielectric breakdown in high dielectric constant materials. Applied Physics Letters, v.82, n.13, p.2121-2123, 2003.
- [135] SUÑÉ,J.; PLACIENCIA,I.; BARNIOL,N.; FARRÉS,E.; MARTÍN,F.; AYMERICH,X. On the breakdown statistics of very thin SiO<sub>2</sub> films. **Thin Solid Films**, v.185, p.347-362, 1990.
- [136] OEPTS,W.; VERHAGEN,H.J.; DE JONGE,W.J.M.; COEHOORN,R. Dielectric breakdown of ferromagnetic tunnel junctions. **Applied Physics Letters**, v.73, n.16, p.2363-2365, 1998.
- [137] PORTI,M.; NAFRÍA,M.; AYMERICH,X.; OLBRICH,A.; EBERSBERGER,B. Electrical characterization of stressed and broken down SiO<sub>2</sub> films at a nanometer scale using a conductive atomic force microscope. **Journal of Applied Physics**, v.91, n.4, p.2071-2079, 2002.
- [138] SIDDALL,G. **Vacuum**, v.9, p.274, 1960.
- [139] SOLOMON,P.; KLEIN,N.; ALBERT,M. **Thin Solid Films**, v.35, p.21, 1976.
- [140] OEPTS,W.; VERHAGEN,H.J.; DE MOOIJ,D.B.; ZIEREN,V.; COEHOORN,R.; DE JONGE,W.J.M. Observation and analysis of breakdown of magnetic tunnel junctions. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v.198-199, p.164-166, 1999.
- [141] OEPTS,W.; VERHAGEN,H.J.; COEHOORN,R.; DE JONGE,W.J.M. Analysis of breakdown in ferromagnetic tunnel junctions. **Journal of Applied Physics**, v.86, n.7, p.3863-3872, 1999.
- [142] SHIMAZAWA,K.; KASAHARA,N.; SUN,J.J.; ARAKI,S.; MORITA,H.; MATSUZAKI,M. Electrical breakdown of the magnetic tunneling junction with an  $AlO_x$  barrier formed by radical oxidation. **Journal of Applied Physics**, v.87, n.9, p.5194-5196, 2000.
- [143] ALLEN,D.; SCHAD,R.; ZANGARI,G.; ZANA,I; TONDRA,M.; WANG,D.; REED,D. Comparison of defect density mesurements in magnetic tunnel junctions. **Journal of Applied Physics**, v.89, n.11, p.6662-6664, 2001.
- [144] DAS,J.; DEGRAEVE,R.; ROUSSEL,P.; GROESENEKEN,G.; BORGHS,G.; DE BOECK,J. Area scaling and voltage dependence of time-to-breakdown in magnetic tunnel junctions. **Journal of Applied Physics**, v.91, n.10, p.7712-7714, 2002.
- [145] NAKAJIMA,K.; ASAO,Y.; SAITO,Y. Junctions area scaling and statistical description of dc breakdown of ferromagnetic tunnel junctions. Journal of Applied Physics, v.93, n.11, p.9316-9320, 2003
- [146] BINNIG,G.; ROHRER,H. Scanning tunneling microscopy from birth to adolescence. **Reviews** of Modern Physics, v.59, n.3, p.615-625, 1987.

- [147] DAS,B.; MAHANTY,J. Spatial distribution of tunnel current and application to scanning-tunneling microscopy: a semiclassical treatment. **Physical Review B**, v.36, n.2, p.898-903, 1987.
- [148] TERSOFF,J.; HAMANN,D.R. Theory and application for the scanning tunneling microscope. **Physical Review Letters**, v.50, n.25, p.1998-2001, 1983.
- [149] TERSOFF,J.; HAMANN,D.R. Theory of the scanning tunneling microscope. **Physical Review B**, v.31, n.2, p.805-813, 1985.
- [150] BARDEEN, J. Tunneling from a many-particle point of view. **Physical Review Letters**, v.6, n.2, p.57-59, 1961.
- [151] SEINE,G.; CORATGER,R.; CARLADOUS,A.; AJUSTRON,F.; PECHOU,R.; BEAUVILLAIN,J. Tip-to-surface distance variations vs voltage in scanning tunneling microscopy. Physical Review B, v.60, n.15, p.11045-11050, 1999.
  LEY-KOO,E. Comment on "Tip-to-surface distance variations vs voltage in scanning tunneling microscopy". Physical Review B, v.65, n.7, 077401, 2002.
  SEINE,G.; CORATGER,R.; CARLADOUS,A.; AJUSTRON,F.; PECHOU,R.; BEAUVILLAIN,J. Reply to "Comment on Tip-to-surface distance variations vs voltage in scanning tunneling microscopy". Physical Review B, v.65, n.7, 077402, 2002.
- [152] BUCHANAN,J.D.R.; HASE,T.P.A.; TANNER,B.K.; HUGHES,N.D.; HICKEN,R.J. Determination of the thickness of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> barriers in magnetic tunnel junctions. **Applied Physics Letters**, v.81, n.4, p.751-753, 2002.
- [153] Disponível em: <a href="http://www.spm.cnrs-dir.fr/quoi/communiques/CP\_Fert\_Fig.htm">http://www.spm.cnrs-dir.fr/quoi/communiques/CP\_Fert\_Fig.htm</a>. Acesso em 15 out. 2003.
- [154] LEE,S.-R.; CHOI,C.-M.; KIM,Y.K. Effect of Zr concentration on the microstructure of Al and the magnetoresistance properties of the magnetic tunnel junction with a Zr-alloyed Al-oxide barrier. Applied Physics Letters, v.83, n.2, p.317-319, 2003.
- [155] RIDLEY,B.K. Mechanism of electrical breakdown in SiO<sub>2</sub> films. **Journal of Applied Physics**, v.46, n.3, p.998-1007, 1975.
- [156] DA COSTA,V.; TIUSAN,C.; DIMOPOULOS,T.; OUNADJELA,K. Tunneling phenomena as a probe to investigate atomic scale fluctuations in metal/oxide/metal magnetic tunnel junctions. **Physical Review Letters**, v.85, n.4, p.876-879, 2000.
- [157] DA COSTA,V.; BARDOU,F.; HENRY,Y.; ROMEO,M.; OUNADJELA,K. Experimental evidence and consequences of rare events in quantum tunneling. **European Physical Journal B**, v.13, n.2, p.297-303, 2000.
- [158] DIMOPOULOS,T.; DA COSTA,V.; TIUSAN,C.; OUNADJELA,K.; VAN DEN BERG,H.A.M. Local investigation of thin insulating barriers incorporated in magnetic tunnel junctions. **Journal of Applied Physics**, v.89, n.11, p.7371-7373, 2001.
- [159] OLBRICH,A.; EBERSBERGER,B.; BOIT,C.; VANCEA,J.; HOFFMANN,H.; ALTMANN,H.; GIERES,G.; WECKER,J. Oxide thickness mapping of ultrathin Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> at nanometer scale with conducting atomic force microscopy. **Applied Physics Letters**, v.78, n.19, p.2934-2936, 2001.
- [160] LUO,E.Z.; WONG,S.K.; PAKHOMOV,A.B.; XU,J.B.; WILSON,I.H.; WONG,C.Y. Tunneling current and thickness inhomogeneities of ultrathin aluminum oxide films in magnetic tunneling junctions. **Journal of Applied Physics**, v.90, n.10, p.5202-5207, 2001.
- [161] DA COSTA,V.; ROMEO,M.; BARDOU,F. Statistical properties of currents flowing through tunnel junctions. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v.258-259, p.90-95, 2003.
- [162] LIU,Y.; ZHANG,Z.; FREITAS,P.P.; MARTINS,J.L. Current-induced magnetization switching in magnetic tunnel junctions. **Applied Physics Letters**, v.82, n.17, p.2871-2873, 2003.
- [163] LIU,Y.; ZHANG,Z.; FREITAS,P.P. Hot-spot mediated current-induced resistance change in magnetic tunnel junctions. **IEEE Transactions on magnetics**, v.39, n.5, p.2833-2835, 2003.

- [164] GÜNDEL,A. Estudo das propriedades magnéticas e estruturais de filmes ultrafinos de Fe, Co e Ni/Au(111) produzidos por eletrodeposição. 2002. 143f. Tese(Doutorado em Física) Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 2002.
- [165] GÜNDEL,A.; CAGNON,L.; GOMES,C.; MORRONE,A.; SCHMIDT,J.; ALLONGUE,P. In-situ magnetic measurements of electrodeposited ultrathin Co, Ni and Fe/Au(111) layers. **Physical Chemistry Chemical Physics**, v.3, n.16, p.3330-3335, 2001.
- [166] PEDERSEN,R.J.; VERNON JR.,F.L. Effect of film resistance on low-impedance tunneling measurements. **Applied Physics Letters**, v.10, n.1, p.29-31, 1967.
- [167] NATAN,M.; PURUSHOTHAMAN,S.; DOBROWOLSKI,R. Geometrical effects in contact resistance measurements: finite element modelling and experimental results. **Journal of Applied Physics**, v.53, n.8, p.5776-5782, 1982.
- [168] MOODERA,J.S.; KINDER,L.R.; NOWAK,J.; LECLAIR,P.; MESERVEY,R. Geometrically enhanced magnetoresistance in ferromagnet-insulator-ferromagnet tunnel junctions. **Applied Physics Letters**, v.69, n.5, p.708-710, 1996.
- [169] VAN DE VEERDONK,R.J.M.; NOWAK,J.; MESERVEY,R.; MOODERA,J.S.; DE JONGE,W.J.M. Current distribution effects in magnetoresistive tunnel junctions. **Applied Physics Letters**, v.71, n.19, p.2839-2841, 1997.
- [170] LAI,C.-H.; WANG,L.-C.; TONG,H.-C.; CRUE,B.; SHI,Z. Effect of lead resistance on spin-dependent tunneling junction with ion-beam deposited AlN barrier. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v.198-199, p.170-172, 1999.
- [171] MONTAIGNE,F.; NGUYEN VAN DAU,F.; SCHUHL,A. Current distribution effects in patterned non-linear magnetoresistive tunnel junctions. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v.217, p.231-235, 2000.
- [172] MATSUDA,K.; WATARI,N.; KAMIJO,A.; TSUGE,H. Reduced magnetoresistance in magnetic tunnel junctions caused by geometrical artifacts. Applied Physics Letters, v.77, n.19, p.3060-3062, 2000.
- [173] FULLERTON,E.E.; SCHULLER,I.K.; VANDERSTRAETEN,H.; BRUYNSERAEDE,Y. Structural refinement of spuerlattices from x-ray deffraction. **Physical Review B**, v.45, n.16, p.9292-9310, 1992.
- [174] WINDT,D.L. IMD Software for modeling the optical properties of multilayer films. **Computers** in Physics, v.12, n.4, p.360-370, 1998.
- [175] UNDERWOOD, J.H.; BARBEE, T.W. Layred synthetic microstructures as Bragg diffractors for X-rays and extreme ultraviolet theory and predicted performance. **Applied Optics**, v.20, n.17, p.3027-3034, 1981.
- [176] SONDHEIMER, E.H. The mean free path of electrons in metals. **Advances in Physics**, v.1, n.1, p.1-42, 1952.
- [177] NELDER, J.A.; MEAD, R. A simplex method for function minimization. **Computer Journal**, v.7, n.4, p.308-313, 1965.
- [178] ROTTLÄNDER,P.; HEHN,M.; LENOBLE,O.; SCHUHL,A. Tantalum oxide as an alterntive low height tunnel barrier in magnetic junctions. **Applied Physics Letters**, v.78, n.21, p.3274-3276, 2001.
- [179] GARCIA,N. Conducting ballistic magnetoresistance and tunneling magnetoresistance: Pinholes and tunnel barriers. **Applied Physics Letters**, v.77, n.9, p.1351-1353, 2000.
- [180] JÖNSSON-ÅKERMAN,B.J.; ESCUDERO,R.; LEIGHTON,C.; KIM,S.; SCHULLER,I.K.; RAB-SON,D.A. Reliability of normal-state current-voltage characteristics as an indicator of tunnel-junction barrier quality. **Applied Physics Letters**, v.77, n.12, p.1870-1872, 2000.

- [181] RABSON,D.A.; JÖNSSON-ÅKERMAN,B.J.; ROMERO,A.H.; ESCUDERO,R.; LEIGHTON,C.; KIM,S.; SCHULLER,I.K. Pinholes may mimic tunneling. **Journal of Applied Physics**, v.89, n.5, p.2786-2790, 2001.
- [182] ÅKERMAN,J.J.; SLAUGHTER,J.M.; DAVE,R.W.; SCHULLER,I.K. Tunneling criteria for magnetic-insulator-magnetic structures. Applied Physics Letters, v.79, n.19, p.3104-3106, 2001
- [183] ÅKERMAN,J.J.; ESCUDERO,R. LEIGHTON,C.; KIM,S.; RABSON,D.A.; DAVE,R.W.; SLAUGHTER,J.M.; SCHULLER,I.K. Criteria for ferromagnetic-insulator-ferromagnetic tunneling. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v.240, p.86-91, 2002.
- [184] OLIVER,B.; HE,Q.; TANG,X.; NOWAK,J. Tunneling criteria and breakdown for low resistive magnetic tunnel junctions. **Journal of Applied Physics**, v.94, n.3, p.1783-1786, 2003.
- [185] PLATT, C.L.; DIENY, B.; BERKOWITZ, A.E. Spin polarized tunneling in reactively sputtered tunnel junctions. **Journal of Applied Physics**, v.81, n.8, p.5523-5525, 1997.
- [186] KOTTLER,V.; GILLIES,M.F.; KUIPER,A.E.T. An in situ x-ray photoelectron spectroscopy study of AlO<sub>x</sub> spin tunnel barrier formation. Journal of Applied Physics, v.89, n.6, p.3301-3306, 2001.
- [187] DORNELES,L.S.; FLORES,W.H.; SCHELP,L.F. XANES study of oxidation at Ta/NiFe interface. Submetido para publicação em **LNLS Activity Report**, 2003. Disponível em: <a href="http://planeta.terra.com.br/educacao/lsdorneles/curriculum/AR\_LSDorneles.pdf">http://planeta.terra.com.br/educacao/lsdorneles/curriculum/AR\_LSDorneles.pdf</a>>. Acesso em 19 nov. 2003.
- [188] SOUZA,R.C.; SUN,J.J.; SOARES,V.; FREITAS,P.P.; KLING,A.; DA SILVA,M.F.; SOARES,J.C. Temperature dependence and annealing effects on spin dependent tunnel junctions. **Journal of Applied Physics**, v.85, n.8, p.5258-5260, 1999.
- [189] CARDOSO,S.; GEHANNO,V.; FERREIRA,R.; FREITAS,P.P. Ion beam deposition and oxidation of spin-dependent tunnel junctions. **IEEE Transactions on Magnetics**, v.35, n.5, p.2952-2954, 1999.
- [190] SCHMALHORST,J.; BRÜCKL,H.; REISS,G.; VIETH,M.; GIERES,G.; WECKER,J. Temperature stability of Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co junctions. **Journal of Applied Physics**, v.87, n.9, p.5191-5193, 2000
- [191] SAITO,Y.; AMANO,M.; NAKAJIMA,K.; TAKAHASHI,S.; SAGOI,M. Bias voltage and annealin-temperature dependences of magnetoresistance ratio in Ir-Mn exchange-biased double tunnel junctions. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v.223, p.293-298, 2001.
- [192] CARDOSO,S.; FREITAS,P.P.; DE JESUS,C.; SOARES,J.C. High thermal stability tunnel junctions. **Journal of Applied Physics**, v.87, n.9, p.6058-6060, 2000.
- [193] LEE,J.H.; JEONG,H.D.; KYUNG,H.; YOON,C.S.; KIM,C.K.; PARK,B.G.; LEE,T.D. Failure of exchange-biased low resistance magnetic tunneling junctions upon thermal treatment. **Journal of Applied Physics**, v.91, n.1, p.217-220, 2002.
- [194] CARDOSO,S.; ZHANG,Z.; LI,H.; FERREIRA,R.; FREITAS,P.P.; WEI,P.; SOARES,J.C.; SNOECK,E.; BATLLE,X. Chracterization of nano-oxide layers fabricated by ion beam oxidation. **IEEE Transactions on Magnetics**, v.38, n.5, p.2755-2757, 2002.
- [195] LIAO,C.C.; HO,C.H.; HUANG,R.-T.; CHEN,F.-R.; KAI,J.J.; CHEN,L.-C.; LIN,M.-T.; YAO,Y.D. Thermal stability study of the insulator layer in NiFe/CoFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co spin-dependent tunnel junction. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v.239, p.116-119, 2002.
- [196] MATSUKAWA,N.; ODAGAWA,A.; SUGITA,Y.; KAWASHIMA,Y.; MORINAGA,Y.; SATOMI,M.; HIRAMOTO,M.; KUWATA,J. Thermally stable exchange-biased magnetic tunnel junctions over 400°C. **Applied Physics Letters**, v.81, n.25, p.4784-4786, 2002.

- [197] YOU,B.; SHENG,W.; SUN,L.; ZHANG,W.; DU,J.; LU,M.; ZHAI,H.; HU,A.; XU,Q.; WANG,Y.; ZHANG,Z. Influence of annealing on the magneto-resistance effect and microstructure in the two-step oxidized  $FeCo/AlO_x/Co$  tunnel junction. **Journal of Physics D: Applied Physics**, v.36, p.2313-2316, 2003.
- [198] LEE,K.I.; CHAE,K.H.; LEE,J.H.; HA,J.G.; RHIE,K.; LEE,W.Y.; SHIN,K.H. Optimization of tunneling magnetotransport and thermal properties in magnetic tunnel junctions by rapid thermal anneal. **Microelectronic Engineering**, v.69, p.305-308, 2003.
- [199] LIU,X.; REN,C.; RITCHIE,L.; SCHRAG,B.D.; XIAO,G.; LI,L.-F. Magnetic tunneling junctions with permalloy electrodes: a study of barrier, thermal annealing, and interlayer coupling. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v.267, p.133-138, 2003.
- [200] MA,X.C.; SHU,Q.Q.; MENG,S.; MA,W.G. Image force effects on trapezoidal barier parameters in metal-insulator-metal tunnel junctions. **Thin Solid Films**, v.436, p.292-297, 2003.