

Diplomarbeit

**Strukturierung von
CoFeB/MgO/CoFeB-
Tunnelmagnetowiderstands-Elementen**

vorgelegt von

Kai Ubbo Ubben

aus Göttingen

Georg-August-Universität Göttingen

I. Physikalisches Institut

2009

Referent: Prof. Dr. Markus Münzenberg
Korreferent: Prof. Dr. Cynthia Volkert
Abgabedatum: 27. Mai 2009

Inhaltsverzeichnis

Abbildungsverzeichnis	v
1 Einleitung	1
2 Grundlagen	3
2.1 Magnetismus	3
2.2 Tunnel-Magneto-Widerstandseffekt	6
2.2.1 Magnetische Tunnelkontakte	7
2.2.2 Jullières Modell	8
2.2.3 Kohärentes Tunneln	10
3 Experimentelle Methoden	15
3.1 Probensystem	15
3.2 Schichtpräparation und -wachstum	19
3.3 Strukturierung der Tunnelemente	19
3.3.1 Optische Lithographie	21
3.3.2 Sputterätzen	24
3.4 Charakterisierung	29
3.4.1 Transportmessungen und magnetische Charakterisierung . .	29
3.4.2 Profilometer	31
3.4.3 Elektronenmikroskopie	31
4 Auswertung und Diskussion	33
4.1 Charakterisierung des Strukturierungsprozesses	33
4.1.1 Optische Lithographie	33
4.1.2 Sputterätzen	38
4.2 Charakterisierung der Tunnelemente	42

4.3	Optimierung des Probensystems	44
4.3.1	Schichtstapel-Optimierung	45
4.3.2	Variation der Annealing-Temperatur	50
5	Zusammenfassung und Ausblick	57
A	Prozessdetails und -anleitungen	59
A.1	Lithographie	59
A.2	Sputterätzen	61
A.2.1	Kurzanleitung Sputter-Ätzer	61
	Literaturverzeichnis	63

Abbildungsverzeichnis

2.1	Aufspaltung der Bänder im Stoner-Modell	5
2.2	Widerstandsverlauf MTJ	8
2.3	TMR-Effekt nach Jullière	9
2.4	Bandstruktur von Fe und Co	10
2.5	Tunnelzustandsdichten Fe/MgO/Fe	11
2.6	Kohärentes und nicht-kohärentes Tunneln	12
2.7	Temperatur-Abhängigkeit des TMR	13
3.1	Schichtstapel eines Tunnelements	15
3.2	Kristalline Monolagen an der Grenzfläche zur Barriere	16
3.3	TMR in Abhängigkeit von der Annealing-Temperatur	17
3.4	Einfluss der Bufferlayer-Materialien auf den TMR	18
3.5	Einzelschritte im Strukturierungsprozess	20
3.6	Maske für die optische Lithographie	23
3.7	Kontrastkurve für Photolacke	24
3.8	Komponenten des Sputterätzers	25
3.9	Aufbau beim Sputterätzen	27
3.10	Querschnitt des strukturierten Tunnelements	28
3.11	Probestation: Kontaktierung der Tunnelemente	30
4.1	Schichtdickeabhängigkeit beim Spin-Coating	34
4.2	Belichtung: Kontrastkurven	36
4.3	REM-Aufnahmen der Photolackstrukturen	37
4.4	Ätzprofil eines Tunnelements	41
4.5	Widerstandsverlauf und Magnetisierung im externen Feld	42
4.6	U-I-Kennlinie und Bias-Abhängigkeit	44
4.7	TEM-Aufnahme der Vergleichsprobe	46
4.8	TEM-Aufnahmen der Probenoptimierung	47

4.9	TEM-Aufnahmen der Barriere der Probe D mit 30 % TMR	49
4.10	Annealing-Serie: TMR, B und M von T_a	51
4.11	TMR in Abhängigkeit des externen Feldes für ausgewählte Proben der Annealing-Reihe	52
4.12	Annealing-Serie ohne Bufferlayer: TMR, B und M von T_a	54
A.1	Maske für die optische Lithographie	60

Kapitel 1

Einleitung

Als *Tunnel-Magneto-Widerstandseffekt* (Tunnel Magnetoresistance, TMR) wird die Änderung des elektrischen Widerstandes magnetischer Tunnelkontakte in Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld bezeichnet. Diese Tunnelkontakte bestehen aus zwei ferromagnetischen Elektroden, getrennt durch eine dünne isolierende Schicht. Zeigen die beiden Elektroden eine parallele Ausrichtung ihrer Magnetisierungen, so ist der Widerstand niedrig, anti-parallele Ausrichtung führt zu einem höheren Widerstand. Der Effekt beruht auf spinabhängigen Tunnelprozessen zwischen den ferromagnetischen Elektroden.

Jullière konnte 1975 zum ersten Mal eine solche Widerstandsänderung beobachten [Jul75]. Dabei wurden Fe/GeO/Co-Schichtsysteme für Messungen bei 4,2 K verwendet. Größeres Interesse am TMR – und Spinelektronik im Allgemeinen – kam allerdings erst in den 1990ern mit dem überragenden Erfolg des Riesen-Magnetowiderstand-Effekts (Giant Magnetoresistance, GMR) auf, entdeckt durch Grünberg und Fert [BGSZ89, BBF⁺88]. GMR und TMR weisen große Parallelen auf, statt einer Tunnelbarriere wird jedoch eine metallische, nichtmagnetische Zwischenschicht verwendet. Der Effekt fand insbesondere in Festplatten-Leseköpfen Anwendung, die Entdeckung wurde 2007 mit dem Nobelpreis ausgezeichnet.

Der TMR weist eine starke Temperaturabhängigkeit auf und ließ sich zunächst nur bei tiefen Temperaturen beobachten, 1995 konnten Moodera und Miyazaki diesen zum ersten Mal auch bei Raumtemperatur nachweisen [MKWM95, MT95]. Dabei erzielten sie an Systemen mit AlO_x-Barrieren Widerstandsänderungen von bis zu 18 %. Mathon und Butler stellten 2001 Berechnungen an, die für Fe/MgO/Fe-Systeme einen TMR von mehr als 1000 % voraussagten, dieses führte zur der Bezeichnung *Giant TMR* [MU01, BZSM01]. Yuasa und Parkin konnten 2004 an solchen Systemen einen TMR von etwa 200 % bei Raumtemperatur zeigen [PKP⁺04,

YNF⁺⁰⁴]. Der größte bisher erreichte Wert liegt bei 604 % bei RT [IHA⁺⁰⁸].

Der TMR findet Anwendung in aktuellen Festplatten-Leseköpfen, welche in diesem Bereich GMR-basierte Technologie abgelöst haben, da sich wesentlich größere relative Widerstandsänderungen erreichen lassen. Zudem stellt der TMR die Grundlage für magnetischen Arbeitsspeicher (Magnetoresistive Random Access Memory, MRAM) dar. Dieser soll mit Nichtflüchtigkeit und zugleich hoher Geschwindigkeit Eigenschaften von derzeitigem Flash- und DRAM-Speicher vereinigen und gilt als einer der Kandidaten für die Speichertechnologie der Zukunft. Des Weiteren werden einige Anwendungen in der Mikrowellentechnik diskutiert.

Diese Arbeit beschreibt die Ergebnisse der Bemühungen, die Herstellung und Charakterisierung eigener Tunnelmagnetowiderstands-Elemente mit MgO-Barriere zu etablieren. Dabei liegt der Schwerpunkt auf der Entwicklung des Strukturierungsprozesses als Teil der Probenpräparation. Zudem werden ausgewählte Ansätze zur Probenoptimierung dargestellt. Zum einen handelt es sich dabei um die Variation des Schichtsystems selbst – speziell der Bufferlayer, die das Elektroden/Barriere-System umschließen. Andererseits wird der Einfluss der Annealing-Temperatur als wichtiger Parameter in der Herstellung untersucht.

Zwei weitere aktuelle Arbeiten – die Dissertation von Gerit Eilers [Eil09] und die Diplomarbeit von Marvin Walter [Wal09] – behandeln mit Untersuchungen zur Nahordnung an der Grenzfläche zwischen Elektrode und Barriere bzw. Transportmessungen und Spektroskopie-Untersuchungen andere Aspekte dieses Systems. Insbesondere die elektrische Charakterisierung wird in letzterer Arbeit schwerpunktmäßig diskutiert und soll daher hier nur am Rande dargestellt werden.

Kapitel 2

Grundlagen

In diesem Kapitel wird zunächst ein kurzer Überblick über Magnetismus, im speziellen Ferromagnetismus der 3d-Übergangsmetalle, gegeben. Der Tunnelmagnetowiderstandseffekt wird anhand des vereinfachenden Jullière-Modells vorgestellt, für das verwendete Probensystem wird das Konzept des *kohärenten Tunnelns* eingeführt, dass den Giant TMR erklären soll.

2.1 Magnetismus

Es existieren zwei grundlegende Arten von Magnetismus, die auf lokalisierten Effekten beruhen und in jedem Material vorkommen. Zum einen werden durch magnetfeldinduzierte Kreisströme Dipolmomente erzeugt. Die Magnetisierung M , die als Dichte der magnetischen Momente definiert ist und den magnetischen Zustand eines Materials beschreibt, richtet sich entgegengesetzt zum externen Feld aus. Dieser Effekt wird als *Diamagnetismus* bezeichnet. Andererseits tritt *Paramagnetismus* auf, der auf der Ausrichtung bereits vorhandener magnetischer Momente im Feld beruht. Die Momente sind dabei durch Spin und Bahndrehimpuls der Elektronen gegeben und führen zu einer Magnetisierung in Feldrichtung. Die *magnetische Suszeptibilität* χ stellt die Proportionalitätskonstante zwischen Magnetisierung M und magnetischer Feldstärke H dar, es gilt

$$M = \chi H, \quad (2.1)$$

wobei H über die Permeabilität μ mit der magnetischen Flussdichte B über

$$B = \mu H = \mu_0(M + H) = \mu_0(\chi + 1) H \quad (2.2)$$

verknüpft ist (μ_0 steht für die Vakuum-Permeabilität). Je nachdem, welcher Effekt überwiegt, wird ein Material als dia- oder paramagnetisch bezeichnet, die Suszeptibilität ist dann negativ bzw. positiv.

In einigen Materialien treten magnetische Phänomene auf, die auf kollektiven Elektronen-Effekten beruhen und einen itineranten Charakter besitzen. Vermittelt durch die *Austauschwechselwirkung* kann eine spontane Magnetisierung ohne externes Magnetfeld auftreten. Dieser Effekt basiert auf einer durch Elektronen-Korrelationen hervorgerufenen Energieabsenkung bei (Anti-)Parallelausrichtung benachbarter Spins.

Je nach Art der sich einstellenden magnetischen Ordnung unterscheidet man zwischen *Ferromagnetismus* (FM) und einigen anderen Erscheinungen, wie etwa Antiferro- und Ferrimagnetismus¹. Ferromagnetische Materialien weisen eine Parallelstellung ihrer magnetischen Momente auf. Aufgrund einer wesentlich größeren Suszeptibilität werden die oben genannten, lokalisierten Effekte überdeckt. Oberhalb einer kritischen Temperatur, der Curie-Temperatur T_C , geht diese Ordnung jedoch wieder verloren. Eine Magnetisierung erfolgt dann nur noch im externen Feld, das Verhalten ist wieder para-/diamagnetisch.

Die Magnetisierung im Inneren einer Probe verursacht ein Streufeld außerhalb des Materials. Um die für die Erzeugung eines solchen Dipolfeldes aufzubringende Energie zu minimieren, kann die magnetische Ordnung in einzelne Bereiche mit einheitlicher Magnetisierung, die sogenannten Domänen oder Weiss-Bezirke, zerfallen. Da für die damit verbundene Bildung von Grenzflächen innerhalb der Probe ebenfalls Energie aufgebracht werden muss, bildet sich eine solche magnetische Mikrostruktur nur aus, wenn dadurch ein Energiegewinn gegenüber dem Auftreten eines Streufeldes gewonnen werden kann.

Ohne äußeres Feld gleichen sich die magnetischen Momente der Domänen eines Materials aus, erst durch Anlegen eines Feldes ändert sich die makroskopische Magnetisierung. Dies geschieht über das Verschieben der Domänenwände und eine damit verbundene Vergrößerung der Domänen, die bereits in Feldrichtung ausgerichtet sind, bis eine Sättigungsmagnetisierung erreicht wird. Gitterfehler, Korngrenzen oder innere Spannungen wirken als Widerstand auf die Domänenwand-

¹ Antiferromagnetische bzw. ferrimagnetische Ordnung bedeutet, dass Untergitter mit unterschiedlichen Ausrichtungen der magnetischen Momente existieren. Dies führt z.B. zu paarweise antiparalleler Ausrichtung der Spins bzw. zu Ebenen mit gleichen Spins, die mit wechselnder Ausrichtung auftreten.

Verschiebung, dies führt zu einer sprunghaften Änderung der Magnetisierung (Barkhausen-Effekt). Außerdem lässt sich ein Hystereseverhalten beobachten: Der Verlauf der Magnetisierung im Feld hängt von der Vorgeschichte ab. Wird das äußere Feld ausgeschaltet, bleibt eine Restmagnetisierung (Remanenz) bestehen; um M auf Null zu bringen, wird ein Gegenfeld, das Koerzitivfeld, benötigt.

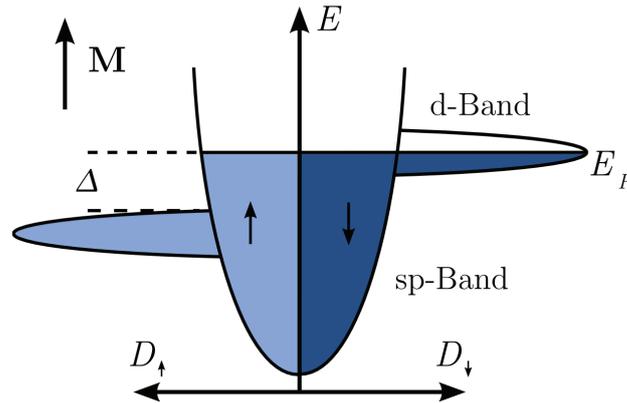


Abbildung 2.1: Bandaufspaltung im Stoner-Modell: Die Zustandsdichten sind um die Austauschenergie verschoben. In diesem Fall tragen die Spin-Up-Elektronen auf linken Seite den Majoritätsspin (bedingt durch die Ausrichtung zur Magnetisierung). Δ steht für die Stoner-Energielücke.

Für die klassischen ferromagnetischen Materialien, wie Eisen, Kobalt und Nickel aus der Klasse der 3d-Übergangsmetalle, lässt sich, im Rahmen des *Stoner-Modells*, das ferromagnetische Verhalten über die Betrachtung der Bandstruktur beschreiben. Verursacht durch die Austauschwechselwirkung besteht ein Energieunterschied zwischen Elektronen mit verschiedenen Spins. Dies verursacht eine Aufspaltung der Bandstruktur. Dabei sind die beiden Zustandsdichten, wie in *Abbildung 2.1* dargestellt, auf der Energieskala um die Austauschenergie gegeneinander verschoben, behalten ihre Form jedoch bei. Aus diesem Bild folgt nun der Begriff der *Spinpolarisation* P , es gilt

$$P = \frac{D_{\uparrow}(E_F) - D_{\downarrow}(E_F)}{D_{\uparrow}(E_F) + D_{\downarrow}(E_F)}. \quad (2.3)$$

Dabei stehen die $D_{\uparrow}(E_F)$ für die Zustandsdichten der beiden Spinsorten bei der Fermienergie E_F . Die Elektronen in dem Teil der Zustandsdichte, deren Bänder eine größere Population aufweisen, repräsentieren den Majoritätsspin, die im schwächer besetzten Bereich entsprechend den Minoritätsspin. Dabei wird die Spin-Ausrichtung durch die Magnetisierung gegeben: die Spins der Majoritätselektronen zeigen nach

Konvention in Richtung von \mathbf{M} . Die Austauschspaltung hat den Betrag IP , wobei I für den materialspezifischen Stoner-Parameter steht, der der Energieverminderung durch die Elektronenkorrelation Rechnung trägt. Ein Material ist im Stoner-Bandmodell ferromagnetisch, wenn

$$I \cdot D(E_F) > 1 \quad (2.4)$$

erfüllt ist, also Gesamtzustandsdichte D und Bandaufspaltung groß sind. Diese Ungleichung wird als Stoner-Kriterium bezeichnet.

Die 3d-Elektronen dominieren das ferromagnetische Verhalten im Bandmodell, da die d-Bänder in der Nähe der Fermienergie sehr viele Elektronen beinhalten und gleichzeitig sehr schmal sind. Hinzu kommt, dass für diese Bänder die Aufspaltung besonders groß ist. Der einzige in diesem Modell erlaubte Spinumklappmechanismus ist der Interbandübergang, für den eine minimale Anregungsenergie Δ benötigt wird. Dabei entspricht Δ der Stoner-Energielücke, die als die Energiedifferenz zwischen Oberkante des d-Bandes der Majoritätselektronen und der Fermienergie definiert ist.

Bedingt durch verschiedene Faktoren, wie Kristallsymmetrie, äußere Form, Spannungsfelder oder Druck, können für die Ausrichtung der Magnetisierung in einem Material verschiedene Achsen ausgezeichnet sein. Die bevorzugte Achse wird als *leichte Achse* bezeichnet, um \mathbf{M} aus dieser herauszudrehen, muss Energie aufgebracht werden, die sogenannte Anisotropie-Energie. Ohne eine solche magnetische Anisotropie ließe sich keine makroskopische Magnetisierung beobachten, da sich im Material, bedingt durch die begrenzte Reichweite der Austauschwechselwirkung, Wirbel ausbilden würden. In dünnen Schichten, wie in den in dieser Arbeit betrachteten magnetischen Tunnelkontakten, liegt die leichte Achse aufgrund der magnetischen Form-Anisotropie in der Ebene der Schicht. Da die aufzubringende Energie für eine senkrechte Ausrichtung sehr groß ist, beobachtet man nur Magnetisierung in der Ebene (in plane-Magnetisierung) [SS06, Teil II], [IL02, Kapitel 8].

2.2 Tunnel-Magneto-Widerstandseffekt

Im Allgemeinen wird eine Änderung des elektrischen Widerstandes im äußeren Magnetfeld als Magneto-Resistivitäts-Effekt (MR) bezeichnet. Es ist eine ganze Reihe verschiedener Effekte dieser Art bekannt, hier soll das Verhalten von FM/I-

solator/FM-Übergängen untersucht werden, die den Tunnelmagnetowiderstandseffekt (TMR) zeigen.

Wie bereits in Kapitel 1 angedeutet, lassen sich, je nach relativer Magnetisierung der beiden FM-Elektroden, zwei unterschiedliche Widerstandszustände herstellen. Das Magnetoresistivitäts-Verhältnis (MR Ratio) ist definiert als der Quotient aus der Widerstands-Änderung und dem niedrigeren der beiden möglichen Widerstands-Zustände:

$$\text{TMR} = \frac{\Delta R}{R_p} = \frac{R_{ap} - R_p}{R_p} \quad (2.5)$$

Diese Definition wird auch als „optimistischer MR“ bezeichnet². Wie hier bereits geschehen, wird im Folgenden die Abkürzung TMR auch für das optimistische MR-Verhältnis von magnetischen Tunnелеlementen verwendet.

2.2.1 Magnetische Tunnelkontakte

Um in FM/Isolator/FM-Übergängen, die als *magnetische Tunnelkontakte* (Magnetic Tunnel Junction, MTJ) bezeichnet werden, durch ein äußeres Magnetfeld verschiedene relative Magnetisierungsausrichtungen der Elektroden erreichen zu können, stehen prinzipiell zwei Möglichkeiten zur Verfügung. Am naheliegendsten ist es, eine der Elektroden festzuhalten (zu pinnen), die dann als Referenzlayer bezeichnet wird, während sich die andere frei im externen Feld ausrichten kann. Dies kann z.B. durch Kopplung an einen Antiferromagneten geschehen, was eine Verschiebung der Hysterese-Schleife entlang der Feldachse zur Folge hat. Dieser Effekt wird als Exchange Bias (EB) bezeichnet und führt zu abweichenden Schaltfeldern: Die freie Elektrode lässt sich (in einem gewissen Feldbereich) schalten, während die andere ihre Magnetisierungsausrichtung behält. Solche Systeme werden (Exchange Bias-) *Spinventil* (EB-SV) genannt und finden im industriellen Umfeld Verwendung, dabei kommen häufig synthetische Ferrimagnetstrukturen (SyF) zum Einsatz³. Diese pinnen den Referenzlayer durch einen weiteren, antiferromagnetisch gekoppelten FM per Zwischenschichtkopplung (für Einzelheiten siehe [YNF⁺04, Fig. 20], [Was03, Kapitel 4],[SS06, Teil II, Kapitel 13]).

² Der „pessimistische MR“ bezeichnet das Verhältnis der Widerstandsänderung zum größeren Widerstand.

³ Spinventil-Systeme mit synthetischem Ferrimagneten sind bereits von GMR-Systemen wohlbekannt. Es ist daher erstrebenswert TMR-Elemente so zu konstruieren, dass sie mit diesen Systemen kombiniert werden können.

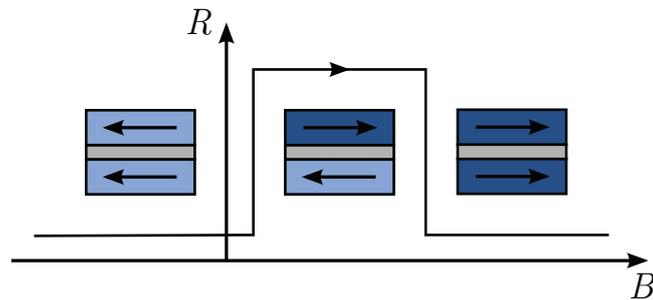


Abbildung 2.2: Widerstandsverlauf eines MTJ in Pseudo-Spinventil-Konfiguration im äußeren Magnetfeld. Das Erreichen der Widerstandszustände hängt von der Magnetisierungsgeschichte des Systems ab, die Schaltfelder werden über die Schichtdicken eingestellt.

Im hier verfolgten Ansatz hingegen wird dafür gesorgt, dass die Elektroden ihre Magnetisierung bei unterschiedlichen Feldstärken ändern, indem man die Koerzitivfeldstärken H_C über die Schichtdicke einstellt. Dies erlaubt einfachere Proben-Systeme. Die relative Elektrodenausrichtung, und somit der Widerstandszustand, hängt jedoch immer von der Vorgeschichte der Magnetisierung ab. *Abbildung 2.2* zeigt den Widerstandsverlauf: Zunächst wird im starken negativen Feld der parallele Zustand (p-Zustand; niedriger Widerstand) hergestellt. Verfährt man das Feld in den positiven Bereich, so gelangt das System in den antiparallelen Zustand, indem zunächst die Elektrode mit dem geringeren H_C schaltet. Vergrößert man das Feld weiter, so schaltet auch die zweite Elektrode, das System gelangt wieder in den p-Zustand, nun allerdings mit umgekehrter Ausrichtung. Eine solche Struktur wird als *Pseudo-Spinventil* (P-SV) bezeichnet.

2.2.2 Jullières Modell

Nach dem Modell von Jullière wird der Tunnelprozess für Majoritäts- und Minoritätsspins als eine Parallelschaltung zweier Spinkanäle beschrieben. Die Tunnelwahrscheinlichkeit und damit der Tunnelstrom der Kanäle ist jeweils proportional zur Zustandsdichte an der Fermikante. Dabei ist die Tunnelwahrscheinlichkeit für alle elektronischen Zustände (des jeweiligen Kanals) gleich.

Abbildung 2.3 zeigt die beiden Konfigurationen: Bei paralleler Ausrichtung stimmen in beiden Kanälen die Anzahlen der Anfangs- und Zielzustände, gegeben durch die besetzten/freien Zustände in der Nähe der Fermienergie, überein. Der Gesamt-

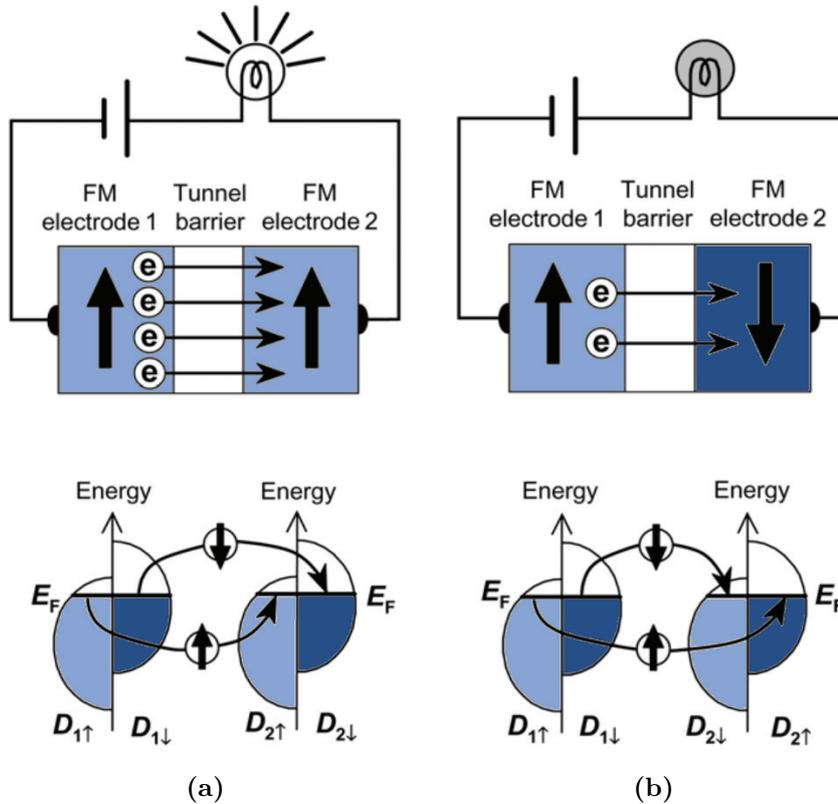


Abbildung 2.3: Beschreibung des TMR-Effekts nach Jullière. MTJ-Leitfähigkeit und Zustandsdichten (Zwei-Spinkanal-Modell) bei paralleler (a) und anti-paralleler (b) Konfiguration der Elektroden. Der Tunnelstrom hängt von den Zustandsdichten an der Fermikante $D(E_F)$ ab [YD07].

widerstand ist gering, da immer einer der beiden Kanäle eine hohe Leitfähigkeit besitzt. Im antiparallelen Fall stimmen die Zahlen der Anfangszustände nicht mit den freien Plätzen im entsprechenden Band auf der anderen Seite überein, beide Kanäle weisen einen hohen Widerstand auf.

Der spinabhängige Charakter des Tunnelprozesses, auf dem der TMR beruht, lässt sich über die in Gleichung 2.3 definierten Spinpolarisationen der beiden Elektroden ausdrücken, es gilt

$$\text{TMR} = \frac{2 P_1 P_2}{1 - P_1 P_2}. \quad (2.6)$$

Für Elektrodenmaterialien mit einer hohen Spinpolarisation erwartet man also eine große Widerstandsänderung und damit einen großen TMR.

Im Jullière-Modell wird vorausgesetzt, dass der Tunnelprozess elastisch erfolgt,

der Spin also erhalten bleibt. Zudem wird die Tunnelwahrscheinlichkeit für alle elektronischen Zustände (pro Spinsorte) als gleich angenommen. Das Modell ist zwar zur phänomenologischen Beschreibung des TMR geeignet, für quantitative Aussagen müssen jedoch Anpassungen, wie etwa die Annahme einer asymmetrischen Barriere oder die Berücksichtigung inelastischer Tunnelprozesse, vorgenommen werden [Jul75].

2.2.3 Kohärentes Tunneln

Abbildung 2.4 zeigt einen Ausschnitt der Bandstruktur von Fe in bcc-Struktur für k-Vektoren zwischen Γ - und H-Punkt, die also in (001)-Richtung zeigen. Das Δ_1 -Band (Blochzustände mit spd-Symmetrie, dominiert durch den s-Anteil) weist eine vollständige, positive Spinpolarisation auf: bei E_F gibt es keine besetzten Zustände im Minoritätsband $\Delta_{1\downarrow}$. Könnte man den Tunnelprozess auf diese Zustände beschränken, würde dies zu sehr hohen TMR-Werten führen. Die Verwendung einer MgO-Barriere führt zu einem Symmetrie-Filter-Effekt, der sich für so etwas ausnutzen lässt.

Bedingt durch eine recht geringen Gitter-Fehlanpassung von etwa 3% lassen sich epitaktische Fe(001)/MgO(001)/Fe(001)-Systeme in bcc-Struktur herstellen,

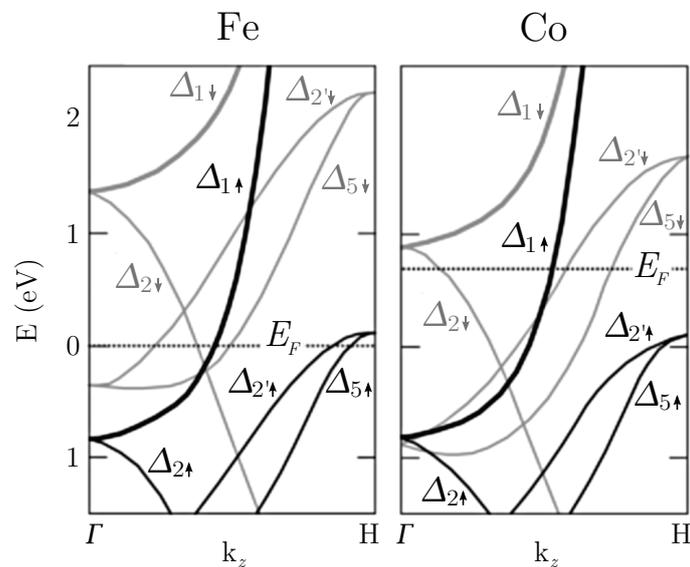


Abbildung 2.4: Bandstruktur von Fe und Co in (001)-Richtung: Die Δ_1 -Zustände weisen eine vollständige (positive) Spinpolarisation auf [YNF⁺04].

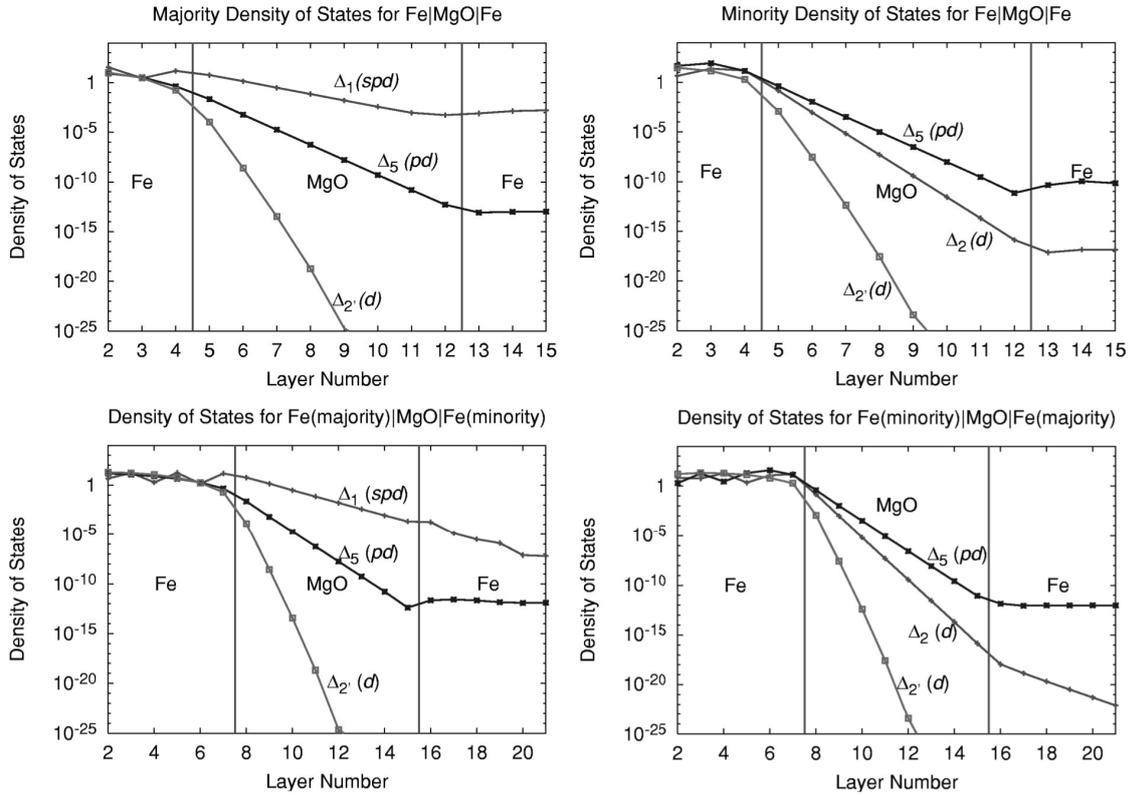


Abbildung 2.5: Berechnete Tunnelzustandsdichten der beteiligten Bänder in Fe, die Bezeichnungen entsprechen den einlaufenden Blochzuständen, die mit den Abklingzuständen der Barriere koppeln. Die Δ_1 -Zustände dominieren aufgrund ihrer geringen Abklingrate in MgO den Tunnelprozess [BZSM01].

in denen die Blochzustände der Elektroden mit den Abklingzuständen der Barriere koppeln können. Dabei koppeln die Δ_1 - und Δ_5 -Zustände mit entsprechenden Abklingzuständen gleicher Symmetrie. Durch die Rotation der Gitterausrichtung am Übergang zwischen Elektrode und Barriere um 45° , koppeln die Δ_2 - in die Δ_2' -Zustände und umgekehrt. Bleibt die Symmetrie der Zustände erhalten, so spricht man vom *kohärenten Tunnelprozess*. Die hier betrachteten Blochzustände besitzen Wellenvektoren, die keinen Beitrag außerhalb der (001)-Richtung haben, da hier die Tunnelwahrscheinlichkeit am größten ist.

Je nach Ausrichtung der Ausgangselektrode koppeln unterschiedliche Zustände in die Barriere ein. Damit die Zustände einen Beitrag zum Strom leisten können, muss die Zielelektrode freie Zustände mit entsprechender Symmetrie bereitstel-

len. Die Tunnelzustandsdichten der beteiligten Zustände besitzen unterschiedliche Abklingraten: Wie die beiden oberen Graphen in [Abbildung 2.5](#) zeigen, leisten sowohl im Majoritäts- als auch im Minoritäts-Kanal die Δ_5 -Elektronen lediglich einen kleinen Beitrag zum Strom, die $\Delta_{2'}$ -Zustände klingen jeweils noch in der Barriere vollständig ab. Einen ebenfalls kleinen Beitrag zum Tunnelstrom leisten die $\Delta_{2\downarrow}$ -Elektronen, lediglich die, nur im Majoritätskanal vorhandenen, $\Delta_{1\downarrow}$ -Zustände weisen eine große Reichweite auf. Der Tunnelstrom wird demnach durch die $\Delta_{1\uparrow}$ -Elektronen dominiert.

Die beiden unteren Graphen in [Abbildung 2.5](#) zeigen die Tunnelzustandsdichten bei antiparalleler Konfiguration für die beiden Kanäle Majoritätsband \rightarrow Minoritätsband und umgekehrt. Die $\Delta_{1\uparrow}$ -Elektronen haben keine freien Zielzustände im $\Delta_{1\downarrow}$ -Band, dies führt zu Totalreflektion. Das $\Delta_{2\uparrow}$ -Band besitzt keine besetzten Zustände um die Fermiekante herum und die einlaufenden $\Delta_{2\uparrow}$ -Zustände klingen sehr schnell ab. Lediglich die $\Delta_{5\uparrow}$ -Elektronen führen zu einem Tunnelstrom. Insgesamt ist der Tunnelstrom jedoch wesentlich kleiner, als im parallelen Fall. Ähnliche Eigenschaften weisen auch Systeme mit Co- und CoFe-Elektroden auf, dabei wird ein TMR von mehr als 1000 % erwartet [[BZSM01](#), [MU01](#)].

[Abbildung 2.6](#) stellt den kohärenten dem inkohärenten Tunnelprozess gegenüber, den Jullières Modell beschreibt. Hier bleibt die Symmetrie nicht erhalten, die Tun-

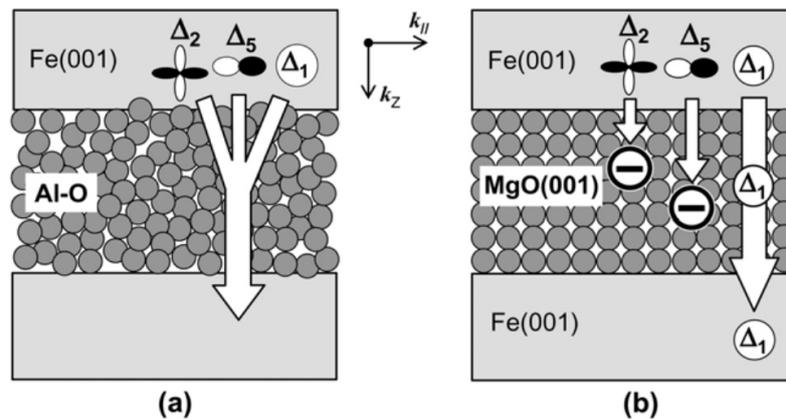


Abbildung 2.6: Nicht-kohärentes Tunneln mit amorpher Barriere: die Symmetrie der elektronischen Zustände, die am Tunnelprozess teilnehmen, bleibt nicht erhalten (a) und kohärentes Tunneln in epitaktischen Fe/MgO/Fe-Systemen (b) mit bcc(001)-Struktur: die Blochzustände koppeln mit Abklingzuständen gleicher Symmetrie in der Barriere, die Δ_1 -Zustände dominieren den Tunnelprozess [[YD07](#)].

nelwahrscheinlichkeit ist für alle elektronischen Zustände gleich. Die zuvor erwähnten MTJ, die auf amorphem AlO_x -Barrieren beruhen, zeigen eher inkohärentes Verhalten, liegen aber zwischen diesen beiden Extremfällen.

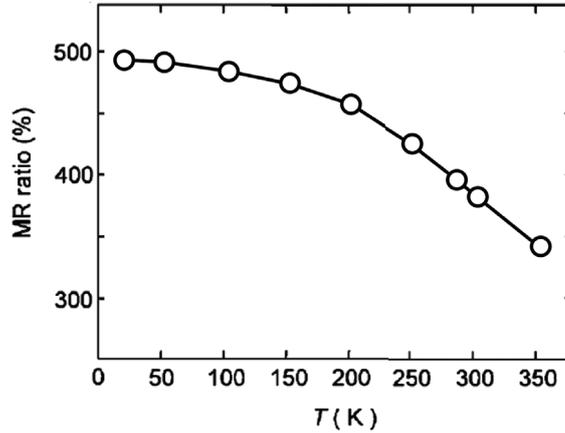


Abbildung 2.7: Temperatur-Abhängigkeit des TMR [NM06].

Wie bereits eingangs erwähnt, zeigt der TMR eine starke Temperaturabhängigkeit. Während bei niedrigen Temperaturen Werte erreicht werden können, die an die Voraussagen heranreichen, kann der Effekt mit zunehmender Temperatur nicht mehr in so starker Ausprägung beobachtet werden. Die Leitfähigkeit von Tunnelübergängen, auch für nichtmagnetische Elektroden-Materialien, ist temperaturabhängig: bei höheren Temperaturen geht der Tunnelwiderstand durch thermische Anregungen zurück. In MTJ ist diese Abhängigkeit für den antiparallelen Fall deutlich größer als für den parallelen Zustand. Insgesamt fällt der TMR also, wie in *Abbildung 2.7* dargestellt, mit zunehmender Temperatur ab. Neben thermischen Anregungen tragen Magnonenstreuung und andere Spinflip-Prozesse zu diesem Verhalten bei.

Kapitel 3

Experimentelle Methoden

In diesem Kapitel wird das Probensystem vorgestellt und die experimentellen Methoden erläutert, die zur Herstellung und Charakterisierung der magnetischen Tunnelkontakte verwendet werden. Im Mittelpunkt steht dabei der Strukturierungsprozess, die wesentlichen Methoden sind die optische Lithographie und das Sputterätzen.

3.1 Probensystem

Gegenstand der Untersuchungen sind MgO-Tunnelelemente in Pseudo-Spinventil-Konfiguration. Zur Übersicht stellt [Abbildung 3.1](#) die Bestandteile des Probensystems dar, im Folgenden sollen die einzelnen Bestandteile diskutiert werden.

Wie in [Abschnitt 2.2.3](#) erläutert wurde, ist für epitaktische Systeme mit MgO-Barriere ein sehr großer TMR zu erwarten. Wichtig für das kohärente Tunneln ist

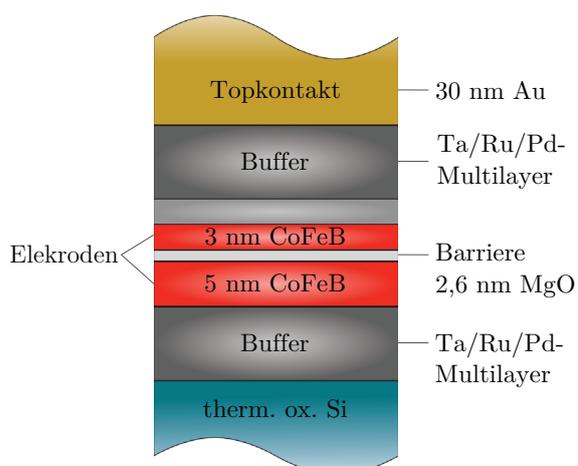


Abbildung 3.1: Schnitt durch den Schichtstapel eines typischen Tunnelelements (mit Bufferschichten) in Pseudo-Spinventil-Konfiguration. Um kohärentes Tunneln zu ermöglichen, werden die Elektroden durch Annealing kristallisiert. Zur Unterstützung der Kristallisation werden Ta/Ru/Pd-Bufferlayer verwendet, durch eine zusätzlich Co-Schicht erhält die obere Elektrode eine größere magnetische Härte.

dabei eine einheitliche Kristallinität mit bcc-Struktur in (001)-Richtung und glatte Grenzflächen.

Für die Elektroden wird hier CoFeB verwendet, dieses wächst von sich aus amorph (im Gegensatz zu CoFe). Dies birgt den Vorteil, dass die FM auf beliebigen Unterlagen, wie etwa den in [Abschnitt 2.2.1](#) erwähnten synthetischen Ferrimagneten, hergestellt werden können. Zudem lässt sich eine sehr geringe Interface-Rauhigkeit erwarten. Andererseits muss dafür gesorgt werden, dass die Elektroden in der passenden Weise kristallisieren.

Dies kann durch Annealing bei Temperaturen um 350 °C erreicht werden, dabei geht die Kristallisation der Elektroden von den Grenzflächen zur MgO-Barriere aus. MgO wächst auch auf amorphem Untergrund in bcc(001)-Struktur und fungiert nun gewissermaßen als Template für bcc(001)-CoFe. Durch diese Behandlung erhält man also das geforderte CoFe/MgO/CoFe-System. Was mit dem Bor geschieht, ist unklar, in Frage kommt etwa eine Diffusion in die Barriere [[KBL⁺07](#)].

Es ist jedoch nicht notwendig, dass die Elektroden vollständig kristallisieren: [Abbildung 3.2](#) zeigt den Zusammenhang von TMR und Ausdehnung des kristallinen

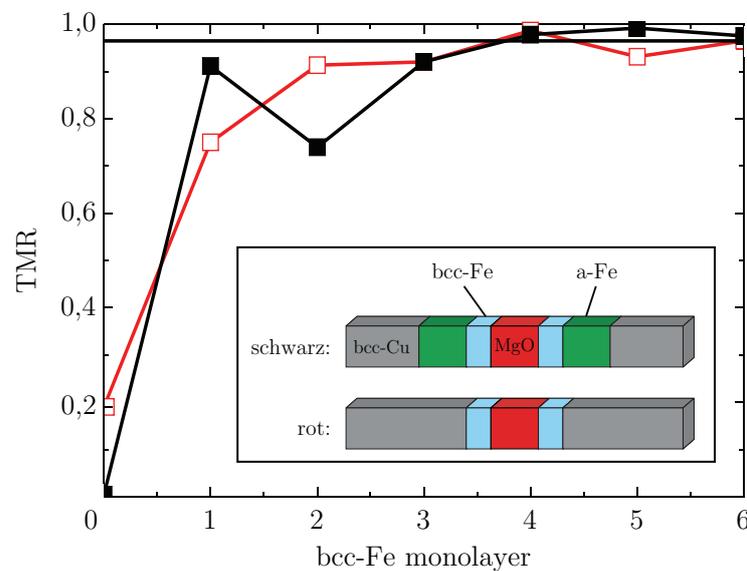


Abbildung 3.2: Normierter TMR in Abhängigkeit von der Dicke der kristallinen Fe-Schicht an der Grenzfläche zur Barriere. Bereits nach wenigen Monolagen wird der volle TMR eines Systems mit vollständig kristallinen Elektroden erreicht. Die schwarze Kurve beschreibt das Verhalten eines Systems, dessen Elektroden aus amorphen und kristallinen Teilen zusammengesetzt sind [[HGZM07](#)].

Bereichs für ein System mit teilweise kristallisierten Elektroden nach Berechnungen von Heiliger et al. Es zeigt sich, dass bereits wenige Monolagen kristallinen CoFe ausreichen, um einen hohen TMR zu erzielen [HGZM07].

Für kohärentes Tunneln, und damit für einen großen TMR-Effekt, ist das Annealing also notwendig. Dabei hat die Annealing-Temperatur T_a einen gewissen Einfluss auf die Größe des TMR: Wie in [Abbildung 3.3](#) dargestellt, steigt der TMR mit T_a zunächst beträchtlich an. Für Systeme mit Exchange Bias bricht der TMR aber oberhalb von etwa 400 °C stark ein, während er hingegen für Pseudo Spin Valves nur bei sehr hohen Temperaturen zurückgeht.

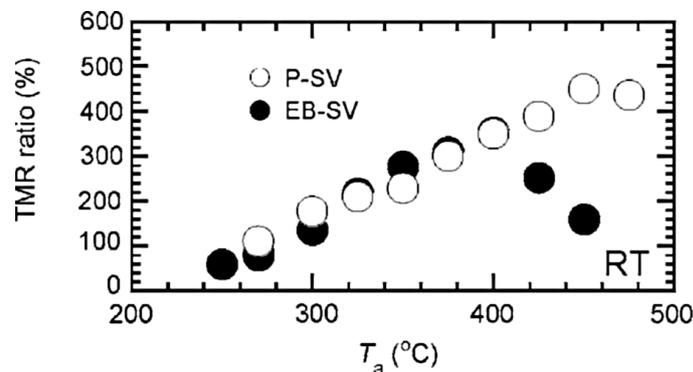


Abbildung 3.3: TMR in Abhängigkeit von der Annealing-Temperatur für Elektroden in $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ -Zusammensetzung. Der Zusammenbruch des TMR von Exchange Bias Spin Valves wird der Diffusion von Mn/Ru an die Barriere zugeschrieben [HIL⁺06].

Als Ursachen für das Abknicken bei Proben mit EB kommen mehrere Mechanismen in Frage: Es können Diffusionsprozesse von Mn aus dem Antiferromagneten und/oder Ru aus der Zwischenschicht des SyF in die Elektroden bis hin zur Barriere stattfinden, die die Kristallinität des CoFe und die atomare Ordnung am MgO-Interface stören können. Für große Temperaturen kann auch das pinning durch den SyF vermindert werden, im AP-Zustand würden die Elektroden keine vollständige antiparallele Magnetisierungsausrichtung mehr erreichen. Eine weitere Möglichkeit besteht darin, dass die Elektroden in falscher Struktur oder Orientierung (z.B. fcc oder bcc(111)) wachsen. Als die wesentliche Ursache wird jedoch die Diffusion zur Barriere angesehen [IHL⁺06, HIL⁺06, NM06].

Der Annealing-Prozess sorgt des Weiteren dafür, dass Kristallfehler ausgeheilt und die Grenzflächen (auch bei hohen Temperaturen) glatter und sauberer werden.

Neben dem tatsächlichen magnetischen Tunnelkontakt enthält das Probensystem

noch Bufferlayer und eine Co-Schicht. Wie in [Abschnitt 2.2.1](#) beschrieben, benötigt man für P-SV-Systeme Elektroden mit verschiedenen Schaltfeldern. Diese sollen über unterschiedliche Schichtdicken eingestellt werden, bei den hier dargestellten Proben wird die obere Elektrode zusätzlich an eine hartmagnetische Co-Schicht gekoppelt. Um die Magnetisierungsausrichtung dieser Elektrode zu ändern benötigt man ein deutlich größeres Magnetfeld, als für die andere, „freie“, Elektrode.

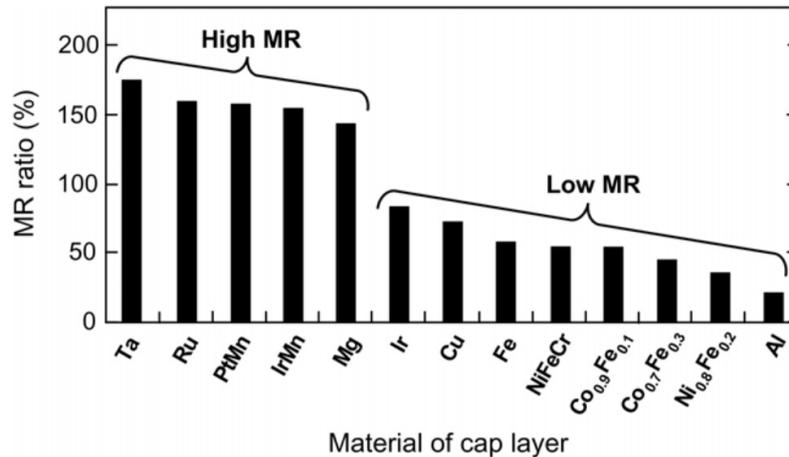


Abbildung 3.4: Einfluss der Bufferlayer-Materialien auf den TMR. Insbesondere Ta und Ru können die Kristallisation der Barrieren unterstützen [TDN⁺05].

Nach Untersuchungen von Tsunekawa et al. hat das Material der an die Elektroden angrenzenden Cap- und Seedlayer (hier als Bufferlayer bezeichnet) einen gewissen Einfluss auf den TMR. [Abbildung 3.4](#) zeigt die Werte für eine Reihe von Materialien, die typischerweise in MTJs Verwendung finden. Für MTJs ohne Exchange Bias (PtMn und IrMn werden zur antiferromagnetischen Kopplung verwendet) sind insbesondere Ta und Ru von Bedeutung. Proben mit solchen Bufferlayern haben eine vergleichsweise hohen TMR, da diese die Kristallisation der Elektroden nicht stören. Beispielsweise würde NiFe, das auf amorphem Untergrund als fcc(111) wächst, zu einer Kristallisation der Elektroden in eben dieser Struktur führen und kohärentes Tunneln behindern [TDN⁺05]. Die hier verwendeten Bufferlayer bestehen i.d.R. aus Multilayern, zum Einsatz kommen etwa Ta, Ru und Pd.

3.2 Schichtpräparation und -wachstum

Ein Querschnitt durch einen typischen, den MTJ zugrunde liegenden, Schichtstapel wurde bereits in [Abbildung 3.1](#) gezeigt. Die Herstellung der CoFeB-Elektroden erfolgt per Sputtern, alle anderen Materialien werden per Elektronenstrahl-Deposition aufgebracht.

Die Herstellung der Schichtsysteme erfolgt in einer Ultrahochvakuum-(UHV)-Anlage⁴ mit einem Basisdruck von etwa 5×10^{-10} mbar. Diese verfügt über zwei separate Kammern, die größere der beiden beherbergt zwei Elektronenstrahl-Verdampfer mit Taschen für insgesamt acht Materialien und einen beheizbaren Probenhalter mit statischem Magnetfeld für das in situ Annealing. Die kleinere Kammer ist mit einer Magnetron-Sputter-Quelle mit $\text{Co}_{20}\text{Fe}_{60}\text{B}_{20}$ -Target bestückt. In [[Par07](#), Kapitel 3.1] wird die Anlage näher beschrieben.

Auf Substrate aus thermisch oxidiertem Silizium werden, falls gegeben, die Bufferlayer und das Elektroden-Barriere-System einschließlich des verstärkenden Co-Layers aufgebracht. Insbesondere die Dicke der Barriere muss sehr genau überwacht werden, da der Tunnelprozess empfindlich von dieser beeinflusst wird. Um die Reproduzierbarkeit zu erhöhen, wird hier neben der Aufdampftrate auch der Sauerstoff-Partialdruck überwacht.

Die Filme werden in situ bei Temperaturen um 350°C im Magnetfeld annealed, um das bei der Präparation amorph wachsende CoFeB kristallisieren zu lassen. Anschließend werden die oberen Bufferlayer und eine dünne Abdeckschicht aus Gold aufgedampft. Nach der magnetischen Charakterisierung per MOKE ([Abschnitt 3.4.1](#)) werden zuletzt noch die dickeren Goldkontakte aufgebracht.

MgO-Barriere, Buffer-, und Abdeckschichten werden per Elektronenstrahl-Verdampfen aufgebracht, die ferromagnetischen CoFeB-Elektroden werden gesputtert (Magnetron-Sputter-Deposition), die Goldkontakte werden per Widerstandsverdampfer hergestellt. Eine Einführung über Schichtwachstum und die verschiedenen Depositionsmethoden wird beispielsweise in [[Was03](#), Kapitel 8] gegeben.

3.3 Strukturierung der Tunnелеlemente

Um aus einem, wie im vorangehenden [Abschnitt 3.2](#) beschriebenen, Schichtstapel die in [Abschnitt 2.2.1](#) dargestellten magnetischen Tunnелеlemente herzustellen,

⁴ Ultrahochvakuum bedeutet einen Druck weniger als 10^{-9} mbar.

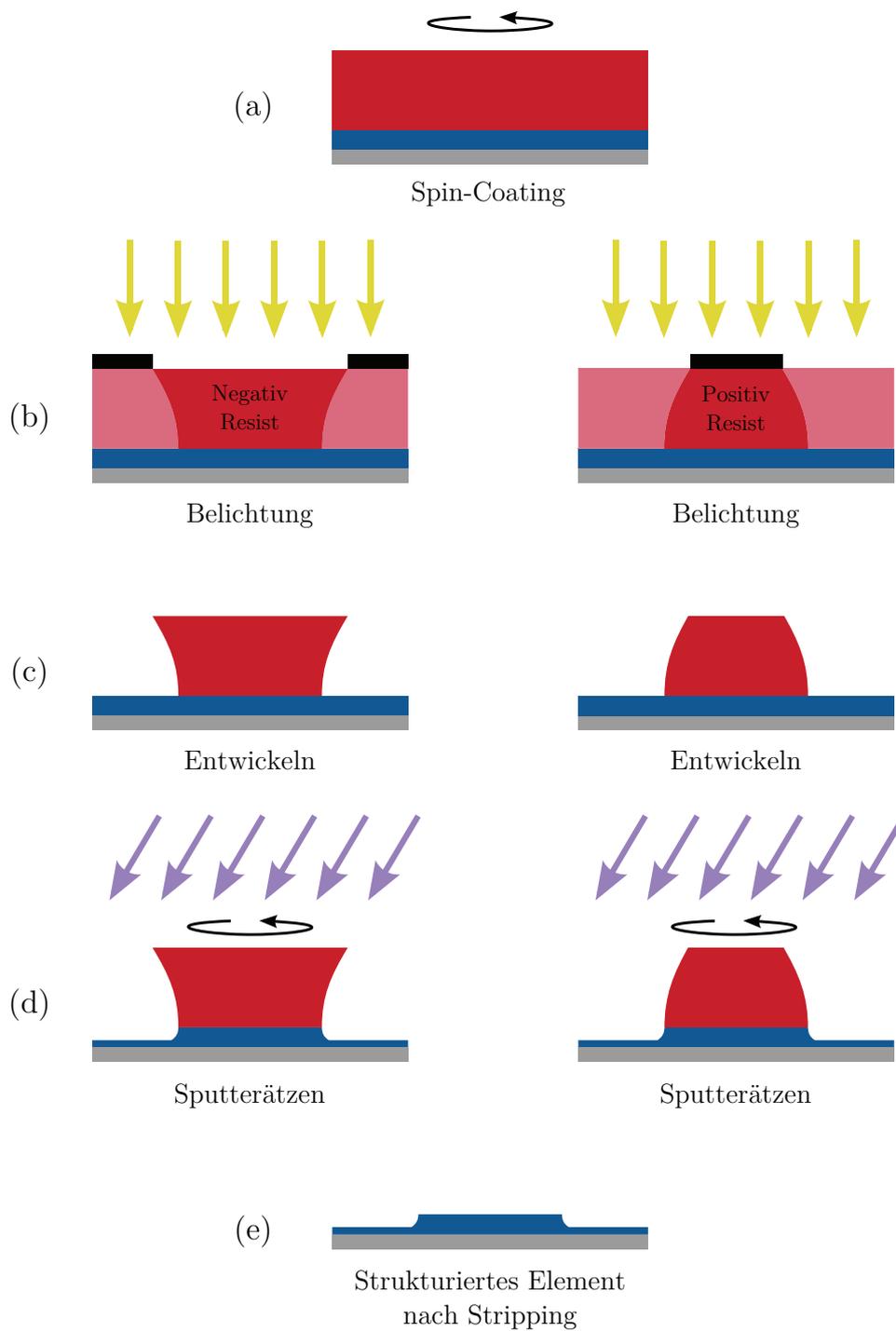


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung der Einzelschritte im Strukturierungsprozess für Negativ- und Postiv-Lack.

muss dieser lateral strukturiert werden. Ziel ist es, die Elemente einzeln elektrisch kontaktieren zu können, außerdem müssen die ferromagnetischen Elektroden elektrisch und magnetisch voneinander isoliert sein und möglichst vollständig freigelegt werden. Um dies zu erreichen, werden die Element-Strukturen durch optische Lithographie zunächst maskiert und anschließend per Sputterätzen aus dem Material herausgearbeitet. Die Prozess-Schritte werden in [Abbildung 3.5](#) schematisch dargestellt und im Folgenden näher erläutert.

3.3.1 Optische Lithographie

Die Lithographie ist im Allgemeinen eine Methode zum Musterübertrag von einer Vorlage auf eine Probe und ist eine der Schlüsseltechnologien in der Halbleiterproduktion. Ein Überblick über die verschiedenen Ausprägungen und Anwendungen wird in [\[Bre04\]](#) oder [\[Was03, Kapitel 9\]](#) gegeben, hier soll die verwendete optische Lithographie im Negativ-Verfahren näher beschrieben werden.

Die drei elementaren Komponenten sind eine Lichtquelle, eine Maske, die die Strukturierungsinformationen enthält, und der Photolack/-Resist. Die Bezeichnung Resist rührt daher, dass der Photolack in erster Linie in Ätzprozessen als gegen die Ätzmedien widerstandsfähige Maskierung eingesetzt wird.

Die Photolack-Beschichtung wird per *Spin-Coating* hergestellt, dabei wird das Substrat nach Aufbringen des Lacks in schnelle Rotation versetzt. Dabei wird der Lack gleichmäßig verteilt, überschüssiges Material wird abgeschieden. Man erhält somit zum einen eine homogene Schichtdicke, zum anderen lässt sich über die Variation der Rotationsgeschwindigkeit die Lackdicke einstellen. Der so aufgebraute Photolack wird bei Temperaturen von typischerweise 80-100 °C ausgebacken. Das Verdampfen des Lösungsmittels führt zu einem Aushärten des Lacks, der anschließend belichtet werden kann.

Die für die optische Lithographie verwendeten Photolacke sind i.d.R. polymerbasiert und sensitiv für Bestrahlung im UV-Bereich. Der hier verwendete Lack vom Typ Allresist AR-N 4240 ist ein *Negativ-Resist*⁵. Bei Belichtung beginnen die Polymerstränge zu vernetzen. Dies verringert die Löslichkeit durch den Entwickler, die belichteten Photolack-Bereiche bleiben also stehen, während der Rest der Belackung abgetragen wird. Die sich so ergebende Struktur entspricht einer Negativ-Abbildung der Maske auf der Probe. Werden die Polymerketten durch die Belichtung hingegen

⁵ Prozessanleitungen und Datenblätter finden sich im Anhang [Abschnitt A.1](#).

aufgebrochen, so steigt die Löslichkeit im Entwickler und die belichteten Bereiche werden abgetragen. In diesem Fall spricht man von einem *Positiv-Resist*. Wie [Abbildung 3.5b](#) andeutet, verursacht die Streuung an der Maske unterschiedliche Flankenverläufe für die beiden Prozesstypen. Der für die Tunnelemente verwendete Negativ-Prozess zeigt hier bereits einen Under-Cut bzw. Überhang in der Resist-Struktur, der durch den Entwicklungsprozess später noch verstärkt wird.

Für die Belichtung wird ein mask alligner der Fa. Süss verwendet, der auch das manuelle Positionieren der Maske für Mehrschritt-Prozesse erlaubt. Strukturierungsprozesse mit mehreren Lithographie-Schritten (u. U. auch mit Kombination von Negativ- und Positiv-Prozessen) sind notwendig, wenn Elemente mit sehr kleiner Fläche hergestellt und kontaktiert werden sollen oder Messungen in Vierpunktgeometrie und/oder bei tiefen Temperaturen durchgeführt werden sollen. Da dies jedoch aufwändig ist und Interesse an einem hohen Probendurchsatz besteht, werden die hier betrachteten Proben so hergestellt, dass sie sich mit der in [Abschnitt 3.4.1](#) beschriebenen Probestation für Transportmessungen einfach kontaktieren lassen.

Die verwendete Maske besteht aus einem Glassubstrat, auf das die Vorlagestruktur in Form einer absorbierenden Chromstruktur aufgebracht ist⁶. Bei der Belichtung werden Probe und Maske in direkten Kontakt gebracht, der per Vakuum-Ansaugung unterstützt wird. Dies ermöglicht im Vergleich zur Proximity-Lithographie eine höhere laterale Auflösung (siehe [\[Bre04\]](#), Kap 2.2), da Beugungseffekte vermieden werden. Gleichzeitig führt die Methode aber auch zu stärker Verschmutzung von Maske und Probe, unter Umständen können Beschädigungen an beiden auftreten. Bei den hier betrachteten Strukturen erweist sich dies allerdings als unkritisch, da die einzelnen Elemente im Vergleich zu Verschmutzungen wie z.B. Staubkörnern groß sind und weit auseinander liegen.

Die Struktur auf der Maske besteht aus einem 10×10 -Array von um 45° gedrehten Quadraten mit Kantenlängen zwischen $0,5$ und $30 \mu\text{m}$. Jede Reihe besitzt Elemente der gleichen Größe, der Element-Abstand in beide Richtungen beträgt $0,7 \text{ mm}$, [Abbildung 3.6](#) zeigt die Maske im Detail. Für die Transportmessungen lassen sich allerdings nur die Elemente der ersten beiden Reihen mit Kantenlängen von 30 bzw. $12,5 \mu\text{m}$ sinnvoll verwenden, die kleineren Elemente lassen sich mit der Probestation nicht mehr kontaktieren. Zudem gerät die optische Lithographie bei

⁶ Masken dieser Art werden i.d.R. per Elektronen-Strahl-Lithographie hergestellt, dabei werden die Informationen direkt per Elektronenstrahl in den Resist eingeschrieben.

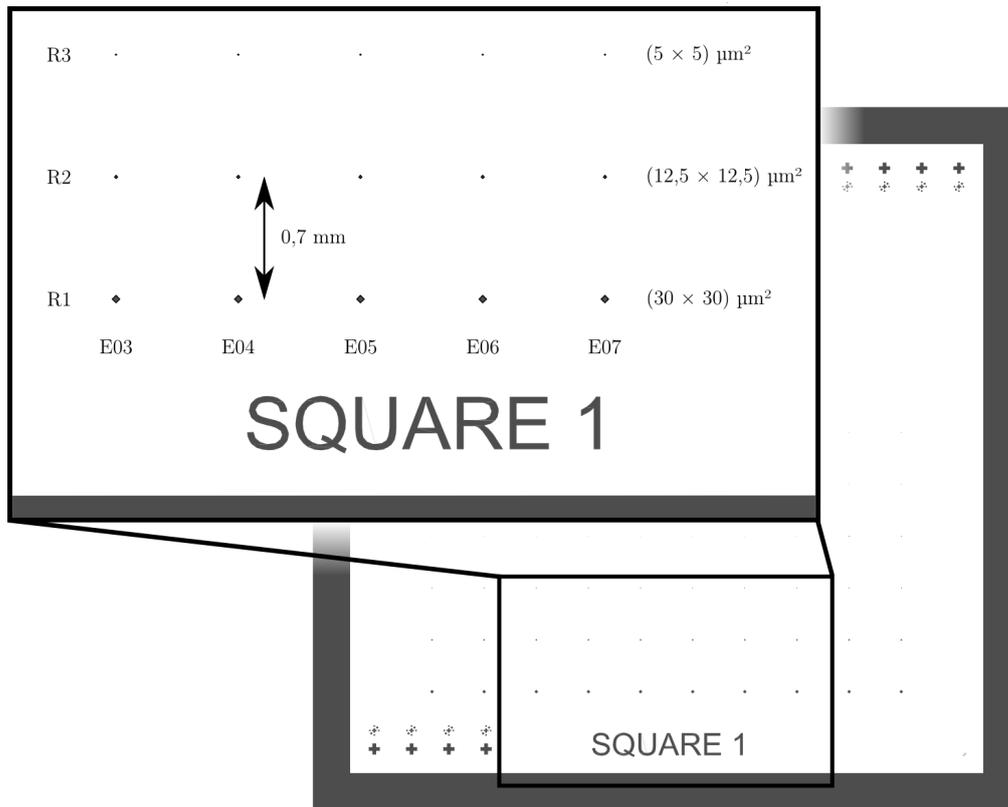


Abbildung 3.6: Maske für die optische Lithographie. Für elektrische Messungen lassen sich die größeren Elemente mit $(30 \times 30) \mu\text{m}^2$ bzw. $(12,5 \times 12,5) \mu\text{m}^2$ verwenden, die in Reihe 1 und 2 zu finden sind.

Strukturgrößen von einigen μm an ihre Auflösungsgrenze: Die minimale Strukturgröße hängt von der verwendeten Wellenlänge und der Resist-Schichtdicke ab, in diesem Fall wird die Auflösung im Wesentlichen durch die recht dicke Lackschicht von etwa $1,4 \mu\text{m}$ begrenzt.

Die Belichtungszeit wird so gewählt, dass man nach dem Entwickeln gerade den maximalen Kontrast zwischen belichteten und unbelichteten Bereichen erhält. [Abbildung 3.7](#) zeigt typische Kontrastkurven für Negativ- und Positiv-Resist in Abhängigkeit von der Belichtungs-dosis: Bei zu geringer Dosis bleibt in den belichteten Bereichen Lack stehen, bzw. der Lack behält nicht die volle Schichtdicke. Bei zu hoher Dosis kann die Auflösung durch Streuung an den Maskenkanten vermindert werden, indem eigentlich maskierte Bereiche mitbelichtet werden.

Vor dem Entwickeln wird der Negativ-Resist erneut ausgebacken, um die Polymerisation zu verstärken und somit die belichteten Bereiche noch einmal widerstands-

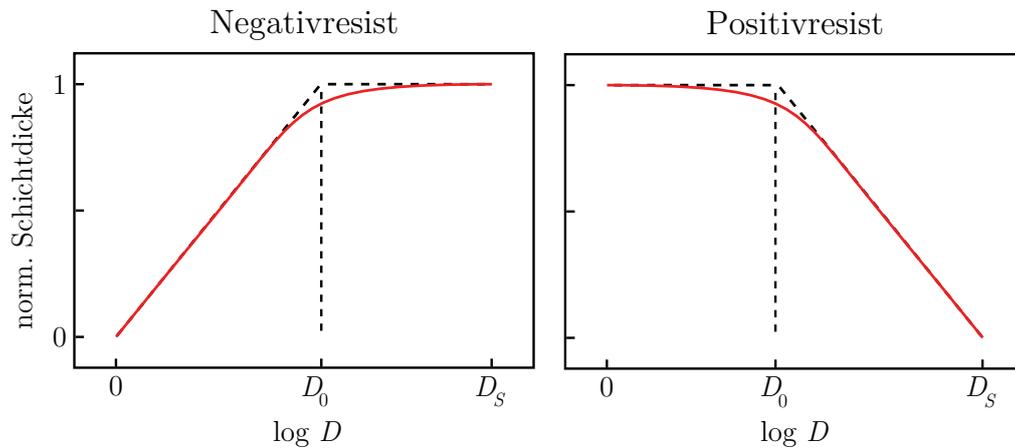


Abbildung 3.7: Kontrastkurven für Positiv- und Negativ-Resist. Normierte Lackdicke der belichteten Bereiche nach der Entwicklung, in Abhängigkeit von der Belichtungs-dosis D .

fähiger gegen den Entwickler zu machen. Die Entwicklung erfolgt durch Schwenken in einer wässrig-alkalischen Lösung, die anschließend in deionisiertem Wasser ausgespült wird. Durch eine Verlängerung der Entwicklungszeit ist es möglich, einen verstärkten Undercut in der Resistschicht zu erhalten. Wählt man die Entwicklungszeit hingegen zu lang, können sich die übertragenen Resist-Strukturen vom Untergrund ablösen. Verursacht durch diesen Undercut kann die Größe der Elemente nach dem Ätzen von der Maskenvorlage abweichen. Für Negativ-Resist sind diese prinzipiell kleiner, als auf der Vorlage.

Aus den so präparierten Schichtstapeln lassen sich nun die Tunnelemente herausätzen.

3.3.2 Sputterätzen

Für den Ätzprozess, als Teil der Strukturierung der in der vorliegenden Arbeit betrachteten Proben, wurde das Verfahren des Sputterätzens (auch als „Ionen-Ätzen“ bezeichnet) erschlossen. Analog zur Sputterdeposition wird ein Argon-Plasma erzeugt, trifft in diesem Fall jedoch nicht auf das Target mit dem Aufdampfmaterial, sondern trägt direkt Material von der Probenoberfläche ab. Der Material-Abtrag geschieht rein mechanisch, indem per Impulsübertrag der schweren Argon-Ionen die Bindungen im Target-Material aufgebrochen werden und dieses ballistisch ausgestoßen wird. Für ausreichend große Energien können die Argon-Ionen durch Stoß-

kaskaden auch mehrere Atome auf einmal herauslösen. Man spricht hier vom *Yield*, also dem Verhältnis herausgelöster Atome zu auftreffenden Ionen. Der Wert ist materialspezifisch und bestimmt bei gegebener kinetischer Energie die Ätzzraten der unterschiedlichen Materialien. Die Argon-Ionen besitzen genug Energie, um tief in das Target einzudringen, diese implantierten Ionen können die Material-Eigenschaften erheblich beeinflussen.

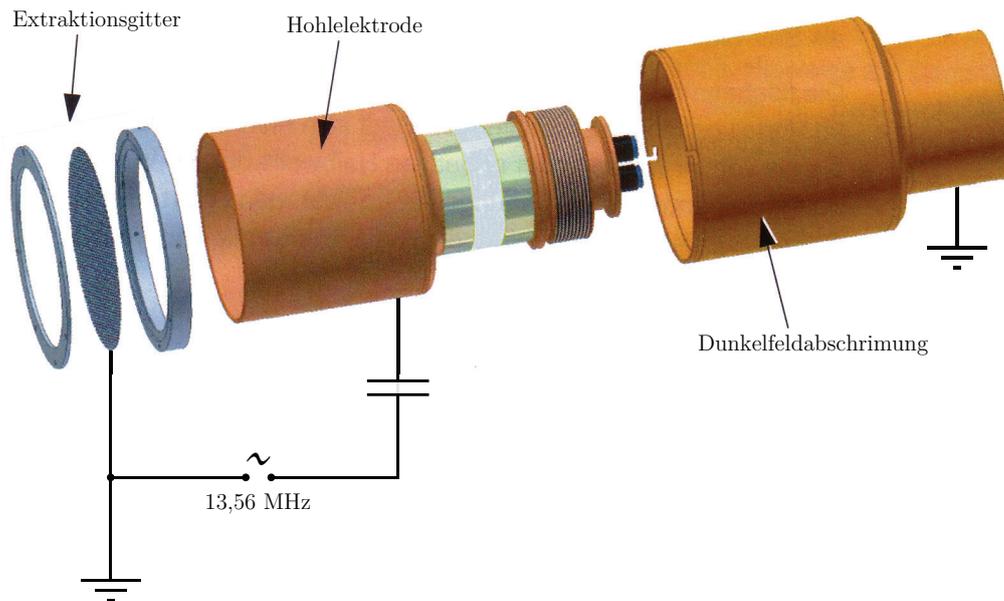


Abbildung 3.8: Komponenten des Sputterätzers – Das Plasma wird innerhalb der Hohlelektrode per asymmetrischer Hochfrequenzentladung erzeugt und verlässt die Quelle als gerichteter Strahl durch die Gitterelektrode (Extraktionsgitter) [Von05].

Die in [Abbildung 3.8](#) dargestellte Plasmaquelle (Inverser Sputterätzer ISE 90 der Fa. Von Ardenne) besteht aus einer Hohlelektrode und einer Gitterelektrode, dem sog. Extraktionsgitter, und funktioniert nach dem Prinzip der *asymmetrischen Hochfrequenzentladung*. Zwischen den Elektroden wird eine hochfrequente Wechselspannung (13,56 MHz)⁷ angelegt, die Gitterelektrode liegt auf Massepotential.

Durch die angelegte Wechselspannung wird das unter niedrigem Druck eingeleitete Argon-Gas ionisiert und somit ein Plasma gezündet. Ionenrumpfe und Elektronen besitzen aufgrund ihrer unterschiedlichen Massen sehr verschiedene Resonanzfrequenzen. Die mobileren Elektronen sind in der Lage dem Wechselfeld zu folgen

⁷ In der Industrie sind 13,56 MHz gebräuchlich, da diese Frequenz in einem behördlich freigegebene Bereich liegt.

und können das Plasmavolumen über die Elektroden verlassen. Die trägeren Ionen bleiben fast unbeeinflusst zurück und verursachen ein positives Plasmapotential. Dieses Plasmapotential oszilliert in Phase mit der HF-Spannung, ist jedoch immer positiv und hat im Mittel den Wert U_{plasma} .

Der Elektronenverlust des Plasmas wird durch eine Raumladungszone vermindert, die sich in der Nähe der Elektrodenwand ausbildet und dem Elektronenstrom entgegenwirkt. In diesem Bereich fällt das Plasmapotential leicht ab. In der Nähe der Gitterelektrode fällt das Potential schnell auf Massepotential ab, dieser Bereich ist es, in dem die Argon-Ionen beschleunigt werden und die Quelle durch das Extraktionsgitter verlassen können. Diese „einhüllenden“ Bereiche zwischen Plasma und Elektrode werden als *Sheaths* bezeichnet.

Für die effektive Einkopplung der Leistung in das Plasma wird ein „Matching-Netzwerk“ verwendet, das die Anpassung des Ausgangswiderstands des Netzteils an die komplexe Impedanz des Plasmas übernimmt. Diese besteht aus einer Verschaltung verschiedener variabler Kondensatoren und Spulen. Die getriebene Hohllektrode ist damit kapazitiv an den Hochfrequenzgenerator gekoppelt, für Gleichstrom also isolierend. Das bedeutet, dass keine Ladung abfließen kann, sich die Hohllektrode also auflädt.

Durch die mit der kapazitiven Einkopplung einhergehende Aufladung stellt sich eine DC-Überlagerung des HF-Signals ein, die als *Self-Bias-Spannung* U_{sb} bezeichnet wird. Nach [KCH⁺85] hängt das Vorzeichen der Self-Bias-Spannung von der Ausprägung der sheaths, und damit vom Flächenverhältnis der Elektroden, ab. Ist die Fläche der getriebenen Elektrode kleiner, oder sind beide Elektroden gleichgroß, so ist U_{sb} negativ. Dies würde eine Beschleunigung der Argon-Ionen in Richtung der getriebenen Elektrode bedeuten. Besitzt jedoch, wie bei der in dieser Arbeit betrachteten Quelle, die geerdete (Gitter-)Elektrode eine viel geringere Fläche, so kehrt sich das Vorzeichen der Self-Bias-Spannung um, die Argon-Ionen werden in Richtung des Gitters beschleunigt und können die Quelle verlassen.

Während der negativen Halbwelle werden Elektronen in Richtung des Extraktionsgitters beschleunigt, die die Ionen außerhalb der Quelle zu einem quasineutralen Teilchenstrom ergänzen, d.h. Elektronen- und Ionenanzahl stimmen makroskopisch überein. Dies erlaubt auch das Ätzen von Isolatoren, da sich diese nicht statisch aufladen. Die austretenden Elektronen sind niederenergetisch und haben typischerweise Energien < 100 eV, die Energie der Argon-Ionen liegt deutlich höher im Bereich von 1-2 keV.

Mit höherer eingekoppelter HF-Leistung verliert das Plasma mehr Elektronen an die Elektroden, dies führt zu einem höheren U_{plasma} und damit zu einem größeren Ionenstrom, der die Sputterquelle verlässt. Damit ist der DC-Anteil U_{sb} , der gegenüber U_{plasma} leicht abgesenkt ist, ein Maß für die Ätzrate.

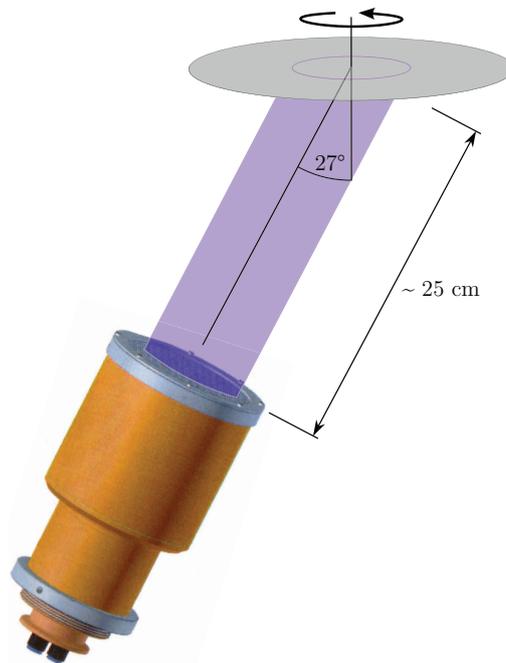


Abbildung 3.9: Aufbau beim Sputterätzen – Um eine Redeposition des abgesputterten Materials zu vermeiden, trifft der Argonstrahl unter einem Winkel von etwa 27° auf die rotierende Probe.

Voraussetzung für den Betrieb ist ein Basisdruck im Bereich von 10^{-5} mbar (Hochvakuum), zum Zünden muss der Druck durch Regelung des Argoneinlasses auf etwa 10^{-2} mbar erhöht werden. Um für den Ätzbetrieb einen gerichteten Plasmastrahl zu erhalten, wird der Druck in den Bereich von 10^{-5} mbar gebracht, die mittlere freie Weglänge liegt dann in der Größenordnung des Abstands zur Probe. Der Argonstrahl, der die Quelle verlässt, bleibt selbst über die recht große Distanz von etwa 25 cm zum Probenteller scharf begrenzt. Durch Absenken des Argon-Drucks ist es sogar möglich den Strahl „einzuschnüren“.

Um eine Redeposition des abgetragenen Materials zu vermeiden, trifft der Argonstrahl unter einem Winkel von etwa 27° auf die Probe, die zudem rotiert wird. Dies ist insbesondere an den Flanken der Elemente wichtig, da eine Redeposition hier einen Kurzschluss verursachen kann. Außerdem wird durch den Winkel eine

Abdeckung durch einen eventuell vorhandenen Resist-Undercut vermindert. [Abbildung 3.9](#) zeigt die geometrischen Verhältnisse schematisch.

Für die Herstellung funktionierender Tunnelemente muss die Ätztiefe sehr genau kontrolliert werden können. Trägt man zu viel Material ab, so wird der Bottom-Kontakt zu dünn. Damit ist hier das stehen gebliebene Material gemeint, das auf der Probe eine durchgehende Schicht bildet. Ist diese nun zu dünn, so würde der Zuleitungswiderstand sehr groß werden. Im Extremfall würde man sogar bis in das Substrat vorstoßen und könnte das Element gar nicht mehr kontaktieren. Auf der anderen Seite müssen Barriere und obere Elektrode vollständig freigelegt werden, um die Schalteigenschaften nicht zu stören und Kurzschlüsse zu vermeiden. [Abbildung 3.10](#) zeigt schematischen den Querschnitt eines Tunnelements, Ziel ist es gerade so tief zu Ätzen, dass die untere Bufferschicht getroffen wird.

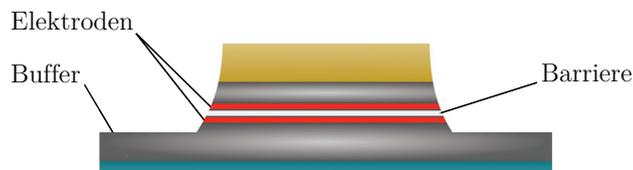


Abbildung 3.10: Querschnitt eines strukturierten Tunnelements, Barriere und Elektroden sind vollständig freigelegt, es wurde bis in den Bufferlayer geätzt.

Die einfachste Methode, um die Ätztiefe festzustellen, wäre es, die Zusammensetzung des abgetragenen Materials über ein Massenspektrometer zu beobachten und den Ätzvorgang zu beenden, wenn das Elektrodenmaterial nicht mehr detektiert wird. Da in dem verwendeten Aufbau eine solche Überwachung jedoch nicht möglich ist, muss hier anders vorgegangen werden: Für jedes Material wird die individuelle Ätzrate (bei fester Leistung/festem U_{sb}) ermittelt, um daraus die benötigte Ätzdauer für den Schichtstapel zu bestimmen. Dies setzt einen stabilen Betrieb des Sputteräzters und eine gute Reproduzierbarkeit der Ätzraten voraus.

Die Bestimmung der Ätzraten geschieht über die Vermessung der abgetragenen Schichtdicke per Profilometer, wie dem in [Abschnitt 3.4.2](#) vorgestellten „Dektak“. Eine Prozess-Anleitung für das Sputterätzen und die für die hier verwendeten Materialien bestimmten Ätzraten sind in [Abschnitt A.2](#) des Anhangs zu finden.

Im letzten Schritt muss der zum Maskieren benutzte Photolack wieder von der Probe entfernt werden, dies wird als *Stripping* bezeichnet. Hebt man mit dem Ent-

fernen des Photolacks eine nach dem Lithographieprozess deponierte Schicht ab, so spricht man hingegen von *Lift-off*. Durch das Ionenbombardment wird der Resist stark gehärtet, daher ist ein gewisser Aufwand nötig, um diesen wieder zu entfernen, ohne dabei die Probe zu beschädigen (für Details siehe [Abschnitt A.1](#)).

3.4 Charakterisierung

Im Folgenden werden die Techniken bzw. Methoden dargestellt, die zur magnetischen und elektrischen Charakterisierung der magnetischen Tunnelkontakte verwendet werden. Des Weiteren werden die genutzten Verfahren zur Untersuchung von Struktur und Oberflächentopologie kurz vorgestellt.

3.4.1 Transportmessungen und magnetische Charakterisierung

An den magnetischen Tunnelementen werden elektrische Transportuntersuchungen in Zweipunkt-Konfiguration durchgeführt, dabei erfolgt die Messung in „Current perpendicular to plane“- (CPP)-Geometrie. Dies bedeutet, dass die Elemente sowohl von oben, als auch von unten kontaktiert werden müssen.

Für die elektrische Kontaktierung wird eine Probestation der Fa. Süss verwendet. Per Mikrometer-Manipulatoren lassen sich dünne Nadeln auf die Probe setzen. Festes Verdrahten, etwa durch Wire-Bonden, oder komplexere Strukturierungsprozesse, die Kontaktpads oder Leiterbahnen zur Verfügung stellen würden, sind nicht notwendig. Die Proben lassen sich schnell und flexibel kontaktieren. Im Zusammenspiel mit der einfachen Strukturierung erlaubt dies einen hohen Probendurchsatz, der der Variation von Herstellungs-Parametern zuträglich ist. Hier werden vergoldete Kupfer-Beryllium-Nadeln mit einem Spitzenradius von etwa 20 μm verwendet. Im Gegensatz zu den sonst oft verwendeten Wolfram-Nadeln sind diese recht weich, Beschädigungen der Proben können somit vermindert werden. Für die Positionierung wird ein Stereomikroskop verwendet. [Abbildung 3.11](#) zeigt die Größenverhältnisse: auch die größten Tunnelemente mit 30 μm Kantenlänge sind kleiner als die Nadelspitze, dies erfordert für eine korrekte Positionierung (ohne die Elemente dabei zu zerdrücken), insbesondere bei den kleineren 12,5 μm -Elementen, große Vorsicht. Die Elemente mit Kantenlänge $\leq 5 \mu\text{m}$ lassen sich hingegen nicht mehr sinnvoll kontaktieren. Der gesamte Aufbau ist schwingungsarm gelagert, die Proben werden per Vakuum-Ansaugung fixiert. Für das Anlegen eines externen Magnetfelds steht

eine flacher Elektromagnet als Aufsatz für den Probenhalter zur Verfügung, der die Probe aufnimmt und Flussdichten bis zu 100 mT erzeugen kann.

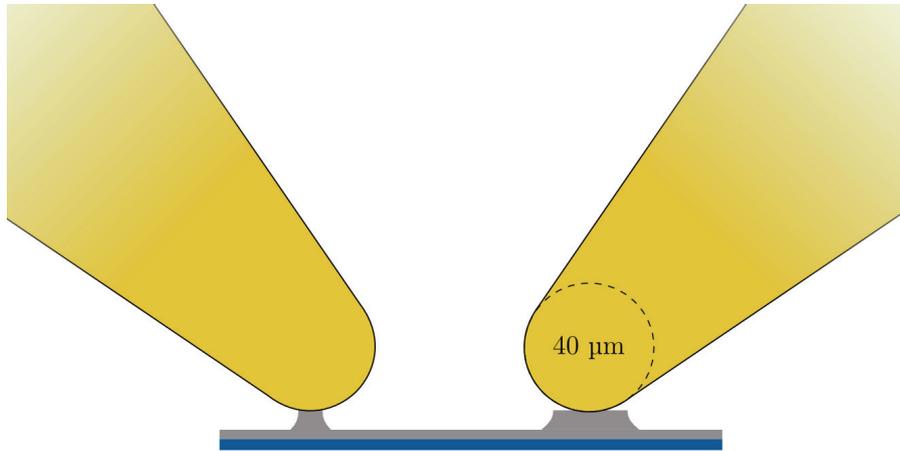


Abbildung 3.11: Kontaktierung der Tunnelelemente (links: 12 µm-, rechts: 30 µm-Elemente) mit den Nadeln der Probestation. Tunnelelemente mit weniger als $(5 \times 5) \mu\text{m}^2$ lassen sich nicht mehr kontaktieren.

Für Messungen in CPP-Geometrie werden die einzelnen Elemente kontaktiert, in dem eine Nadel auf den oberen Goldkontakt eines Elements gesetzt wird, während die andere auf den, die Elemente umgebenden, Rand (siehe [Abbildung 3.6](#)) gesetzt wird. Wie bereits erwähnt, darf der, hier nun als Zuleitung fungierende, untere Bufferlayer nicht zu dünn werden. Ein damit verbundener hoher Widerstand würde die Ergebnisse der Zweipunktmessung verfälschen.

Für die elektrischen Messungen wird ein Keithley Series 2400 SourceMeter verwendet, damit lassen sich einfache I-U-Kennlinien aufnehmen, sowie Widerstandsmessungen bei variablem Magnetfeld durchführen. Die Steuerung aller Geräte und die Aufnahme der Messwerte erfolgt per LabVIEW-Mess-Software. Weitere Messungen, wie die I-U-Spektroskopie mit Widerstandsmessungen per Lock-In-Verstärker werden in [\[Wal09\]](#) gezeigt.

Das magnetische Verhalten wird durch Ausnutzung des *magnetooptischen Kerr-Effekts* (MOKE) an den noch unstrukturierten Proben bestimmt. Die Gesamtmagnetisierung der untersuchten Spinventile zeigt eine charakteristische Doppel-Hysterese, die durch das getrennte Schalten der beiden ferromagnetischen Elektroden hervorgerufen wird. Zum Zeitpunkt der elektrischen Charakterisierung sind die Goldkontakte noch nicht aufgebracht, die magnetischen Schichten liegen also innerhalb der optischen Eindringtiefe (Größenordnung 20-30 nm). Beide Elektroden

tragen in gleicher Weise zum Gesamtsignal bei. Eine Einführung zum magnetooptischen Kerr-Effekt gibt etwa [Djo06, Kapitel 3].

3.4.2 Profilometer

Die Bestimmung der Ätzraten und die Kontrolle der Ätztiefen erfolgt über die Vermessung der Stufenhöhe zwischen geätzten und maskierten Bereichen. Eine Möglichkeit solche Höhenprofile aufzunehmen stellen Profilometer dar. Das Prinzip ist denkbar einfach: Ein (Diamant-)Stylus mit einem Spitzenradius weniger Mikrometer wird in mechanischem Kontakt über die Probenoberfläche bewegt, dabei werden Geschwindigkeit und Druck konstant gehalten. Die vertikale Auslenkung des Stylus wird – wie bei dem Tonabnehmer eines gewöhnlichen Plattenspielers – über ein induktives System aus Permanentmagnet und Induktionsspule in Höheninformationen umgesetzt.

Profilometer dieser Art sind auf die Aufnahme zweidimensionaler Höhenprofile ausgelegt, stellen dabei aber im Vergleich zur Rasterkraftmikroskopie⁸ eine sehr große Messdynamik bei ähnlichem Auflösungsvermögen bereit. So ist es mit dem hier verwendeten „Dektak 6“ der Fa. Veeco möglich, bei einem vertikalen Auflösungsvermögen von bis zu einem Nanometer einen Messbereich von etwa 1/4 mm abzudecken. Der maximale laterale Scanbereich beträgt 30 mm bei einer Auflösung, die bis etwa 3 nm herunter reicht.

Um genaue Informationen über die Höhenunterschiede zwischen geätzten/bedampften und unberührten Bereichen zu erhalten, sind scharfe Übergänge erforderlich. Diese erhält man durch die Verwendung der Lithographie für die Maskierung.

3.4.3 Elektronenmikroskopie

Die Charakterisierung der Probenstruktur erfolgt mit Hilfe der *hochauflösenden Transmissionselektronenmikroskopie* (High-Resolution Transmission Electron Microscopy, HR-TEM). Dabei wird die Probe mit Elektronen „durchleuchtet“, über das Herausfiltern von (elastisch und inelastisch) gestreuten Elektronen aus dem Strahlengang erhält man einen Kontrast in der Abbildung. In diesem Fall spricht man von Hellfeldmikroskopie.

Aufgrund der starken Absorption von Elektronen in Materie funktioniert die

⁸ Eine kurze Einführung in die Rasterkraftmikroskopie wird in [Was03, Kapitel 12] gegeben.

Elektronentransmission nur bei sehr geringen Schichtstärken. Daher müssen aus den zu untersuchenden Proben zunächst dünne Lamellen herausgeschnitten werden. Für die hochauflösenden TEM werden besonders dünne Lamellen mit einer Stärke von etwa 20 nm benötigt. Diese werden per *Focused Ion Beam* (FIB) aus den flächigen Proben herauspräpariert⁹.

Mit Hilfe der HR-TEM lassen sich direkte Abbildungen der inneren Struktur mit atomarer Auflösung erstellen. Dies liefert Informationen wie Nahordnung, Grenzflächenrauigkeit oder Kristallinität, erlaubt also Aussagen über die Qualität des Barriere-Elektroden-Systems.

Um die Oberflächentopologie zu untersuchen, wird die *Raster-Elektronenmikroskopie* (REM) eingesetzt. Die Probe wird mit einem fokussierten Elektronenstrahl abgescannt. Über das Auswerten der aufgefangenen rückgestreuten Elektronen, Sekundärelektronen und charakteristischen Röntgenstrahlung erhält man Informationen über die Probenoberfläche und deren Zusammensetzung.

Die erwähnten Verfahren werden in [Par07, Kapitel 3.2] und [Was03, Kapitel 11.3] näher erläutert.

⁹ Der Ionenstrahl besteht hier aus schweren Ga⁺-Ionen.

Kapitel 4

Auswertung und Diskussion

Im Mittelpunkt dieses Kapitels steht zunächst der Strukturierungsprozess, dabei werden die Eigenschaften der optische Lithographie und des Sputterätzens dargestellt. Dies erfolgt im Hinblick auf die Wahl der für die Herstellung der magnetischen Tunnelemente wichtigen Parameter. Die elektrischen und magnetischen Eigenschaften der daraus resultierenden Tunnelmagnetowiderstands-Elemente werden exemplarisch vorgestellt.

Wie bereits in [Abschnitt 3.1](#) eingeführt, hängt der TMR in CoFeB/MgO/CoFeB-Tunnelsystemen unter anderem von der Zusammensetzung der Bufferlayer ab. Zudem hat die Annealing-Temperatur einen erheblichen Einfluss auf die Größe des Effekts. Der zweite Schwerpunkt dieses Kapitels soll daher auf der Darstellung der Optimierung, insbesondere im Hinblick auf den Einfluss auf die Qualität des Elektroden-Barriere-Systems, und damit auf den TMR, liegen.

4.1 Charakterisierung des Strukturierungsprozesses

4.1.1 Optische Lithographie

Für die Verwendung der optischen Lithographie zur Maskierung der zu strukturierenden Schichtstapel müssen zunächst die Prozessparameter ermittelt werden. Von Interesse sind hier die beim Spin-Coating aufgebrauchte Photolackschichtdicke, sowie die richtigen Belichtungs- und Entwicklungszeiten.

Für die Strukturierung kommt der Negativ-Lack AR-N 4240 zum Einsatz. Außerdem wird der Positiv-Resist S 1813 betrachtet, der in [\[Bre04\]](#) im Mittelpunkt steht und in der vorliegenden Arbeit als Vergleichsobjekt herangezogen werden soll.

Photolackschichtdicke

Beim Spin-Coating lässt sich die Lackschichtdicke d über die Umdrehungsfrequenz ω der zu belackenden Probe einstellen. Der Zusammenhang ist dabei über

$$d = \frac{K C^\beta \eta^\gamma}{\omega^\alpha} \quad (4.1)$$

gegeben mit der Feststoff-Konzentration C , der Viskosität η , den Fitparametern α , β , γ und der Konstanten K [Mad97].

Abbildung 4.1 zeigt die per Profilometer ermittelten Schichtdicken für den Negativ-Resist bei verschiedenen Rotationsgeschwindigkeiten. Die Proben werden für 60 s rotiert, um sicherzustellen, dass die endgültige Schichtdicke angenommen wird. Die Werte wurden nach Gleichung 4.1 angefitet, Viskosität und Konzentration wurden dem Datenblatt entnommen. Tabelle 4.1 fasst die verwendeten Werte zusammen.

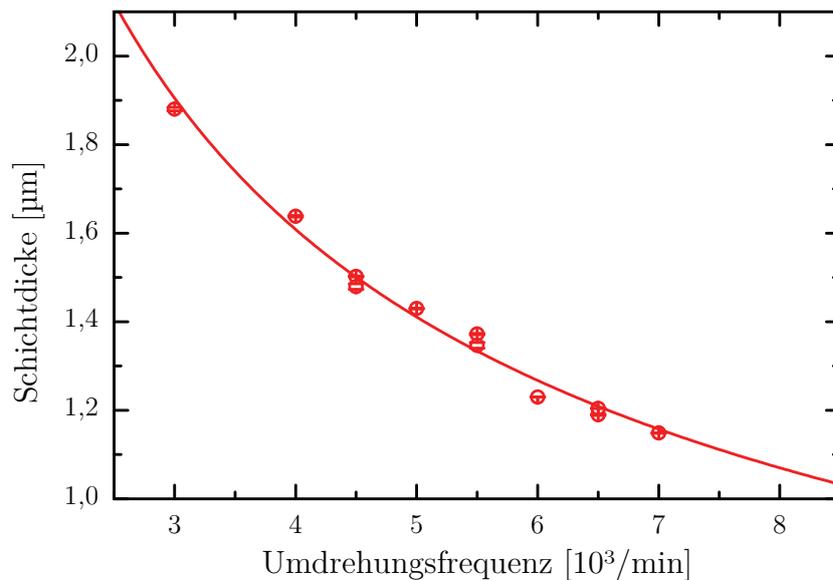


Abbildung 4.1: Spin-Coating – Schichtdicke des Negativ-Resists in Abhängigkeit von der Umdrehungsgeschwindigkeit.

Für den Strukturierungsprozess wurde eine Umdrehungsfrequenz von $6000 \text{ }^{1/\text{min}}$ gewählt, man erhält eine Schichtdicke von etwa 1270 nm . Der Verlauf stimmt qualitativ mit dem des Positiv-Resists in [Bre04, Abschnitt 2.3.3] überein.

Für die minimale per optischer Lithographie erreichbare Strukturgröße gilt nach

Konzentration:	C	=	30 %
Viskosität:	η	=	10 mPa s
Fitparameter:	α	=	$0,59 \pm 0,03$
	β	=	2,96
	γ	=	-0,48
	K	=	1

Tabelle 4.1: Fitparameter für die Schichtdicken-Abhängigkeit beim Spin-Coating.

[Mad97]

$$d_{\min} = \frac{3}{2} \sqrt{\lambda \left(s + \frac{d}{2} \right)} \quad , \quad (4.2)$$

mit der Schichtdicke d und dem (in diesem Fall nicht vorhandenen) Abstand zwischen Maske und Probe s . Die Auflösung wird in dem hier betrachteten Fall also durch die im Vergleich zur Wellenlänge große Schichtdicke begrenzt, liegt mit etwa $0,7 \mu\text{m}$ jedoch noch weit unterhalb der kleinsten Elementgrößen, die sich per Probestation kontaktieren lassen.

Wie in [Abschnitt 4.1.2](#) näher dargestellt, wird Photolack während des Sputterätzens viel stärker abgetragen, als z.B. Metalle. Zu geringe Schichtdicken können nun dazu führen, dass die Maskierung während des Prozesses verloren geht und die Tunnelelemente selbst abgetragen werden.

Belichtungseigenschaften

[Abbildung 4.2](#) zeigt die normierten Schichtdicken belichteter Bereiche für die beiden erwähnten Lacksorten nach der Entwicklung in Abhängigkeit von der eingestrahnten Dosis. Die Schichtdicken wurden mittels Profilometer bestimmt. Bei der Belichtung wird die Intensität durch Regelung der Leistung konstant gehalten und beträgt bei den gezeigten Reihen $27,5 \text{ mW}/\text{cm}^2$ im Bereich der Linie um 320 nm im Spektrum der, als Lichtquelle verwendeten, Quecksilberdampfampe.

Die Dosis wird nun so gewählt, dass gerade der volle Kontrast zwischen belichteten und maskierten Bereichen erreicht wird. Für den Negativlack liegt diese bei etwa $100 \text{ mJ}/\text{cm}^2$, was in dem gezeigten Fall einer Belichtungszeit von $3,5 \text{ s}$ entspricht. Bei Änderung der Intensität (z.B. nach einem Lampenwechsel) muss für die Gewähr-

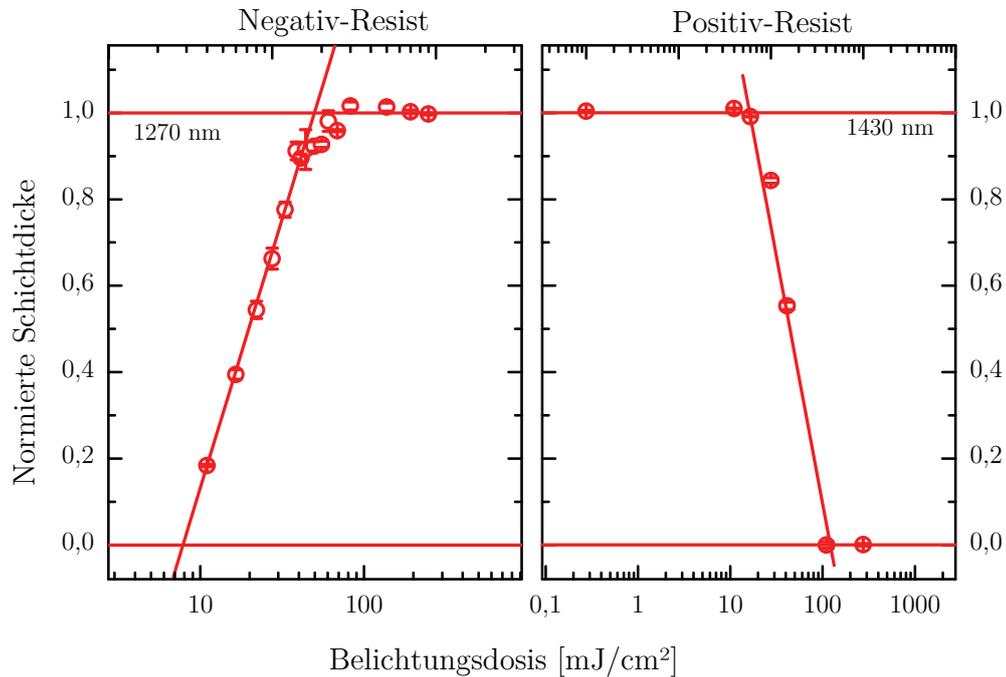


Abbildung 4.2: Kontrastkurven für Negativ- und Positiv-Lack

leistung der Reproduzierbarkeit die Belichtungszeit so angepasst werden, dass die Dosis konstant bleibt. Die für den Positiv-Lack gefundene Dosis liegt bei 150 mJ/cm^2 .

Die Qualität der Abbildung der Maskenstruktur in Photolack auf der Probe wird durch die Belichtungszeit beeinflusst. Bei zu geringer Belichtung werden die Konturen nicht korrekt übertragen (Ecken werden abgerundet, kleine Quadrate verkommen zu Kreisen). Bei zu starker Belichtung hingegen erhalten auch abgedeckte Bereiche eine gewisse Belichtungs-dosis (einerseits absorbiert die Chrombeschichtung nicht vollständig, andererseits kommt es an der Maskenkante zu Beugung), die Strukturen „fransen aus“ oder wachsen gar zusammen. Für den Negativ-Resist bedeutet eine wesentlich zu geringe Belichtungszeit eine erhebliche Abnahme der Lackdicke, im Gegensatz zum Positiv-Prozess bleibt jedoch keine Restschicht stehen. Dies kann, wie bereits erwähnt, beim anschließenden Ätzprozess zu Problemen führen, indem die Maskierung noch während des Ätzprozesses verschwindet. Da für die vorliegende Arbeit jedoch, im Vergleich zum Auflösungsvermögen, relativ grobe Strukturen der Größenordnung 10^{-5} m von Interesse sind, erweist sich die Belichtungszeit als unkritischer Parameter im Strukturierungsprozess.

Undercut

Auch die Entwicklungszeit hat einen gewissen Einfluss auf die Strukturqualität und ist dabei von den Belichtungsparametern abhängig. Wie bereits in [Abbildung 3.5](#) angedeutet, weisen die Resist-Strukturen einen Undercut auf. Dieser rührt von der Belichtung her und wird durch den Entwicklungsprozess zusätzlich ausgeprägt. [Abbildung 4.3](#) zeigt eine REM-Aufnahme eines 30 μm -Elements nach dem Sputterätzen. Der Undercut ist deutlich zu erkennen, die Flanken zeigen nach innen, der Winkel zur Proben-Normalen beträgt etwa 13° . Durch verlängerte Entwicklung lässt sich der Undercut vergrößern, kleine Elemente können sich dabei im Extremfall vom Substrat ablösen.

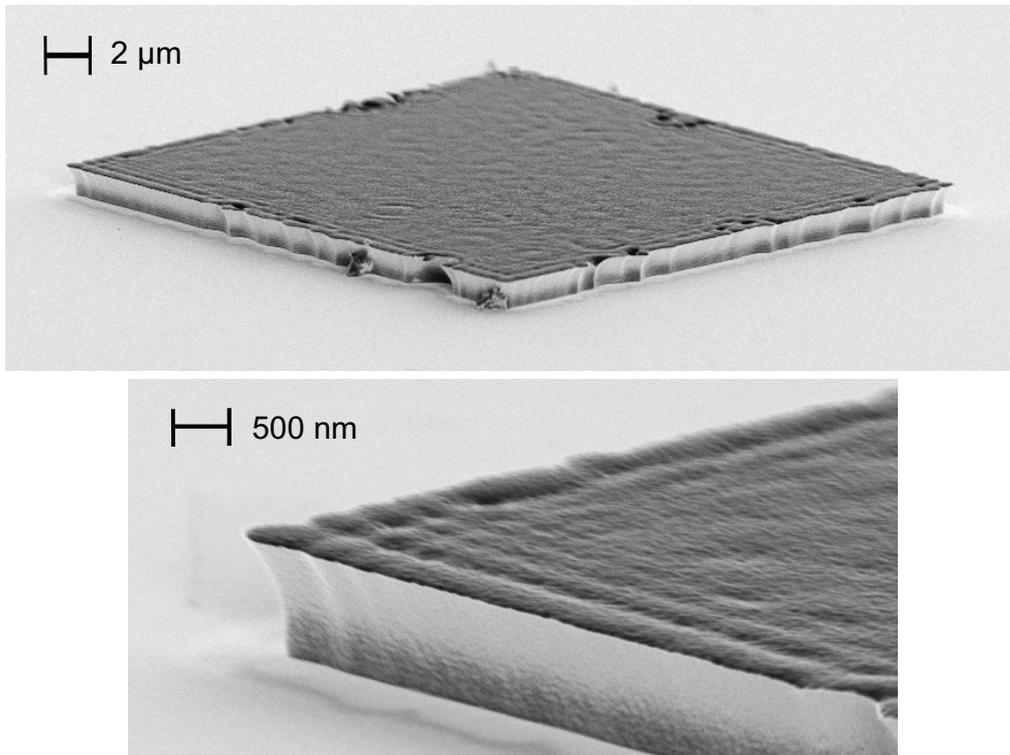


Abbildung 4.3: REM-Aufnahmen der Photolackstrukturen nach dem Ätzen, ohne Stripping. Deutlich zu erkennen sind Undercut und Beugungsmuster von der Belichtung.

Die gezeigten REM-Aufnahmen wurden an einem bereits geätzten Element erstellt. Aufnahmen an unbeeinflusstem Photolack stellen sich als schwierig heraus, da sich dieser durch den abbildenden Elektronenstrahl statisch auflädt. Durch den Ätzprozess ändern sich also offenbar die (Oberflächen-)Eigenschaften des Resists. Als

Ursache kommt hier die Implantation von Argon-Ionen in Frage, die die elektrischen Eigenschaften verändern kann. Im Bereich der Flanken, die sich durch die Rotation und den gekippten Argonstrahl zum Großteil der Zeit in Abdeckung befinden, erfolgt möglicherweise eine Redeposition des abgetragenen (metallischen) Materials aus dem Schichtstapel. Die Aufnahmen lassen jedoch keine konkrete Aussage über die Redeposition zu, die hellen Bereiche an den Flanken werden durch das Abbildungsverfahren bedingt und nicht unbedingt durch eventuelle Beschichtungen.

In der Resiststruktur lässt sich die bei der Belichtung auftretende Beugung und Streuung beobachten: Insbesondere die Übersichtsabbildung zeigt die durch die Verschmutzung der Maske hervorgerufene Streuung, die zu (reproduzierbarer) Ausfransung und teilweiser Durchlöcherung der Lackstruktur führt. Die Detailaufnahme zeigt deutlich das vom Rand der Chromstruktur auf der Maske verursachte Beugungsmuster.

4.1.2 Sputterätzen

Die Sputterätz-Quelle erzeugt einen Argonplasma-Strahl, der beim Austritt durch die Gitterelektrode einen Durchmesser von etwa 85 mm besitzt. Über die Regelung des Drucks durch den Argoneinlass und eine gleichzeitige Reduzierung der Pumpleistung lässt sich der Öffnungswinkel des Strahls beeinflussen: Bei dem für das Zünden notwendigerweise etwas erhöhten Druck ($\sim 2 \times 10^{-2}$ mbar) divergiert der Strahl stark. Er verengt sich, sobald der Druck abgesenkt wird. Bei besonders niedrigem Druck lässt sich sogar eine Einschnürung des Strahls auf etwa die Hälfte des Ausgangsdurchmessers am ungefähr 25 cm entfernten Probenhalter beobachten, bevor das Plasma schließlich (bei etwa 5×10^{-4} mbar) zusammenbricht. Für den Ätzbetrieb wird der Druck so gewählt, dass der Strahl bis hin zum Probenhalter einen annähernd konstanten Durchmesser besitzt, dies ist bei etwa 5×10^{-3} mbar der Fall.

Der Yield, also die Anzahl herausgelöster Targetatome pro Argon-Ion, hängt von verschiedenen Parametern wie Auftreffwinkel, Ionenenergie, Dichte und spezifischer Oberflächenenergie des Targetmaterials ab. Insbesondere die kinetische Energie der auftreffenden Argon-Ionen hat einen großen Einfluss. Dabei stehen die Yields verschiedener Materialien für verschiedene gegebene Energien nicht in festem Verhältnis zueinander, was einer Skalierung des Ätzprozesses durch die Variation der Leistung im Wege steht. Die Ätzraten sind grob proportional zum Yield und

werden durch Druck und Geometrie der Quelle, Kammer und des Targets bedingt [Mad97, Kapitel 3].

Der Sputterätzer wird bei fester Leistung und somit fester Self-Bias-Spannung betrieben (das Verhältnis zwischen eingekoppelter Leistung und U_{sb} hängt von den regelbaren Kapazitäten des Matching-Netzwerks ab). Die experimentell ermittelten Ätzraten der in den Schichtstapeln verwendeten Materialien sind in Tabelle 4.2 zusammengefasst. Aus diesen lassen sich die Ätzdauern für gegebene Schichtstapel bestimmen. Es zeigt sich, dass die Ätzraten der Materialien sich erheblich unterscheiden; ändert man die Zusammenstellung der Schichtstapel, so können sich auch die Ätzdauern (bei unveränderter Äztiefe) deutlich ändern. Typischerweise werden Schichtdicken im Bereich von 40-50 nm in 7-8 min abgetragen. Die Ätzraten für die Photolacke sind fast eine Größenordnung größer als die meisten der anderen Materialien des Schichtstapels.

Material	Rate [nm/min]
MgO	3,0
CoFeB (as prep.)	3,9
Ta	4,3
Ru	6,6
Pd	6,9
SiO _x	9,9
Au	12,6
Positiv-Resist	21,5
Negativ-Resist	25,2

Tabelle 4.2: Experimentell bestimmte Ätzraten verschiedener Materialien (mit relativen Unsicherheiten im Bereich von 2-3 %).

Bedingt durch Ungenauigkeiten bei der Bestimmung der Ätzraten per Profilometer und nicht vermeidbare Schwankungen im Ätzbetrieb (der Self-Bias-Spannung und damit der Rate), lässt sich der Fehler der Ätzraten als 2-3 % abschätzen. Dies entspricht 0,1-0,4 nm/min bzw. bezogen auf ein geätztes Element (Äztiefe \sim 45 nm) einem Fehler von 1-2 nm. Zudem ist nicht auszuschließen, dass sich die Ätzraten einzelner Materialien im Schichtstapel möglicherweise anders verhalten, als in dickeren Schichten ohne die umliegenden Materialien. Beispielsweise könnten die CoFeB-

Elektroden (für die die Ätzrate „as prepared“ bestimmt wurden) mit der beim Annealing-Prozess auftretenden Änderung der Struktur – auch im Zusammenhang mit den umgebenden Bufferlayern – ihre Ätzcharakteristik ändern.

Innerhalb des (durch die Gasentladung sichtbaren) Argonstrahls lässt sich keine Abhängigkeit der Ätzrate von der Position auf dem Probenhalter, der im Mittelpunkt des Strahls rotiert wird, feststellen. Das Ätzprofil ist also im Rahmen der Bestimmungsgenauigkeit als homogen anzusehen.

Es hat sich herausgestellt, dass der Betrieb dieser speziellen Quelle nur in einem Bereich mit einem Flächenverhältnis zwischen Hohlelektrode und Extraktionsgitter von höchstens 10 möglich ist. Dies entspricht einer Gitter-Transparenz von weniger als 41 %. Anderenfalls kehrt sich die Polarität um, was zur Folge hat, dass die Innenwand der Hohlelektrode abgesputtert wird. Das Material setzt sich dann in der gesamten Kammer und auch auf der zu ätzenden Probe ab, XPS-Messungen¹⁰ haben gezeigt, dass diese Beschichtung im Wesentlichen aus Kupfer, also dem Hohl-elektrodenmaterial, besteht. Andere Bestandteile aus Komponenten der Quelle, wie etwa dem Edelstahl-Extraktionsgitter, ließen sich nicht nachweisen.

Wie bereits in [Abschnitt 3.3.2](#) beschrieben, erhält man die richtige Polarität der Elektroden – also eine Beschleunigung in Richtung des Gitters – nur, wenn die getriebene Elektrode (hier Hohlelektrode) eine größere Fläche aufweist, als die geerdete Elektrode (hier Extraktionsgitter). Eine zu kleine Gitterelektroden-Fläche führt jedoch zum gleichen Effekt der Polaritätsumkehr.

Ein fertig geätztes Tunnelelement zeigt [Abbildung 4.4](#). Dieses ist aus einer 30 µm-Vorlagestruktur auf der Maske entstanden und wird zusammen mit dem per Profilometer aufgenommenen Flankenprofil dargestellt. Wie bereits in [Abbildung 3.5d](#) angedeutet, besitzt das fertig geätzte Element, verursacht durch den Undercut des Photolacks, eine geringere Kantenlänge als das Maskenelement und misst an der oberen Kante etwa 27,5 µm. Die Flanke zeigt eine sehr geringe Steilheit: bei einer Flankenbreite von etwa 1,7 µm besteht ein Höhenunterschied von lediglich 45 nm. Bei genauerer Betrachtung des Ätzprofils zeigen sich zwei Bereiche unterschiedlicher Steigung, die vermutlich auf die Teilabdeckung beim Sputterätzen zurückgehen. Die MgO-Barriere wird in dem unteren, etwas flacheren, Teil der Flanke freigelegt, in dieser Darstellung bei einer Höhe von etwa 10 nm.

¹⁰ XPS (X-Ray Photoelectron Spectroscopy): Oberflächensensitives Analyseverfahren elektronischer Zustände und chemischer Zusammensetzung, basierend auf dem äußeren Photoeffekt [[Was03](#), Kapitel 11.4].

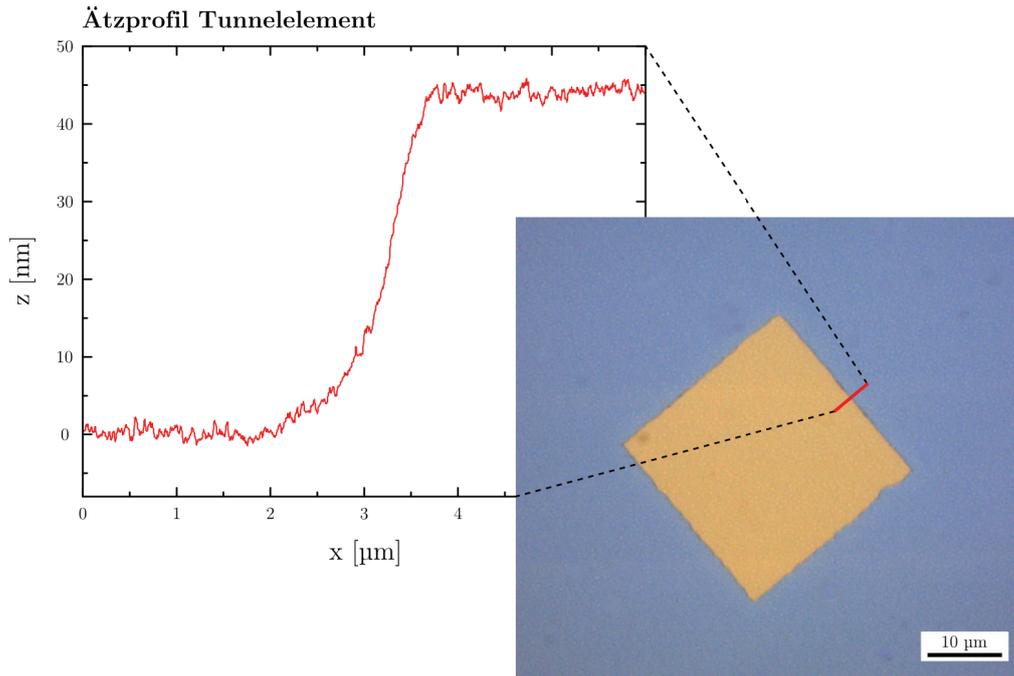


Abbildung 4.4: Ätzprofil eines Tunnelelements, das aus einer Vorlagestruktur mit $30\ \mu\text{m}$ Kantenlänge entstanden ist, vermessen per Stylus-Profilier. Die tatsächliche Kantenlänge des Elements beträgt etwa $27,5\ \mu\text{m}$.

Argon-Ionen mit großer kinetischer Energie sind in der Lage tief in das Targetmaterial einzudringen, insbesondere bei geringen Resistschichtdicken könnte man eine Beschädigung der Struktur im Bereich des Elektroden-Barriere-Übergangs befürchten, was eine Beeinträchtigung des Tunnelprozesses zu Folge hätte. Wie SRIM-Simulationen¹¹ gezeigt haben, können im hier betrachteten Fall die Argon-Ionen jedoch von oben her durch die Goldkontakte nicht tief genug in die Probe eindringen, um die Barriere zu erreichen: Bei einer kinetischen Energie um $2\ \text{keV}$ beträgt die maximale Eindringtiefe in den ($30\ \text{nm}$ dicken) Au-Topkontakt 10 bis $12\ \text{nm}$. Im Bereich der Flanken hingegen sind Elektroden und Barriere durchaus für die eindringenden Ar-Ionen zu erreichen. Beschädigungen der Struktur im diesem Randbereich und eine damit einhergehende Beeinflussung des TMRs ist nicht auszuschließen.

¹¹ SRIM-Softwarepaket: *Stopping and Range of Ions in Matter*, <http://www.srim.org/>

4.2 Charakterisierung der Tunnelmagnetowiderstands-Elemente

Abbildung 4.5a zeigt den Widerstandsverlauf eines typischen Tunnelmagnetowiderstands-Elements und den resultierenden TMR in Abhängigkeit eines externen Magnetfeldes. Die Transportmessungen wurden an den mit 10 mV vorgespannten Elementen durchgeführt, man spricht hier von der *Bias-Spannung* U_{bias} . Wie bei Pseudo-Spinventilen in der Regel zu beobachten, ist der Widerstandsverlauf um

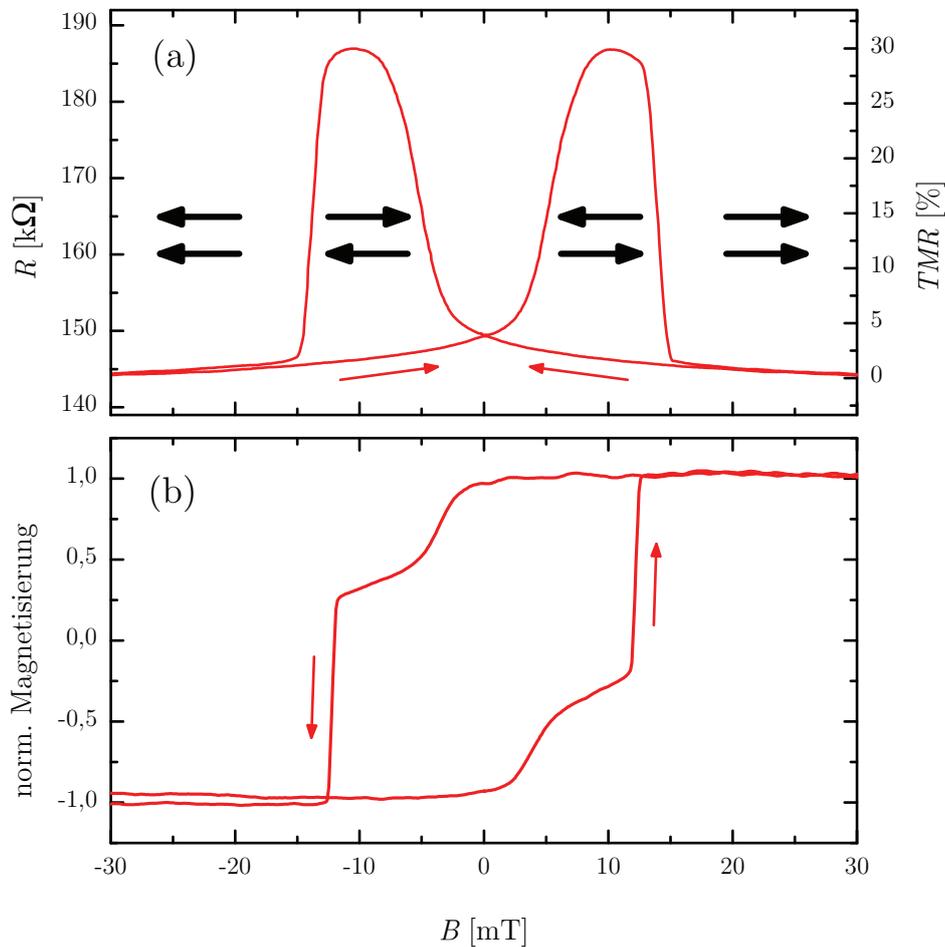


Abbildung 4.5: (a) Widerstandsverlauf und TMR in Abhängigkeit des externen Feldes bei einer Bias-Spannung von 10 mV. In schwarz angedeutet: die Ausrichtung der Elektroden im Feld. Die maximale Widerstandsänderung von etwa 30% wird bei 10,5 mT erreicht. (b) Zugehörige normierte Magnetisierung aus MOKE-Untersuchungen.

die Nulllage herum weitgehend symmetrisch (bei EB-SV würde man in der Auftragung eine durch das Exchange Bias hervorgerufene Verschiebung entlang der Magnetfeldachse beobachten).

Im antiparallelen Zustand wird eine maximale relative Widerstandsänderung von rund 30 % erreicht. Die zugehörige Magnetisierungskurve aus MOKE-Messungen in [Abbildung 4.5b](#) verdeutlicht das Schaltverhalten der beiden Elektroden: Bei der „freien“, im Schichtstapel unten liegenden, Elektrode setzt die Ummagnetisierung bei etwa 2,6 mT ein, während die obere Elektrode bei etwa 11,8 mT schaltet.

Die Koerzitivfeldstärken der magnetisch härteren Schicht weichen in den beiden Auftragungen voneinander ab, da das Feld bei der Widerstandsmessung, bedingt durch den verwendeten Elektromagneten, zum einen nicht ganz homogen ist, zum anderen erfolgten die hier gezeigten R(H)- und M(H)-Messung an unterschiedlichen Positionen auf der Probe. Wie in [\[Wal09\]](#) beschrieben, können die Schaltfelder über die Proben hinweg variieren.

Die beiden CoFeB-Elektroden ändern ihre Magnetisierungsausrichtung nicht schlagartig. Dadurch, dass die Ummagnetisierung durch das Umklappen einzelner Domänen erfolgt, „verschmiert“ sich dieser Vorgang auf ein gewisses Feldintervall. Als „Schaltfelder“ werden hier immer die Feldstärken bezeichnet, bei denen das Umklappen einsetzt. Durch diese Überlappung der Schaltbereiche der Elektroden wird ein perfekter anti-paralleler Zustand und damit ein hoher TMR behindert.

Für dieselbe Probe sind in [Abbildung 4.6a](#) die U-I-Kennlinien für die beiden Magnetisierungsausrichtungen aufgetragen. Diese zeigen die für den Tunnelprozess charakteristische Krümmung, die bei der Kennlinie für den antiparallelen Fall etwas stärker ausgeprägt ist. Aus den Kennlinien lässt sich nun für jeden Punkt nach [Gleichung 2.5](#) der TMR berechnen. [Abbildung 4.6b](#) zeigt die Bias-Spannungs-Abhängigkeit des TMR: Für große U_{bias} geht der TMR stark zurück.

Die Ursache für diesen Rückgang ist bisher nicht gut verstanden, in Frage kommen Magnonen-Anregungen an der Elektrode-Barriere-Grenzschicht, Streuung an (magnetischen) Verunreinigungen in der Barriere oder eine Zunahme der Leitfähigkeit mit U_{bias} für den ap-Zustand [\[ZLMP97, MM99\]](#). Die Kurve weist eine leichte Asymmetrie auf, die vermutlich auf unterschiedliche Grenzflächen-Eigenschaften an der Barriere zurückgeht [\[HIM⁺05\]](#).

Mit der hier beobachteten relativen Widerstandsänderung von 30 % ist man noch recht weit von dem für CoFeB/MgO/CoFeB-Systeme erwarteten Giant TMR entfernt. Daher ist davon auszugehen, dass in den betrachteten Proben kein kohärentes

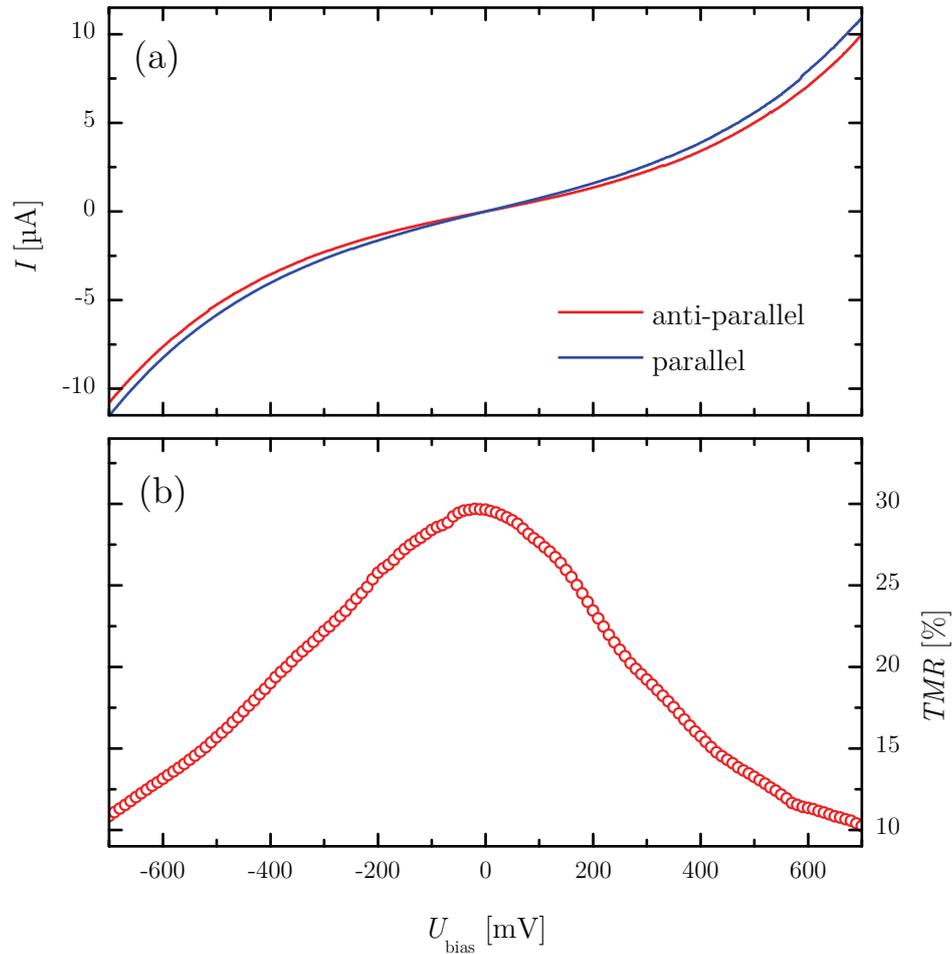


Abbildung 4.6: (a) U-I-Kennlinie eines Tunnелеlements bei paralleler und antiparalleler Ausrichtung. (b) Aus den Kennlinien berechneter TMR in Abhängigkeit von der Bias-Spannung.

Tunneln stattfindet. Wäre das der Fall, so sollte man für die parallele Konfiguration eine deutlich schwächer gekrümmte Kennlinie erwarten.

4.3 Optimierung des Probensystems

Wie in [Abschnitt 2.2.3](#) beschrieben, hängt der Tunnelprozess empfindlich von der Struktur des Elektrode-Barriere-Systems ab. Für den Giant TMR werden Proben benötigt, die epitaktischen FM/MgO/FM(001)-Systemen möglichst nahe kommen. Die Ansätze zur Optimierung sind vielfältig, die Bemühungen in dieser Richtung

sollen anhand zweier Beispiele angedeutet werden. Als wichtiges Werkzeug zur Charakterisierung dient dabei die Strukturuntersuchung mittels HR-TEM.

4.3.1 Schichtstapel-Optimierung

Im Folgenden wird anhand der in [Tabelle 4.3](#) dargestellten Proben der Einfluss der Zusammensetzung des Schichtstapels untersucht. Das Hauptaugenmerk liegt dabei auf dem unteren Bufferlayer .

Als Vergleichsobjekt zu den in dieser Arbeit betrachteten Proben dient die von der Gruppe Reiss/Thomas in Bielefeld hergestellte und vollständig gesputterte *Probe A*. Diese zeigt einen TMR von rund 230 %. Im Vergleich zu den in dieser Arbeit betrachteten Proben handelt es sich dabei um ein Exchange-Bias-System, wobei ein, per MnIr-Schicht antiferromagnetisch gekoppelter, synthetischer Ferrimagnet (CoFe/Ta/CoFeB) verwendet wird. Da hier die Qualität des Elektroden-Barriere-

	<i>Probe A</i>	<i>Probe B</i>	<i>Probe C</i>	<i>Probe D</i>
TMR [%]:	230	–	5	30
Nach	Au	30 Au	30 Au	30 Au
Annealing	Ru	2 Ru/5 Ta	5 Ta	1,5 Ta
	MnIr/Ru/CoFe/Ta		4 Co	4 Co
	CoFeB	1,2 CoFeB	3 CoFeB	3 CoFeB
	MgO	2,4 MgO	4 MgO	2,6 MgO
	CoFeB	2,2 CoFeB	3 CoFeB	5 CoFeB
	Ta	5 Ta	4 Pd	2 Ru
	Ru	5 Ru	4 Ru	2 Pd
Buffer	Ta	5 Ta	4 Pd	2 Ru
			4 Ru	1,2 Ta
			2 Pd	
Substrat	SiO _x /Si	SiO _x /Si	SiO _x /Si	SiO _x /Si

Tabelle 4.3: Schichtstapel-Zusammensetzungen der ausgewählten Proben, Angaben in nm. *Probe D* wurde bereits in [Abschnitt 4.1](#) elektrisch und magnetisch charakterisiert. Die *Proben B-D* wurden bei 350 °C für eine Stunde annealed.

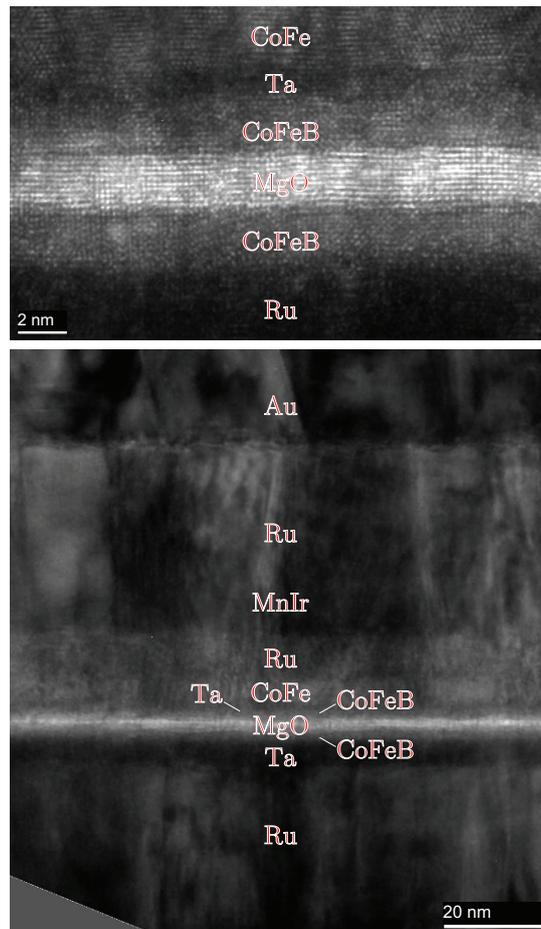


Abbildung 4.7: Vergleichsprobe: *Probe A* – 230 % TMR, vollständig gesputtert, mit synthetischem Ferrimagneten (EB-SV). Im Bereich des Barriere-Elektroden-Übergangs lässt sich eine hohe Ordnung beobachten.

Systems diskutiert werden soll, stellt der etwas andere Aufbau der Probe die Vergleichbarkeit nicht in Frage.

Abbildung 4.7 zeigt für *Probe A* Querschnitts-HR-TEM-Aufnahmen mit einem Detailausschnitt der Barriere. Deutlich lassen sich im etwas heller erscheinenden, recht glatten MgO die einzelnen Netzebenen in (001)-Ausrichtung erkennen. Die Kristallinität setzt sich an den Grenzflächen fort und erstreckt sich bis in die Elektroden hinein. Insgesamt weist die Kristallstruktur in diesem Bereich eine hohe Ordnung mit der gewünschten Ausrichtung auf, die das Auftreten des hohen TMRs zulässt.

Die in [Abbildung 4.8a](#) dargestellten TEM-Aufnahmen zeigen *Probe B*, die keinen

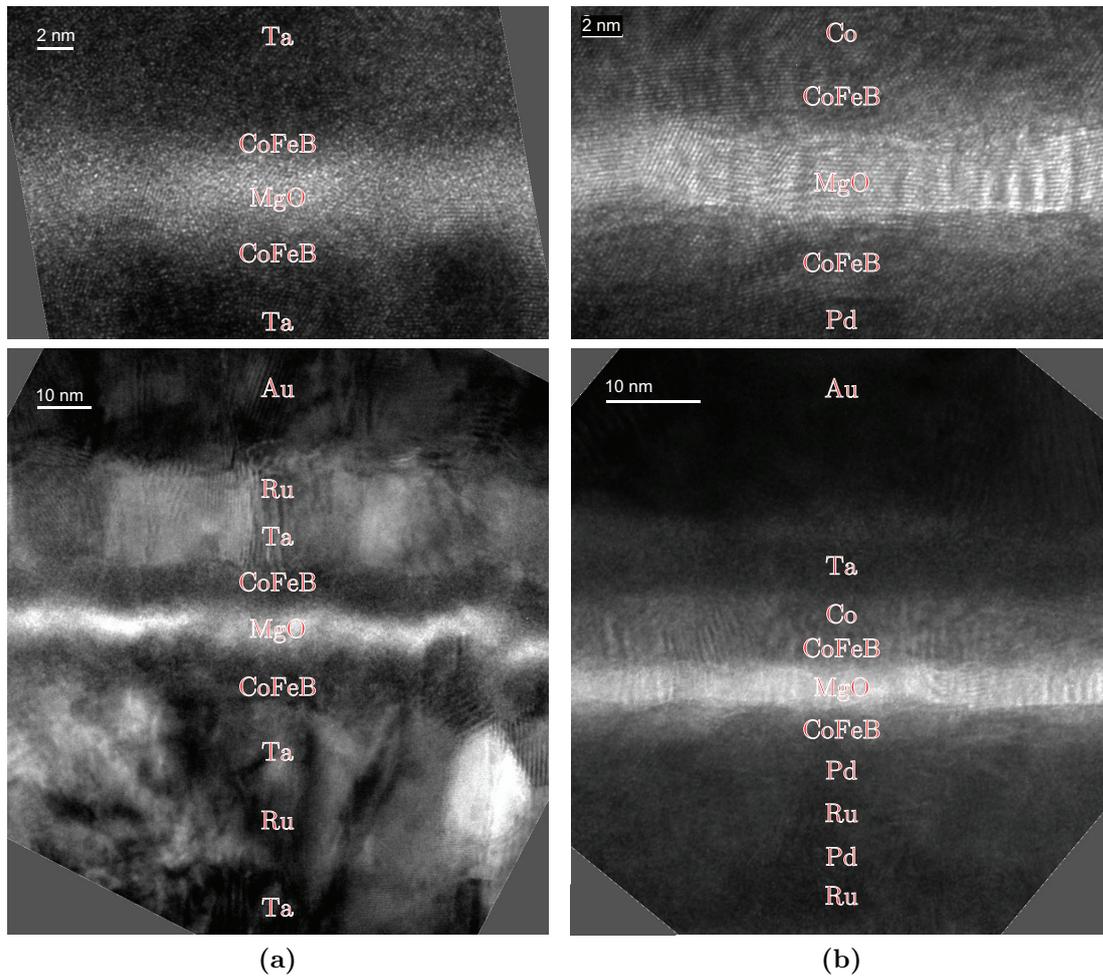


Abbildung 4.8: (a) *Probe B* – kein TMR, gestörte Struktur durch unvorteilhafte Kristallisation im Bufferlayer, verursacht durch das Ta. (b) *Probe C* – 5% TMR, Co-Layer für größere magnetische Härte der oberen Elektrode, TMR herabgesetzt durch Pd-Diffusion an die Barriere.

TMR aufweist und den Ausgangspunkt der Bemühungen darstellt. Die Übersichtsaufnahme zeigt, dass die Probe von großen Körnern durchsetzt ist, die eine starke Unebenheit der MgO-Schicht verursachen. Im Bereich der Barriere lässt sich keinerlei Ordnung beobachten, neben einer starken Welligkeit existieren keine scharfen Grenzflächen zu den CoFeB-Schichten. Stellenweise ist die Barriere sogar durchbrochen, was zu Kurzschlüssen führt. In der elektrischen Charakterisierung lässt sich keine Tunnelcharakteristik feststellen.

Die Störungen der Mikrostruktur gehen von den 5 nm dicken Ta-Schichten im

unteren Bufferlayer aus. Beim Annealing-Prozess scheinen diese sehr ungünstig zu kristallisieren. Wie in [Abbildung 3.4](#) dargestellt, eignet sich Ta prinzipiell sehr gut als Bufferlayer in MTJs, da eine falsche Kristallisation der Elektroden vermieden werden kann. Im Gegensatz zu den sonst oft komplett gesputterten Proben werden die in dieser Arbeit beschriebenen jedoch – abgesehen von den Elektroden – per Elektronenstrahl-Deposition hergestellt. Hier scheint die Depositionsmethode Einfluss auf die Schichteigenschaften und somit auf die Probenqualität zu haben. Der wesentliche Unterschied besteht in der erheblich größeren kinetischen Energie der am Wachstum beteiligten Atome beim Magnetron-Sputtern.

Werden die Ta-Layer ersetzt, wie in *Probe C* z.B. durch Pd, so verschwinden die beschriebenen Probleme: Wie [Abbildung 4.8b](#) zeigt, erscheint die gesamte Probenstruktur deutlich sauberer, es lassen sich nun wesentlich homogenere und glattere Schichten beobachten. Im Bereich der Barriere und dem Übergang zu den Elektroden lässt sich eine gewisse Ordnung erkennen, die sich stellenweise auch in die Elektroden fortsetzt. Die Wachstumsausrichtung ist jedoch nicht einheitlich, das MgO weist eine polykristalline Struktur mit ganz unterschiedlichen Wachstumsrichtungen auf. Die angestrebte einheitliche (001)-Ausrichtung ist also noch nicht erreicht. Es lässt sich jedoch eine Tunnelcharakteristik, ähnlich dem in [Abbildung 4.6a](#) dargestellten U-I-Verlauf, beobachten. Die MgO-Schicht stellt nun also tatsächlich eine Tunnel-Barriere dar. Die wellenartigen Modulationen in Richtung der Barriere, die in den TEM-Abbildungen zu sehen sind, lassen sich vermutlich auf Moiré-Effekte von übereinander liegenden Körnern zurückführen.

Über eine Cobalt-Schicht, die über dem oberen CoFeB-Layer in den Schichtstapel eingefügt wurde, erhält die obere Elektrode eine größere magnetische Härte. Dies erlaubt erstmals getrenntes Schalten der Magnetisierungsausrichtungen. Dabei funktioniert die ferromagnetische Kopplung nur, wenn das Co vor dem Annealing-Prozess aufgebracht wird, oder die Probe nicht annealed wird. Ein Aufbringen nach dem Annealing hingegen führt nicht zu dem gewünschten Erfolg. In den TEM-Aufnahmen lässt sich kein Kontrast zwischen Co und CoFeB erkennen, diese erscheinen als einheitliche Schicht, eine Aussage über die Grenzfläche ist daher nicht möglich. Dies ist auch für Pd und Ru der Fall.

Für *Probe C* sind nun also die beiden elementaren Ingredienzien für den Tunnelmagnetowiderstands-Effekt vorhanden. Mit rund 5 % ist dieser jedoch sehr schwach ausgeprägt.

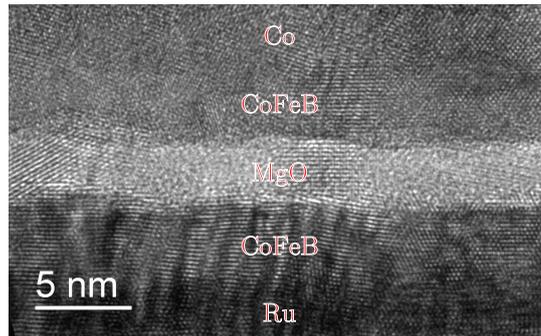


Abbildung 4.9: TEM-Aufnahmen der Barriere der *Probe D* mit 30% TMR. Es lässt sich stellenweise eine gewisse Nahordnung im Bereich der Barriere-Elektroden-Grenzflächen erkennen. Kohärentes Tunneln jedoch wird gestört.

EDX-Untersuchungen¹² haben gezeigt, dass beim Annealing-Prozess Pd aus dem unteren Bufferlayer durch die Elektrode bis zur Barriere hin diffundiert und den spinabhängigen Tunnelprozess stört. Bei der in [Abbildung 4.9](#) gezeigten *Probe D* wurde nun der an die untere Elektrode angrenzende Pd-Layer weggelassen. Aus dieser Änderung resultiert eine signifikante Steigerung des TMRs auf etwa 30%. Die bereits in [Abschnitt 4.1](#) gezeigten Kurven charakterisieren diese *Probe D* magnetisch und elektrisch. Dabei sind der TMR und auch der Flächenwiderstand RA unabhängig von der Fläche der charakterisierten Elemente (Kantenlängen von 12,5 und 30 μm). Dies spricht für recht homogene Barrieren, zumindest lassen sich keine Hinweise auf Pinholes oder andere Inhomogenitäten feststellen.

Wie die TEM-Aufnahmen des Querschnitts dieser Probe zeigen, ist der Barriere-Elektroden-Übergang nun relativ glatt und weist geordnete Bereiche auf, die jedoch immer noch in Körner in der Größenordnung der Barrierendicke zerfallen. Die Körner zeigen recht verschiedenen Kontrast, dies wird vermutlich durch unterschiedliche Verdrehungen verursacht. Die Struktur gleicht im Wesentlichen der von *Probe C*. Die untere CoFeB-Elektrode scheint einen etwas schärferen Übergang zum nun benachbarten Ru-Layer aufzuweisen. Dies könnte ein Hinweis für verminderte Diffusion in das CoFeB sein.

Als Haftgrundlage wurde bei *Probe D* wieder eine Ta-Schicht verwendet. Mit 1,2 nm ist diese jedoch verhältnismäßig dünn und verursacht beim Annealing nicht

¹² EDX (Energy Dispersive X-Ray Spectroscopy): Methode zur Analyse der Materialzusammensetzung unter Ausnutzung der charakteristischen Röntgenstrahlung.

die Probleme, die bei den relativ dicken Schichten in *Probe B* aufgetreten sind.

4.3.2 Variation der Annealing-Temperatur

Trotz der im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Verbesserungen der Probenstruktur liegt der höchste beobachtete TMR bei rund 30 %. Es ist also davon auszugehen, dass noch kein, für den Giant TMR erforderliches, kohärentes Tunneln erfolgt. Bei der Vorstellung des Probensystems in [Abschnitt 3.1](#) wurde die Relevanz des Annealings für das (kohärente) Tunneln hervorgehoben. Als Ansatz zur weiteren Optimierung soll daher der Einfluss der Annealing-Temperatur untersucht werden.

Der Aufbau der Proben der Annealing-Serie entspricht im Wesentlichen dem der in [Tabelle 4.3](#) dargestellten *Probe D*. Der TMR in Abhängigkeit von der Annealing-Temperatur T_a wird in [Abbildung 4.10a](#) gezeigt. In der Auftragung lässt sich kein klarer Verlauf feststellen, was eine eindeutige Aussage über die Abhängigkeit $\text{TMR}(T_a)$ erschwert. Sieht man über Ausreißer hinweg, lässt sich jedoch zunächst eine Zunahme des TMRs mit T_a feststellen, für höhere Temperaturen, ab etwa 375 °C, bricht dieser jedoch zusammen. Der größte beobachtete TMR tritt bei der Probe mit $T_a = 350$ °C auf und beträgt etwa 38 %. Auch für die „as prepared“-Probe (die bei Raumtemperatur eingetragen ist) lässt sich ein TMR beobachten der etwa bei der Hälfte des maximalen Wertes liegt. Für sehr hohe Temperaturen über 400 °C sinkt der TMR sehr stark ab und liegt deutlich unterhalb des Wertes der nicht annealten Probe. Die Werte liegen zwar bei weniger als 2 %, der TMR verschwindet jedoch nicht vollständig. [Abbildung 4.11](#) zeigt exemplarische Messungen des Widerstandsverlaufs mit dem daraus resultierenden TMR in Abhängigkeit des externen Feldes. Gezeigt wird das Verhalten der bei 475 °C annealten Probe, die einen sehr geringen TMR und starkes Rauschen zeigt, im Vergleich zu dem der Probe mit dem höchsten TMR der betrachteten Reihe ($T_a = 350$ °C).

In [Abschnitt 3.1](#) wurden Untersuchungen vorgestellt, die für hohe Annealing-Temperaturen eine Abnahme des TMRs in Tunnelementen, ähnlich den hier betrachteten, zeigen. Aktuelle Untersuchungen von Ikeda et al. haben für P-SV eine Abnahme des Effekts oberhalb von 500 °C ergeben, die wahrscheinlich auf Tantal-Diffusion zurückzuführen ist. Eine Unterdrückung der Diffusion durch dickere Elektroden führte in diesem Fall zu dem bisher höchsten beobachteten TMR bei Raumtemperatur von 604 % [[IHA⁺08](#)]. Das Verhalten, das die hier untersuchten Proben

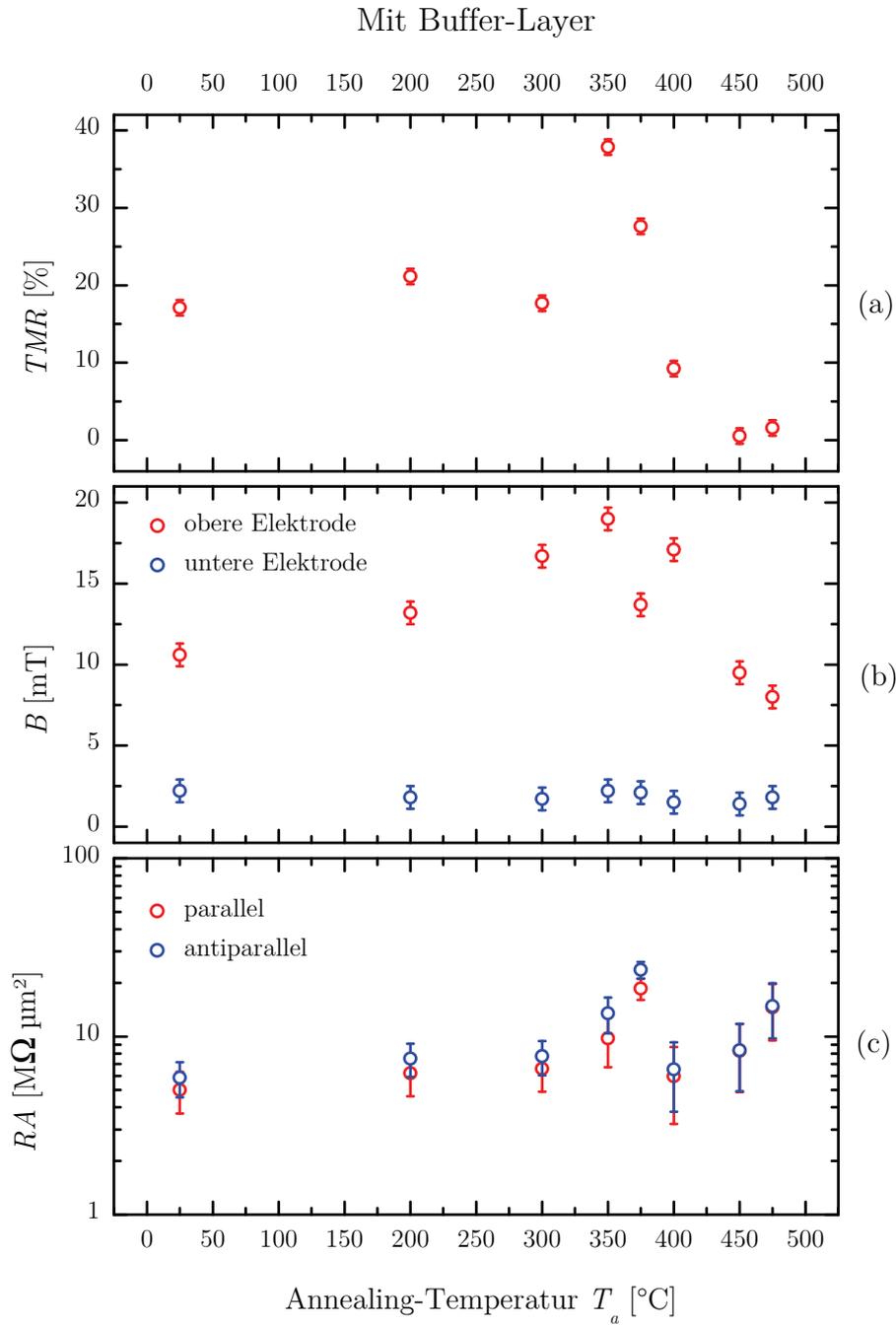


Abbildung 4.10: Variation der Annealing-Temperatur, dargestellt sind TMR (a), Schaltfelder (b) und Flächenwiderstand (c) in Abhängigkeit von T_a für Proben, die der Zusammensetzung von *Probe D* entsprechen (siehe Tabelle 4.3).

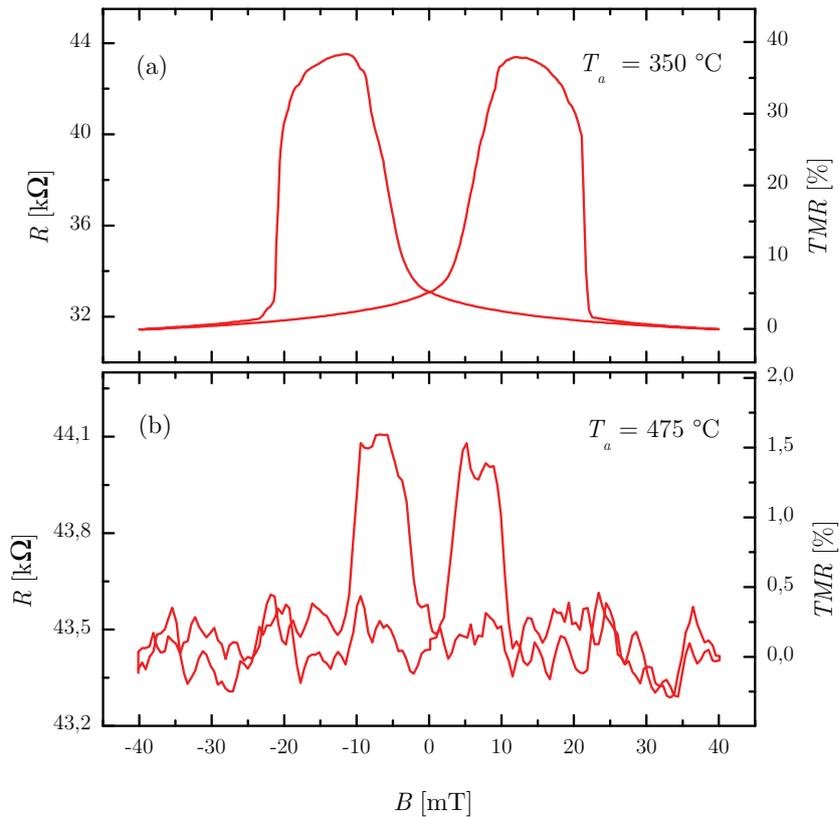


Abbildung 4.11: TMR in Abhängigkeit des externen Feldes für verschiedene Annealing-Temperaturen. Gezeigt wird das Verhalten der Probe mit $T_a = 350$ °C, die mit 38% den höchsten TMR der in diesem Abschnitt betrachteten Reihe zeigt (a). Der Verlauf in (b) gehört zu der bei 475 °C annealten Probe, die weniger als 2% TMR zeigt.

zeigen, ähnelt jedoch eher dem von EB-SV (siehe [Abbildung 3.3](#)), die bereits um 400 °C eine deutliche Abnahme des TMR zeigen. Als wahrscheinlichste Ursache für den Zusammenbruch wird eine Diffusion von Materialien aus dem SyF, wie etwa Mn oder Ru, angesehen. Die Betrachtung der Schichtstapel-Variation im vorangegangenen Abschnitt hat gezeigt, dass Palladium-Diffusion aus dem Bufferlayer an die Barriere zu Schwierigkeiten führt. Dies könnte auch hier die Ursache für den Zusammenbruch darstellen.

Um den Einfluss des Annealings auf die Mikrostruktur zu untersuchen, wurden erneut TEM-Aufnahmen erstellt. Diese haben gezeigt, dass auch nach Annealing bei 450 °C keine qualitative Veränderung der Struktur gegenüber den vorher gezeigten Aufnahmen von *Probe C* und *D* aufgetreten sind. Es ist also nicht zu einer „un-

kontrollierten“ Kristallisation, wie zuvor bei den Ta-Layern beobachtet, gekommen. Dies unterstützt eher die Annahme, dass die Diffusion die Abnahme der relativen Widerstandsänderung verursacht.

Abbildung 4.10b zeigt die zugehörigen Schaltfelder der Elektroden in Abhängigkeit von T_a aus MOKE-Untersuchungen. Während die Schaltfelder der unteren Elektrode weitgehend konstant sind, verändert sich das Schaltverhalten der oberen (Co-verstärkten) Elektrode deutlich. Dabei lässt sich ein Maximum beobachten, das etwa im gleichen Temperaturbereich liegt, wie das des TMR-Verlaufs. Hier scheint also ein Zusammenhang zwischen großer Schaltfeld-Differenz und großem TMR zu bestehen. Dies ist nicht weiter verwunderlich: Die M(B)-Messung in Abschnitt 4.1 zeigt eine Überlappung der Ummagnetisierungsbereiche der beiden Elektroden. Insbesondere bei nah zusammenliegenden Schaltfeldern führt dies zu einer vermindernten Ausprägung des antiparallelen Zustandes und damit zu einer kleineren relativen Widerstandsänderung.

Es stellt sich die Frage, was diese Abhängigkeit verursacht. Denkbar ist eine Vermischung des (magnetisch wesentlich härteren) Cobalts mit der CoFeB-Schicht der oberen Elektrode. Da in den TEM-Aufnahmen kein Kontrast zwischen den beiden Materialien besteht, lässt sich dies jedoch nicht beurteilen.

Betrachtet man den Flächenwiderstand (bei dem sich p- und ap-Zustand wegen des geringen TMRs kaum unterscheiden), so sieht man, dass RA (im Rahmen der Fehlerbalken) mit der Annealing-Temperatur anwächst, im Bereich des TMR-Zusammenbruchs jedoch eine Auffälligkeit aufweist. Diese ließe sich sowohl als Sprung, als auch als Schwankung auffassen und dient daher nicht der endgültigen Klärung.

Probensystem ohne Buffer-Layer

Der maximale TMR von 38 % ist keine wesentliche Verbesserung gegenüber den bisher betrachteten Proben. Tatsächlich hatte *Probe D* bereits die für diese Systeme offenbar ideale Annealing-Temperatur von 350 °C. Der Unterschied zu der zuletzt betrachteten Reihe besteht lediglich in einer etwas abweichenden Schichtpräparation (andere Aufdampftrate). Wie weiter oben diskutiert, ist vermutlich Diffusion die Ursache für den TMR-Zusammenbruch bei Temperaturen oberhalb von 375 °C. Der nächste Schritt ist daher den Bufferlayer wegzulassen, um mehr über den Einfluss der potentiell diffundierenden Materialien zu lernen bzw. Störquellen auszuschal-

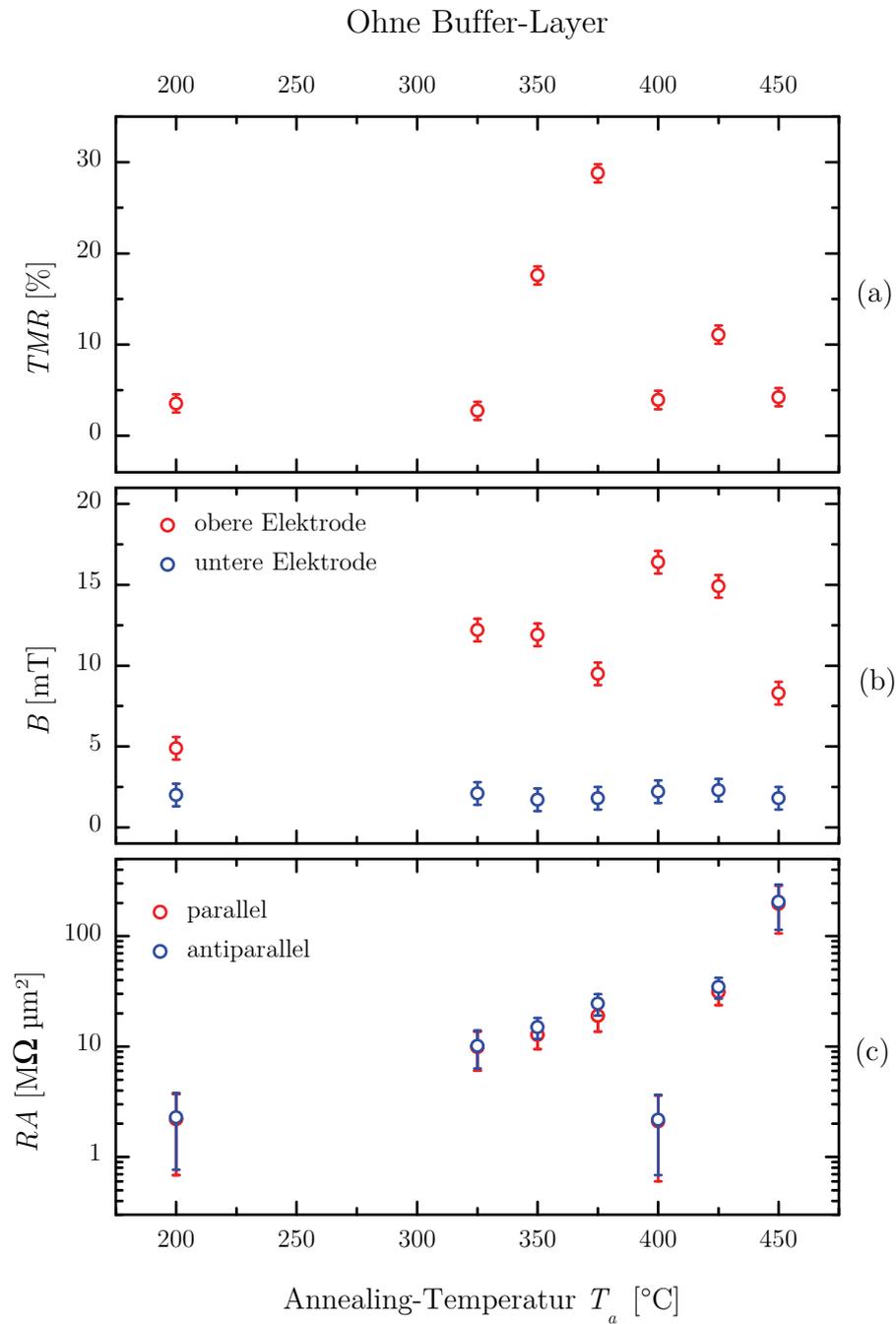


Abbildung 4.12: TMR (a), Schaltfelder (b) und Flächenwiderstand (c) in antiparalleler Konfiguration in Abhängigkeit von der Annealing-Temperatur für Proben *ohne* unteren Buffer.

ten. [Abbildung 4.12](#) zeigt für die variierte Annealing-Temperatur die Eigenschaften der Proben ohne Buffer. Diese weisen nun eine dickere untere CoFeB-Elektrode auf (7 nm Schichtdicke), die direkt auf dem Substrat aufgewachsen wurde.

Die TMR-Werte liegen etwa in der gleichen Größenordnung wie bei der zuvor betrachteten Reihe, es existieren hier jedoch zu wenig verwendbare Proben, um Aussagen über eine konkrete Abhängigkeit treffen zu können. Die geänderte Probenzusammensetzung hat offenbar keinen wesentlichen Einfluss auf die Schaltfelder: Die Werte liegen (im Rahmen der Schwankungen) in vergleichbaren Bereichen wie die der Proben mit Buffer. Insbesondere die nun dickere untere Elektrode hat ihr Schaltverhalten nahezu behalten. Auch die Breiten der Ummagnetisierungsbereiche (hier nicht dargestellt) zeigen keine Unterschiede. Der zuvor beobachtete Zusammenhang zwischen großer Schaltfelddifferenz und großem TMR lässt sich hier jedoch *nicht* beobachten.

Der Flächenwiderstand zeigt (bis auf einige Ausnahmen) einen monotonen exponentiellen Anstieg mit T_a . Dabei liegen die Werte etwas höher, aber noch in der gleichen Größenordnung wie für die Proben mit Buffer. Das etwas größere RA lässt sich mit dem höheren Widerstand der nun dünneren unteren Zuleitung begründen. Die Proben sind jetzt einer stärkeren Streuung/Unsicherheit unterworfen und es sind Ausreißer festzustellen, die mit niedrigen TMR-Werten korrelieren. Außerdem ist zu beobachten, dass für die bei niedriger Temperatur annealten Probe die Werte von $TMR(T_a)$, $M(T_a)$ und $B(T_a)$ wesentlich geringer sind, als mit Buffer. Es besteht eine gewisse Ähnlichkeit zu den oben gezeigten zu stark erhitzten Proben.

Es lässt sich sagen, dass das Weglassen des Buffers zu *keiner* Verbesserung der Probeneigenschaften geführt hat. Dies unterstützt die Vorstellung nicht, dass die TMR-Abnahme durch Diffusion von Materialien aus dem Bufferlayer (verdächtig wird aufgrund der vorangegangenen Untersuchungen insbesondere Pd) während des Annealing-Prozesses verursacht wird. Es ist aber auch nicht als Widerspruch zu werten: Einerseits ließ sich kein Einbruch des TMR bei hohen Temperaturen, wie in der vorangegangenen Reihe, beobachten, andererseits treten nun in allen betrachteten Eigenschaften vermehrt Ausreißer auf, was auf neu hinzugekommene Einflüsse hindeutet. Insbesondere die Tatsache, dass die Schaltfelddifferenzen im gleichen Bereich wie bei den zuvor betrachteten Proben liegen, die Flächenwiderstände jedoch schwanken, könnte auf Schwierigkeiten mit der MgO-Barriere hindeuten. Es wurden bereits in [Abschnitt 4.3.1](#) Schwierigkeiten mit den Ta-Layern bei der Elektronenstrahl-Deposition diskutiert. Ausschließen lassen sich jedoch grund-

legende Probleme der Depositionsmethode, da z.B. Yuasa et al. per MBE hergestellte Systeme zeigen, bei denen lediglich die CoFeB-Elektroden gesputtert wurden [YFK⁺06]. Nicht auszuschließen ist auch eine Beeinflussung der Wachstumseigenschaften der Elektroden, die direkt auf SiO_x aufgebracht werden. Es finden sich Hinweise, dass unter Umständen eine erhebliche Rauigkeit des CoFeB-Films auf einer solchen Unterlage auftreten kann, dies wurde hier jedoch nicht beobachtet [Fab09]).

Die Annealing-Serie ohne Buffer-Layer hat also keine neuen Erkenntnisse gebracht. Der Versuch das Probensystem zu vereinfachen, hat ganz im Gegenteil offenbar zu zusätzlichen Herausforderungen geführt. Auf der anderen Seite stellt die Diffusion insgesamt möglicherweise nicht die Hauptursache für die Beschränkung des TMR dar.

Die vorher erkannte Abhängigkeit des TMRs von T_a über die Schaltfelder ist eine Fragestellung des ap-Zustandes, für kohärentes Tunneln ist aber vermutlich eher der p-Zustand (und damit die möglichst effektive Kopplung der Δ_1 -Zustände) zu optimieren. Dafür spricht auch, dass der parallele $RA(T_a)$ -Verlauf bei kohärentem Tunneln anders aussieht: Es lässt sich ein lokales Minimum in $R_p A$ beobachten, während $R_{ap} A$ monoton ansteigt [IHA⁺08]. Dies würde sich unter anderem in einer wesentlich schwächer gekrümmten, also ohmschen Verhalten ähnlicheren, p-Kennlinie niederschlagen. Die Annealing-Untersuchungen haben im Bezug auf Struktur und Ordnung/Qualität des Übergangs keine Fortschritte gebracht. Außerdem ist das TMR-Maximum bei Variation der Annealing-Temperatur keine Eigenschaft des kohärenten Tunnelns, bzw. hängt nicht direkt mit diesem zusammen. Es liegt daher die Vermutung nahe, dass die Bemühungen in dieser Richtung keinen Fortschritt bringen.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde zunächst der Tunnelmagnetowiderstands-Effekt basierend auf spinabhängigen Tunnelprozessen eingeführt. Davon ausgehend wurde das Konzept des kohärenten Tunnels als Grundlage für den Giant TMR in epitaktischen Ferromagnet/Isolator/Ferromagnet-Systemen dargelegt. Mit den CoFeB-MgO-basierten magnetischen Tunnelkontakten wurde ein Probensystem vorgestellt, in dem sich das Auftreten dieses Effekts erwarten lässt und bereits beobachtet wurde.

Des Weiteren wurden mit der optischen Lithographie und dem Sputterätzen die wesentlichen Methoden erläutert und charakterisiert, die der Strukturierung eigener MgO-Tunnelemente zugrunde liegen. Exemplarisch wurden die relevanten elektrischen und magnetischen Eigenschaften der hergestellten MTJs gezeigt.

Im Rahmen der Bemühungen zur Optimierung des Probensystems wurden Untersuchungen zum Einfluss der Probenzusammensetzung und der Annealing-Temperatur auf die Qualität des Elektroden-Barriere-Systems der Tunnelemente gezeigt. Tatsächlich ließ sich an den in dieser Arbeit betrachteten Tunnelementen TMR beobachten, es gelang jedoch bisher nicht das erwartete kohärente Tunneln und die damit verbundenen sehr großen relativen Widerstandsänderungen zu beobachten.

Als Motivation hinter den geschilderten Bestrebungen steht hier nicht allein die Optimierung des TMR, wie sie etwa für industrielle Anwendungen verfolgt wird. Ziel ist es vielmehr Tunnelemente möglichst einfachen Aufbaus herzustellen, um mehr über die Nahordnung am Elektroden-Barriere-Übergang und die Eigenschaften des Tunnelprozesses zu lernen. Dies erfordert zunächst das Erlangen eines hinreichend hohen TMR und eine bessere Kontrolle der Wachstumseigenschaften.

In Zukunft ist es erstrebenswert Spektroskopie-Untersuchungen bei tiefen Temperaturen und Messungen in Vierpunkt-Geometrie durchführen zu können. Als Voraussetzung dafür steht die Fähigkeit aufwändigere Strukturen zur Kontaktie-

rung herzustellen, die dann beispielsweise Wire-Bonding erlauben oder erforderlich machen. Des Weiteren ist auch eine Kombination mit CIMS- (Current Induced Magnetic Switching) bzw. Spin-Torque-Devices von Interesse, was in Richtung der Anwendung als MRAM deuten würde. In diesem Zuge müssten die Flächen der Tunnelkontakte stark verkleinert werden, um die erforderlichen sehr großen Stromdichten zu ermöglichen.

Voraussetzung für diese Punkte ist eine Erweiterung des Strukturierungsprozesses um zusätzliche Lithographie- und Ätz-/Depositions-Schritte, auch unter Hinzunahme der Elektronenstrahl-Lithographie. Dabei ist in Kauf zu nehmen, dass die Probenpräparation wesentlich komplexer und zeitintensiver wird. Bemühungen in dieser Richtung rücken also dann in den Fokus, wenn die Optimierungsprozesse der Tunnelemente weiter fortgeschritten sind.

Anhang A

Prozessdetails und -anleitungen

A.1 Lithographie

Kurzanleitung Negativ Photoresist AR-N 4240

Stand: 8. Oktober 2008

1. Photoresist aufbringen, bei (10×10) mm²-Proben: 35-40 μ l
2. Spin-Coating: 60 s bei 6000 rpm (Programm „60S6K“, resultierende Schichtdicke ca. 1300 nm)
3. Ausbacken: 2 min Hotplate bei 85 °C
4. Belichten: 2,5 s (Constant Intensity, 37 mW/cm² (CH1: 320 nm), Dosis: ca. 100 mJ/cm²)
5. Ausbacken: 2 min Hotplate bei 85 °C
6. Entwickeln: ca. 75 s mit AR 300-47, anschließend Spülen in DI-Wasser
7. Ätzen/Deponieren
8. Stripping: 90-120 min Propanol bei 50 °C im Ultraschallbad, Stufe 3

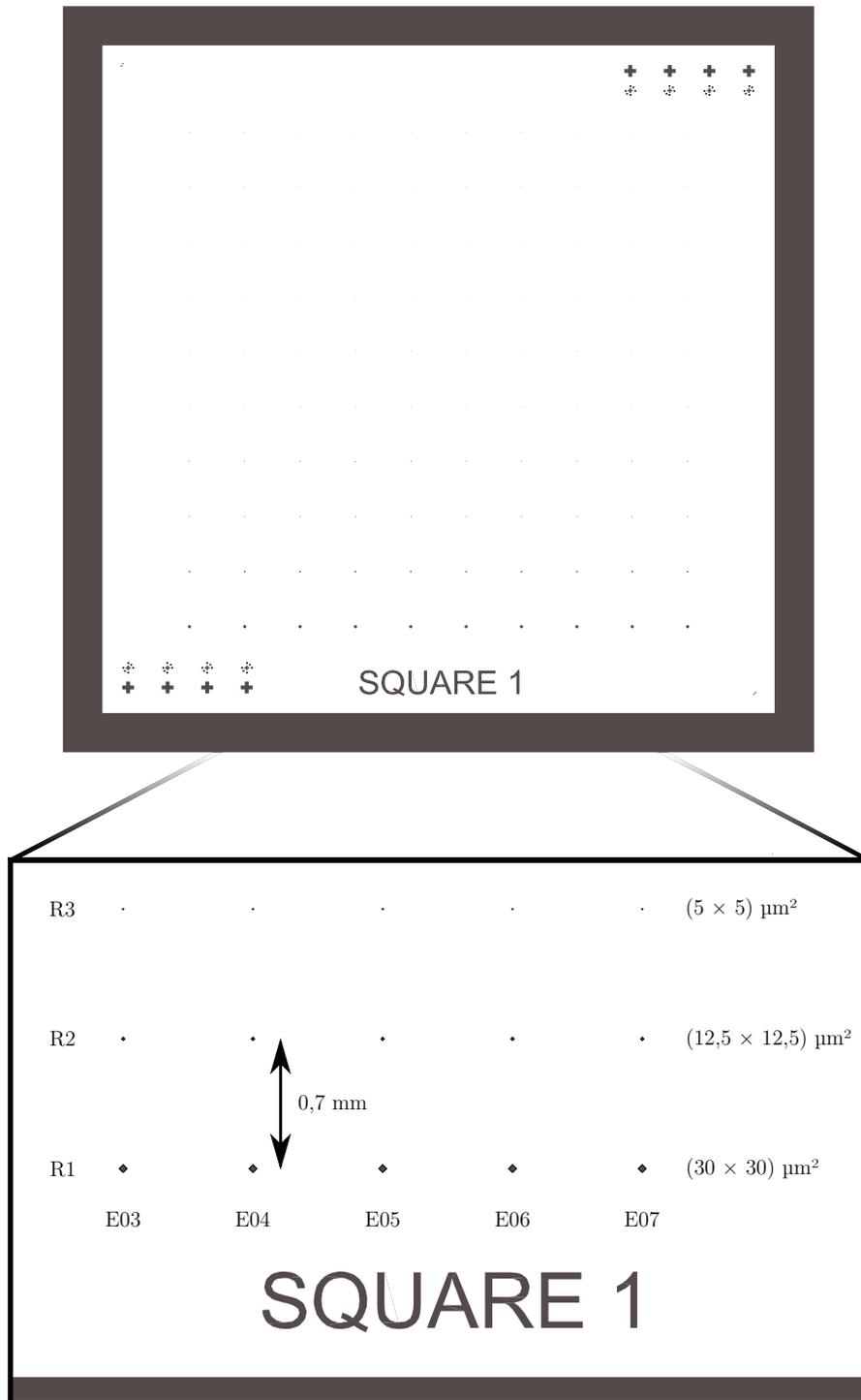


Abbildung A.1: Maske für optische Lithographie im Strukturierungsprozess der Tunnelemente

A.2 Sputterätzen

Kurzanleitung Inverser-Sputter-Ätzer ISE 90 & RF-Quelle CESAR 136

Stand: 16. Januar 2008

1. Anlage belüften über Ventil V4 (ca. 3 min)
2. Probe einbauen
3. Teller-Rotation über Touch-Panel aktivieren, 10 rpm wählen
4. Kammer schließen und Vorpumpe über P1 starten. Die Turbopumpe läuft bei passendem Druck automatisch an.
Bis ca. 3×10^{-5} mbar (ca. 15 min) abpumpen, warten bis die Last auf 1/9 Striche absinkt
5. Ventil V1 auf „intermediate“ stellen (gewählter Öffnungsgrad: 40 %)
6. Argon-Zufuhr über Ventil V8 öffnen
7. Argon-Zünddruck über mass flow controller (MFC) auf 2×10^{-2} mbar einstellen: bei 40 % Öffnungsgrad ca. 40 sccm (der Volumenstrom sollte nicht so hoch gewählt werden, dass die Load-Anzeige der Turbopumpe dauerhaft über 6/9 Striche anzeigt)
8. RF-Quelle „CESAR“ im Manual Mode, geregelt wird die Bias-Spannung auf $U_{\text{Bias}} = 1840$ V. Gewählte Matching-Parameter: $C_{\text{tune}} = 27,7\%$, $C_{\text{load}} = 93,6\%$.
9. Mit „RF-Power On“-Schalter Plasma zünden
10. Argon-Druck über MFC in den Arbeitsbereich absenken: 5×10^{-3} mbar (entspricht bei 40 % Öffnungsgrad ca. 5 sccm)
11. ca. 1 min Einlaufphase abwarten
12. Proben-Shutter über Schalter „Shutter“ am Deposition Controller öffnen

13. Falls das Plasma zusammenbricht „off“-Schalter am CESAR drücken, Proben-Shutter schließen und bei Punkt 7 fortfahren.
14. Plasma über „off“-Schalter ausschalten, RF-Quelle zur Kühlung weiterlaufen lassen
15. Argon-Fluss über V8 stoppen, *danach* Ventil V1 auf „open“
16. Belüften über Ventil V4
17. Vor dem Ausbau der Probe die Plasma-Quelle mit der „Entladungsvorrichtung“ erden

Anwendungsbeispiel

Bei einer Self-Bias-Spannung von

$$U_{\text{Bias}} = 1840 \text{ V} \quad (W_f \approx 500 \text{ W}, W_r \approx 90 \text{ W})$$

und einem Arbeitsdruck von

$$p = 5 \times 10^{-3} \text{ mbar}$$

erhält man auf dem Hauptprobenteller (Abstand zur Plasma-Quelle ca. 25 cm, Winkel ca. 27°) die folgenden Ätzraten:

Material	Rate [nm/min]
MgO	3,0
CoFeB (as prep.)	3,9
Ta	4,3
Ru	6,6
Pd	6,9
SiO _x	9,9
Au	12,6
Positiv-Resist	21,5
Negativ-Resist	25,2

Tabelle A.1: Experimentell bestimmte Ätzraten verschiedener Materialien (mit relativen Unsicherheiten im Bereich von 2-3 %).

Literaturverzeichnis

- [BBF⁺88] BAIBICH, M. N., J. M. BROTO, A. FERT, F. NGUYEN VAN DAU, F. PETROFF, P. ETIENNE, G. CREUZET, A. FRIEDERICH und J. CHAZELAS: *Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices*. Phys. Rev. Lett., 61(21):2472, November 1988.
- [BGSZ89] BINASCH, G., P. GRÜNBERG, F. SAURENBACH und W. ZINN: *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*. Phys. Rev. B, 39(7):4828, März 1989.
- [Bre04] BRETSCHNEIDER, S.: *Herstellung und Charakterisierung von schnellen Photoleitungsschaltern*. Diplomarbeit, Universität Göttingen, IV. Physikalisches Institut, 2004.
- [BZSM01] BUTLER, W. H., X. G. ZHANG, T. C. SCHULTHESS und J. M. MACLAREN: *Spin-dependent tunneling conductance of Fe/MgO/Fe sandwiches*. Phys. Rev. B: Condens. Matter Mater. Phys., 63(5):054416, Februar 2001.
- [Djo06] DJORDJEVIC KAUFMANN, M.: *Magnetization dynamics in all-optical pump-probe experiments: spin-wave modes and spin-current damping*. Dissertation, Georg-August-Universität zu Göttingen, 2006.
- [Eil09] EILERS, G. Dissertation, Universität Göttingen, I. Physikalisches Institut, 2009.
- [Fab09] FABRETTI, SAVIO. Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 2009.
- [HGZM07] HEILIGER, C., M. GRADHAND, P. ZAHN und I. MERTIG: *Tunneling magnetoresistance on the subnanometer scale*. Phys. Rev. Lett., 99(6):066804, August 2007.

- [HIL⁺06] HAYAKAWA, J., S. IKEDA, Y. M. LEE, F. MATSUKURA und H. OHNO: *Effect of high annealing temperature on giant tunnel magnetoresistance ratio of CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions*. Appl. Phys. Lett., 89(23):232510, Dezember 2006.
- [HIM⁺05] HAYAKAWA, J., S. IKEDA, F. MATSUKURA, H. TAKAHASHI und H. OHNO: *Dependence of giant tunnel magnetoresistance of sputtered CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions on MgO barrier thickness and annealing temperature*. Jpn. J. Appl. Phys., Part 2, 44(16-19):L587–L589, 2005.
- [IHA⁺08] IKEDA, S., J. HAYAKAWA, Y. ASHIZAWA, Y. M. LEE, K. MIURA, H. HASEGAWA, M. TSUNODA, F. MATSUKURA und H. OHNO: *Tunnel magnetoresistance of 604 % at 300 K by suppression of Ta diffusion in CoFeB/MgO/CoFeB pseudo-spin-valves annealed at high temperature*. Appl. Phys. Lett., 93(8):082508, August 2008.
- [IHL⁺06] IKEDA, S., J. HAYAKAWA, Y. M. LEE, T. TANIKAWA, F. MATSUKURA und H. OHNO: *Tunnel magnetoresistance in MgO-barrier magnetic tunnel junctions with bcc-CoFe(B) and fcc-CoFe free layers*. J. Appl. Phys., 99(8):08A907, April 2006.
- [IL02] IBACH, H. und H. LÜTH: *Festkörperphysik*. Springer, 2002.
- [Jul75] JULLIERE, M.: *Tunneling between ferromagnetic-films*. Phys. Lett. A, 54(3):225–226, 1975.
- [KBL⁺07] KIM, DONG JOON, JI YOUNG BAE, WOO CHANG LIM, KEE WON KIM und TAEK DONG LEE: *Structural analysis of the CoFeB thin film in Ru/CoFeB and MgO/CoFeB layers*. 10th joint MMM/Intermag conference, 101(9):09B505, 2007.
- [KCH⁺85] KOHLER, K., J. W. COBURN, D. E. HORNE, E. KAY und J. H. KELLER: *Plasma potentials of 13.56 MHz RF argon glow discharges in a planar system*. J. Appl. Phys., 57(1):59–66, Januar 1985.
- [Mad97] MADOU, M.: *Fundamentals of microfabrication*. CRC Press, 1997.

- [MKWM95] MOODERA, J. S., LISA R. KINDER, TERRILYN M. WONG und R. MESERVEY: *Large Magnetoresistance at Room Temperature in Ferromagnetic Thin Film Tunnel Junctions*. Phys. Rev. Lett., 74(16):3273, April 1995.
- [MM99] MOODERA, J. S. und G. MATHON: *Spin polarized tunneling in ferromagnetic junctions*. J. Magn. Magn. Mater., 200(1-3):248–273, Oktober 1999.
- [MT95] MIYAZAKI, T. und N. TEZUKA: *Giant magnetic tunneling effect in Fe/Al₂O₃/Fe junction*. J. Magn. Magn. Mater., 139(3):L231–L234, Januar 1995.
- [MU01] MATHON, J. und A. UMERSKI: *Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial Fe/MgO/Fe(001) junction*. Phys. Rev. B, 63(22):220403, Mai 2001.
- [NM06] NAGAHAMA, T. und J. S. MOODERA: *Magnetic Tunnel Junctions with Magnesium Oxide Barriers*. Journal Of Magnetism, 11(4):170–181, 2006.
- [Par07] PARGE, ANNE: *Current-Induced Excitations in Ferromagnetic Single Layer and Trilayer Nanodevices*. Dissertation, Universität Göttingen, IV. Physikalisches Institut, 2007.
- [PKP⁺04] PARKIN, S. S. P., C. KAISER, A. PANCHULA, P. M. RICE, B. HUGHES, M. SAMANT und S. H. YANG: *Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO (100) tunnel barriers*. Nat. Mater., 3(12):862–867, Dezember 2004.
- [SS06] STÖHR, J. und H. C. SIEGMANN: *Magnetism – From Fundamentals to Nanoscale Dynamics*. Springer, 2006.
- [TDN⁺05] TSUNEKAWA, K., D. D. DJAYAPRAWIRA, M. NAGAI, H. MAEHARA, S. YAMAGATA und N. WATANABE: *Effect of capping layer material on tunnel magnetoresistance in CoFeB-MgO-CoFeB magnetic tunnel junctions*. Digests of the IEEE Intermag Asia, Seiten 1983–1984, 2005.

- [Von05] VON ARDENNE ANLAGENTECHNIK GMBH: *Betriebsanleitung Inverser Sputterätzer ISE 90*, 2005.
- [Wal09] WALTER, M.: *Untersuchung der Transporteigenschaften von CoFeB/MgO/CoFeB-Tunnelmagnetowiderstandselementen*. Diplomarbeit, Universität Göttingen, I. Physikalisches Institut, 2009.
- [Was03] WASER, R. (Herausgeber): *Nanoelectronics and Information Technology, Part II*. Wiley-VCH, 2003.
- [YD07] YUASA, S. und D. D. DJAYAPRAWIRA: *Giant tunnel magnetoresistance in magnetic tunnel junctions with a crystalline MgO(001) barrier*. J. Phys. D: Appl. Phys., 40(21):R337–R354, November 2007.
- [YFK⁺06] YUASA, S., A. FUKUSHIMA, H. KUBOTA, Y. SUZUKI und K. ANDO: *Giant tunneling magnetoresistance up to 410 % at room temperature in fully epitaxial Co/MgO/Co magnetic tunnel junctions with bcc Co(001) electrodes*. Appl. Phys. Lett., 89(4):042505, Juli 2006.
- [YNF⁺04] YUASA, S., T. NAGAHAMA, A. FUKUSHIMA, Y. SUZUKI und K. ANDO: *Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions*. Nat. Mater., 3(12):868–871, Dezember 2004.
- [ZLMP97] ZHANG, S., P. M. LEVY, A. C. MARLEY und S. S. P. PARKIN: *Quenching of Magnetoresistance by Hot Electrons in Magnetic Tunnel Junctions*. Phys. Rev. Lett., 79(19):3744, November 1997.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mich bei der Erstellung dieser Arbeit unterstützt haben. Dabei gilt mein besonderer Dank Prof. Dr. Markus Münzenberg für die vortreffliche Betreuung und die Ermöglichung dieser Arbeit.

Für die Übernahme der Koreferats danke ich Prof. Dr. Cynthia Volkert.

Für die produktive Zusammenarbeit und angenehme Arbeitsatmosphäre danke ich Gerrit Eilers und Marvin Walter, ersterem gebührt besonderer Dank für die Einarbeitung und tatkräftige Unterstützung während meiner gesamten Zeit im Institut.

Für die äußerst hilfreichen Anmerkungen und Korrekturen danke ich (in chronologischer Reihenfolge) Gerrit Eilers, Benjamin Lenk und Katharina Ort.

Des Weiteren danke ich allen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Münzenberg, bisher nicht genannt sind dies (in alphabetischer Reihenfolge): Andreas Mann, Malte Scherff, Henning Ulrichs und Jakob Walowski.

Für regelmäßige Diskussionen bin ich außerdem Björn Hoffmann, Michael Mell und Murat Sivis zu Dank verpflichtet.