



**Untersuchung der
Transporteigenschaften
von CoFeB | MgO | CoFeB-
Tunnelmagnetowiderstandselementen**

Diplomarbeit

vorgelegt von

Marvin Walter

aus

Göttingen

Georg-August-Universität zu Göttingen
I. Physikalisches Institut

2009

Referent: Dr. Markus Münzenberg
Korreferentin: Prof. Dr. Angela Rizzi
Abgabedatum: 6. März 2009

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Motivation	1
1.2	Gliederung der Arbeit	2
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Tunneleffekt in Metall-Isolator-Metall-Systemen	5
2.1.1	Der Tunneleffekt	5
2.1.2	Wenzel-Kramers-Brillouin- (WKB-) Näherung	7
2.1.3	Modell von Simmons	8
2.1.4	Modell von Brinkman et al.	10
2.1.5	Modell von Gundlach und Hölzl	12
2.1.6	Inelastische Tunnelspektroskopie	13
2.2	Der TMR-Effekt	16
2.2.1	Elektronische Struktur der Übergangsmetallferromagnete . .	16
2.2.2	Julliere-Modell	17
2.2.3	Kohärentes Tunneln	18
3	Experimentelle Methoden	25
3.1	Probenpräparation und -charakterisierung	25
3.2	Messaufbau zur Untersuchung der Transporteigenschaften	27
3.2.1	Funktionsweise eines Lock-in-Verstärkers	28
3.2.2	Mess-Schaltung	31
3.2.3	Aufbau der Probestation	34
3.2.4	Physical Property Measurement System (PPMS)	37
3.3	I/U-Charakterisierung von Tunnelkontakten	39
3.4	Tunnelspektroskopie	42
4	Ergebnisse	45
4.1	Einfluss des Kontaktschichtsystems	45
4.1.1	Variation der Probenposition	46
4.2	Wachstum und Defekte: Einfluss der MgO-Barriere	49
4.2.1	Variation der Aufdampfrate von MgO	49
4.2.2	Einfluss des Sauerstoffpartialdrucks	53
4.3	Transportcharakterisierung von Proben mit hohem TMR	58

Inhaltsverzeichnis

4.3.1	Tunnelmagnetowiderstand und I/U-Kennlinien	59
4.3.2	Inelastische Tunnelspektroskopie	60
5	Zusammenfassung und Ausblick	67
	Literaturverzeichnis	69
	Danksagung	75

Abbildungsverzeichnis

2.1	Das betrachtete Rechteckpotential.	6
2.2	Skizze zum Modell von Simmons.	9
2.3	Skizze der trapezförmigen Barriere des Modells von Brinkman.	10
2.4	Vergleich von Simmons- und Brinkman-Modell	11
2.5	Konzept der inelastischen Tunnelspektroskopie	14
2.6	Phononenanregungen im MgO. Aus [17].	14
2.7	Magnonenanregungen im IET-Spektrum	15
2.8	Zustandsdichte (DOS) für Majoritäts- und Minoritäts-Spins	17
2.9	Bandstrukturen von bcc Fe und bcc Co	20
2.10	Transmission durch MgO-Barriere	21
2.11	Transmission durch amorphes Fe	22
2.12	TMR-Abhängigkeit von der Kristallisation an der Grenzfläche	22
3.1	Funktionsweise des SR830 Lock-in-Verstärkers	29
3.2	Mess-Schaltung für die Tunnelspektroskopie	32
3.3	Süss MicroTec Probestation	34
3.4	Magnetfeldcharakteristik des Elektromagneten	36
3.5	Physical Property Measurement System	37
3.6	Widerstandsmessungen	39
3.7	Kennlinienmessungen, TMR(U)	40
3.8	Logarithmische Leitfähigkeit	41
3.9	Verschiedene Messungen mit der Mess-Schaltung	43
3.10	Vergleich von IETS-Messungen	44
4.1	Zusammensetzung des Schichtstapels der Tunnelelemente.	45
4.2	Probenposition: RA-Produkt und TMR	46
4.3	Probenposition: MOKE-Messungen	48
4.4	Einfluss der Aufdampftrate: TMR und Widerstand	50
4.5	Einfluss der Aufdampftrate: $dI/dU(U)$ -Messungen	51
4.6	Einfluss der Aufdampftrate: norm. $dI/dU(U)$ -Messungen	52
4.7	Sauerstoffpartialdruck: TMR-Werte	54
4.8	Sauerstoffpartialdruck: norm. dI/dU -Messungen	55
4.9	Sauerstoffpartialdruck: RA-Produkt	56
4.10	Ergebnisse der Brinkman-Fits	57
4.11	IETS-Probe: Kennlinien und Widerstandsmessungen	59

4.12 IETS: Verschiedene Magnetfelder	61
4.13 IETS: Elastischer Beitrag, Messungen bei kleinen Spannungen . . .	62
4.14 IETS: gerade und ungerade Teile des Spektrums	63
4.15 IETS: Vergleich P und AP	64
4.16 IETS: Temperaturabhängigkeit	66

Tabellenverzeichnis

2.1	Theoretisch vorhergesagte TMR-Werte	23
3.1	Belegung des BNC-Probenhalters	38
4.1	Ratenreihe: Ergebnisse der Brinkman-Fits	53
4.2	IETS: Peakpositionen	62

1 Einleitung

Die vorliegende Diplomarbeit behandelt die Herstellung und Charakterisierung von Tunnelmagnetowiderstandselementen, wobei speziell das System bestehend aus ferromagnetischen, amorphen Kobalt-Eisen-Bor- (CoFeB-) Elektroden mit einer Magnesiumoxid- (MgO-) Tunnelbarriere untersucht wird.

Neben der Beschreibung der verwendeten Methoden zur Schichtherstellung und des photolithographischen Prozesses zur Mikrostrukturierung der Proben liegt der Schwerpunkt dieser Arbeit auf der Untersuchung des (spinabhängigen) Elektronentransports durch die TMR-Elemente – insbesondere anhand von $I(U)$ -Spektroskopie. Für eine genauere Beschreibung der Methoden der Strukturierung von TMR-Elementen sei der Leser auf die Diplomarbeit von Kai Ubben [45] und für die Analyse der atomaren Struktur der TMR-Elemente anhand von HR-TEM Untersuchungen auf die Dissertation von Gerrit Eilers [9] verwiesen.

Zuerst soll nun die Relevanz dieser Arbeit zu Grunde liegenden Themengebiete für die Forschung sowie für die industrielle Anwendung dargelegt werden, bevor die Gliederung dieser Arbeit vorgestellt wird.

1.1 Motivation

Der Tunnelmagnetowiderstand (TMR) wurde erstmals von M. Julliere 1975 gefunden [15], der zugleich ein Modell für diesen Widerstandseffekt aufstellte, in welchem er die Widerstandsänderung mit der Anfang der 70er Jahre von Meservey und Tedor entdeckten Spinpolarisation der Tunnelelektronen [41; 42] in Zusammenhang brachte. Julliere beobachtete bei dem untersuchten Fe|Ge-O|Co-System eine Widerstandsänderung von 14% bei 4,2 K – ein Ausbleiben von Beobachtungen des Effekts bei Raumtemperatur führte jedoch dazu, dass Julliere's Entdeckung lange Zeit unbeachtet blieb.

Erst mit der Entdeckung des Giant Magnetoresistance (GMR) Effekts durch A. Fert und P. Grünberg 1988/1989 [1; 2], welcher viel Beachtung und in der Festplattenindustrie schon bald Anwendung fand, wurde wieder verstärkt auf diesem Gebiet geforscht. Die Aussicht, Bauteile herstellen zu können, die nicht nur die Ladung des Elektrons, sondern auch dessen Spin nutzen, führte gar zu einer neuen Ausrichtung auf dem Gebiet der Magnetismusforschung – heute „Spintronics“ genannt. Für ihre Entdeckung und deren Auswirkung auf Forschung und Industrie bekamen A. Fert und P. Grünberg 2007 den Nobelpreis für Physik verliehen.

Im Zuge der wieder erstarkten Forschung auf diesem Gebiet wurden erneut Versuche unternommen, den Tunnelmagnetowiderstand bei Raumtemperatur zu finden. Tatsächlich gelang dies 1995 den Arbeitsgruppen um Moodera [30] und Miyazaki [28] unter Verwendung von $\text{CoFe|Al}_2\text{O}_3|\text{Co}$ - bzw. $\text{Fe|Al}_2\text{O}_3|\text{Fe}$ -Schichtsystemen. Die höchsten bis heute erreichten TMR-Werte bei den amorphen Al_2O_3 Barrieren liegen bei 70% in Kombination mit CoFeB Elektroden [33]. Nachdem Butler und Mitarbeiter 2001 bei theoretischen Berechnungen TMR-Werte von ca. 1000% für epitaktische Fe|MgO|Fe -Systeme erhielten [4], wurde auch auf experimenteller Seite stärker an der neuen Barriere geforscht und im Jahr 2004 gelang es den Gruppen um Parkin [35] und Yuasa [49] erstmals Tunnelbarrieren mit sehr hohen TMR-Werten herzustellen. Inzwischen liegen die höchsten Werte bei ungefähr 500% – ebenfalls bei einer Kombination der Barriere mit CoFeB -Elektroden [20].

Durch die im Vergleich zum GMR-Effekt weitaus größeren Widerstandsänderungen bei TMR-Systemen konnten in der Festplattenindustrie die Speicherdichten von Festplatten weiter erhöht werden, da nun ein noch empfindlicherer Magnetfelddetektor zur Verfügung stand. Um dieses Ziel weiter verfolgen zu können, werden voraussichtlich auch MgO -Tunnelbarrieren demnächst in der Industrie Anwendung finden. Der TMR-Effekt im CoFeB|MgO|CoFeB -System ist heutzutage so groß, dass daran gearbeitet wird, diese Systeme in anderen möglichen Anwendungen wie Spin-Transfer-MRAM oder auch Mikrowellen-Bauteilen einzusetzen [48].

Auch aus Sicht der Grundlagenforschung sind die Tunnelbarrieren – insbesondere das in dieser Arbeit behandelte CoFeB|MgO|CoFeB -System – weiterhin von Interesse, da die zugrundeliegende Physik noch nicht komplett verstanden ist. So ist bis heute nicht klar, aus welchen Gründen die theoretisch vorhergesagten TMR-Werte experimentell noch nicht gefunden wurden, und warum die höchsten experimentell erreichten Werte bei Tunnelbarrieren mit amorphen CoFeB -Elektroden und z.T. noch nicht einmal einkristalliner MgO -Schicht gefunden wurden, während die theoretischen Berechnungen von epitaktischen Systemen ausgingen. Der physikalische Zusammenhang von atomarer Struktur, magnetischen Eigenschaften und spinabhängigem Transport sowie der Einfluss verschiedener physikalischer Prozesse, welche beispielsweise die Abnahme des TMR mit der Temperatur oder der angelegten Spannung bedingen, sind noch nicht vollständig geklärt und Gegenstand aktueller Forschung.

1.2 Gliederung der Arbeit

Im folgenden Kapitel werden die für die Arbeit wichtigen theoretischen Modelle vorgestellt, beginnend in Abschnitt 2.1 mit einer Darstellung theoretischer Ansätze zur Beschreibung des Elektronentransports in Metall-Isolator-Metall-Systemen. Anschließend wird in Abschnitt 2.2 der TMR-Effekt vorgestellt.

Darauffolgend wird bei der Beschreibung der experimentellen Methoden zuerst in

Abschn. 3.1 kurzgefasst auf die Probenpräparation – von der Herstellung der Schichten bis zur fertig strukturierten Probe – und auf die Charakterisierung anhand von MOKE eingegangen. Dem Fokus dieser Arbeit entsprechend, folgt in Abschn. 3.2 eine detaillierte Beschreibung des Messaufbaus und seiner Funktionsweise, sowie der Anlagen, an denen er verwendet wird. Die Diskussion der Vorgehensweise und der Arten von Messungen, welche man bei der Transportcharakterisierung durchführt, bildet den Abschluss des Kapitels.

Kapitel 4 widmet sich der Auswertung und Diskussion der durchgeführten Messreihen zum Wachstum der Tunnelbarriere und dem Einfluss von Defekten in der Barriere, sowie zum Einfluss des Bufferschichtsystems. Die Transportcharakterisierung von Proben mit hohen TMR-Werten findet sich in Abschn. 4.3, bevor in Kapitel 5 die Diplomarbeit und ihre Ergebnisse zusammengefasst und ein Ausblick für künftige Arbeiten gegeben wird.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Tunneleffekt in Metall-Isolator-Metall-Systemen

In diesem Abschnitt wird zuerst der Tunneleffekt allgemein für ein eindimensionales Rechteckpotential eingeführt (Abschn. 2.1.1) und anschließend in Abschn. 2.1.2 die WKB-Näherung vorgestellt und auf das vorher besprochene Problem angewandt. Auf Grundlage dieser quantenmechanischen Kenntnisse werden in den folgenden Abschnitten drei Modelle vorgestellt, die zur Charakterisierung von Tunnelkontakten herangezogen werden. Abschn. 2.1.6 widmet sich schließlich der inelastischen Tunnelspektroskopie, einer Methode, die in vielen Fällen weiterführende Einblicke in die hier thematisierten Metall-Isolator-Metall-Systeme bieten kann.

2.1.1 Der Tunneleffekt

In der Quantenmechanik wird ein Teilchen folgend dem Welle-Teilchen-Dualismus durch seine *Wellenfunktion* $\psi(\vec{r}, t)$ beschrieben, deren räumliche Ausdehnung in Abhängigkeit von der Zeit durch die *Schrödinger-Gleichung*

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\vec{r}, t) = \left[-\frac{\hbar^2}{2m} \Delta + V(\vec{r}) \right] \psi(\vec{r}, t)$$

festgelegt ist. Hier stellt m die Masse des Teilchens und $V(\vec{r})$ das Potential, in dem das Teilchen sich befindet, dar. Betrachtet man ein eindimensionales Problem und interessiert sich nur für stationäre Zustände, so wird die Schrödinger-Gleichung zu [5]:

$$\frac{d^2\psi(x)}{dx^2} + \frac{2m}{\hbar^2} (E - V(x)) \psi(x) = 0. \quad (2.1)$$

Für ein *konstantes* Potential ($V(x) = \text{const.} = V_0$) lässt sich Gl. (2.1) mit dem allgemeinen Ansatz $\psi(x) = Ae^{\lambda x}$ leicht zu $\lambda^2 = -2m/\hbar^2(E - V_0)$ lösen. Daraus folgt die allgemeine Lösung

$$\psi(x) = \begin{cases} Ae^{ikx} + A'e^{-ikx}, & \text{für } E > V_0 \\ Ae^{\kappa x} + A'e^{-\kappa x}, & \text{für } E < V_0 \end{cases} \quad (2.2)$$

mit $k = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(E - V_0)}$ und $\kappa = \sqrt{\frac{2m}{\hbar^2}(V_0 - E)}$. Die physikalische Bedeutung der beiden Exponentialfunktionen wird bei Betrachtung z.B. der Lösung für $E > V_0$

anhand der *Wahrscheinlichkeitsstromdichte* \mathcal{J} deutlich [5]:

$$\mathcal{J} = \frac{\hbar}{2mi} \left[\psi^*(x) \frac{\partial}{\partial x} \psi(x) - \psi(x) \frac{\partial}{\partial x} \psi^*(x) \right] = \frac{\hbar k}{m} |A|^2 - \frac{\hbar k}{m} |A'|^2. \quad (2.3)$$

Da in der Quantenmechanik der Impuls durch $\hbar k$ gegeben ist, handelt es sich bei den Faktoren vor den Koeffizienten der allgemeinen Lösung um Geschwindigkeiten. Dementsprechend stellt der erste Summand (mit Koeffizient A) in (2.2) eine in positive x -Richtung und der Zweite eine in negative x -Richtung verlaufende Welle dar.

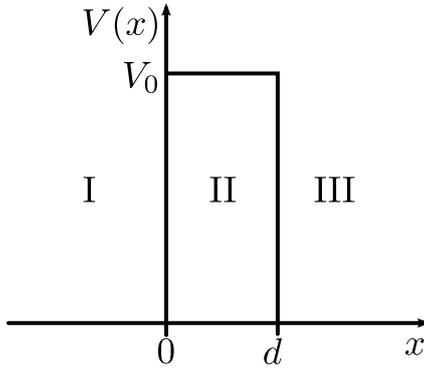


Abbildung 2.1: Das betrachtete Rechteckpotential.

Bereich III nicht mehr reflektiert wird, dementsprechend ist in Gl. (2.6) $C' = 0$ gesetzt. Aus der eben genannten Forderung ergibt sich ein Zusammenhang zwischen den Koeffizienten A , A' und C :

$$A = C e^{ikd} \left(\cos(ld) - i \frac{k^2 + l^2}{2kl} \sin(ld) \right) \quad (2.7)$$

$$A' = C e^{ikd} i \frac{l^2 - k^2}{2kl} \sin(ld) \quad (2.8)$$

Setzt man weiterhin die Wellenfunktionen $\psi_I(x)$ und ψ_{III} in die Gleichung für die Wahrscheinlichkeitsstromdichte (2.3) ein und bezeichnet die beiden Beiträge für Bereich I als \mathcal{J}_{in} bzw. $\mathcal{J}_{\text{refl}}$ und das Ergebnis für Bereich III als $\mathcal{J}_{\text{trans}} = \frac{\hbar k}{m} |C|^2$, so wird schnell klar, dass man mit den bisherigen Ergebnissen die Transmissions- und Reflexionskoeffizienten für die betrachtete Potentialbarriere berechnen kann: Der Transmissionskoeffizient ist das Verhältnis von transmittiertem Strom zu einfallendem Strom, während der Reflexionskoeffizient das Verhältnis von reflektiertem Strom zu einfallendem Strom darstellt:

$$T = \frac{\mathcal{J}_{\text{trans}}}{\mathcal{J}_{\text{in}}} = \left| \frac{C}{A} \right|^2 \quad \text{und} \quad R = \frac{\mathcal{J}_{\text{refl}}}{\mathcal{J}_{\text{in}}} = \left| \frac{A'}{A} \right|^2 \quad (2.9)$$

Mit den obigen Ausführungen lässt sich die Wellenfunktion für ein Rechteckpotential (siehe Abb. 2.1) berechnen. Nach [5] setzt man dazu für ein von links kommendes Elektron in den drei Teilbereichen mit der allgemeinen Lösung für $E > V_0$ an:

$$\psi_I(x) = A e^{ikx} + A' e^{-ikx} \quad (2.4)$$

$$\psi_{II}(x) = B e^{ilx} + A' e^{-ilx} \quad (2.5)$$

$$\psi_{III}(x) = C e^{ikx} \quad (2.6)$$

und fordert, dass an den beiden Stufen die Wellenfunktionen und deren erste Ableitungen stetig ineinander übergehen. Bei dem obigen Ansatz wird außerdem davon ausgegangen, dass die transmittierte Welle in

Berechnet man nun mit den Gleichungen (2.7) und (2.9) den Transmissionskoeffizienten und ersetzt für den Fall $E < V_0$ im Bereich II l durch $-i\kappa$, wobei κ so definiert ist wie in (2.2), so gelangt man zu der endlichen Transmissionswahrscheinlichkeit

$$T = \frac{4k^2\kappa^2}{4k^2\kappa^2 + (k^2 + \kappa^2)\sinh^2(\kappa d)} \quad (2.10)$$

Dieser in der klassischen Mechanik nicht denkbare Effekt wird *Tunneleffekt* genannt.

Im Grenzfall einer dicken Barriere und geringer Transmission ($\kappa d \gg 1$) setzt man $\sinh(\kappa d) \approx \frac{1}{2}e^{\kappa d}$ und erhält unter Vernachlässigung der im entstehenden Vorfaktor von κd abhängigen Terme:

$$T \approx \frac{16k^2\kappa^2}{(k^2 + \kappa^2)^2} e^{-2\kappa d} \quad (2.11)$$

2.1.2 Wenzel-Kramers-Brillouin- (WKB-) Näherung

In den Modellen der folgenden Abschnitte wird der Tunneleffekt meist im Rahmen der sogenannten *Wenzel-Kramers-Brillouin- (WKB-) Näherung* behandelt und aus dem Grund in diesem Abschnitt kurz vorgestellt.

Nach [10] gelangt man zu dieser Näherung, indem man zuerst allgemein den folgenden Ansatz für die Wellenfunktion macht:

$$\psi(x) = \exp\left(\frac{i}{\hbar}S(x)\right). \quad (2.12)$$

Die Lösung der stationären eindimensionalen Schrödinger-Gleichung (2.1) mit diesem Ansatz lautet:

$$S'(x)^2 = \underbrace{2m(E - V(x))}_{=:p^2(x)} + i\hbar S''(x) \quad (2.13)$$

Bei der WKB-Näherung handelt es sich um eine quasiklassische Näherung, d.h. $\hbar \rightarrow 0$ und Terme, welche \hbar enthalten, werden als Korrekturterme aufgefasst. Die noch unbekannt Funktion $S(x)$ entwickelt man deshalb nach Ordnungen von \hbar :

$$S(x) = S_0(x) + \frac{\hbar}{i}S_1(x) + \dots \quad (2.14)$$

Aus den Gleichungen (2.13) und (2.14) erhält man zuerst den Term für die nullte Ordnung $S_0(x)$ und mit diesem Ergebnis dann denjenigen für die erste Ordnung $S_1(x)$, sodass sich für die Lösung erster Ordnung insgesamt die folgende Gleichung ergibt:

$$S(x) \approx \pm \int p(x)dx + \frac{\hbar}{i} [\ln(|S_0'(x)|^{-1/2}) + \text{const.}] \quad (2.15)$$

Dieses Ergebnis wird nun in den Ansatz (2.12) eingesetzt, um die Wellenfunktion im Rahmen der WKB-Näherung zu erhalten:

$$\psi(x) \approx \frac{\text{const.}}{\sqrt{|p(x)|}} \exp\left(\pm \frac{i}{\hbar} \int p(x) dx\right) \quad (2.16)$$

Die allgemeine Lösung ist – wie in Abschn. 2.1.1 angedeutet – eine Linearkombination der beiden Lösungen (2.16).

Um in (2.13) den Term erster Ordnung in \hbar als Korrekturterm behandeln zu dürfen, muss dieser klein gegenüber $p^2(x)$ sein. Daraus ergibt sich, dass die WKB-Näherung nur zulässig ist, wenn die Änderung des Potentials über die Wellenlänge des betrachteten Teilchens sehr klein gegenüber seiner kinetischen Energie ist: $|dV/dx|\lambda \ll E_{\text{kin}}$. Darüber hinaus ist zu beachten, dass die Näherung nicht an den klassischen Umkehrpunkten ($p = 0$) gilt.

Für den Transmissionskoeffizienten durch ein beliebiges Potential, dessen Maximalwert V_{max} größer als die kinetische Energie des betrachteten Teilchens ist, ergibt sich nach [10]:

$$T = \exp\left(-\frac{2}{\hbar} \int_0^d \sqrt{2m(V(x) - E)} dx\right) \quad (2.17)$$

Im Falle einer rechteckigen Barriere unterscheidet sich die WKB-Lösung (2.17) von der exakten Lösung im Grenzfall $\kappa d \gg 1$ (Gl. (2.11)) nur durch einen Vorfaktor. Rechnungen von W.A. Harrison mit einem für Metall-Isolator-Metall Systeme realistischeren, dreidimensionalen Modell zeigen ebenfalls einen fehlenden Vorfaktor bei der WKB-Näherung im Vergleich zur exakten Lösung auf [13]. Die Anwendung der WKB-Näherung wird dort dennoch als gerechtfertigt angesehen für den Fall, dass der Übergang im Potential vom Metall zum Isolator nicht zu scharf ist. Auch Brinkman et al. untersuchen den Einfluss der WKB-Näherung auf die erhaltenen Ergebnisse (siehe Abschn. 2.1.4).

2.1.3 Modell von Simmons

J.G. Simmons bestimmt in seiner Arbeit [37] die Stromdichte durch eine symmetrische Tunnelbarriere. Die Stromdichte von einer Elektrode zur Anderen lässt sich im Modell freier Elektronen berechnen, indem man für jeden Energiezustand (jeden Wellenvektor im reziproken Raum) über den Transmissionskoeffizienten T die Tunnelwahrscheinlichkeit ausrechnet, welche dann mit zwei Fermi-Funktionen multipliziert wird, die angeben, ob der betreffende Energiezustand besetzt ist und gleichzeitig in der anderen Elektrode ein entsprechender freier Energiezustand existiert, in den das Elektron tunneln kann. Das Ergebnis wird mit der zugehörigen Gruppengeschwindigkeit gewichtet und mit der Elektronenladung multipliziert. Da ein Energiezustand nach dem Pauli-Prinzip mit zwei Elektronen entgegengesetzten Spins besetzt werden kann, kommt noch ein Faktor 2 hinzu. Die *Nettostromdichte*

J bei einer angelegten Spannung U ergibt sich damit aus der Differenz der beiden entgegengesetzten Stromdichten zu [47]:

$$J = \frac{e}{2\pi^2\hbar} \int_0^\infty \int \int [f(E) - f(E + eU)] T(E_x, U) dk_{\parallel} dE_x \quad (2.18)$$

Simmons berechnet nun die Stromdichte J nach (2.18) unter Benutzung des Transmissionskoeffizienten im Rahmen der WKB-Näherung (2.17). Der Potentialverlauf $V(x)$ ist dabei zunächst beliebig, allerdings wird die Integration in (2.17) genähert, indem der Potentialverlauf durch eine mittlere Barrierenhöhe ersetzt wird:

$$\bar{\varphi} = \frac{1}{d} \int_0^d \varphi(x) dx. \quad (2.19)$$

$\varphi(x)$ ist in dieser Gleichung die Barrierenhöhe oberhalb des Fermi-Niveaus, d die Dicke der Tunnelbarriere und per Konvention wird das Energieniveau der rechten Elektrode durch eine positive Spannung herabgesenkt (siehe Abb. 2.2). Bei der Durchführung der Integration für den Transmissionskoeffizienten führt Simmons außerdem einen Korrekturfaktor β ein, für den in guter Näherung $\beta \approx 1$ gilt [37]. Die Auswertung von Gleichung (2.18) für das eben beschriebene Modell bei $T = 0$ K ergibt:

$$J(U, 0) = \frac{e}{2\pi\hbar(\beta d)^2} \left[\left(\bar{\varphi} - \frac{eU}{2} \right) \exp \left(-A \left(\bar{\varphi} - \frac{eU}{2} \right)^{\frac{1}{2}} \right) - \left(\bar{\varphi} + \frac{eU}{2} \right) \exp \left(-A \left(\bar{\varphi} + \frac{eU}{2} \right)^{\frac{1}{2}} \right) \right] \quad (2.20)$$

mit $A = \frac{4\pi\beta d\sqrt{2m}}{\hbar}$. Für die Charakterisierung von Tunnelementen ist die ebenfalls in [37] angegebene Näherung von (2.20) für kleine Spannungen interessant, da in diesem Grenzfall die Kennlinie ohmsch ist und das Produkt aus Widerstand und Fläche (RA) in diesem Modell als Funktion der Dicke der Tunnelbarriere beschrieben werden kann:

$$RA(d) = \frac{U}{J} = (2m\bar{\varphi})^{-1/2} \left(\frac{\hbar}{e} \right)^2 \exp(A\bar{\varphi}^{1/2})d. \quad (2.21)$$

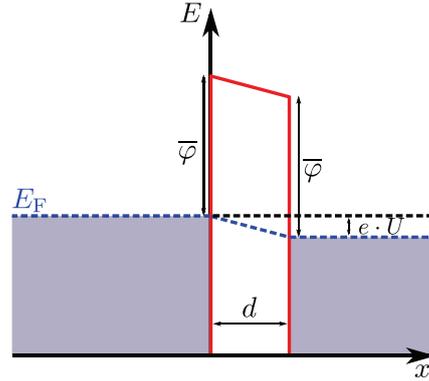


Abbildung 2.2: Skizze zum Modell von Simmons.

A ist in diesem Fall definiert wie in (2.20), allerdings wird in der Näherung $\beta = 1$ gesetzt.

Die Temperaturabhängigkeit der Stromdichte berechnet Simmons in [38] für ein allgemeineres Modell, welches zusätzlich eine Asymmetrie der Barriere zulässt, und erhält:

$$J(U, T) = J(U, 0) \frac{\pi B k_B T}{\sin(\pi B k_B T)}, \quad (2.22)$$

wobei $J(U, 0)$ durch (2.20) gegeben ist und $B = \frac{2\pi\beta d\sqrt{2m}}{h\bar{\varphi}^{1/2}}$.

2.1.4 Modell von Brinkman et al.

Das Problem der analytischen Lösung von Simmons ist, dass eine mögliche asymmetrische Tunnelbarriere durch das Modell nicht beschrieben wird, weil in der näherungsweise Integration das zuerst allgemein gehaltene Potential durch einen Mittelwert ersetzt wird. Aufgrund der Feststellung, dass viele experimentell bestimmte Kennlinien nicht durch Simmons' Modell beschrieben werden können, berechneten Brinkman und Mitarbeiter den Tunnelstrom in Abhängigkeit von der angelegten Spannung für eine trapezförmige Barriere, wie in Abb. 2.3 gezeigt [3]. Die Berechnung des Tunnelstroms erfolgte in diesem Fall durch numerische Auswertung der Gleichung (2.18), wobei zwei Situationen unterschieden werden: Die Verwendung der WKB-Näherung für die Transmission T (2.17) und die Verwendung der exakten Transmission für eine rechteckige Barriere, d.h. scharfen Potentialstufen. Das Potential der Barriere, welches in die Transmission eingeht, ist gegeben durch:

$$\varphi(x, U) = \varphi_1 + \frac{x}{d}(\varphi_2 - eU - \varphi_1), \quad (2.23)$$

und in Abb. 2.3 dargestellt. Die numerisch bestimmte Lösung im Rahmen der WKB-Näherung für $T = 0$ K wurde anschließend nach der Spannung entwickelt und lautet:

$$J(U) = 3,16 \cdot 10^{10} \frac{\bar{\varphi}^{1/2}}{d} \exp\left(-1,025\bar{\varphi}^{1/2}d\right) \cdot \left[U - \frac{A_0\Delta\varphi}{32\bar{\varphi}^{3/2}}eU^2 + \frac{3A_0^2}{128\bar{\varphi}}e^2U^3\right], \quad (2.24)$$

mit $A_0 = \frac{4d\sqrt{2m}}{3\hbar}$, $\bar{\varphi}$ und $\Delta\varphi$ in V, d in Å und J in A/(cm)². Die Fehler dieser Lösung wird für den Fall, dass $\Delta\varphi/\varphi < 1$ und $d > 10$ Å ist, mit ungefähr 10% angegeben.

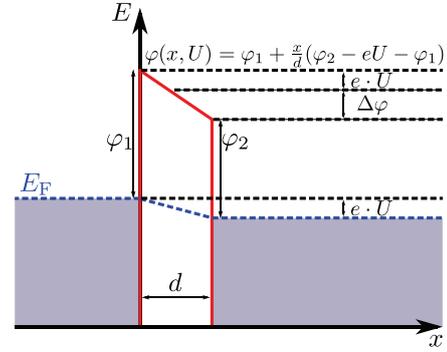


Abbildung 2.3: Skizze der trapezförmigen Barriere des Modells von Brinkman.

Die exakte Lösung für eine rechteckige Potentialbarriere ist im Gegensatz zur WKB-Näherung abhängig von den Fermi-Energien der beiden Metallelektroden, und die Abhängigkeit des Tunnelstroms von der Zustandsdichte fällt in diesem Fall ebenfalls nicht weg. Brinkman et al. stellen allerdings fest, dass sich dadurch die Form der Kennlinie *qualitativ* nicht ändert. Auch Spiegelladungen, welche die Barrierenhöhe und -dicke herabsetzen, führen zu keiner qualitativen Änderung des Verhaltens. Ein Vergleich mit Experimentaldaten für Al|Al₂O₃|Al-Tunnelelemente liefert auch mit der WKB-Näherung und ohne Berücksichtigung von Spiegelladungen physikalisch sinnvolle Ergebnisse für Spannungen $U < 300 - 500$ mV [3].

In Abbildung 2.4 werden die wichtigsten Eigenschaften der beiden soeben vorgestellten Modelle für realistische Barrierendicken und -höhen gezeigt. Der Vergleich

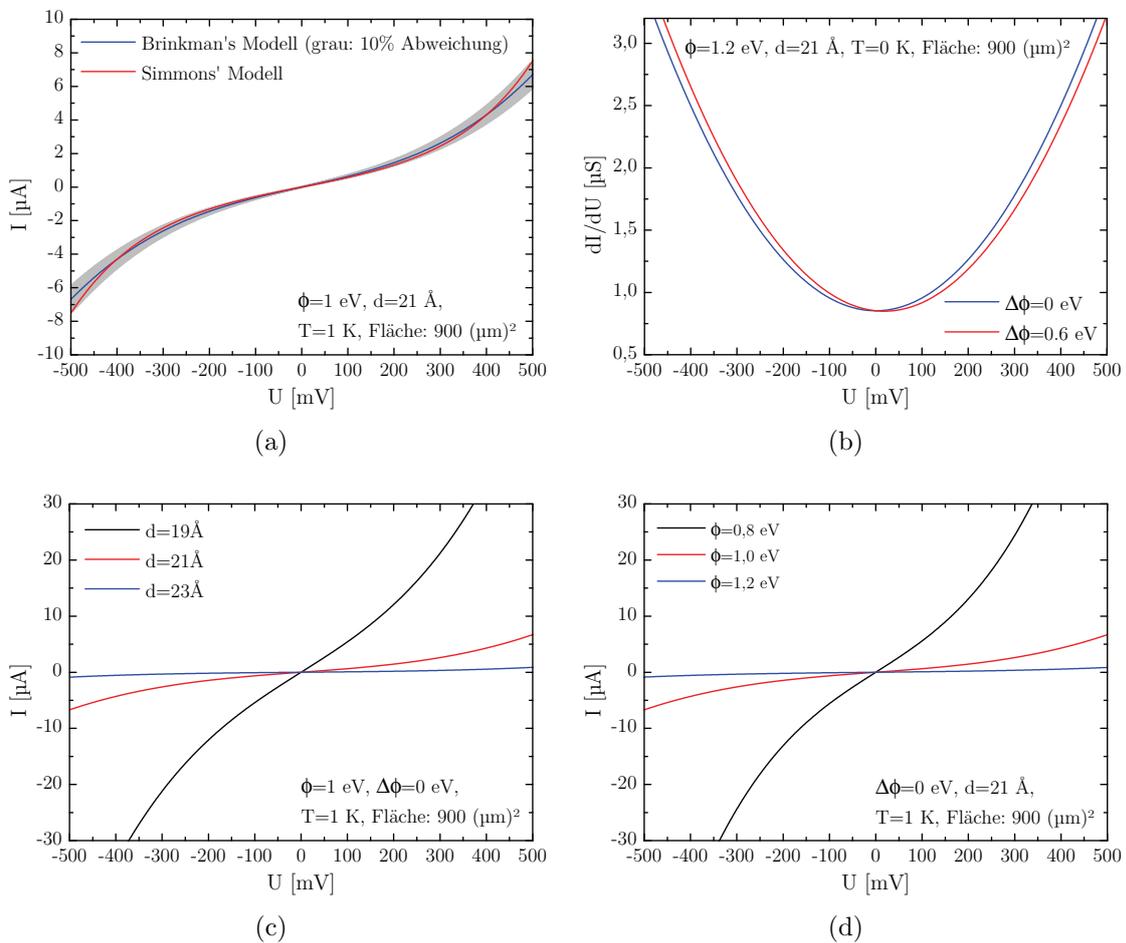


Abbildung 2.4: Vergleich von Simmons- und Brinkman-Modell (a), Veränderung des differentiellen Leitwerts durch Barrierenasymmetrie (b), Einfluss der Barrierendicke (c) und der Barrierenhöhe (d).

zwischen Simmons- und Brinkman-Modell (Abb. 2.4(a)) zeigt nahezu gleiches Verhalten, insbesondere bei kleinen Spannungen. Erst bei ca. 400 mV steigt der Strom im Simmons-Modell stärker an, liegt aber selbst bei 500 mV noch innerhalb der für das Brinkman-Modell angegebenen Genauigkeit. Typisch für die Tunnelkennlinien ist die Spannungsabhängigkeit in Form eines Polynoms dritten Grades, wie sie auch aus Gl. (2.24) hervorgeht. Ebenfalls in der Abbildung gut zu erkennen ist die lineare Spannungsabhängigkeit bei sehr kleinen Spannungen, sowie die aus Gl. (2.20) hervorgehende exponentielle Spannungsabhängigkeit für große Spannungen, welche sich bereits bei 500 mV bemerkbar macht. Die Auswirkungen einer asymmetrischen Barriere werden in Abb. 2.4(b) mit einer Auftragung des differentiellen Leitwertes gegen die Spannung veranschaulicht. Die parabelähnliche Form folgt aus den eben besprochenen Kennlinieneigenschaften. Der Einfluss der Asymmetrie lässt sich beim differentiellen Leitwert am besten beobachten, da es hier zu einer Verschiebung des Minimums entlang der Spannungsachse kommt. Diese Eigenschaft wird experimentell oft beobachtet und kann mit dem Simmons-Modell nicht erklärt werden. Die Graphen 2.4(c) und 2.4(d) verdeutlichen die starke Abhängigkeit des Kennlinienverlaufs von Barrierendicke und -höhe: Schon Änderungen von einem Ångström in der Barrierendicke oder im Bereich von 100 meV in der Barrierenhöhe führen zu drastischen Änderungen im Tunnelstrom.

2.1.5 Modell von Gundlach und Hölzl

Die bislang vorgestellten Modelle zur Beschreibung des Tunnelstroms haben das Problem, dass die Barrierenhöhe φ und die Barrierendicke d aus experimentellen Daten nicht unabhängig voneinander anhand der Gleichungen (2.20) und (2.24) gewonnen werden können, da sie entweder zusammen in einem Produkt oder einem Quotienten stehen. Allerdings haben Gundlach und Hölzl in [12] gezeigt, dass eine unabhängige Bestimmung der beiden Parameter aus der so genannten logarithmischen Leitfähigkeit ($d/dU(\ln J)$) möglich ist. Zur Herleitung wird wieder Gl. (2.18) für die Stromdichte herangezogen und die WKB-Näherung zur Beschreibung der Transmission (Gl. (2.17)) genutzt. Der Isolator wird in diesem Fall durch ein Zwei-Band-Modell mit folgender Dispersionsrelation beschrieben:

$$-(k_x^2 + k_y^2 + k_z^2) = \frac{2m^*}{\hbar^2}(V(x) - E) \left(1 - \frac{V(x) - E}{E_g}\right), \quad (2.25)$$

wobei k_x die Komponente des Wellenvektors senkrecht zur Barriereebene, k_y und k_z die Komponenten parallel zur Barriereebene darstellen. m^* ist die effektive Masse des Elektrons im Leitungs- bzw. Valenzband des Isolators nahe des verbotenen Bandes, $V(x)$ beschreibt den Verlauf des Isolator-Leitungsbandes und E_g die Bandlücke. Mit den gemachten Annahmen wird Gl. (2.18) numerisch integriert und die logarithmische Leitfähigkeit berechnet. Für eine trapezförmige Barriere und bei

einer positiven angelegten Spannung an der rechten Elektrode (Abb. 2.3) ergibt sich näherungsweise:

$$\frac{d}{dU} \ln J \approx \begin{cases} \frac{2,05}{3} d \left(\frac{m^*}{m_e} \right)^{1/2} \frac{\varphi_1^{3/2} - (\varphi_2 - U)^{3/2} - \frac{3}{2}(U + \Delta\varphi)(\varphi_2 - U)^{1/2}}{(U + \Delta\varphi)^2}, & U_0 \leq U \leq \varphi_2, \\ \frac{2,05}{3} d \left(\frac{m^*}{m_e} \right)^{1/2} \frac{\varphi_1^{3/2}}{(U + \Delta\varphi)^2}, & U \geq \varphi_2. \end{cases} \quad (2.26)$$

Wie man schnell sieht, wird die logarithmische Leitfähigkeit bei $U = \varphi_2$ maximal und die Barrierenhöhe an der einen Elektrode lässt sich aus der Spannung, bei der das Maximum auftritt, ablesen. Die Barrierenhöhe an der anderen Elektrode lässt sich dementsprechend aus den Daten mit entgegengesetzter Spannung bestimmen. Es sei darauf hingewiesen, dass es sich hierbei um effektive Barrierenhöhen handelt und die Maxima laut [12] bei einer ungefähr 0,2 V höheren Spannung als der tatsächlichen Barrierenhöhe liegen.

2.1.6 Inelastische Tunnelspektroskopie

Bislang wurden zur Berechnung des Tunnelstroms lediglich *elastische* Beiträge betrachtet, bei denen außerdem noch der Wellenvektor des Elektrons in der Ebene der Grenzfläche erhalten bleibt. Diese Beiträge stellen jedoch nur einen Teil des Tunnelstroms dar, weil das tunnelnde Elektron in der Barriere aber auch in den beiden metallischen Elektroden weitere Prozesse durchlaufen kann, sowohl elastische, als auch *inelastische*, bei denen es einen Teil seiner Energie abgibt. Mögliche inelastische Prozesse in einem Festkörper sind beispielsweise die Anregung von Phononen, Spinwellen, Dipolschwingungen (z.B. Moleküle) oder Spin-Flip Streuung an magnetischen Verunreinigungen in der Tunnelbarriere. In vielen Fällen ist für die Anregung von solchen Prozessen eine gewisse Mindestenergie notwendig, bei Phononen und Spinwellen z.B. abhängig von den jeweiligen Materialien und den zugehörigen Zustandsdichten.

Wird an ein Tunnelement eine Spannung U angelegt, so haben die tunnelnden Elektronen die Energie eU . Die Anregung eines Phonons, Magnons, etc. der Frequenz ω_x benötigt andererseits die Energie $\hbar\omega_x$. Ist die Energie des tunnelnden Elektrons nun gleich oder größer als die Anregungsenergie,

$$eU \geq \hbar\omega_x,$$

so besteht außer dem elastischen Tunnelprozess die Möglichkeit, dass es einen Teil seiner Energie für die Anregung abgibt und in einen Zustand niedrigerer Energie in der anderen Elektrode tunnelt. Die Anzahl der Endzustände wird also vergrößert und es kommt zu einem zusätzlichen Beitrag zum Tunnelstrom durch Elektronen, welche im rein elastischen Fall keine freien Zustände in der Elektrode gefunden hätten. Dieser zusätzliche Beitrag äußert sich in der Kennlinie, wie es im linken

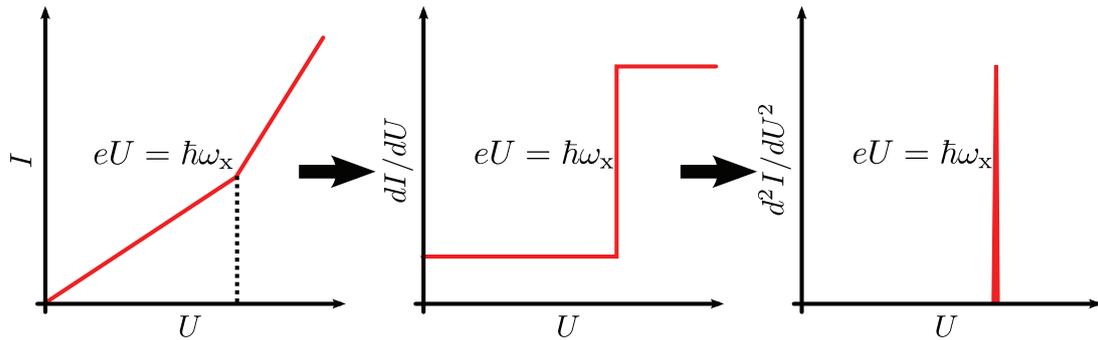


Abbildung 2.5: Konzept der inelastischen Tunnelspektroskopie: Wie inelastische Strombeiträge in der Kennlinie und deren Ableitungen sichtbar werden.

Teil der Abb. 2.5 skizziert ist. Der plötzliche Anstieg des Stroms oberhalb des Spannungsgrenzwertes äußert sich im differentiellen Leitwert dI/dU durch eine Stufe und in der zweiten Ableitung durch einen Peak. Die Messung von $d^2I/dU^2(U)$ kann durch die Identifikation von Peakpositionen somit, z.B. durch Vergleich mit anderen Spektroskopiemethoden oder berechneten Zustandsdichten, die Bestimmung der stattfindenden inelastischen Prozesse ermöglichen. Sogar auf Qualität und Struktureigenschaften der Elektroden oder der Barriere können Rückschlüsse gezogen werden [34; 46].

Um die verschiedenen inelastischen Beiträge theoretisch zu beschreiben wird in den meisten Fällen der Transfer-Hamiltonoperator zur Modellierung benutzt [47]:

$$H = H_L + H_B + H_R,$$

wobei H_L und H_R die betrachteten Wechselwirkungen in der linken bzw. rechten Elektrode darstellen, welche als nahezu unabhängige Systeme betrachtet werden. Der Hamiltonoperator für die Barriere H_B wird als Störungsterm aufgefasst, welcher die beiden Elektroden miteinander koppelt. Die umfangreichen quantenmechanischen Berechnungen von verschiedenen Anregungen würden den Rahmen dieser Diplomarbeit übersteigen. Stattdessen werden zwei Beispiele für inelastische Anregungen in Form von Phononen und Spinwellen gegeben: Abbil-

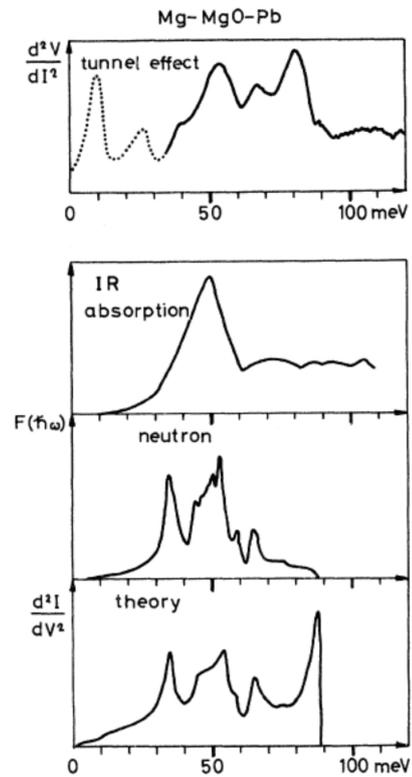


Abbildung 2.6: Phononenanregungen im MgO. Aus [17].

Abbildung 2.6 zeigt den Vergleich eines experimentellen IET-Spektrums mit anderen experimentellen Spektren und einem nach obigem Ansatz berechneten, theoretischen Spektrum für eine Mg|MgO|Pb-Schicht. Das theoretische Spektrum zeigt die Peaks, die durch Anregungen von Phononen in der MgO-Barriere zustande kommen. Aufgrund der relativ guten Übereinstimmungen mit dem experimentellen Spektrum weisen Klein et al. die Peaks bei 38 und 82 meV und die breitere Region hoher Intensität um 50 meV Phononenanregungen zu [17]. Des Weiteren weisen sie darauf hin, dass die Peaks bei 38 meV und 66 meV oft nur schwach oder gar nicht in den experimentellen Spektren auftauchen.

Den experimentellen Nachweis für Magnonenanregungen in IET-Spektren erbrachten Tsui et al. mit ihrer Untersuchung von Ni|NiO|Pb-Tunnelementen [44]. In der Ableitung des symmetrischen Anteils des Leitwerts $G_e = \frac{1}{2}(G(U) + G(-U))$ wurden Peaks beobachtet, deren Position und Form mit berechneten Zustandsdichten der Magnonen gut übereinstimmen, insbesondere für die Anregung von einem Magnon (siehe Abb. 2.7). Die Abweichungen bei den Zwei-Magnonen- und Drei-Magnonen-Anregungen begründen die Autoren damit, dass bei den theoretischen Berechnungen keine Wechselwirkungen der Magnonen miteinander berücksichtigt wurden. Dass es sich um Anregungen in der Barriere handelt, wird mit der Spannungs-Symmetrie der Anregungen im Leitwert begründet.

Bei der Aufnahme von IET-Spektren ist zu beachten, dass durch die vorherr-

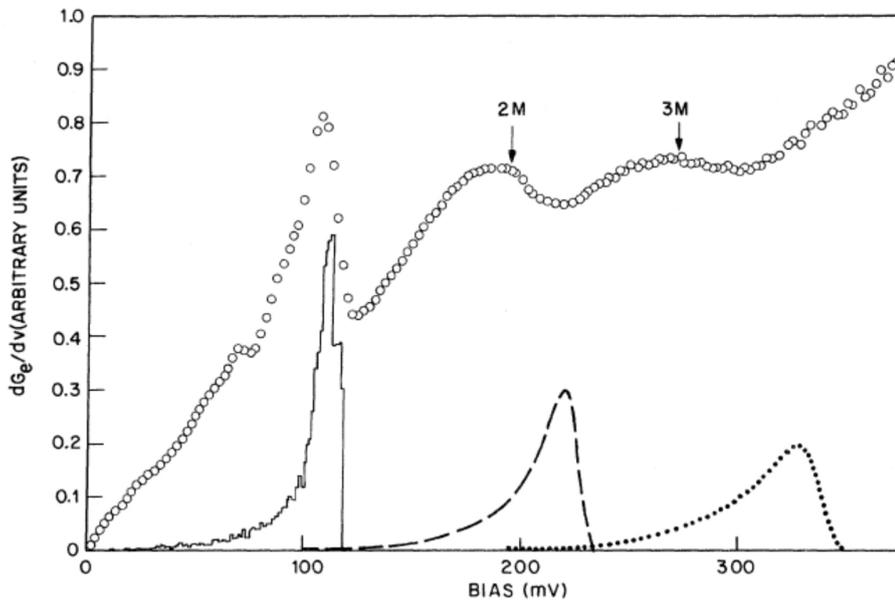


Abbildung 2.7: Vergleich von berechneter Magnonen Zustandsdichte in NiO und experimentellen Daten eines Ni|NiO|Pb-Tunnelements. Die Pfeile deuten Peakpositionen aus Raman-Spektren an. Aus [44].

schende Temperatur und durch die Amplitude der Wechselspannung, mit der die Gleichspannung moduliert wird, eine Verbreiterung der gemessenen Peaks einhergeht und unter Umständen die Auflösung der Spektren beschränkt. Theoretisch wurde der Einfluss der Temperatur auf die Peakbreite in IETS-Messungen von Lambe und Jaklevic behandelt, welche durch Betrachtung der Fermifunktionen in der Stromdichte (siehe Gl.(2.18)) zu einer gaußschen Verbreiterung der Peaks mit einer Halbwertsbreite von $5,4k_{\text{B}}T$ gelangen [18]. Die Peakverbreiterung durch eine bestimmte Modulationsamplitude wurde von Klein et al. berechnet und führt zu einer Halbwertsbreite von $1,22eU_{\text{AC}}$ [17]. Diese beiden Mechanismen führen laut Wolf [47] zu einer gesamten Halbwertsbreite von:

$$\Delta E = \sqrt{(5,4k_{\text{B}}T)^2 + (1,22eU_{\text{AC}})^2} \quad (2.27)$$

2.2 Der TMR-Effekt

Während Abschnitt 2.1 sich allgemein mit dem Tunneleffekt in Metall-Isolator-Metall-Systemen beschäftigt, geht dieser Abschnitt speziell auf den Fall ein, dass es sich bei den Metallen um Ferromagnete handelt, deren Eigenschaften zu dem Tunnelmagnetowiderstands- (TMR-) Effekt führen. Dazu stellt Abschn. 2.2.1 kurzgefasst die wichtigsten Eigenschaften der elektronischen Struktur der Ferromagnete vor, mit denen sich im Anschluss das Julliere Modell (Abschn. 2.2.2) sowie das Zustandekommen von sehr hohen TMR-Werten durch kohärentes Tunneln bei der Verwendung einer kristallinen MgO-Barriere (Abschn. 2.2.3) erklären lassen.

2.2.1 Elektronische Struktur der Übergangsmetallferromagnete

Die ferromagnetischen $3d$ -Übergangsmetalle Eisen, Kobalt und Nickel besitzen 6, 7 bzw. 8 Elektronen in ihren $3d$ -Orbitalen. Zwei weitere Elektronen sind auf die $4s$ - und $4p$ -Orbitale verteilt. Die stärker lokalisierten und an den Bindungen im Festkörper beteiligten $3d$ -Elektronen tragen dabei mit ihrem Spinmoment, wie Bandstrukturrechnungen zeigen, zum größten Teil zum magnetischen Moment dieser Metalle bei. Der Beitrag der Spin-Bahn-Wechselwirkung zum magnetischen Moment beträgt lediglich 5-10% [40].

In Abbildung 2.8 sind die Zustandsdichten der Übergangsmetallferromagnete gezeigt. Durch die Austauschwechselwirkung und das damit zusammenhängende Weiss-Molekularfeld werden die Energiezustände für entgegengesetzte Spins aufgespalten und sowohl die Bandstruktur als auch die Zustandsdichte werden um die *Austausch-Aufspaltung* Δ auf der Energieachse gegeneinander verschoben. Wie man in Abb. 2.8 erkennt, hat diese Aufspaltung zur Folge, dass die Elektronen mit Spins, deren Zustandsdichte zu geringeren Energien verschoben ist, überwiegen. Die zugehörige Spinrichtung wird *Majoritäts-Spin* genannt, die entgegengesetzte Richtung

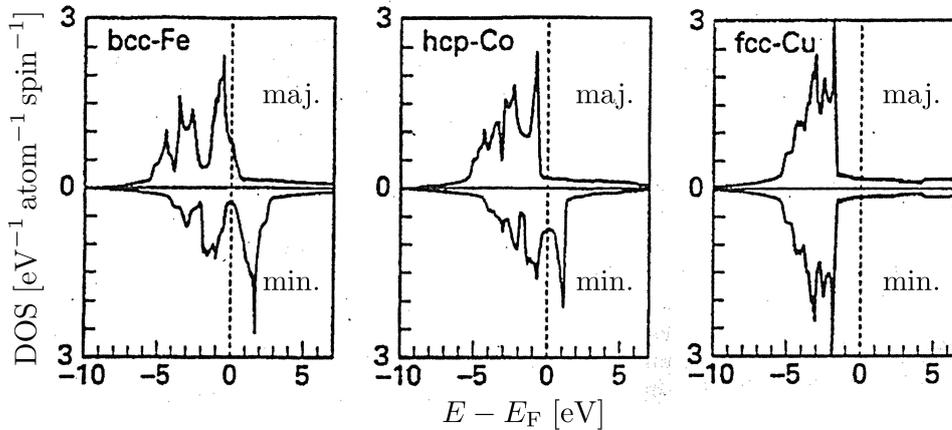


Abbildung 2.8: Zustandsdichte (DOS) für Majoritäts- und Minoritäts-Spins. Gut sichtbar ist die Austausch-Aufspaltung der Zustandsdichte für die Ferromagnete Fe und Co. Beim nicht ferromagnetischen Cu ist die Zustandsdichte dagegen für beide Spinsorten gleich. Aus [40].

Minoritäts-Spin. Im *Stoner-Modell* ist das magnetische Moment eines Festkörpers durch die Differenz dieser Anzahlen gegeben [40]:

$$|\vec{m}| = \mu_B (N_e^{\text{maj}} - N_e^{\text{min}}) \quad (2.28)$$

Die Austausch-Aufspaltung führt darüber hinaus zu einer *Spin-Polarisation* am Fermi-Niveau, welche über die Zustandsdichte $D(E)$ gegeben ist durch:

$$P(E_F) = \frac{D^{\text{maj}}(E_F) - D^{\text{min}}(E_F)}{D^{\text{maj}}(E_F) + D^{\text{min}}(E_F)} \quad (2.29)$$

2.2.2 Julliere-Modell

Die entdeckte Änderung des Leitwerts in Abhängigkeit von der Magnetisierungsrichtungen der beiden Elektroden bei Fe|Ge-O|Co erklärte Julliere mit der Spin-Polarisation der tunnelnden Elektronen [15]. Die Existenz der Spin-Polarisation der Tunnelelektronen war bereits durch Experimente von Meservey und Tedrow bekannt [41]. Ausgehend von der Annahme, dass beim Tunnelprozess keine Spin-Flip-Prozesse stattfinden, wird im Julliere-Modell der Leitwert bei $U = 0$ über den Bruchteil der tunnelnden Elektronen mit magnetischem Moment parallel zum externen Magnetfeld

$$a = \frac{N^{\text{maj}}}{N^{\text{maj}} + N^{\text{min}}} \quad (2.30)$$

beschrieben. Beträgt dieser Bruchteil in der einen ferromagnetischen Elektrode a und in der anderen Elektrode a' , so ergibt sich nach [15] für den Beitrag der Majoritäts- bzw. Minoritätselektronen zum Leitwert im Falle paralleler Magnetisierung der beiden Elektroden:

$$G_P \propto aa' + (1 - a)(1 - a'), \quad (2.31)$$

und für den Fall antiparallel magnetisierter Elektroden:

$$G_{AP} \propto a(1 - a') + a'(1 - a). \quad (2.32)$$

Bringt man den in (2.30) definierten Bruchteil der Elektronen mit der Definition der Spin-Polarisation (2.29) in Verbindung, so ergibt sich der folgende Zusammenhang:

$$P = 2a - 1. \quad (2.33)$$

Bezieht man die beobachtete Änderung im Leitwert ($G_P - G_{AP}$) auf den Leitwert im Zustand parallel magnetisierter Elektroden (G_P), so erhält man durch Einsetzen der Gl. (2.31) und (2.32) unter Benutzung von (2.33) einen Zusammenhang zwischen der Spin-Polarisation der Elektroden und dem sogenannten JMR (*junction magnetoresistance*):

$$\text{JMR} := \frac{R_{AP} - R_P}{R_{AP}} = \frac{G_P - G_{AP}}{G_P} = \frac{2PP'}{1 + PP'}. \quad (2.34)$$

In der Literatur wird allerdings oft der etwas anders definierte TMR (*tunnel magnetoresistance*) Wert angegeben:

$$\text{TMR} := \frac{R_{AP} - R_P}{R_P} = \frac{G_P - G_{AP}}{G_{AP}} = \frac{2PP'}{1 - PP'}. \quad (2.35)$$

Die Stärke des Julliere-Modells liegt darin, dass sich die zu erwartenden TMR-Werte für amorphe Al_2O_3 -Barrieren über die, z.B. von Tedrow und Merservey aus Tunnelexperimenten mit einer supraleitenden Elektrode erhaltenen, Spin-Polarisationen abschätzen lassen [21; 31]. Wie man allerdings den Formeln (2.34) und (2.35) entnehmen kann, haben Eigenschaften der Barriere in diesem Modell keinen Einfluss auf den Tunnelmagnetowiderstand. Ein von MacLaren und Mitarbeitern durchgeführter Vergleich zwischen dem Julliere-Modell, einem erweiterten Modell von Slonczewski und numerischen Berechnungen zeigt auch die zu starke Vereinfachung des Modells [21]. Insbesondere bei der Verwendung von kristallinen Barrieren, bei denen das im nächsten Abschnitt besprochene kohärente Tunneln auftritt, ist es sehr fraglich, ob das Julliere-Modell sinnvoll angewandt werden kann.

2.2.3 Kohärentes Tunneln

Berechnungen der magnetischen und elektrischen Eigenschaften von kristallinen Magnesiumoxid Barrieren mit ebenfalls kristallinen Eisen-Elektroden im Rahmen

der Dichtefunktionaltheorie führten zuerst 2001 Butler et al. [4] sowie Mathon und Umerski [22] durch. Im Folgenden werden die Ergebnisse der Gruppe um Butler vorgestellt, zumal deren Herangehensweise besser den Zusammenhang zwischen den hohen TMR-Werten und der Symmetrie der Wellenfunktionen der Elektronen veranschaulicht, welcher wiederum den Begriff *kohärentes Tunneln* geprägt hat.

Das von Butler und Mitarbeitern betrachtete System besteht aus mehreren Monolagen MgO (100), welche sich zwischen ausgedehnten, kristallinen Fe-(100)-Elektroden befinden. Als Gitterkonstante für Fe wird dabei der experimentelle Wert von $a_{\text{Fe}} = 2,866 \text{ \AA}$ verwendet. Die Kristallstruktur des auf Fe (100) pseudomorph aufwachsenden Magnesiumoxids wird in diesem Fall mit der Gitterkonstante von $a_{\text{MgO}} = \sqrt{2}a_{\text{Fe}}$ modelliert. Das Wachstum von MgO auf Fe verläuft zudem derart, dass die MgO (011)-Richtung parallel zur (001)-Richtung des Eisens ist. Die elektronischen Eigenschaften des soeben beschriebenen Systems werden im Rahmen einer erweiterten Korringa-Kohn-Rostocker-Methode, welche keiner Periodizität senkrecht zur Isolatorschicht bedarf, berechnet. Der Leitwert ergibt sich aus der (aus Gl.(2.18) hergeleiteten) Landauer-Formel:

$$G = \frac{e^2}{h} \sum_{k_{\parallel}, j} T(k_{\parallel}, j), \quad (2.36)$$

wobei die Summation über j die Möglichkeit berücksichtigt, dass es mehrere Bloch-Zustände für ein gegebenes Wellenvektor parallel zur Barrierenebene k_{\parallel} gibt.

Die wichtigsten Eckpunkte der Ergebnisse von Butler et al. sind, dass die Transmission der Majoritätselektronen durch die MgO-Barriere überwiegend nahe $k_{\parallel} = 0$ stattfindet, insbesondere für die dickeren Barrieren mit 12 Monolagen, während die Transmission der Minoritätselektronen und im Fall antiparallel magnetisierter Elektroden für Wellenfunktionen mit $k_{\parallel} \neq 0$ stattfindet. Im letzteren Fall hängt die Transmission, aufgrund von resonanten Grenzflächenzuständen, welche die Transmission stark erhöhen, zudem stark von k_{\parallel} ab. Die Existenz solcher sogenannten *hot spots* und, wie sowohl Butler et al. als auch Mathon und Umerski erwähnen, deren Abhängigkeit von der Beschaffenheit der Grenzfläche unterstreichen den Einfluss, den letztere auf hohe TMR-Werte hat.

Das Zustandekommen der hohen TMR-Werte lässt sich am besten für die Situation $k_{\parallel} = 0$ erklären, bei der es, wie oben erwähnt, zu einer starken Transmission von Majoritätselektronen kommt, während die Transmission der Minoritätselektronen sehr gering ist. In Abb. 2.9 sind die Bandstrukturen von Eisen und Kobalt für die entsprechende Richtung aufgetragen. In Abb. 2.9(a) lässt sich erkennen, dass sich im Falle von Eisen an der Fermi-Kante Bänder mit vier verschiedenen Symmetrien befinden: Das $\Delta_{2'}$ - und das Δ_5 -Band, welche für beide Spinrichtungen an der Fermi-Kante liegen und hinzukommend das Δ_1 -Band der Majoritätselektronen sowie das Δ_2 -Band der Minoritätselektronen. Folglich sind die Δ_1 - und Δ_2 -Bänder komplett spinpolarisiert. Die Berechnungen von Butler et al. ergeben, dass es in der MgO-

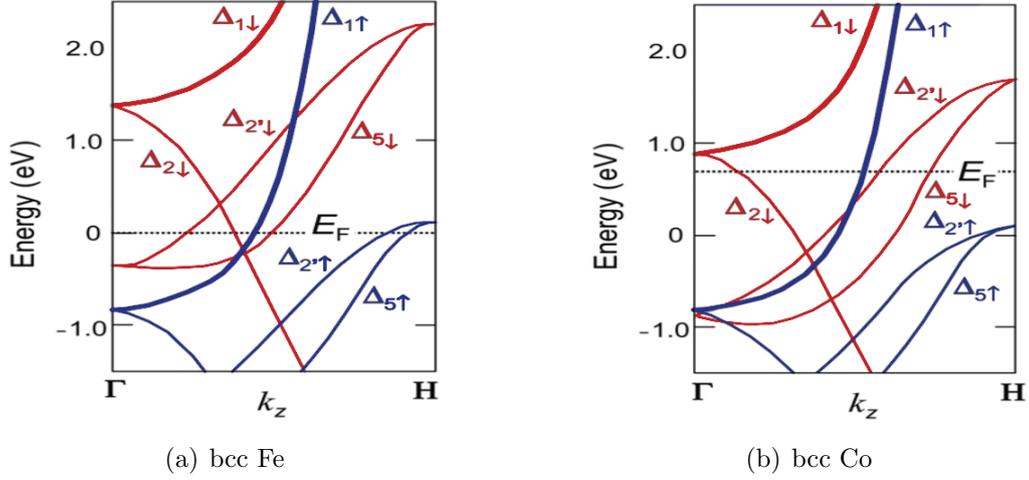


Abbildung 2.9: Bandstrukturen von bcc Fe und bcc Co entlang [001] für Majoritätselektronen (blau) und Minoritätselektronen (rot). Nach [48].

Barriere Zustände gleicher Symmetrien gibt, welche allerdings unterschiedliche Abklingraten besitzen. Durch die oben erwähnte Drehung der MgO-Kristallrichtungen zu den Fe-Kristallrichtungen um $\pi/4$ kommt es laut Ref. [4] dazu, dass die Δ_2' -Majoritätselektronen aus dem Eisen an Δ_2 -Zustände im MgO gekoppelt sind und Umgekehrtes für die Minoritätselektronen mit Δ_2 -Symmetrie gilt. Die Abklingraten im MgO für die verschiedenen, dortigen Symmetrien sind wie folgt:

$$\kappa_{\Delta_1} < \kappa_{\Delta_5} < \kappa_{\Delta_2'} < \kappa_{\Delta_2}. \quad (2.37)$$

Betrachtet man zuerst zwei antiparallel magnetisierte Eisen-Elektroden, so tunneln, wie in Abb. 2.10 gezeigt, Majoritätselektronen aus dem Δ_1 -, Δ_2' - und Δ_5 -Band der linken Elektrode in das MgO, wo deren Aufenthaltswahrscheinlichkeit nach Gl. (2.37) unterschiedlich schnell abklingt. Die Elektronen aus dem Δ_2' -Band kommen bei der hier aufgetragenen MgO-Schichtdicke von 8 Monolagen nicht durch die Barriere hindurch, werden also totalreflektiert. Gleiches gilt für die Δ_1 -Elektronen, die zwar mit hoher Wahrscheinlichkeit durch die Barriere tunneln, in der rechten Elektrode aber durch die entgegengesetzte Magnetisierung keine passenden Zustände mit Δ_1 -Symmetrie an der Fermi-Kante finden. Lediglich die Δ_5 -Elektronen tunneln durch die Barriere und finden in der anderen Elektrode passende Zustände an der Fermi-Kante, da das Δ_5 -Band das Fermi-Niveau bei beiden Spinsorten schneidet. Die Minoritätselektronen der linken Elektrode (ohne Abbildung) tunneln aus dem Δ_2 -, Δ_2' - und Δ_5 -Band in die MgO-Barriere, wobei wiederum nur die Δ_5 -Elektronen die Barriere durchtunneln können und in der rechten Elektrode passende Zustände finden. Der Tunnelstrom bei antiparallel magnetisierten Elektroden wird also nur von Majoritäts- und Minoritätselektronen aus den jeweiligen Δ_5 -Bändern getragen.

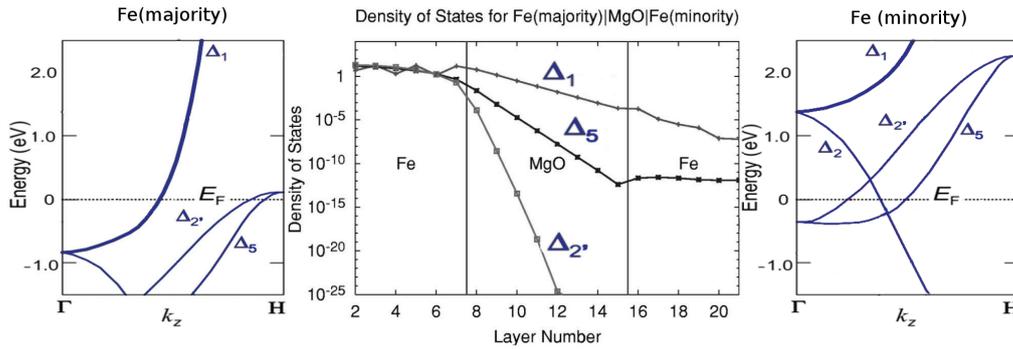


Abbildung 2.10: Beispiel für den Einfluss der MgO-Barriere auf die Transmission von Elektronen mit Wellenfunktionen verschiedener Symmetrien. Bearbeitete Version aus [4; 48]

Sind die beiden Elektroden dagegen parallel zueinander magnetisiert, so klingen die Δ_1 -Majoritätselektronen nicht wie in Abb. 2.10 in der rechten Elektrode ab, sondern finden dort passende Zustände an der Fermi-Kante und tragen somit, aufgrund der niedrigen Abklingrate in der Barriere, erheblich zum Tunnelstrom bei. Hinzu kommen Strombeiträge der Δ_5 -Elektronen beider Spinsorten und der Δ_2 -Minoritätselektronen. Wie in Abb. 2.10 gezeigt, klingen die Δ_1 -Zustände um Größenordnungen weniger in der Barriere ab, als die Zustände anderer Symmetrien. Die Differenz zwischen der Leitfähigkeit bei parallel magnetisierten und derjenigen bei antiparallel magnetisierten Elektroden ist dementsprechend hoch und es resultiert nach Definition (2.35) ein hoher TMR-Wert. Aufgrund der wichtigen Rolle der Symmetrie der Wellenfunktion und ihrer Erhaltung beim Tunnelprozess wird dieser als *kohärent* bezeichnet. Der Isolator dient bei diesem Prozess als „Bandfilter“, welcher zusammen mit einem von der Bandstruktur passenden Ferromagneten als Elektrode zu einem Spinfilter wird, da z.B. bei Fe|MgO|Fe die Majoritätselektronen aus dem Δ_1 -Band eine weitaus höhere Transmissionswahrscheinlichkeit haben, als Elektronen aus den nicht-spinpolarisierten $\Delta_{2'}$ - und Δ_5 -Bändern.

Der in dieser Arbeit in Kombination mit MgO verwendete Ferromagnet ist Co-FeB, ein Material, das auf vielen Unterlagen *amorph* aufwächst [48]. Experimentell wurden bei derartigen Tunnelementen die bislang größten TMR-Werte von ca. 500% bei Raumtemperatur gemessen [20], sodass sich die Frage stellt, wie sich theoretisch das amorphe Material auf den TMR auswirkt. Eine ausführliche Untersuchung dieser Frage findet sich in den Arbeiten von Heiliger et al. [14] und Gradhand et al. [11]. Darin werden mit Methoden, die den oben beschriebenen ähnlich sind, realistischere Tunnelemente modelliert, bei denen beispielsweise die Schichtdicke der ferromagnetischen Elektroden endlich ist. Es werden dabei sowohl komplett kristalline Systeme, sowie eine Kombination aus kristalliner MgO-Barriere und amorphen ferromagnetischen Eisen-Elektroden untersucht, wobei an

Abbildung 2.11: Transmission von Majoritätselektronen (rechte Spalte) und Minoritätselektronen (linke Spalte) durch kristallines Fe (1) und durch sieben amorphe Monolagen Fe (2). k_x und k_y stellen die Richtungen parallel zur Grenzfläche dar. Die in der oberen Zeile erkennbare Spin-Polarisation der Transmission wird im amorphen Fall zerstört. Aus [11].

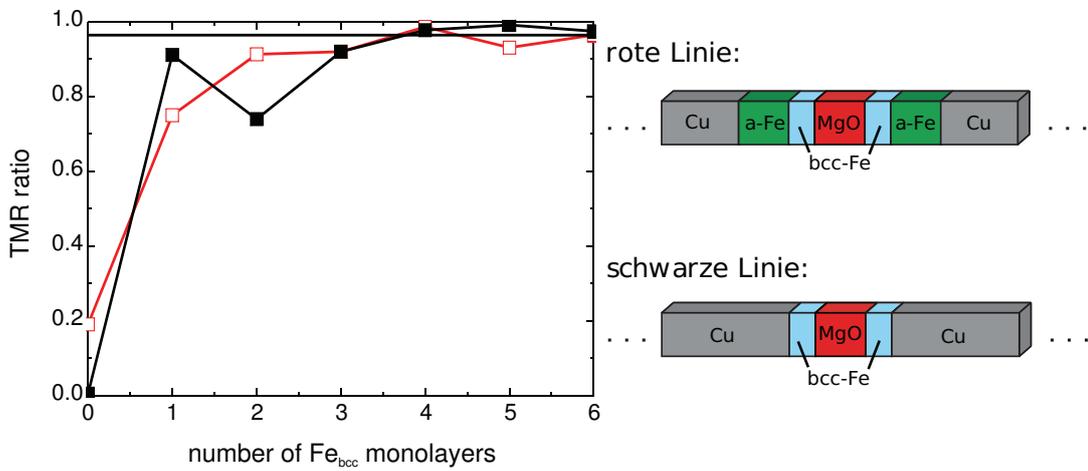
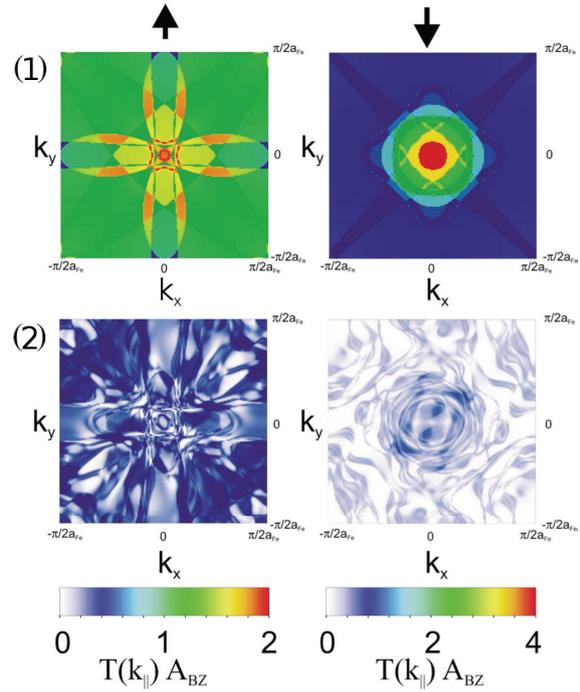


Abbildung 2.12: Abhängigkeit des TMR-Wertes von der Anzahl an kristallinen Eisen-Monolagen an der Grenzfläche zum MgO. Die hier verwendete Definition für den normierten TMR ist $\frac{G_P - G_{AP}}{G_P + G_{AP}}$. Die horizontale Linie deutet den TMR-Wert für unendlich ausgedehnte Elektroden an. Aus [14].

der Grenzfläche eine variable Anzahl an kristallinen Eisen-Monolagen eingefügt werden kann. Wie in Abbildung 2.11 zu erkennen ist, ändern sich die für kristallines Fe charakteristischen Transmissionseigenschaften drastisch. Der Vergleich von oberer und unterer Zeile zeigt, wie die Spin-Polarisation insbesondere bei $k_{\parallel} = 0$ im amorphen Zustand zerstört wird. Das wiederum führt zu weitaus geringeren TMR-Werten. Interessanterweise zeigen die Berechnungen in [14] allerdings, dass schon wenige Monolagen kristallinen Eisens an der Grenzfläche zum MgO genügen, um TMR-Werte zu erhalten, die vergleichbar mit denen aus Modellen mit ausgedehnten kristallinen Elektroden sind (siehe Abb. 2.12). Abschließend werden in Tabelle 2.1 die Ergebnisse verschiedener Forschergruppen gegenübergestellt, die aufgrund von leicht unterschiedlicher Modellierung und Auswertung teilweise stark voneinander abweichen.

	Fe MgO Fe	Co MgO Co	FeCo MgO FeCo
Gradhand et al. [11]	6000-8800%	900-2000%	
Mathon & Umerski [22]	1200%		
Butler et al. [52]	6000%	13000%	34000%

Tabelle 2.1: Theoretisch vorhergesagte TMR-Werte für verschiedene Materialien.

3 Experimentelle Methoden

Dieses Kapitel beginnt mit einer kurzen Darstellung der Probenpräparation in Abschn. 3.1, bevor in Abschn. 3.2 zur Dokumentation für mögliche, nachfolgende Arbeiten sehr detailliert auf den Messaufbau eingegangen wird. Den Abschluss des Kapitels bildet eine Erläuterung der I/U-Charakterisierung und der Tunnelspektroskopie anhand einiger Beispiele.

3.1 Probenpräparation und -charakterisierung

Bei den im Rahmen dieser Diplomarbeit hergestellten Proben wurden Substrate aus oxidiertem Silizium verwendet, weil die oxidierte Oberfläche amorph ist und eine geringe Rauigkeit besitzt. Die Reinigung der Substrate vor dem Einbau in die Ultrahochvakuum-Anlage ist essentiell und, abhängig vom Zustand der Substrate nach dem Brechen, werden diese auf einer Heizplatte mit einer CO₂-Pistole abgesprüht und mit Propanol, Aceton und deionisiertem Wasser gespült, sowie im Ultraschallbad in diesen Substanzen gereinigt. Die Sauberkeit der Substrate wird nach der Reinigung unter dem Lichtmikroskop überprüft.

Die Herstellung der dünnen Schichten erfolgt in einer aus drei Kammern bestehenden Ultrahochvakuum-Anlage, die im Folgenden kurz beschrieben wird. Eine ausführliche Beschreibung der Anlage findet sich in der Diplomarbeit von Gerrit Eilers [8]. Neben einer kleinen Kammer, die als Schleuse benutzt wird, dient eine weitere Kammer dem Sputtern der ferromagnetischen CoFeB-Elektroden, während in der dritten Kammer die oberen und unteren Kontaktschichten sowie die MgO-Barriere elektronenstrahlverdampft werden.

Die Sputterkammer enthält eine US Inc. MAK Magnetronsputterquelle (mit Advanced Energy Industries Inc. MDX500 Steuerung), einen Schwingquarz (Inficon Schwingquarz mit Inficon XTC/2 Deposition Controller) zur Kontrolle der Schichtdeposition und einen Argoneinlass, welcher von einem Massenflussregler gesteuert wird. Die Druckmessung erfolgt über ein Glühkathoden-Ionisationsvakuummeter. Der Basisdruck in der Sputterkammer ist üblicherweise im unteren 10⁻⁸ mbar Bereich. Soweit nicht anders beschrieben, werden die CoFeB-Elektroden bei einer konstanten Sputterleistung von 10 W bis 11 W im Argonplasma bei einem Argonfluss von 0,25 sccm (Standardkubikzentimeter) aufgebracht. Die Schwingquarz-Steuerung wurde für diese Werte durch die Messung von Schichtdicken an einem Profilometer für eine bestimmte Probenposition kalibriert.

Die größte Kammer der UHV-Anlage enthält zwei Thermionics Four Position Crucible e-Gun Source 100-0040 Elektronenstrahlverdampfer, die jeweils vier Tiegel für Materialien bereitstellen. Somit ist das Aufdampfen von acht verschiedenen Materialien sowie die Herstellung von zweikomponentigen Legierungen in dieser Kammer möglich. Die Druckmessung erfolgt hier sowohl über ein Glühkathoden-Vakuummeter als auch über ein Quadrupol-Massenspektrometer. Der Basisdruck liegt normalerweise im Bereich von $1 \cdot 10^{-9}$ mbar bis $2 \cdot 10^{-9}$ mbar, kann durch Verdampfen von Gettermaterialien wie z.B. Tantal allerdings bis auf einige 10^{-10} mbar reduziert werden. Die Kalibrierung der Schwingquarz-Steuerung ist in dieser Kammer in-situ durch die Verwendung von zwei Schwingquarzen möglich: Der während der Schichtherstellung verwendete Schwingquarz befindet sich zusammen mit einer Trennplatte, welche den oberen Teil der Kammer bis auf den Bereich des Probenhalters von den verdampften Materialien abschirmt, in der Mitte der Kammer. Ein weiterer Schwingquarz kann über einen Manipulator an die Position des Probenhalters gebracht werden. Die gleichzeitige Ansteuerung der beiden Schwingquarze während des Verdampfens ermöglicht nun eine genaue Bestimmung des Tooling-Faktors zur Kalibrierung der Schwingquarz-Steuerung. Der Probenhalter selbst kann sowohl geheizt (bis ca. 500°C) als auch gekühlt (Stickstoff-Durchflusskühlung) werden; eine Temperaturmessung ist durch einen Thermokontakt nahe der Probe möglich.

Die vollflächig bedampften Proben werden direkt nach dem Ausbau aus der UHV-Anlage ein erstes Mal magnetisch charakterisiert. Unter Ausnutzung des magneto-optischen Kerr-Effektes (MOKE) werden an den Proben Hysteresekurven gemessen. Die Proben erhalten in der UHV-Anlage zunächst nur einen wenige Nanometer dicken oberen Kontakt, sodass das Laserlicht tief genug in die Probe eindringen kann und beide CoFeB-Elektroden zum Signal beitragen. Angeregt wird die Probe durch einen HeNe-Laser, die Detektion des MOKE-Signals geschieht durch Modulation der Polarisationsrichtung mit einem photoelastischen Modulator und Messung der Photodiodenspannung mit einem Lock-in-Verstärker.

Die Mikrostrukturierung der vollflächig bedampften Proben erfolgt durch optische Lithographie. Der hierfür verwendete Negativ-Fotolack (AR-N 4240) wurde bezüglich seiner Eigenschaften bei der Rotationsbeschichtung, seines Kontrastes und seiner Flankenform untersucht und die Parameter Rotationsgeschwindigkeit, Belichtungs- und Entwicklungszeit optimiert. Als Entwickler wird der zum Fotolack passende AR 300-47 verwendet. Die zu strukturierende Probe wird beim Lithographieprozess zunächst mit dem Fotolack für 60 s bei 6000 rpm rotationsbeschichtet. Noch vor der Belichtung muss der Fotolack für 2 Minuten auf einer Heizplatte bei 85°C gebacken werden. Die Belichtung erfolgt an einem MJB4 Belichter der Firma Süss unter Verwendung der Maske „SQUARE 1“, welche rechteckige Strukturen mit Kantenlängen von $30\ \mu\text{m}$ bis $0,5\ \mu\text{m}$ enthält. Der Fotolack unterhalb der rechteckigen Strukturen wird belichtet und bleibt nach der Entwicklung stehen, da es sich um einen Negativlack handelt. Um gute Ergebnisse zu erzielen, wird Vakuumkontaktlithographie verwendet und eine Belichtungszeit von ca. 3 s – abhängig von

der verfügbaren Intensität – gewählt. Die belichtete Probe wird schließlich, nach erneutem Backen auf der Heizplatte, für 60 s – 70 s im AR 300-47 entwickelt und mit deionisiertem Wasser gespült.

Auf den Lithographieprozess folgt das Abtragen der aufgedampften Schichten außerhalb der rechteckigen Strukturen bis hinunter zur unteren Kontaktschicht mittels Ionenätzen im Argonplasma. Verwendet wird hierfür die inverse Sputterätzung in der HV-Anlage im Reinraum. Durch Rotation des Probenhalters und nicht-senkrechten Einfall der Argon-Ionen auf die Probe wird eine gleichmäßige Abtragung erreicht und Ablagerungen des abgetragenen Materials an den entstehenden Strukturen vermieden. Die Ätzraten wurden für jedes verwendete Material separat bestimmt, sodass bei bekanntem Aufbau des Schichtstapels die Ätzzeit berechnet werden kann. Nach dem Ätzprozess wird der Fotolack von den fertig strukturierten Elementen in einem Lift-off-Prozess entfernt. Dazu wird die Probe in Propanol gelegt und für ca. 90 Minuten in ein Ultraschallbad gestellt, welches auf 50° C geheizt ist. Im Lichtmikroskop sind Fotolackreste auf den Tunnelementen gut zu erkennen und müssen gegebenenfalls vor der elektrischen Kontaktierung durch Wiederholung des Lift-off-Prozesses entfernt werden. Für eine detailliertere Ausführung der oben genannten Strukturierungsprozedur sei auf die Diplomarbeit von Kai Ubben verwiesen [45].

3.2 Messaufbau zur Untersuchung der Transporteigenschaften

Der zur I/U-Charakterisierung und Tunnelspektroskopie verwendete Messaufbau besteht aus einem Keithley 2000 Multimeter, einer Keithley 2400 Strom- und Spannungsquelle, einem Stanford Research Systems SR830 Lock-in-Verstärker, einem Delta Elektronik SM 70-22 Netzteil für den Betrieb eines speziell für die Probestation konstruierten Elektromagneten und aus einer eigens für die Tunnelspektroskopie entwickelten Mess-Schaltung. Die Messgeräte befinden sich mitsamt dem zur Steuerung benutzten Computer auf einem fahrbaren Rack, um Messungen sowohl an der *Probestation* (Abschn. 3.2.3) als auch am *Physical Property Measurement System* (PPMS, Abschn. 3.2.4) durchführen zu können. Die Probestation erlaubt eine einfache und schnelle Kontaktierung von vielen Tunnelementen und folglich eine schnelle Probencharakterisierung, allerdings kann lediglich bei Raumtemperatur und kleinen Magnetfeldern gemessen werden. Die Probenträger des PPMS erlauben wiederum nur die Kontaktierung von zwei bis drei Tunnelementen, dafür sind an diesem Gerät Messungen bei Magnetfeldern bis maximal 9 T bei Temperaturen zwischen 2 K und 400 K möglich.

Für die Messung von Kennlinien oder des TMR wird das Keithley 2400 als Stromquelle eingesetzt, welches außerdem die Spannung misst, falls die Tunnelemente nur an zwei Punkten kontaktiert werden können. Bei einer Vierleitermessung wird

darüber hinaus das Keithley 2000 benutzt, um die an der Probe abfallende Spannung zu messen. Der Lock-in-Verstärker dient der Detektion der ersten und zweiten Ableitung der Kennlinien (dI/dU bzw. d^2I/dU^2). Auch in diesem Fall wird das Keithley 2000 verwendet, um gleichzeitig eine Kennlinie aufnehmen zu können.

Die Steuerung der verschiedenen Messungen übernimmt ein selbstgeschriebenes LabVIEW[®]-Programm, welches die erforderlichen Geräte über den GPIB-Bus anspricht und die Daten ebenfalls über diesen ausliest. Die Messwerte werden von dem Programm in Exponentialdarstellung mit sechs Nachkommastellen in die Datei geschrieben und Berechnungen innerhalb des Programms werden mit dem Datentyp „double“ durchgeführt, sodass hier keine Fehler entstehen sollten.

Das verwendete Keithley 2000 hat laut Datenblatt bei einem Messbereich von 1 V eine Genauigkeit von $7\ \mu\text{V}$ bei einem hinzukommenden Fehler von 30 ppm (parts per million) des angezeigten Messwertes. Im kleinsten einstellbaren Messbereich von 100 mV beträgt der Fehler nur $3,5\ \mu\text{V}$ mit hinzukommenden 50 ppm des angezeigten Messwertes. Bei Probenwiderständen von einigen Kilo-Ohm ist die am Keithley 2000 zu messende Spannung bei richtig gewähltem Messwiderstand (siehe 3.2.2) so groß, dass diese Messfehler vernachlässigbar klein sind. Das Keithley 2400 ermöglicht, wenn als Spannungsquelle im Bereich 200mV betrieben, Spannungsschrittweiten von $5\ \mu\text{V}$, wobei der Fehler im Datenblatt allerdings mit $600\ \mu\text{V}$ angegeben ist. Bei typischen Schrittweiten von mindestens 1 mV bei Kennlinienmessungen liegt dieser Fehler immerhin unterhalb der Schrittweite, bei TMR-Messungen bei angelegten Spannungen $\geq 10\ \text{mV}$ ist er angesichts der geringen Spannungsabhängigkeit des TMR-Effektes in diesem Bereich vernachlässigbar. Die Messgenauigkeit der Stromstärke wird im Datenblatt des Keithley 2400 mit 300 pA bei einem Messbereich von $1\ \mu\text{A}$ angegeben. Bei Messung von Kennlinien wird bei üblichen Probenwiderständen ein Messbereich von 1 mA verwendet, in welchem die Genauigkeit bei 60 nA liegt. In beiden Fällen sind die Genauigkeiten für die jeweiligen Messungen mehr als ausreichend.

3.2.1 Funktionsweise eines Lock-in-Verstärkers

Die Lock-In-Technik wird im Allgemeinen dazu verwendet, besonders kleine Wechselspannungssignale zu messen, bei denen ein konventioneller Verstärker aufgrund von starkem Rauschen kein brauchbares Signal liefert. Aufgrund seiner Funktionsweise eignet sich ein Lock-in-Verstärker außerdem zur Messung von dI/dU - und d^2I/dU^2 -Signalen, weshalb zunächst das Funktionsprinzip eines Lock-in-Verstärkers kurz vorgestellt wird.

Eine schematische Zeichnung des verwendeten Lock-in-Verstärkers findet sich in Abb. 3.1. Das vom Experiment kommende Signal wird zunächst hinter den Eingängen A und B analog mit einem rauscharmen Verstärker verstärkt und durch zwei Kerbfilter geführt, welche Signale auf der Netzfrequenz und deren zweiten Harmonischen herausfiltern, um Rauschen auf diesen Frequenzen vor der weiteren

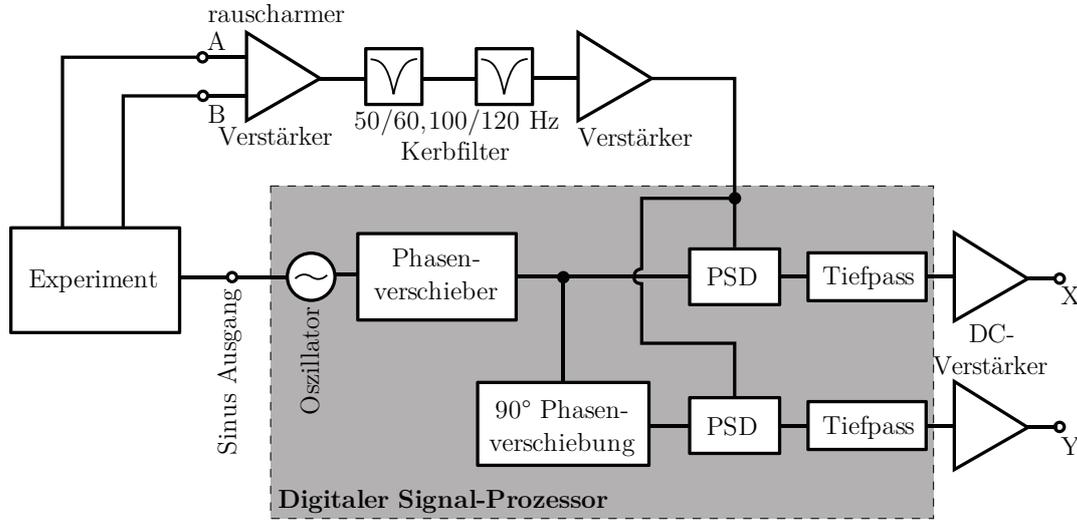


Abbildung 3.1: Skizze zur Funktionsweise des SR830 Lock-in-Verstärkers. Nach [39].

Verarbeitung des Signals zu vermeiden. In einem weiteren Verstärker wird das Signal so weit verstärkt, dass ein A/D-Wandler es für den digitalen Signal-Prozessor verlustfrei digitalisieren kann. Die Kernbauteile des Lock-in-Verstärkers sind die *phasensensitiven Detektoren* (PSD) zusammen mit den nachgeschalteten Tiefpassfiltern. Der obere PSD in Abb. 3.1 erhält von dem internen Oszillator und Phasenverschieber eine digitale Sinusfunktion $U_L \sin(\omega_L t + \theta_L)$. Wird das Experiment durch eine Wechselspannung angeregt, lässt sich das Eingangssignal ebenfalls durch eine Sinusfunktion darstellen: $U_{\text{sig}} = U_0 \sin(\omega_{\text{sig}} t + \theta_L)$. Laut der Betriebsanleitung [39] multipliziert der PSD nun die beiden Signale miteinander und aus der Produktregel für zwei Sinusfunktionen ergeben sich zwei Wechselspannungssignale mit Frequenzen, die der Differenz bzw. der Summe von ω_L und ω_{sig} entsprechen:

$$U_{\text{PSD}} = \frac{1}{2} U_0 U_L [\cos((\omega_{\text{sig}} - \omega_L)t + \theta_{\text{sig}} - \theta_L) - \cos((\omega_{\text{sig}} + \omega_L)t + \theta_{\text{sig}} + \theta_L)]. \quad (3.1)$$

Wie in der Abbildung angedeutet, wird das Experiment mit der *Referenzfrequenz* des internen Oszillators ω_L betrieben, folglich ist $\omega_{\text{sig}} = \omega_L$. Bleibt außerdem die Beziehung zwischen der internen Phase des Lock-in-Verstärkers und der Phase des Signals aus dem Experiment konstant, so stellt der erste Term in Gl. (3.1) eine Gleichspannung dar. Der nachfolgende Tiefpass lässt anschließend nur dieses Gleichspannungssignal durch und filtert alle Wechselspannungssignale heraus. Das verbleibende Signal enthält nun lediglich Rauschanteile, welche sehr nahe der Referenzfrequenz auftreten und dementsprechend von dem Tiefpass nur wenig gedämpft werden.

Bei dem SR830 handelt es sich um einen *dual-phase* Lock-in-Verstärker, d.h. es gibt noch einen zweiten PSD, der das Signal mit einer um 90° phasenverschobenen Sinusfunktion multipliziert. Auf diese Weise ist es möglich, die in Gl. (3.1) enthaltene Phasenabhängigkeit zu entfernen, um die Signalamplitude zu erhalten. Mit den Erläuterungen des vorherigen Absatzes ergibt sich aus Gl. (3.1) für die Lock-In-Ausgänge X, Y, R und $\theta := \theta_{\text{sig}} - \theta_L$:

$$X = U_0 \cos(\theta), \quad Y = U_0 \sin(\theta), \quad R = \sqrt{X^2 + Y^2} = U_0, \quad \theta = \arctan\left(\frac{Y}{X}\right). \quad (3.2)$$

Neben den Eigenschaften der Referenz-Sinusfunktion (ω_L, θ_L) lassen sich außerdem die Eigenschaften der Tiefpassfilter und der Verstärkung einstellen: Die *Zeitkonstante* bestimmt die Grenzfrequenz der einzelnen Tiefpassfilter, wobei auch deren Flankensteilheit separat gewählt werden kann. Die allgemeine Verstärkung wird über den gewünschten Spannungsbereich eingestellt. Führt ein zu starkes Rauschen auf einer anderen Frequenz als der Referenzfrequenz dazu, dass der Lock-In trotz passendem Messbereich übersteuert, so kann die Verteilung der Verstärkung auf die verschiedenen Verstärkungsstufen durch die Einstellung des *dynamic reserve* geändert werden. Der SR830 arbeitet immer mit *Effektivwerten* und ist zudem in der Lage, auch *höhere Harmonische* der Referenzfrequenz zu detektieren.

Messung der Kennlinienableitungen mit dem Lock-in-Verstärker

Um mit einem Lock-in-Verstärker die erste und zweite Ableitung der Strom-Spannungs-Kennlinie zu messen, moduliert man die Gleichspannung U_{DC} , bei der die Ableitung gemessen werden soll, mit einer Wechselspannung der Amplitude U_{AC} . Die an der Probe anliegende Spannung in Abhängigkeit von der Zeit ist somit:

$$U(t) = U_{\text{DC}} + U_{\text{AC}} \sin(\omega_L t). \quad (3.3)$$

Die Wechselspannungsamplitude und -frequenz werden in der experimentellen Realisierung (siehe Abschn. 3.2.2) durch den internen Lock-In-Oszillator vorgegeben. Um nun zu verstehen, wie sich die Lock-In-Technik nutzen lässt, um die Ableitungen zu detektieren, macht man zunächst eine Taylor-Entwicklung von $I(U)$ um die angelegte Gleichspannung U_{DC} [47]:

$$I(U(t)) \approx I(U_{\text{DC}}) + \left(\frac{dI}{dU}\right)_{U_{\text{DC}}} (U(t) - U_{\text{DC}}) + \frac{1}{2} \left(\frac{d^2I}{dU^2}\right)_{U_{\text{DC}}} (U(t) - U_{\text{DC}})^2. \quad (3.4)$$

Für die Spannung $U(t)$ in Gl. (3.4) setzt man die Beziehung (3.3) ein und erhält nach einigen Umformungen:

$$\begin{aligned} I(U(t)) \approx & I(U_{\text{DC}}) + \left(\frac{dI}{dU}\right)_{U_{\text{DC}}} U_{\text{AC}} \sin(\omega_L t) + \frac{1}{4} \left(\frac{d^2I}{dU^2}\right)_{U_{\text{DC}}} U_{\text{AC}}^2 \\ & - \frac{1}{4} \left(\frac{d^2I}{dU^2}\right)_{U_{\text{DC}}} U_{\text{AC}}^2 \sin\left(2\omega_L t + \frac{\pi}{2}\right). \end{aligned} \quad (3.5)$$

In dieser Gleichung ist zu erkennen, dass bei der gegebenen Spannungsmodulation der entstehende Wechselstrom einen Term proportional zur ersten Ableitung dI/dU an der Gleichspannung U_{DC} bei der Frequenz ω und einen weiteren Term proportional zur zweiten Ableitung $d^2I/dU^2(U_{DC})$ bei der zweiten Harmonischen 2ω besitzt.

3.2.2 Mess-Schaltung

Die Mess-Schaltung, welche für die Tunnelspektroskopie konstruiert wurde, realisiert die Spannungsmodulation nach Gl. (3.3) und ermöglicht die Messung des Stromsignals über zwei Operationsverstärker-Regelstrecken, wie in Abb. 3.2 zu sehen ist. Die zu modulierende Gleichspannung U_{DC} wird über den ersten analogen Ausgang des Lock-in-Verstärkers (Aux 1) geregelt. Dieser Ausgang kann auf Spannungen im Bereich $\pm 10\text{ V}$ mit einer Genauigkeit von ungefähr 1 mV eingestellt werden [39] und wird an den Eingang X1 angeschlossen. Der dortige Spannungsteiler setzt die einstellbare Gleichspannung auf den Bereich $\pm 1\text{ V}$ bei einer Genauigkeit von $0,1\text{ mV}$. Die Wechselspannung wird, wie bereits im vorherigen Abschnitt erwähnt, über den Referenzsignalausgang des Lock-in-Verstärkers eingestellt. Dieser erlaubt effektive Modulationsspannungen von 4 mV bis 5 V bei einer Genauigkeit von 2 mV [39], und wird in der Mess-Schaltung am Eingang X2 angeschlossen. Ein weiterer Spannungsteiler sorgt hier für einen Spannungsbereich zwischen $4\text{ }\mu\text{V}$ und 5 mV , folglich mit einer Genauigkeit von $2\text{ }\mu\text{V}$.

Die Modulation der Gleichspannung ist dadurch gegeben, dass beide Spannungssignale auf die Erdung des Lock-in-Verstärkers bezogen sind: Die obere Operationsverstärker-Regelstrecke legt die Gleichspannung U_{DC} an die Probe an, während die untere Regelstrecke das an der Probe anliegende Erdpotential mit der eingestellten Wechselspannung $U_{AC} \sin(\omega_L t)$ moduliert, sodass an der Probe eine Spannung, wie in Gl. (3.3) gefordert, anliegt. Die Operationsverstärker hinter den beiden Eingängen X1 und X2 gewährleisten, dass die an den Eingängen eingestellte Spannung, je nach experimenteller Anordnung, korrekt an der Probe anliegt: Im Falle einer Vierleitermessung (Abb. 3.2 a)), wird der 2P/4P-Schalter geöffnet und die vier Zuleitungswiderstände R_L liegen innerhalb der Operationsverstärker-Regelstrecke. Die Eigenschaft der Operationsverstärker die Ausgangsspannung so zu regeln, dass die Spannung am invertierenden Eingang mit derjenigen am nicht-invertierenden Eingang übereinstimmt, sorgt dafür, dass die gewünschten Spannungen am Probenwiderstand R_P anliegen.

In Abb. 3.2 b) und c) sind die zur Kontaktierung der Tunnelelemente verwendeten Zweileiterverkabelungen gezeigt. Um in dieser Anordnung zu messen, wird der 2P/4P-Schalter geschlossen und die Operationsverstärker regeln die gewünschte Spannung an den Ausgängen X3 und X6. Damit die Zuleitungswiderstände in diesem Fall die Messung nicht beeinflussen, müssen sie gegenüber R_P vernachlässigbar klein sein. Zu beachten ist allerdings, dass Operationsverstärker generell einen

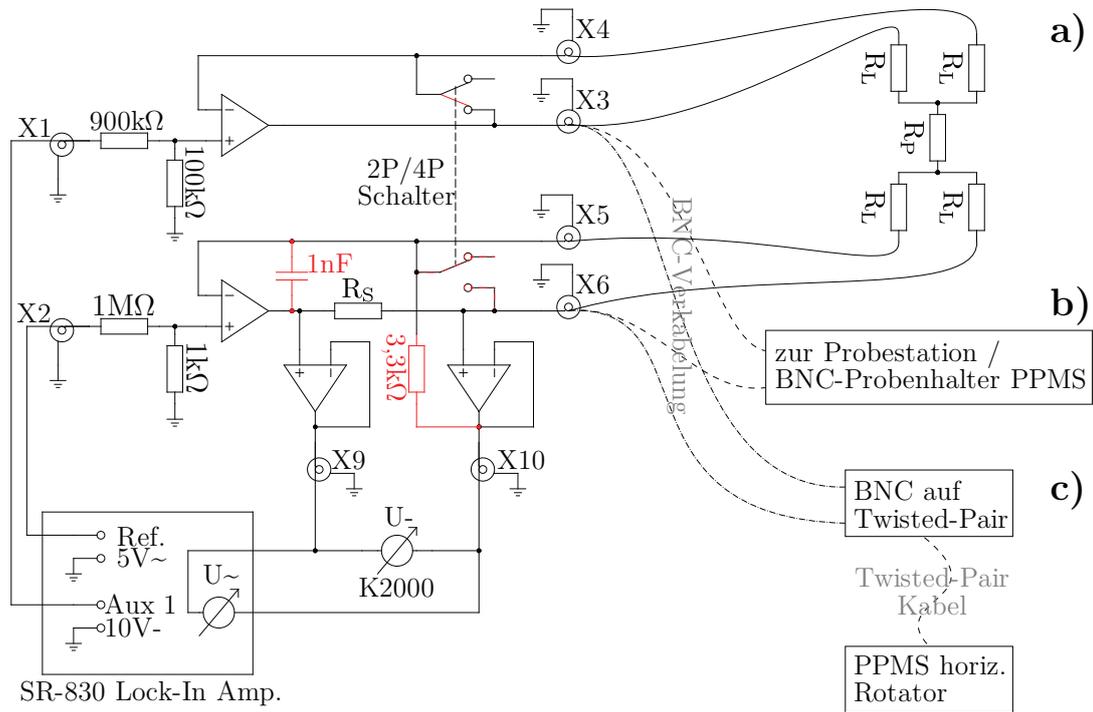


Abbildung 3.2: Mess-Schaltung für die Tunnelspektroskopie. Ein Ersatzschaltbild für eine Vierleitermessung ist in a) gezeigt. Die Verkabelungen an der Probestation und am PPMS sind in b) und c) zu sehen.

Offset besitzen, welcher bei der Durchführung der Messung berücksichtigt werden müsste. Dementsprechend wurden Spannungsmessungen an den verschiedenen Ausgängen durchgeführt, die dabei bestimmten Offsets sind allerdings vernachlässigbar klein gegen die Fehler der beiden Spannungsquellen des Lock-in-Verstärkers.

Ein weiteres Problem der Operationsverstärker-Regelstrecke wurde bei den Messungen am PPMS deutlich, wo sich längere Kabelverbindungen zur Probe nicht vermeiden ließen: Die Kabelkapazität führte hier in Zusammenhang mit dem Messwiderstand zu Schwingungen des zugehörigen Operationsverstärkers und damit vermutlich zu einer Beeinträchtigung des Mess-Signals. Aus diesem Grund wurde im unteren Schaltkreis ein weiterer Widerstand hinter einen der Impedanzwandler und ein Kondensator parallel zu den Ausgängen X5 und X6 eingebaut und der Schalter entfernt, um eine frequenzabhängige Gegenkopplung des Operationsverstärkerausgangs mit seinem invertierenden Eingang zu gewährleisten und gleichzeitig sicherzustellen, dass der durch die Probe fließende Strom auch durch den Messwiderstand fließt (siehe Abb. 3.2, rot eingezeichnete Bauteile). Eine Vierleitermessung ist nach diesem Umbau zunächst nicht möglich und durch diesen Frequenz-

filter ist auch Umsicht bei der Auswahl der Anregungsfrequenzen ω_L notwendig (siehe auch Abschn. 3.4).

Der Messwiderstand R_S liegt in jedem Fall innerhalb der unteren Operationsverstärker-Regelstrecke und beeinflusst die Messung somit nicht. Der durch die Probe fließende Strom wird durch eine Spannungsmessung an R_S mit dem Lock-in-Verstärker und dem Keithley 2000 bestimmt. Damit die Eingangsimpedanzen der Messgeräte nicht die Messung verfälschen können, wurden zwei Impedanzwandler vor die Ausgänge X9 und X10 gesetzt. Zur Messung der ersten und zweiten Ableitung wird der Lock-In, wie in Abschn. 3.2.1 beschrieben, so eingestellt, dass er Signale bei der Frequenz ω_L bzw. $2\omega_L$ detektiert. Dementsprechend wird der zweite bzw. der letzte Summand in Gl. (3.5), jeweils multipliziert mit R_S , gemessen. Außerdem wird die interne Phase des Lock-In Verstärkers $\theta_L = 0$ gesetzt und für die Wechselspannungsamplitude gilt $U_{AC} = \frac{\sqrt{2}U_L}{1000}$, wobei U_L dem eingestellten Wert für das Referenzsignal entspricht. Aus den Gleichungen (3.5) und (3.2) ergibt sich somit:

$$\frac{dI}{dU}(U_{DC}) = \frac{X}{R_S U_L} \quad \text{und} \quad \frac{d^2 I}{dU^2}(U_{DC}) = \frac{4}{\sqrt{2}} \frac{Y}{R_S U_L^2}. \quad (3.6)$$

Die Genauigkeit der aus dem Lock-in-Verstärker ausgelesenen X und Y Werte ist nicht generell anzugeben, da sie sowohl von dem gewählten „dynamic reserve“ und damit von der Signalgröße am 16bit A/D-Wandler als auch von der gewählten Zeitkonstante abhängt, welche letztendlich für eine Mittelung über eine gewisse Zeit verantwortlich ist. Für R_S wurde anfangs für die Messungen an der Probestation ein Widerstand von 1 k Ω verwendet, die höheren Probenwiderstände der am PPMS gemessenen Proben erforderten allerdings einen ebenfalls größeren Messwiderstand, sodass in diesem Fall 100 k Ω eingebaut wurden. Um gute Messungen an Proben mit Widerständen in verschiedenen Größenordnungen machen zu können, ist für die Zukunft ein variabler Messwiderstand vorgesehen, welcher an die Eigenschaften der Probe angepasst werden kann. Die richtige Wahl des Messwiderstandes ist in sofern wichtig, als dass im Falle $R_S \ll R_P$ die an R_S abfallende Spannung unnötig klein ist und folglich die Messung der Stromstärke ungenau. Das nächste Problem in diesem Fall ist das thermische Rauschen des Widerstandes, welches durch

$$U_{\text{therm}}^{\text{eff}} = \sqrt{4k_B T R_S \Delta f} \quad (3.7)$$

gegeben ist [39]. k_B bezeichnet hier die Boltzmann-Konstante, T die Temperatur in Kelvin und Δf die Bandbreite des Messgerätes. Das Rauschen über den Frequenzbereich kann abgeschätzt und bei bekanntem Probenwiderstand das Signal-Rausch-Verhältnis bestimmt werden. Um andererseits den unteren Operationsverstärker in Abb. 3.2 nicht zu stark zu belasten, ist ein möglichst geringer Messwiderstand zu wählen, der ein zufriedenstellendes Signal-Rausch-Verhältnis ermöglicht.

3.2.3 Aufbau der Probestation

Zur Charakterisierung der Tunnelemente bei Raumtemperatur und in schwachen Magnetfeldern wird, wie bereits erwähnt, die Probestation der Firma Süss verwendet, da hier eine schnelle Kontaktierung vieler Tunnelemente möglich ist. Der Aufbau des Geräts ist in Abb. 3.3 gezeigt. Der Probestisch befindet sich in Abb. 3.3 c) in der Mitte des Bildes, unterhalb des Mikroskops. Auf diesen wird der selbstgebaute Elektromagnet (Abb. 3.3 b)) aufgelegt. Der Probestisch selbst ist höhenverstellbar und lässt sich auch in der Probenebene verschieben. Die Kontaktierung der Probe erfolgt durch die vier Manipulatoren, welche in Abb. 3.3 c) auf den beiden größeren Tischen angeordnet sind und auf diesen mit einer Vakuumpumpe fixiert werden. Auf der rechten Seite von Abb. 3.3 c) sind die elektrischen Anschlüsse der vier Manipulatoren zu sehen. Auf der anderen Seite dieser Wand wird der Messaufbau angeschlossen. Bei den Kabeln bzw. Steckern innerhalb der Probestation handelt es sich um Triaxialkabel bzw. -stecker. Außerhalb werden BNC-Kabel verwendet, welche BNC-Stecker auf der Messgerätseite und Triaxialstecker auf der Probestationseite besitzen.

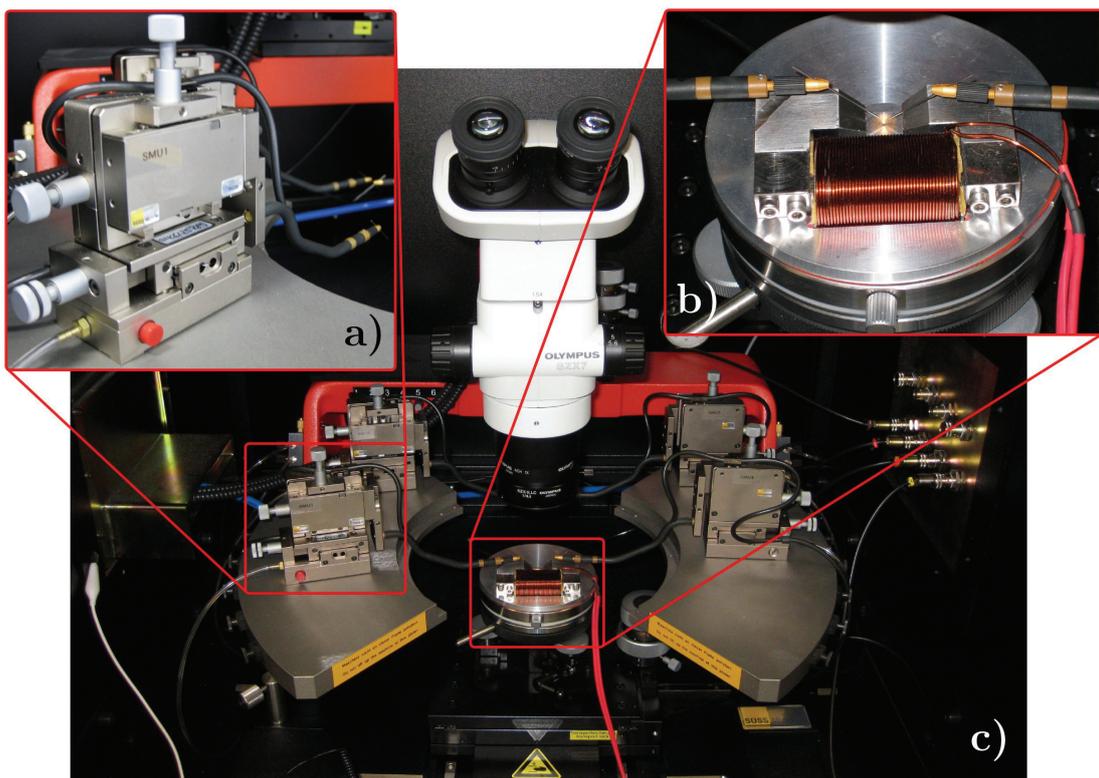


Abbildung 3.3: Süss MicroTec Probestation: a) Einer der Manipulatoren, b) Probestisch mit Elektromagnet und positionierten Sondennadeln, c) Übersichtsbild.

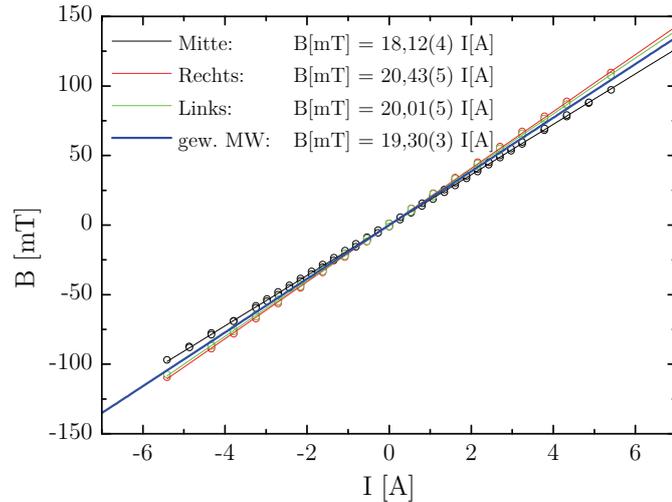
Die Nahaufnahme (Abb. 3.3 a)) zeigt die drei Mikrometerschrauben, mit denen die am Ende des Manipulatorarms befestigte Sondennadel in allen drei Raumrichtungen verschoben werden kann. Bei größeren Verfahrrweiten müssen die Manipulatoren auf den Tischen selbst verschoben werden, was durch Unterbrechung der Verbindung zur Vakuumpumpe möglich ist.

Eine Nahaufnahme des Probestisches mit aufgelegtem Elektromagneten und zwei Sondennadeln ist in Abb. 3.3 b) gezeigt. Die Probe wird in diesem Bild auf den etwas erhobenen Teil der Aluminiumplatte zwischen die Polschuhe des Magneten gelegt und kann über das kleine Loch in der Mitte ebenfalls durch die Vakuumpumpe fixiert werden. Weiterhin ist in diesem Bild zu sehen, dass die Sondennadeln in einem Winkel von ca. 45° zu den Manipulatorarmen angebracht sind, um eine einfache Kontaktierung zu ermöglichen. Die hier gezeigten, standardmäßig eingebauten Sondennadeln sind aus Wolfram gefertigt, allerdings hat sich herausgestellt, dass sie sich nicht sehr gut zur Kontaktierung von Tunnelementen eignen: Einerseits ist der elektrische Kontakt zu den oberen Goldkontakten der Tunnelemente nicht stabil genug, andererseits führt das harte Material dazu, dass die Tunnelemente schnell zerstört werden. Aufgrund des in Abschn. 3.1 beschriebenen Herstellungsprozesses werden die Tunnelemente direkt oberhalb der Barriere kontaktiert und können durch etwas zu starken Druck schnell zerstört werden. An Stelle der Wolframnadeln werden mit Gold beschichtete Kupfer-Beryllium-Sondennadeln verwendet. Diese Nadeln liefern einen guten elektrischen Kontakt und die weiche Goldbeschichtung sowie die sehr elastische Kupfer-Beryllium-Legierung gewährleisten eine relativ sichere Kontaktierung der Elemente, d.h. ohne die Gefahr diese schnell mechanisch zu zerstören.

Das vorhandene Auffichtmikroskop lässt mit den zur Verfügung stehenden Vergrößerungen eine bequeme Kontaktierung von Strukturen mit Kantenlängen bis hinunter zu ca. $10\ \mu\text{m}$ zu. Die Kontaktierung wird in diesem Bereich eher durch den Radius der Kupfer-Beryllium-Sondennadelspitze von $20\ \mu\text{m}$ erschwert, funktioniert bei den ersten beiden Elementreihen der „SQUARE 1“ Maske (jeweils 10 Elemente mit $30\ \mu\text{m}$ bzw. $12,5\ \mu\text{m}$ Kantenlänge) in den meisten Fällen. Während der Kontaktierung betrachtet man beim Absenken der Sondennadel den ebenfalls sichtbaren Schatten. Fällt dieser mit dem Bild der Nadelspitze zusammen und rutscht diese leicht nach vorne, so ist das Tunnelement kontaktiert. Bei weiterer Erhöhung des Kontaktdrucks riskiert man die mechanische Zerstörung des Elementes.

Der Elektromagnet selbst wird über Bananenstecker an einen in der Elektronikwerkstatt gefertigten und mit dem Netzteil verbundenen Umschalter angeschlossen, welcher die Richtung des vom Netzteil gelieferten Stromes steuert. Der Kern des Magneten besteht aus ARMCO-Eisen, die Spule ist aus mit Lack beschichtetem Kupferdraht mit einem Durchmesser von $0,7\ \text{mm}$ gewickelt und besitzt ca. 200 Wicklungen. Die Polschuhe des Magneten mussten aufgrund der geometrischen Einschränkungen in der Probestation abgeschrägt werden, sodass eine möglichst große Probenfläche mit den Sondennadeln kontaktiert werden kann. Um Streufel-

Abbildung 3.4: Erzeugtes Magnetfeld des Elektromagneten in Abhängigkeit von dem angelegten Strom. Gemessen wurde das Magnetfeld sowohl mittig zwischen den Polschuhen als auch, um ca. 0,25 cm verschoben, auf der Hälfte der Strecke zwischen der Mitte und dem linken bzw. rechten Polschuh.



der in den ebenfalls metallischen Probenstisch zu vermeiden, wird eine 5 mm dicke Aluminiumplatte unter den Magneten gelegt. Die Abhängigkeit des Magnetfeldes vom angelegten Strom wurde mit einer Hallsonde vermessen, die Ergebnisse dieser Messungen sind in Abb. 3.4 zu sehen. Da das Magnetfeld zwischen den Polschuhen inhomogen ist und die genaue Position der Tunnelelemente durch leicht unterschiedliche Substratform und durch den Lithographieprozess von Probe zu Probe etwas variiert, wurde der gewichtete Mittelwert der Steigung berechnet und für die Magnetfeldsteuerung verwendet. Aussagen über die absoluten Feldwerte, bei denen die magnetischen Schichten schalten, lassen sich aufgrund dieser Inhomogenität nur näherungsweise machen. Hierfür sollte man eher die Ergebnisse der MOKE-Messungen heranziehen, die ebenfalls für jede Probe vor der Strukturierung gemacht werden, da beim MOKE-Aufbau eine Helmholtzspule Verwendung findet, die ein homogenes Magnetfeld über die gesamte Probenausdehnung hinweg ermöglicht.

Das Netzteil wird von dem LabVIEW®-Programm aus über einen Meilhaus Red-Lab 1008 D/A-Wandler angesteuert. Der D/A-Wandler ist derart verkabelt, dass ein Strom zwischen 0 A und 11 A in 2046 Schritten eingestellt werden kann. Zusammen mit der in Abb. 3.4 ermittelten Steigung ergibt das eine minimale B-Feld-Schrittweite von

$$\Delta B = 19,30 \frac{\text{mT}}{\text{A}} \cdot \frac{11 \text{ A}}{2046} \approx 0,1 \text{ mT}. \quad (3.8)$$

Der Magnet kann für kurze Zeit bei Stromstärken von 5 A betrieben werden, ohne dass die lacküberzogenen Kupferkabel zu heiß werden. Aus Abb. 3.4 geht somit hervor, dass Messungen bis ca. $\pm 100 \text{ mT}$ ohne Weiteres möglich sind.

3.2.4 Physical Property Measurement System (PPMS)

Das PPMS der Firma Quantum Design ist eine Geräteanordnung, die umfangreiche Messmöglichkeiten in einem großen Temperatur- und Magnetfeldbereich erlaubt. Anhand von eingebauten Messbrücken sind sowohl DC- als auch AC-Messungen von Widerständen, Kapazitäten und differentiellen Leitwerten möglich. Auch kalorimetrische Messungen können an diesem Gerät durchgeführt werden. Da jedoch keine Modulation einer Gleichspannung mit einer Wechselspannung möglich ist, wurde in dieser Diplomarbeit lediglich der Kryostat des PPMS in Kombination mit dem eigenen Messaufbau verwendet. Für die magnetfeldabhängigen Widerstandsmessungen wäre die Verwendung der PPMS-internen DC-Widerstandsmessbrücke sinnvoll gewesen, weil das Magnetfeld nicht extern steuerbar ist. Allerdings war diese zum Zeitpunkt der Messungen defekt, sodass das Magnetfeld mit einer gewissen Geschwindigkeit durchgeföhren und der eigene Messaufbau derart eingestellt wurde, dass dieser – entsprechend der am PPMS eingestellten Geschwindigkeit und der gewünschten Schrittweite – den Widerstand gemessen und den Wert des Magnetfeldes analog ausgelesen hat.

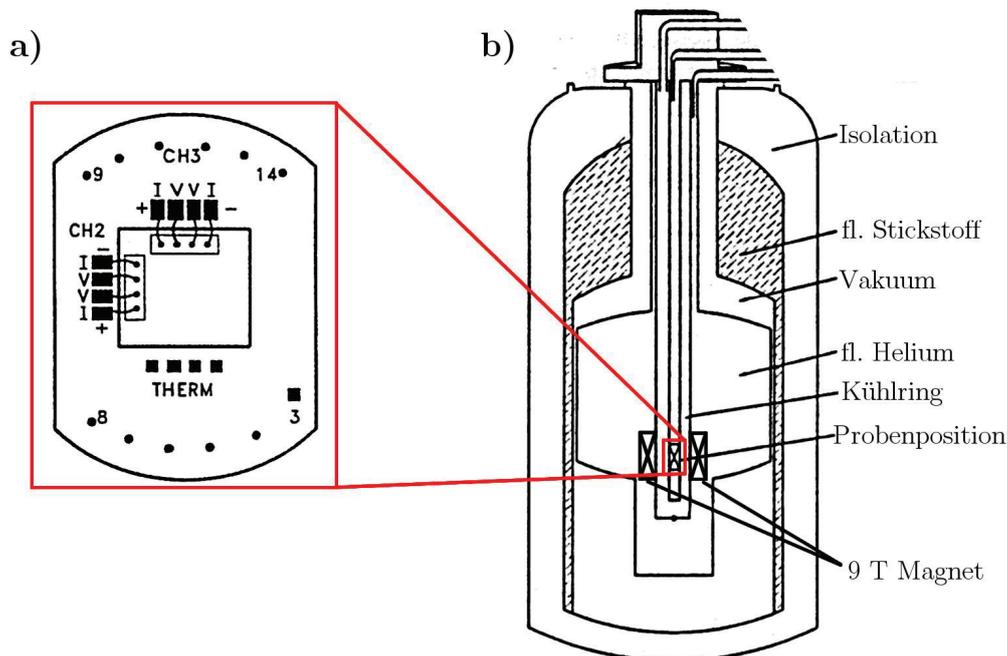


Abbildung 3.5: Physical Property Measurement System: a) Probenträger für den Horizontal-Rotator und den BNC-Probenhalter, b) Skizze des Kryostaten. Bearbeitetes Schema aus [36].

Der Kryostat des PPMS ist in Abb. 3.5 b) dargestellt. Es handelt sich um einen ^4He -Kryostaten, in dem sich auf Höhe der Probenposition ein Elektromagnet befindet, der bei 4,2 K supraleitend ist und B-Felder bis 9 T ermöglicht. Die kleinste einstellbare Schrittweite beträgt 0,01 mT. Zur Temperaturregelung stehen zwei Modi zur Verfügung, welche mittels des Kühlrings und an der Probe vorhandenen Heizern die Probentemperatur zwischen 1,9 K und 400 K regeln können. Einer der beiden Modi ist dabei speziell darauf ausgerichtet, Temperaturen von weniger als 4,2 K über längere Zeit stabil halten zu können, während der andere Modus u.a. die Probentemperatur konstant auf der Siedetemperatur des Heliums von 4,2 K halten kann.

Die im PPMS zu messende Probe wird auf den in Abb. 3.5 a) skizzierten Probenträger geklebt und die Tunnelelemente mit einem *Wire-Bonder* mit den Kontaktfeldern verbunden. Der Probenträger selbst kann zusammen mit dem sogenannten Horizontal-Rotator und einem BNC-Probenhalter verwendet werden. Das Magnetfeld in dem Kryostaten ist parallel zur Symmetrieachse des Probenzylinders und liegt beim BNC-Probenhalter in der Probenebene, während der Probenträger beim Horizontal-Rotator auch verkippt werden kann, sodass auch ein Magnetfeld senkrecht zur Probenebene realisierbar ist. Ein weiterer Unterschied zwischen den beiden Haltern sind die Anschlüsse: Beim BNC-Probenhalter werden die Kontakte des Probenträgers mit abgeschirmten Kabeln zu den BNC-Steckern oberhalb des KF-Flansches an der Oberseite des Kryostaten geführt, während sich die Kontakte des Horizontal-Rotators am unteren Ende des Probenzylinders befinden und von dort zu einem sogenannten LEMO-Stecker, ebenfalls an der Oberseite des Kryostaten, geführt werden. Die Verkabelung mit dem Messaufbau ist in Abb. 3.2 b) und Abb. 3.2 c) für beide Fälle gezeigt. Beim Testen des Messaufbaus hat sich allerdings herausgestellt, dass die Benutzung eines langen Twisted-Pair-Kabels in Kombination mit den BNC-Adapttern und der BNC-Verkabelung am Aufbau selbst zu einem weißen Rauschsignal neben der in Abschn. 3.2.2 erwähnten Schwingung des Operationsverstärkers führt. Die Signalqualität auf dem Oszilloskop war bei der Verwendung des BNC-Probenhalters und möglichst kurzer BNC-Kabel zwischen Mess-Schaltung und den Anschlüssen des Probenhalters besser, die Schwingungen des Operationsverstärkers konnten jedoch, wie bereits erwähnt, erst durch den Umbau der Mess-Schaltung behoben werden. Dennoch ist die Verkabelung aus Abb. 3.2 b) als Lösung zu empfehlen, da hier weniger mögliche Fehlerquellen im Aufbau vorhanden sind als bei der Benutzung des Horizontal-Rotators und den

BNC-Stecker	1	2	3	4	5	6
Pin	13	14	9	10	11	3-6
Kanal	3 V+	3 V-	2 V+	2 V-	3 I+	–

Tabelle 3.1: Belegung des BNC-Probenhalters

dabei notwendigen Adaptern. Der Zusammenhang zwischen den Pins des Proben-trägers (siehe Abb. 3.5 a)) und der BNC-Stecker ist in Tab. 3.1 aufgeführt.

3.3 I/U-Charakterisierung von Tunnelkontakten

In diesem und dem nächsten Abschnitt werden die Vorgehensweise zur elektrischen Charakterisierung von Tunnelementen und die Eigenschaften des Messaufbaus vorgestellt.

Die erste durchzuführende Messung bei der Charakterisierung ist die Bestimmung des elektrischen Widerstands in Abhängigkeit von dem Magnetfeld. Aus dieser Messung lassen sich sowohl der TMR-Wert als auch die Magnetfeldbereiche bestimmen, in denen die beiden ferromagnetischen Elektroden parallel bzw. antiparallel magnetisiert sind, was für die nachfolgenden Messungen wichtig ist. Zwei typische Kurven sind in Abb. 3.6 aufgetragen, wobei es sich in Abb. 3.6 a) um eine selbst hergestellte Probe aus der Ratenreihe handelt und in Abb. 3.6 b) um eine Probe, die von der Arbeitsgruppe um Prof. Dr. Reiss in Bielefeld hergestellt wurde. Jeweils in blau dargestellt ist das Schaltverhalten des Tunnelements beim Durchfahren des Magnetfelds von negativen zu positiven Werten, die roten Kurven geben die umgekehrte Richtung an. Die Pfeile deuten die jeweiligen Magnetisierungsrichtungen der beiden ferromagnetischen Schichten an. Darüber hinaus zeigen die beiden Kurven die Eigenschaften von zwei unterschiedlichen Probensystemen: Die Messung an der Probe in Abb. 3.6 a) besitzt ein Schaltverhalten, welches symmetrisch zum angelegten Magnetfeld ist. Bei dieser Probe handelt es sich um ein sogenanntes *pseudo-spin-valve*-System, bei dem die voneinander verschiedenen Koerzitivfelder der beiden Elektroden durch Verwendung unterschiedlicher Schichtdicken realisiert werden. Um die Trennung der beiden Koerzitivfelder zu verbessern, wurde auf die

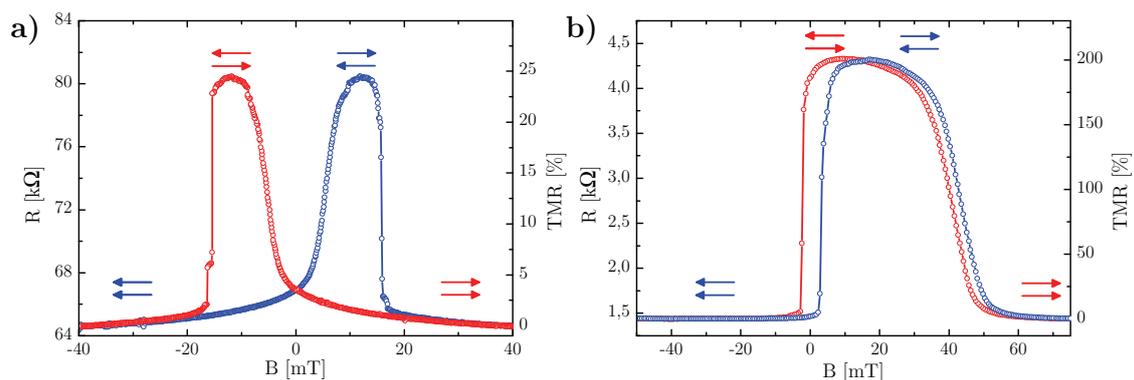


Abbildung 3.6: Widerstandsmessungen in Abhängigkeit von einem angelegten Magnetfeld: a) Messung an einer eigenen Probe, b) aus Bielefeld zur Verfügung gestellte Probe.

obere CoFeB-Elektrode außerdem Kobalt aufgedampft.

Das in der Bielefelder Probe verwendete Probensystem wird in der Literatur als *spin-valve* bezeichnet. In diesem Fall wird die Magnetisierungsrichtung der einen ferromagnetischen Schicht durch einen angrenzenden Antiferromagneten fixiert. Die Wechselwirkung mit dem Antiferromagneten führt dazu, dass die Hysteresekurve der einen ferromagnetischen Schicht entlang des Magnetfelds verschoben wird. Dieser Effekt wird *exchange bias* genannt. Die Konsequenzen sind in Abb. 3.6 b) zu sehen: Entlang der blauen Kurve schaltet die freie Schicht bei kleinen positiven Magnetfeldern. Zwischen 40 mT und 50 mT ändert dann auch die fixierte Schicht ihre Magnetisierungsrichtung. In umgekehrte Richtung schaltet diese aber schon wieder bei ca. 50 mT – aufgrund der zugehörigen, verschobenen Hysteresekurve – zurück. Die freie Schicht hingegen schaltet erst beim Erreichen von kleinen Magnetfeldern mit negativem Vorzeichen. Die TMR-Werte der in Abb. 3.6 gezeigten Messungen berechnen sich aus Gl. (2.35) und sind an den jeweils rechten Achsen angegeben.

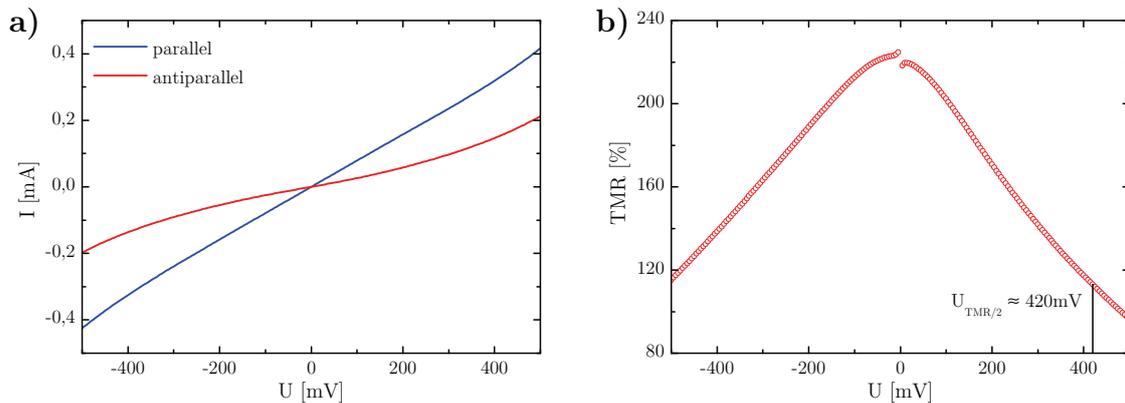


Abbildung 3.7: Kennlinien in parallelem und antiparallelem Zustand der Elektroden a), aus Kennlinien berechnete Spannungsabhängigkeit des TMR-Wertes b).

Nach der Widerstandsmessung bietet es sich an, die Kennlinie im Zustand parallel magnetisierter Elektroden bei etwas höheren Magnetfeldern zu messen. Abhängig vom Schaltverhalten der Tunnelelemente wird im Anschluss die Kennlinie in dem zugehörigen antiparallelen Zustand aufgenommen. Abb. 3.7 a) zeigt zwei an einer Bielefelder Probe gemessene Kennlinien. An dieser Probe wurde zuvor ein TMR von 220% gemessen, welcher sich auch gut in den sehr unterschiedlichen Kennlinien widerspiegelt. Auffällig ist, dass die Kennlinie des parallelen Zustands in dem betrachteten Spannungsbereich kaum den theoretischen Modellen aus Abb. 2.4(a) entspricht. Die Kennlinie des antiparallelen Zustands ist dagegen eher mit der Theorie vergleichbar und es kann versucht werden, das Brinkman-Modell anzupassen. Die zur Datenauswertung verwendete Formel entspricht Gl. (2.24) mit eingesetzten Werten der Konstanten, einer Möglichkeit die Elektronenmasse über den Faktor c

zu verändern und der Querschnittsfläche des Tunnelements A :

$$I = 3,16 \cdot 10^{10} \frac{\sqrt{c\varphi}}{d} \exp(-1,025\sqrt{c\varphi}d) \times \left(U - 0,02135 \frac{\sqrt{cd}\Delta\varphi}{\varphi^{3/2}} U^2 + 0,01094 \frac{cd^2}{\varphi} U^3 \right) A \cdot 10^{-5}, \quad (3.9)$$

mit I in mA, U in V, $\varphi, \Delta\varphi$ in eV, d in Å, A in $(\mu\text{m})^2$ und der effektiven Masse $m^* = cm_e$. Neben der Möglichkeit, Parameter der Barriere aus den Fits theoretischer Modelle an die Messdaten abzuschätzen, lässt sich aus den Kennlinien die Spannungsabhängigkeit des TMR berechnen: Durch Einsetzen des Ohmschen Gesetzes in die Definition des TMR-Wertes (Gl. (2.35)) erhält man:

$$\text{TMR}(U) = \left(\frac{I_P(U)}{I_{AP}(U)} - 1 \right) \cdot 100. \quad (3.10)$$

Die aus den Kennlinien im parallelen (I_P) und antiparallelen (I_{AP}) Zustand berechnete Spannungsabhängigkeit des TMR ist in Abb. 3.7 b) aufgetragen. Die Eigenschaft, dass der TMR im Bereich weniger Millivolt zunächst nur sehr wenig, bei höheren Spannungen dann aber stärker abfällt, wird sehr oft beobachtet und es finden sich in der Literatur auch Erklärungsversuche für dieses Verhalten, welches meist mit der Anregung von Magnonen in Verbindung gebracht wird [32; 51]. Eine Aussage über die Qualität der hergestellten Tunnelemente wird in der Literatur oft auch über die Angabe derjenigen Spannung gemacht, bei welcher der TMR auf die Hälfte seines Maximalwertes abgefallen ist (siehe z.B. [6; 26]). Für die gezeigte Messung ist dieser Wert eingezeichnet und beträgt in diesem Fall 420 mV. Um die Bestimmung der Barrierenparameter zu unterstützen und das Anfitzen des Brinkman-Modells zu erleichtern, kann aus den Kennlinien die logarithmische

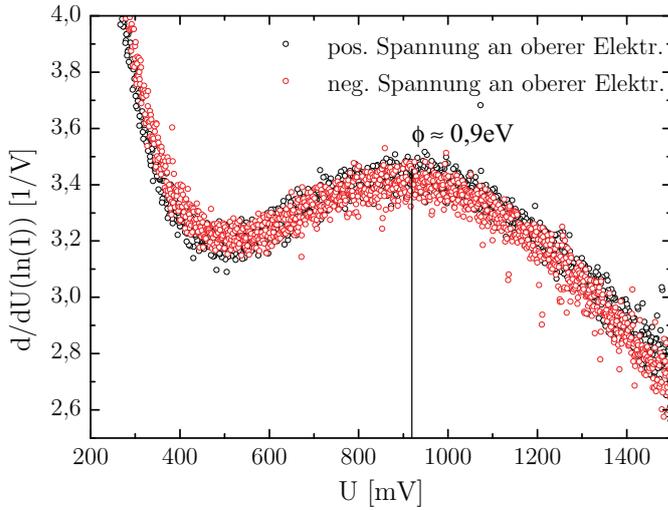


Abbildung 3.8: Aus den gemessenen Kennlinien berechnete logarithmische Leitfähigkeit in Abhängigkeit von der angelegten Spannung. Um eine mögliche Asymmetrie der Barriere sehen zu können, werden die Werte für positive und negative Spannung getrennt aufgetragen.

Leitfähigkeit berechnet werden. Wie in Abschn. 2.1.5 dargestellt, lassen sich die beiden Barrierenhöhen an den Grenzflächen der beiden Elektroden mit dem Isolator aus der Auftragung dieser Größe gegen die Spannung bestimmen. Um diese Auftragung zu erhalten, berechnet man für die Messwerte zunächst den natürlichen Logarithmus des Betrages der Stromstärke und leitet diese Funktion nach der Spannung numerisch ab. Abb. 3.8 zeigt eine aus Messwerten berechnete Kurve für die positive und die negative Spannungsrichtung. In diesem Fall ist für beide Richtungen ein Maximum bei 0,9 V auszumachen, sodass die Barrierenhöhe ca. 0,9 eV beträgt. Der Nachteil dieses Verfahrens liegt darin, dass größere Barrierenhöhen oft nicht bestimmt werden können, da es bei Tunnelementen bei Spannungen zwischen 1,5 V und 2 V zum dielektrischen Durchschlag kommt, welcher die Elemente zerstört [16; 43].

3.4 Tunnelspektroskopie

Die Probe, deren Kennlinien schon in Abb. 3.7 dargestellt wurden, diente auch zum Test der Spektroskopie-Mess-Schaltung an der Probestation. Um das korrekte Arbeiten der Schaltung zu überprüfen, wurden zunächst Zweipunkt-Widerstandsmessungen gemacht und mit denen verglichen, die lediglich mit dem Keithley 2400 aufgenommen wurden. Die Ergebnisse in Abb. 3.9 a) zeigen, dass die Messungen mit der Mess-Schaltung recht gut mit den Keithley 2400 Messungen übereinstimmen, dennoch wurde ein leicht niedrigerer TMR sowohl im absoluten als auch im differentiellen Widerstand gemessen. Darüber hinaus ist das Rauschen bei den Widerstandsmessungen mit der Mess-Schaltung etwas größer, sodass für diese Art von Messung die Verwendung des Keithley 2400 sinnvoller erscheint. Analog zur Vorgehensweise bei den Kennlinien wurden die ersten Ableitungen zuerst im parallelen Zustand und anschließend im antiparallelen Zustand gemessen. In Abb. 3.9 b) und c) werden die direkt gemessenen Ableitungen mit numerischen Ableitungen der mit dem Keithley 2400 aufgenommenen Kennlinien verglichen. Hier zeigt sich die Notwendigkeit, die Ableitungen experimentell zu bestimmen: Bei der Messung im parallelen Zustand (Abb. 3.9 b)) scheinen die diskreten Schritte der Messwerte bei der numerischen Ableitung zu Artefakten zu führen, die für die weitere Auswertung nicht akzeptabel sind. Die mit der Mess-Schaltung bestimmten Ableitungen dagegen zeigen kaum sichtbares Rauschen und auch verschiedene Messungen mit gleichen Parametern weichen nur minimal voneinander ab. Die bei einer Anregungsfrequenz von 387 Hz durchgeführte Messung weicht etwas stärker von den anderen ab, ein ähnliches Verhalten ließ sich bei der darauffolgenden Messung im antiparallelen Zustand jedoch nicht bestätigen. In Abb. 3.9 c) ist dagegen zu sehen, dass die experimentell bestimmten Ableitungen bei kleinen Spannungen etwas von der numerischen Ableitung abweichen, aber auch in diesem Fall ist die Qualität der direkten Messungen besser als die der numerischen Ableitung. Die von den theore-

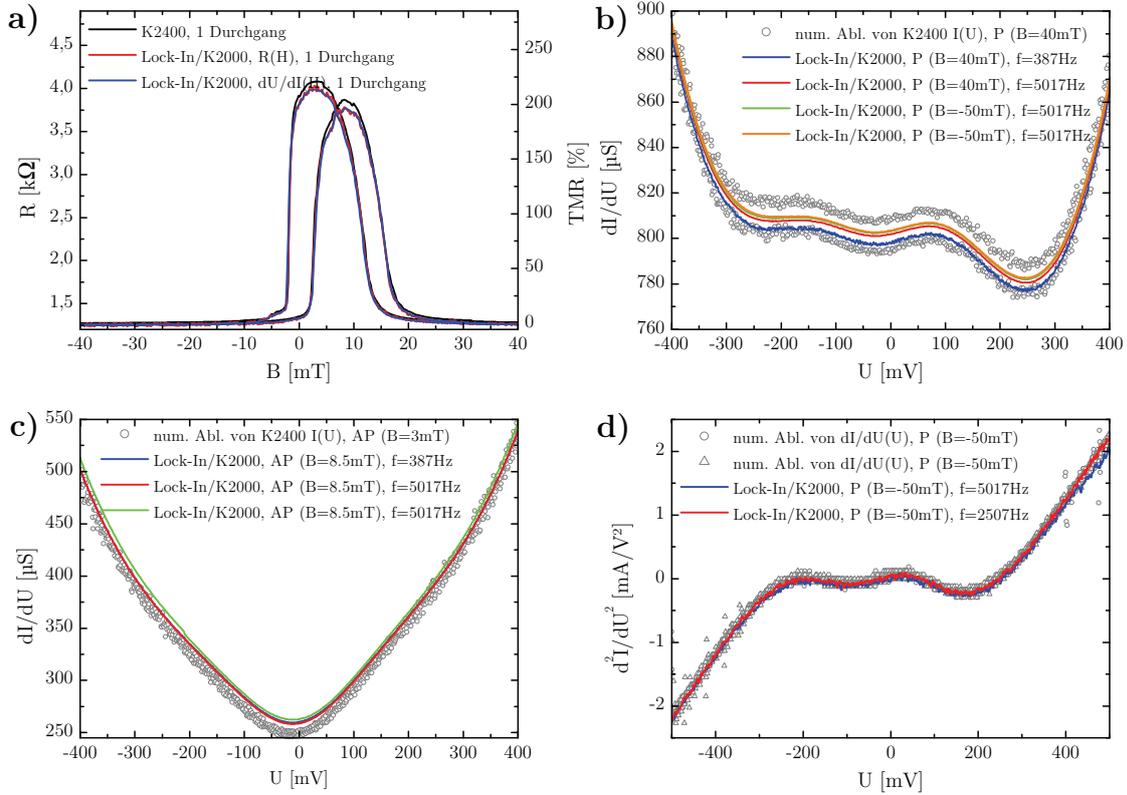


Abbildung 3.9: Verschiedene Messungen mit der Mess-Schaltung im Vergleich: a) Widerstandskurve; $dI/dU(U)$ im parallelen (b) und antiparallelen (c)) Zustand; d) Messung von $d^2I/dU^2(U)$.

tischen Modellen her zu erwartende parabolische Form der ersten Ableitung ist in Abb. 3.9 c) erkennbar, und die Messungen können mit der Ableitung von Gl. (3.9) angefitet werden. Mit dI/dU in A/V ergibt sich bei ansonsten gleichen Einheiten wie oben:

$$\begin{aligned} \frac{dI}{dU} &= 3,16 \cdot 10^{10} \frac{\sqrt{c\varphi}}{d} \exp(-1,025\sqrt{c\varphi}d) \\ &\times \left(1 - 0,04269 \frac{\sqrt{cd}\Delta\varphi}{\varphi^{3/2}} U + 0,0328 \frac{cd^2}{\varphi} U^2 \right) A \cdot 10^{-8}. \end{aligned} \quad (3.11)$$

Zwei direkte Messungen der zweiten Ableitung sind in Abb. 3.9 d) aufgetragen. Zum Vergleich sind zwei numerische Ableitungen der Messungen aus Abb. 3.9 b) aufgetragen. Auch hier weisen die direkten Messungen eine bessere Qualität auf und eine Abhängigkeit von der Anregungsfrequenz kann nicht festgestellt werden.

Für Tests am PPMS wurde freundlicherweise eine weitere Probe von Volker Drexwello aus Bielefeld zur Verfügung gestellt. Die Schwierigkeiten, die sich bei die-

sen Messungen ergaben, wurden bereits in den vorherigen Abschnitten erwähnt. Abb. 3.10 zeigt nun einen Vergleich von verschiedenen, am PPMS durchgeführten Messungen: Die numerische Ableitung einer $dI/dU(U)$ -Messung ist, wie bereits beschrieben, stark verrauscht. Durch die vorgenommene Glättung wird die Struktur des Spektrums allerdings gut sichtbar.

Die vor dem Umbau durchgeführte Messung ist in blau aufgetragen und zeigt ähnlich starkes Rauschen wie die numerische Ableitung, trotz einer Messzeit von fünf Stunden. Die Messung nach dem Umbau ist in rot aufgetragen und zeigt eine deutliche Verbesserung, ist sogar von der Rauschamplitude her mit der stark geglätteten numerischen Ableitung vergleichbar. Es sei darauf hingewiesen, dass die Anzahl der Messpunkte bei der blauen und der roten Kurve trotz der unterschiedlichen Messbereiche gleich ist, weil im letzteren Fall eine kleinere Schrittweite gewählt wurde. Die Qualität und die dafür benötigte Messdauer ist durchaus befriedigend. Darüber hinaus wurde die blaue Kurve bei einer Anregungsfrequenz von 2507 Hz und die rote Kurve bei 917 Hz aufgenommen, weil die Messung bei 2507 Hz nach dem Umbau aufgrund zu starker Dämpfung nicht mehr möglich war. Zur Wahrung der Übersicht wurde die rote Kurve in Abb. 3.10 etwas verschoben, normalerweise fällt sie mit der blauen Kurve zusammen. Bei dem Unterschied zwischen numerischer Ableitung und den direkt gemessenen d^2I/dU^2 -Signalen handelt es sich um einen Offset. Eine genauere Analyse der Daten ergab, dass auch am X-Ausgang des Lock-in-Verstärkers ein Signal vorlag, welches eine ähnliche Form wie die eigentliche Messung besaß. Es ist also zu vermuten, dass es an irgendeinem Punkt des Aufbaus zu einer Phasenverschiebung kommt (z.B. durch Kabelkapazitäten), die dazu führt, dass nicht das komplette Signal berücksichtigt wird. Die weitere Auswertung der Daten wird durch diesen Offset jedoch nicht weiter beeinflusst, da hierbei die Peakpositionen und -breiten eine wesentlich größere Rolle spielen (siehe auch Abschn. 4.3.2).

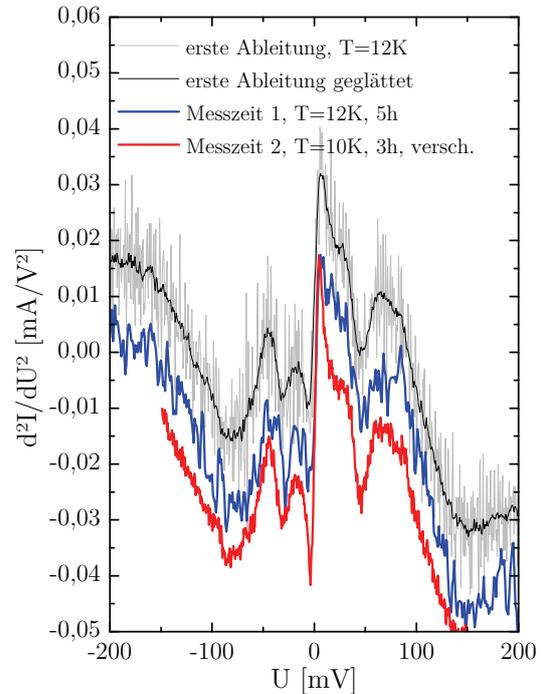


Abbildung 3.10: Vergleich von IETS-Messungen am PPMS: Gezeigt sind num. Ableitungen der ersten Ableitung, eine Messung vor (blau) und nach (rot) dem Umbau der Mess-Schaltung. Zum besseren Vergleich ist die rote Kurve verschoben worden.

4 Ergebnisse

4.1 Einfluss des Kontaktschichtsystems

Der Anfang dieses Abschnitts widmet sich einer kurzen Beschreibung der in den folgenden Abschnitten 4.1.1 und 4.2 verwendeten Kontaktschichten. Die Eigenschaften dieser Schichten, insbesondere des unteren Kontakts, sind für die Tunnelemente von großer Bedeutung, da die hier möglichen Schichtrauigkeiten zu einem schlechten Wachstum der Barriere und im schlimmsten Fall sogar zu einer nicht geschlossenen Barrierenschicht führen können. Zunächst wurden Tantal und Ruthenium als Materialien für die Kontaktschichten verwendet, welche üblicherweise in der Literatur gewählt werden, unter anderem, weil sie anscheinend keinen negativen Einfluss auf das Wachstum von CoFeB und dessen Kristallisation während der Temperung haben (siehe z.B. [20; 48]). Es stellte sich jedoch heraus, dass diese Materialkombination bei Elektronenstrahlverdampfen zu sehr rauen, polykristallinen Schichten führt, welche die Funktionstüchtigkeit der Tunnelemente erheblich einschränkt.

Die Verwendung von Palladium in der unteren Kontaktschicht verringerte zwar die Schichtrauigkeit, führte jedoch in Fällen, bei denen die Palladiumschicht direkt an die CoFeB-Schicht angrenzte, zu einer Diffusion des Palladiums bei der Temperung bis an die MgO-Grenzfläche und somit zu einer Beeinträchtigung des TMR-Effekts. In einer hier nicht näher beschriebenen Versuchsreihe wurde deshalb eine Material- und Schichtdickenkombination gesucht, die einerseits eine möglichst geringe Schichtrauigkeit aufweist und andererseits möglichst keine Diffusion der verwendeten Materialien zur Grenzfläche zwischen der CoFeB-Schicht und der MgO-Barriere zulässt. Das Ergebnis ist Abb. 4.1 zu entnehmen.

Die Schichtdicken der CoFeB-Elektroden, der MgO-Barriere und der oberen Co-Schicht wurden so gewählt, dass die Trennung der Koerzitivfelder der beiden magnetischen Schichten nach der Temperung ausreichend groß ist und der Widerstand der Tunnel-

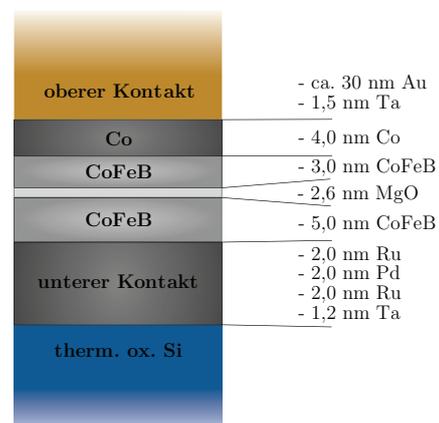


Abbildung 4.1: Zusammensetzung des Schichtstapels der Tunnelemente.

elemente im Bereich einiger $k\Omega$ liegt. Die Temperung der aufgedampften Schichten wurde nach der Aufbringung des Kobalt vorgenommen und der obere Kontakt erst nach dem Abkühlen hinzugefügt. Die genauen Daten der im Folgenden verwendeten Schichtstapel sind Abb. 4.1 zu entnehmen.

4.1.1 Variation der Probenposition

Um den Einfluss der CoFeB-Elektroden auf den TMR zu untersuchen, wurde in einer Versuchsreihe die Position der Probe in der Sputterkammer verändert. Wie bereits in Abschn. 3.1 beschrieben, wurde die Kalibrierung des Schwingquarzes für eine bestimmte Position vorgenommen. Die schnellste Möglichkeit, diesen Einfluss zu untersuchen, bot die Herstellung nominell identischer Proben bei Variation der Probenposition. Unter der Annahme, dass die Verteilung des gesputterten CoFeB in der Kammer nicht homogen ist, müsste die Positionsveränderung bei gleichbleibender Kalibrierung zu unterschiedlichen Schichtdicken führen. Um gleichzeitig die Reproduzierbarkeit der Proben zu testen, wurden die Probenpositionen so gewählt, dass eine gewisse Überlappung besteht. Die verwendeten Substrate hatten ein Format von ca. 1 cm Breite und ca. 2 cm Länge und füllten damit den bedampfbaren Bereich in der Elektronenstrahlverdampfer-Kammer komplett aus. Die Herstellung der Proben erfolgte wie in den Abschnitten 3.1 und 4.1 beschrieben. Da die Lithographiemaske auf Substratformate von 1 cm^2 ausgelegt ist, wurden die Proben vor dem Lithographieprozess möglichst mittig geteilt. Um die Position der einzelnen Tunnelemente möglichst genau bestimmen zu können, wurde bei der einen Probenhälfte die innere Kante des Maskenrahmens bündig mit dem Abdruck der Klammer des Probenhalters gesetzt, während bei der anderen Probenhälfte die Maske an der Bruchkante ausgerichtet wurde. Die Länge von der Klammer bis zur Bruchkante in der Probenmitte sowie die Länge von dieser Bruchkante bis zum

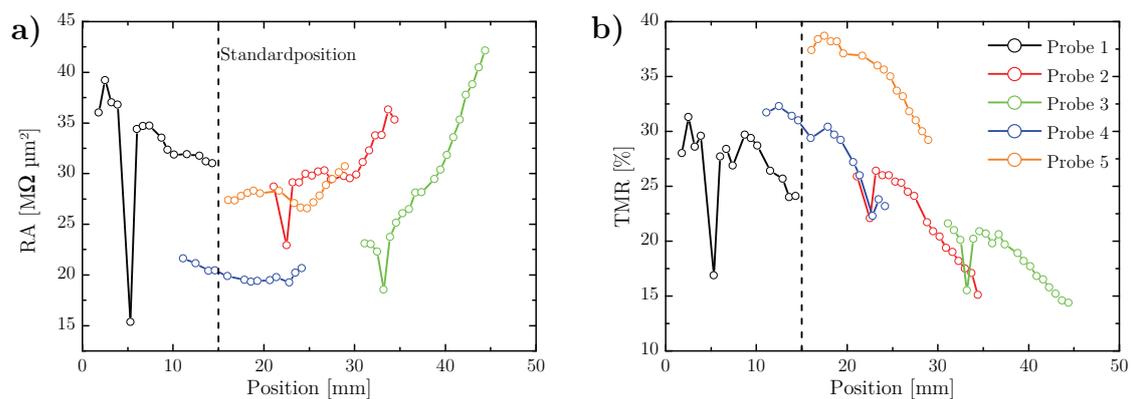


Abbildung 4.2: Eigenschaften der Tunnelemente in Abhängigkeit von der Position der Probe in der Sputterkammer: a) RA-Produkt, b) TMR-Werte.

ersten Tunnelement der zweiten Probenhälfte wurde mit dem Mikroskop ausgemessen. Die Abstände zwischen zwei Tunnelementen und zwischen Maskenrahmen und den Tunnelementen sind der Konstruktionszeichnung der Lithographiemaske zu entnehmen [45]. Die Position der einzelnen Tunnelemente relativ zur Probenposition ist somit mit einer Genauigkeit im Mikrometerbereich bekannt. Die Einstellung der Probenposition an der UHV-Anlage ist nicht mit dieser Genauigkeit möglich, sodass der Fehler der Probenposition in Abb. 4.2 mit ± 1 mm abgeschätzt werden kann. Die Herstellungsbedingungen wurden möglichst gleich gehalten und die Probenposition nicht linear verändert, sodass eine unbemerkte Verfälschung der Ergebnisse durch unbekannte Einflüsse ausgeschlossen sein sollte. An den Proben dieser Versuchsreihe wurden Widerstandsmessungen der Tunnelemente mit einer Kantenlänge von $30\ \mu\text{m}$ durchgeführt.

In Abb. 4.2 b) ist die Abhängigkeit des TMR von der Sputterposition aufgetragen. Eine nahezu lineare Abnahme des TMR mit steigender Probenposition ist sowohl bei jeder einzelnen Probe als auch über mehrere Proben hinweg, im Falle der blauen, roten und grünen Kurve, deutlich sichtbar. Im letzteren Fall nimmt der TMR sogar von ca. 32% bei einer Position von 12 mm bis auf einen Wert von weniger als 15% bei 45 mm ab und entspricht einer relativen Abnahme von über 50% des ursprünglich vorhandenen TMR-Wertes. Von den absoluten TMR-Werten her weichen die orange und schwarz eingezeichnete Kurve jedoch von den anderen Proben ab. Bei der schwarz eingezeichneten Kurve scheint der geringere TMR mit einer insgesamt schlechteren Qualität der Probe einherzugehen, was sich anhand der stärkeren Schwankung der TMR-Werte vermuten lässt.

Ein direkter Zusammenhang zwischen den TMR-Werten und den zugehörigen Produkten aus Widerstand und Querschnittsfläche (RA-Produkt) ist beim Vergleich von Abb. 4.2 a) und b) nicht erkennbar. Insbesondere sind die Abweichungen der schwarzen und orangenen Kurve hierdurch nicht zu erklären. Dennoch ist eine Positionsabhängigkeit des RA-Produktes zu erkennen: Ab einer Position bei ca. 20 mm steigt das RA-Produkt parabelartig mit zunehmender Position an, während die schwarze Kurve ebenfalls einen geringen Anstieg für Positionen < 10 mm mit abnehmender Probenposition erkennen lässt.

Vor der Diskussion der erhaltenen Ergebnisse sei noch auf die an den vollflächigen Proben durchgeführten MOKE-Messungen verwiesen. Die Messungen wurden sowohl nahe des Klammerabdrucks als auch am Ende jeder Probe gemacht und die Koerzitivfelder, nach Normierung der Hysterese, für die beiden magnetischen Schichten bestimmt. Da eine Zuordnung dieser Messungen zu bestimmten Tunnelementen auf der fertigen Probe experimentell nicht möglich war, wurden die Ergebnisse mit den Positionen des jeweils zweiten und vorletzten Tunnelements in Abb. 4.3 aufgetragen, um eine Idee zu bekommen, ob die Koerzitivfelder ebenfalls durch die Variation der Probenposition stark beeinflusst werden. Aus der Abbildung wird ersichtlich, dass die weiche magnetische Schicht in allen Fällen bei einem B-Feld von ca. 2 mT schaltet, wohingegen die Koerzitivfelder der har-

ten magnetischen Schicht von Probe zu Probe mitunter stark variieren. Ein eindeutiger Zusammenhang zwischen den Koerzitivfeldern und der Probenposition geht aus den MOKE-Messungen jedoch nicht hervor, allerdings ist sehr wohl ein Zusammenhang zwischen den Ergebnissen der TMR-Messungen und den bestimmten Koerzitivfeldern der magnetisch harten Schicht auszumachen. So beträgt beispielsweise das Koerzitivfeld der härteren Schicht bei der Probe 1 (in allen Graphen dieses Abschnitts in schwarz aufgetragen) lediglich 5 mT, und die geringe Trennung der Koerzitivfelder könnte in diesem Fall für die bereits erwähnten Schwankungen des TMR und die etwas geringeren TMR-Werte verantwortlich sein. Ebenso gehen die höheren TMR-Werte der Probe 5 (orange) mit größeren Koerzitivfeldern der härteren Schicht einher, und auch das Verhalten der Proben 4 (blau), 2 (rot) und 3 (grün) ist in den Abbildungen 4.2 b) und 4.3 gleichartig.

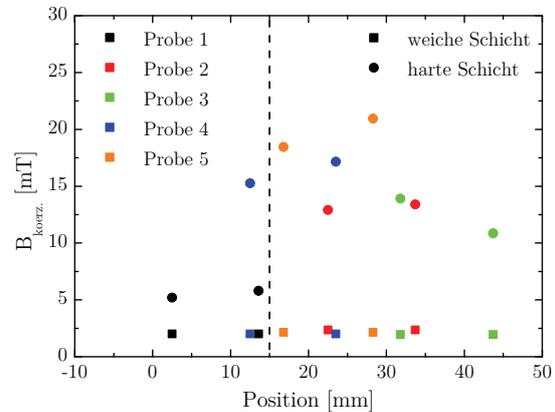


Abbildung 4.3: Aus MOKE-Messungen bestimmte Koerzitivfelder der Proben.

Aus den soeben vorgestellten Ergebnissen dieser Messreihe lässt sich schlussfolgern, dass die Beschaffenheit der magnetischen Elektroden einen durchaus starken Einfluss auf den Tunnelmagnetowiderstand hat und über die Position der Probe beim Aufputtern der CoFeB-Legierung variiert werden kann. Es wurde festgestellt, dass die TMR-Werte mit den Koerzitivfeldern der magnetisch harten Schicht in Zusammenhang gebracht werden können. Ob dieser Zusammenhang mit einer unterschiedlichen Schichtdicke der CoFeB-Elektroden allein zu erklären ist, bleibt fraglich, da die beiden „Ausreißer“ dadurch nicht zu verstehen sind. Die Abnahme des TMR mit zunehmender Position, d.h. zur Normalen der Sputterquelle hin, wurde jedoch in allen Proben beobachtet und könnte darauf hinweisen, dass die resultierenden Schichtdicken bei geringeren Probenpositionen zu besseren Ergebnissen führen. Aufgrund der experimentellen Vorgehensweise würde eine geringere Schichtdicke durch eine geringere Aufdampftrate zustande kommen, weil schließlich nominell immer die gleiche Schichtdicke bei gleicher Rate für die kalibrierte Standardposition aufgebracht wurde. Eine Änderung der Aufdampftrate könnte wiederum das Wachstum der CoFeB-Schichten beeinflussen und könnte z.B. zu einem nanokristallinen Wachstums an Stelle des amorphen führen. Wie in [50] beschrieben, kristallisiert CoFeB ohne angrenzende MgO-Schicht in kubisch-flächenzentrierter Struktur, während es bei der Temperung von CoFeB|MgO|CoFeB-Schichtstapeln zu einer Kristallisation in kubisch-raumzentrierter Struktur kommt, welche zur Kristallstruktur des kristallinen Magnesiumoxids passt. Eine Kristallisation der CoFeB-

Schichten beim Sputtern und vor der Temperung würde demnach die erhaltenen TMR-Werte herabsetzen, oder gar das korrekte Aufwachsen der MgO-Barriere in (001)-Richtung beeinträchtigen. Langwierige TEM-Untersuchungen der im Rahmen dieser Versuchsreihe entstandenen Proben konnten in dieser Diplomarbeit leider nicht durchgeführt werden, wären aber in Zukunft eine Möglichkeit, um den Grund für die TMR-Abhängigkeit von der Probenposition zu finden. Wie Abb. 4.3 zu entnehmen ist, ändert sich das Koerzitivfeld der magnetisch weichen Schicht nicht mit der Probenposition. Es wäre also auch denkbar, dass die Kombination aus einer CoFeB-Schicht variabler Dicke und einer gleichbleibenden Co-Schicht von 4 nm, welche nach der oberen CoFeB-Elektrode durch Elektronenstrahlverdampfen aufgebracht wurde, zu den beobachteten Ergebnissen führt. Deshalb wäre es wünschenswert, TMR-Elemente ohne diese obere Co-Schicht herzustellen, bislang ist es jedoch nicht gelungen die magnetische Separation der beiden CoFeB-Elektroden allein durch unterschiedliche Schichtdicken herbeizuführen.

4.2 Wachstum und Defekte: Einfluss der MgO-Barriere

Neben den magnetischen Elektroden hat auch die Isolatorbarriere, insbesondere bei der Verwendung von kristallinem MgO, einen erheblichen Einfluss auf den TMR-Effekt, wie bereits die im Theorieteil vorgestellten Modelle (siehe Abschn. 2.2.3) vermuten lassen. Dementsprechend werden im Folgenden zwei Versuchsreihen vorgestellt, bei denen die Wachstumsbedingungen der MgO-Barriere verändert wurden, um den Einfluss von Defekten in der Barriere auf den TMR-Effekt zu untersuchen. Abschn. 4.2.1 beschäftigt sich mit dem Einfluss unterschiedlicher Aufdampfzeiten auf die Eigenschaften der resultierenden MgO-Barriere. Da in der Literatur vermutet wird, dass Sauerstofffehlstellen zu einer starken Verminderung des TMR-Effekts führen können und sich auch auf die Transporteigenschaften der Tunnelelemente auswirken [26], wird in Abschnitt 4.2.2 eine weitere Versuchsreihe vorgestellt, bei der gezielt der Sauerstoffpartialdruck in der UHV-Kammer beobachtet und eingestellt wurde.

4.2.1 Variation der Aufdampfzeit von MgO

Die Proben dieser Versuchsreihe wurden ebenfalls wie in Abschn. 4.1 beschrieben hergestellt. Der einzige veränderte Parameter ist in dieser Reihe die Rate mit der das MgO aufgedampft wurde, ansonsten wurden die Bedingungen möglichst gleich gehalten. Die CoFeB-Elektroden wurden bei der Standardposition aufgesputtert, für welche der Schwingquarz kalibriert wurde. Analog zum vorherigen Abschnitt wurden die ca. 2 cm langen Substrate vor der Strukturierung in eine A- und eine B-Probe geteilt. Auf beiden Probenteilen wurden Widerstandsmessungen an

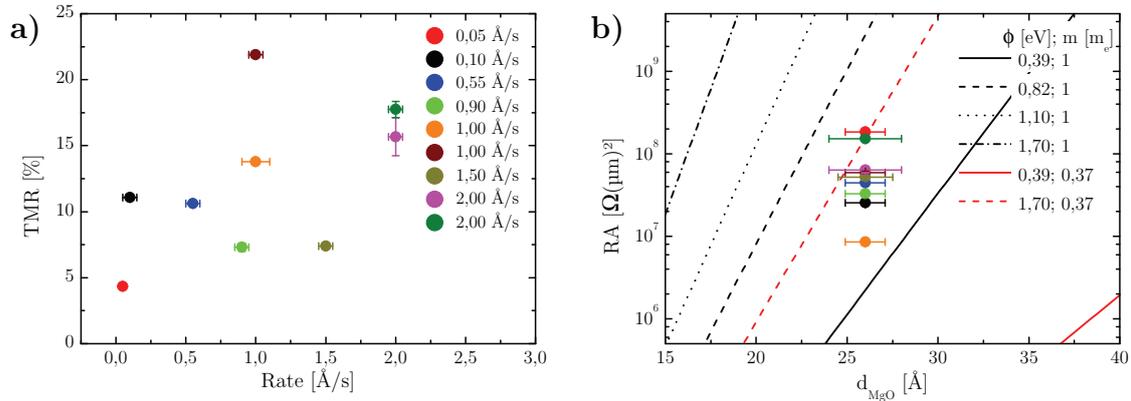


Abbildung 4.4: Einfluss der Aufdampfprate von MgO auf: a) den TMR und b) den Widerstand der Tunnelemente. Zudem ist in b) die nach dem Simmons-Modell zu erwartende Abhängigkeit des RA-Produktes für verschiedene Barrierenhöhen und effektive Elektronenmassen aufgetragen.

sämtlichen Elementen mit Kantenlängen von $30\ \mu\text{m}$ und $12,5\ \mu\text{m}$ durchgeführt und der TMR für jedes Element berechnet, wie in Abschn. 3.3 beschrieben. In fast allen Fällen waren die TMR-Werte der A Proben höher als die der B Proben, was mit der in Abschn. 4.1.1 beschriebenen Positionsabhängigkeit zusammenhängt. Die Unterschiede zwischen den $30\ \mu\text{m}$ und den $12,5\ \mu\text{m}$ Elementen liegen oft innerhalb der Fehlergrenzen. Um die Ergebnisse verschiedener Proben vergleichen zu können und Probenanteile mit größerer Streuung der TMR-Werte – und somit von geringerer Qualität – zu berücksichtigen, wurden gewichtete Mittelwerte aus den gesamten Daten gebildet. Der Fehler der Aufdampfprate wurde entsprechend der beim Experiment beobachteten Schwankungen abgeschätzt, sollte jedoch aufgrund der Anzeigegenauigkeit des Schwingquarzes mindestens $0,01\ \text{Å/s}$ betragen. Die auf diese Weise erhaltenen Ergebnisse sind in Abb. 4.4 a) aufgetragen. Die Schwankungen der TMR-Werte sind sehr groß und es ist lediglich ein leichter Trend zu größeren TMR-Werten mit zunehmender Aufdampfprate sichtbar. Betrachtet man jedoch die drei Proben bei einer Aufdampfprate von ca. $1,0\ \text{Å/s}$, so wird auch die Aussagekraft dieses Trends relativiert. Die Streuung der Ergebnisse legt nahe, dass ein anderer Faktor als die Aufdampfprate die erhaltenen Ergebnisse beeinflusst. Im Gegensatz zum vorherigen Abschnitt lässt sich die Streuung dieser drei Proben nicht durch unterschiedliche Koerzitivfelder der magnetisch harten Schicht erklären: Zwar variieren diese und betragen $14,5\ \text{mT}$ bei der Probe mit dem höchsten TMR und $10,8\ \text{mT}$ bei einer Probe mit 14% TMR, jedoch wurden bei der Probe mit den kleinsten TMR-Werten wiederum Koerzitivfelder von $14,6\ \text{mT}$ gemessen.

Mögliche Auswirkungen der unterschiedlichen Aufdampfpraten auf die Transporteigenschaften der Tunnelemente wurden durch die Aufnahme von $dI/dU(U)$ -Kurven untersucht. Zuvor lässt sich die zu erwartende Barrierenhöhe aus den gemess-

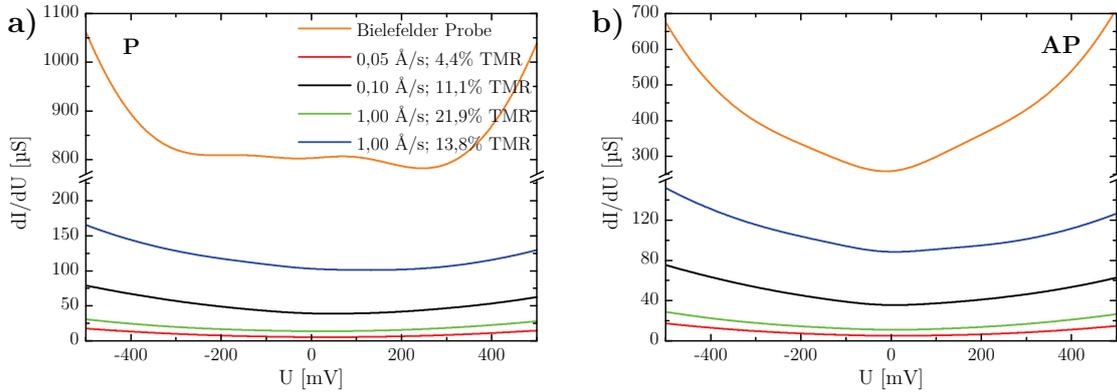


Abbildung 4.5: Messungen der differentiellen Leitfähigkeit $dI/dU(U)$ im parallelen Zustand a) und antiparallelen Zustand b). Zum Vergleich ist auch das Verhalten einer Probe aus Bielefeld mit ca. 220% TMR aufgetragen.

senen Widerständen der Proben bei bekannter Barrierendicke anhand des Simmons-Modells abschätzen: In Abb. 4.4 b) sind die RA-Produkte der Proben für die experimentell gewählte Barrierendicke aufgetragen, wobei der Fehler mit mindestens 0,5 Monolagen MgO (entspricht ca. 1,1 \AA) und bei höheren Aufdampfpraten mit der in einer Sekunde aufgedampften Schichtdicke abgeschätzt wurde, um im letzteren Fall die durch die manuelle Betätigung des Shutters entstehende Ungenauigkeit zu berücksichtigen. Außerdem sind in der logarithmischen Auftragung die Verläufe des RA-Produktes mit der Schichtdicke im Simmons-Modell nach Gl. (2.21) für verschiedene in der Literatur zu findende Barrierenhöhen und effektive Massen aufgetragen (siehe z.B. [33; 49]). Nach dieser Abbildung wäre unter der Annahme, dass die effektive Masse des Elektrons der Ruhemasse gleicht, eine Barrierenhöhe zwischen 0,39 eV und 0,82 eV zu vermuten. Verwendet man dagegen eine effektive Masse von $0,37m_e$, wie von Butler et al. angegeben [4], so wäre die resultierende Barrierenhöhe > 1 eV.

Die Ergebnisse der Ableitungsmessungen zeigt Abb. 4.5. Besonders für die Proben mit höherem TMR (grün und blau) ist der Unterschied in den differentiellen Leitwerten zwischen der parallelen Magnetisierung der Elektroden (Abb. 4.5 a)) und der antiparallelen Magnetisierung (Abb. 4.5 b)) gut sichtbar. Ein Zusammenhang zwischen den differentiellen Leitwerten und der Aufdampfprate oder – im Vergleich mit Abb. 4.4 a) – dem TMR scheint jedoch nicht zu bestehen. Zum Vergleich sind in der Abbildung die bereits in Abb. 3.9 verwendeten Kurven einer Probe aus Bielefeld mit 220% TMR aufgetragen. Die ungleich höhere differentielle Leitfähigkeit resultiert hierbei aus der geringeren Barrierendicke der Bielefelder Probe von lediglich 21 \AA . Abb. 4.5 veranschaulicht, dass schon geringe Änderungen in der Barrierendicke dazu führen, dass die Form und Spannungsabhängigkeit der Ableitungsmessungen aufgrund der unterschiedlichen Leitwerte nur schwer miteinander verglichen wer-

den können. Dem Vorgehen von Brinkman und Mitarbeitern bei der Vorstellung ihres theoretischen Modells [3] folgend, wurden die dI/dU -Kurven auf den Wert bei $U = 0$ mV normiert und sind in Abb. 4.6 abgebildet. In dieser Auftragung lässt sich sehr schön die im Theorieteil beschriebene parabelähnliche Form der Kurven erkennen. Aus der Abbildung geht außerdem die Barrierenasymmetrie der hergestellten Proben durch die Verschiebung des Minimums des differentiellen Leitwertes hervor und ist besonders gut bei den in schwarz und blau aufgetragenen Proben sichtbar. Die ebenfalls eingezeichneten Messungen an der Bielefelder Probe zeigen deutliche Abweichungen von der Parabelform – im parallelen wie im antiparallelen Zustand. Besonders die geringen Änderungen bei Spannungen < 300 mV werden in der Literatur bei Proben mit hohen TMR-Werten, bei denen kohärentes Tunneln vermutet wird, beobachtet [26]. Ein Zusammenhang zwischen Aufdampfrate oder TMR und der Form der Ableitungskurven ist jedoch nicht ersichtlich, was auch durch Fits des Brinkman-Modells an die unnormierten Kurven unterstützt wird. Die Ergebnisse der Brinkman-Fits an die Ableitungsmessungen bei parallel magnetisierten Elektroden sind in Tab. 4.1 aufgeführt und weisen z.T. sehr unterschiedliche Barrierenhöhen auf. Die großen Asymmetrien $\Delta\varphi$ der Fits, sind aufgrund der Kurvenformen in Abb. 4.6 nachvollziehbar. Die durch das Experiment vorgegebene Barrierendicke wird in vielen Fällen durch das Brinkman-Modell nicht korrekt wiedergegeben, eine genauere Diskussion dazu findet sich in Abschn. 4.2.2. Es sei an dieser Stelle auch angemerkt, dass Barrierenhöhen > 2 eV für MgO-Barrieren eher ungewöhnlich sind und den Barrierenhöhen von amorphen Al_2O_3 -Barrieren entsprechen. Darüber hinaus liegen diese auch oberhalb der in Abb. 4.4 b) gemachten Abschätzungen.

Die Ergebnisse dieses Abschnitts zusammenfassend lässt sich sagen, dass die Aufdampfrate von MgO auf den TMR und die Transporteigenschaften zumindest kei-

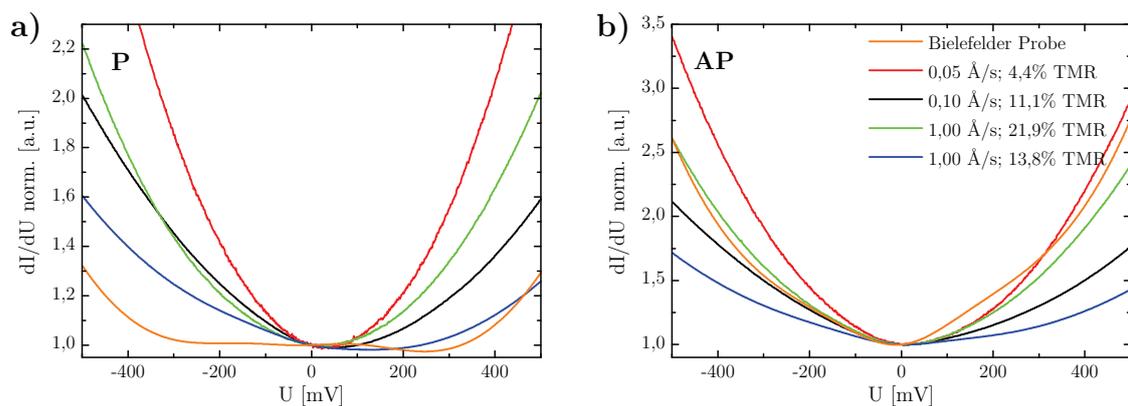


Abbildung 4.6: Differentielle Leitfähigkeit, normiert auf den Wert bei $U = 0$ mV: a) paralleler und b) antiparalleler Zustand.

Probe	Element	$m^* [m_e]$	φ [eV]	$\Delta\varphi$ [eV]	d_{fit} [Å]	TMR [%]
ge080714c, 0,10 Å/s	R1E07	0,37	1,90	1,395	22,6	11
		0,50	1,92	1,398	19,6	
		1,00	2,03	1,460	14,0	
	R1E09	0,37	2,43	1,892	20,3	12
		0,50	2,35	1,811	18,0	
		1,00	2,58	1,966	12,6	
ku080730, 0,05 Å/s	R1E09	0,37	1,30	1,009	29,4	5,6
		0,50	1,31	1,011	25,6	
		1,00	1,35	1,028	18,4	
	R1E10	0,37	1,31	0,879	29,3	5,2
		0,50	1,27	0,864	26,0	
		1,00	1,37	0,898	18,3	
mw080730, 1,00 Å/s	R1E03	0,37	1,83	0,514	23,8	21,2
		0,50	1,86	0,519	20,6	
		1,00	1,93	0,528	14,8	
	R1E09	0,37	1,70	0,471	25,0	24,2
		0,50	1,72	0,474	21,7	
		1,00	1,78	0,482	15,6	
mw080811, 1,00 Å/s	R1E05	0,37	2,42	1,731	19,3	15,5
		0,50	2,46	1,746	16,8	
		1,00	2,54	1,775	12,1	

Tabelle 4.1: Ergebnisse der Brinkman-Fits für ausgewählte Proben der Ratenreihe nach Gl. (3.11). Die Querschnittsfläche von 900 μm und die effektive Masse wurden bei dem Fit fixiert. Rot markiert sind die Fits mit Schichtdicken nahe der experimentellen von 26 Å.

nen alleinigen Einfluss hat. Aufgrund der Streuung der TMR-Werte bei den im Rahmen dieser Versuchsreihe hergestellten Proben lässt sich ein solcher Einfluss aber auch nicht komplett ausschließen.

4.2.2 Einfluss des Sauerstoffpartialdrucks

Auch in dieser Reihe wurden Proben mit der bereits beschriebenen Zusammensetzung hergestellt. Im Gegensatz zu der vorherigen Versuchsreihe wurde hier der sich mit der Aufdampfrate ändernde Sauerstoffpartialdruck in der UHV-Kammer gezielt eingestellt, um den Einfluss von Sauerstoff-Fehlstellen im MgO untersuchen zu können. Der Sauerstoffpartialdruck wurde während des MgO-Wachstums mit dem in der Elektronenstrahlverdampfer-Kammer befindlichen Massenspektrometer beobachtet und notiert. Die Variationsmöglichkeiten sind beim derzeitigen Aufbau der UHV-Anlage dadurch begrenzt, dass der Sauerstoffpartialdruck und die MgO-

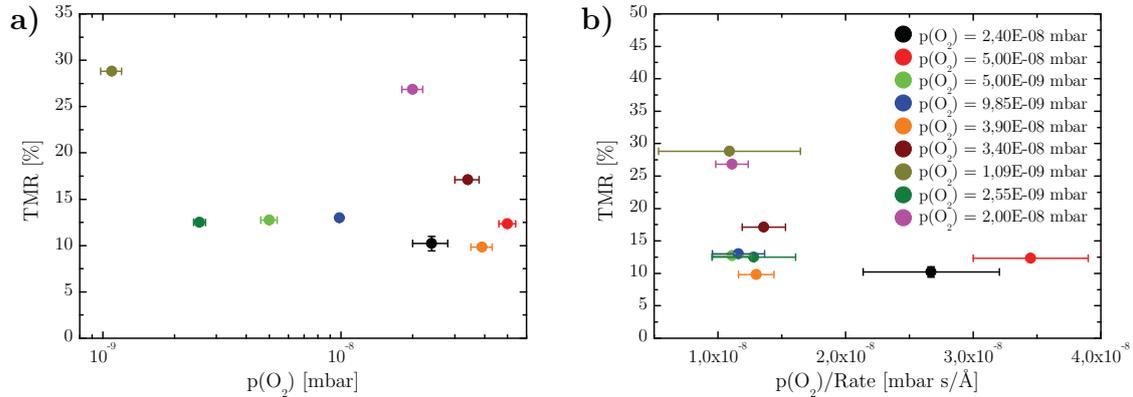


Abbildung 4.7: Abhängigkeit des TMR vom Sauerstoffpartialdruck a) und vom Quotienten aus Sauerstoffpartialdruck und Aufdampfrate b).

Aufdampfrate nicht getrennt voneinander eingestellt werden können. Wie auch in den vorherigen Messreihen wurde versucht, die Herstellungsbedingungen möglichst gleich zu halten.

Bei der Probencharakterisierung wurde analog zum vorherigen Abschnitt vorgegangen. Die Fehlerabschätzung des Sauerstoffpartialdrucks resultiert aus den beobachteten Schwankungen während des Wachstums. Die gewichteten Mittelwerte des TMR sind für jede Probe in Abb. 4.7 a) zunächst gegen den zugehörigen Sauerstoffpartialdruck aufgetragen. Der Grafik ist zu entnehmen, dass keine Abhängigkeit des TMR von dem Sauerstoffpartialdruck zu existieren scheint, denn die meisten Proben besitzen einen TMR zwischen 10% und 15%. Die Streuung der verschiedenen Proben nimmt offensichtlich mit steigendem Sauerstoffpartialdruck zu. Bei den in ocker und rosa aufgetragenen Proben scheint es sich um „Ausreißer“ zu handeln, welche einen nahezu doppelt so großen TMR wie der Rest der Proben aufweisen. Allein die Koerzitivfelder können die höheren TMR-Werte dieser beiden Proben nicht erklären. So sind zwar die Koerzitivfelder der magnetisch harten Schicht der beiden Proben mit hohen TMR-Werten mit ca. 13 mT (ocker) und ca. 18,6 mT (rosa) höher als beispielsweise bei der blau eingezeichneten Probe, bei der die magnetisch harte Schicht ein Koerzitivfeld von nur 11,3 mT besitzt und welche nur einen TMR von weniger als 15% zeigt, jedoch tritt der höchste TMR bei der in ocker aufgetragenen Probe auf, obwohl diese nicht das größte Koerzitivfeld besitzt.

Wie bereits erwähnt, wurde mit dem Sauerstoffpartialdruck auch die Aufdampfrate verändert, sodass die Herstellung der MgO-Barrieren bei höheren Partialdrücken mit einer höheren Aufdampfrate verbunden war und somit kürzer dauert als die Herstellung der Proben bei niedrigen Partialdrücken. Um diesen Unterschied zu berücksichtigen, ist in Abb. 4.7 b) der TMR gegen den Quotienten aus Sauerstoffpartialdruck und der Aufdampfrate aufgetragen. Die eingetragenen Fehler wurden

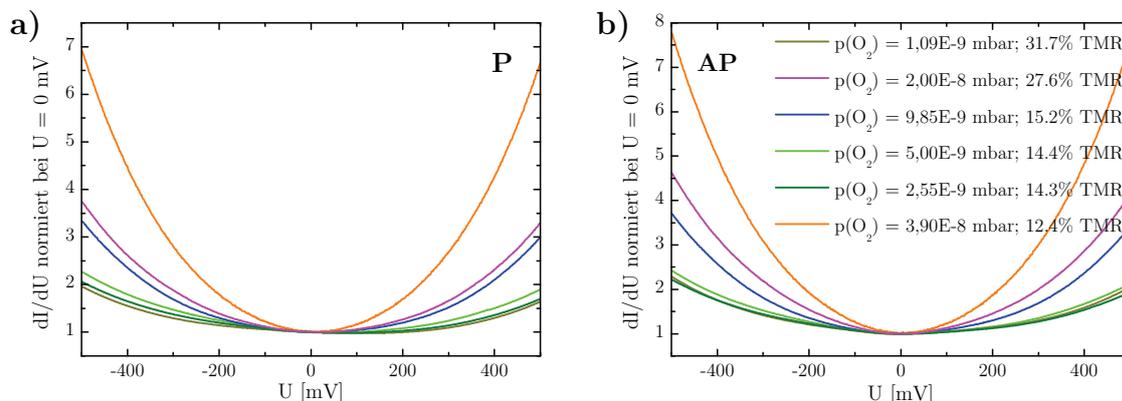


Abbildung 4.8: Bei $U = 0$ mV normierte differentielle Leitfähigkeit für verschiedene Sauerstoffpartialdrücke: a) paralleler und b) antiparalleler Zustand.

aus den beobachteten Schwankungen von Rate und Partialdruck über Fehlerfortpflanzung berechnet. In dieser Auftragung ist gut zu erkennen, dass der Quotient bei fast allen Proben einen sehr ähnlichen Wert annimmt und die Unterschiede bei einem Großteil der Proben innerhalb der Fehlergrenzen liegen. Bei den schwarz und rot eingezeichneten Proben ist der Quotient allerdings weitaus größer als bei allen anderen Proben und hängt mit einem höheren Sauerstoffpartialdruck beim Aufdampfen zusammen. Es ist anzumerken, dass zwischen der Herstellung dieser beiden Proben und dem Rest der Reihe die UHV-Anlage geöffnet werden musste, um Materialien auszutauschen. Dieser Umstand könnte zu den beobachteten Abweichungen führen und die Vergleichbarkeit dieser Proben mit dem Rest der Versuchsreihe ist anzuzweifeln, weshalb die soeben erwähnten Proben bei der Analyse der Transporteigenschaften nicht weiter betrachtet werden.

Von den hergestellten Proben wurden zur Transportcharakterisierung an ausgewählten Tunnelementen Messungen des differentiellen Leitwerts durchgeführt. Die Form der Kurven lässt sich auch in diesem Fall besser nach einer Normierung bei $U = 0$ mV vergleichen. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.8 a) und b) für den parallelen bzw. antiparallelen Zustand aufgetragen, in der Legende der Abbildung sind auch die TMR-Werte der gemessenen Elemente vermerkt. Trotz einer nicht festzustellenden TMR-Abhängigkeit ist in dieser Abbildung sehr schön zu erkennen, dass der Sauerstoffpartialdruck einen Einfluss auf die Transporteigenschaften der Tunnelemente zu haben scheint: Sowohl im parallelen als auch im antiparallelen Zustand nimmt die Spannungsabhängigkeit des differentiellen Leitwerts mit steigendem Sauerstoffpartialdruck zu. Die einzige Ausnahme bildet die Reihung der bei $1,09 \cdot 10^{-9}$ mbar und $2,55 \cdot 10^{-9}$ mbar hergestellten Proben im antiparallelen Zustand, allerdings liegen die Kurven der beiden Proben sehr dicht beieinander.

Bei einer Untersuchung der Wachstumsbedingungen in epitaktischen Fe|MgO|Fe-

Proben fanden G. X. Miao et al. heraus, dass ein Wachstum der MgO-Barriere bei 180° C zu einem weitaus höheren TMR, einem niedrigeren Widerstand und einer nahezu ohmschen Kennlinie im parallelen Zustand führt im Gegensatz zu MgO-Barrieren, die bei Raumtemperatur aufgedampft wurden [26]. In dieser Veröffentlichung wurden diese Effekte in Zusammenhang mit Sauerstofffehlstellen in der Barriere gebracht und ein Modell vorgeschlagen, in dem die Sauerstofffehlstellen eine Streuung der Elektronen aus dem kohärenten Tunnelkanal heraus in einen inkohärenten Kanal verursachen, welcher sich u.A. durch stark spannungsabhängige differentielle Leitwerte im parallelen sowie antiparallelen Zustand auszeichnet. Aufgrund eines fehlenden Zusammenhangs zwischen TMR und Sauerstoffpartialdruck in der vorliegenden Messreihe lässt sich das Modell nicht direkt testen. Dennoch lassen sich anhand der genannten Veröffentlichung Vermutungen über das Zustandekommen der zuvor beschriebenen Messungen machen. Eine eindeutige Abhängigkeit des Widerstandes der Tunnelelemente von dem Sauerstoffpartialdruck ist nicht auszumachen, und der leichte Anstieg

von RA in Abb. 4.9 mit zunehmendem Sauerstoffpartialdruck geht mit einer zunehmenden Streuung einher, sodass diese Zunahme unter Umständen durch die steigende Ungenauigkeit der Barrierendicke aufgrund der höheren Aufdampftrate bei größeren Partialdrücken hervorgerufen worden sein kann. Eine stärkere Spannungsabhängigkeit der differentiellen Leitfähigkeit ist laut [26] ebenfalls ein Indiz für eine schlechtere Barrierenqualität aufgrund von Sauerstoff-Fehlstellen. Für die hier vorgestellte Messreihe würde das bedeuten, dass gerade die Proben, bei denen die Barriere mit hohen Aufdampfraten und Sauerstoffpartialdrücken hergestellt wurde, mehr Sauerstofffehlstellen aufweisen. Demnach wäre es also möglich, dass bei höheren Aufdampfraten und folglich höherer Leistung des Elektronenstrahlverdampfers das dort befindliche MgO nicht mehr stöchiometrisch auf der Probe ankommt, dort mehr Magnesium als Sauerstoff eingebaut wird und der freiwerdende Sauerstoff den Partialdruck in der UHV-Kammer erhöht. Bei einer zukünftigen Messreihe könnte also, dem Experiment von Miao et al. folgend, untersucht werden, ob eine höhere Substrattemperatur den Sauerstoffeinbau in die Barriere tatsächlich begünstigt und die Fehlstellen über die beiden Parameter Sauerstoffpartialdruck und Substrattemperatur noch besser zu kontrollieren sind.

Um die Abhängigkeit der Form der Ableitungen vom Sauerstoffpartialdruck wei-

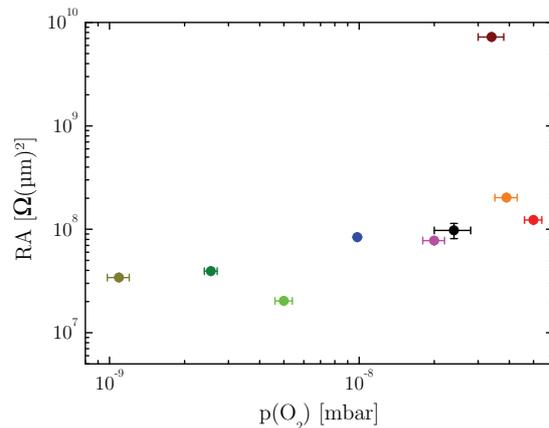


Abbildung 4.9: Auftragung des RA-Produktes der Tunnelelemente gegen den Sauerstoffpartialdruck.

ter zu untersuchen, wurde an die nicht normierten Messungen jeder Probe wieder das Brinkman-Modell angefitet. Bei den Fits wurden, wie im vorherigen Abschnitt, verschiedene effektive Massen verwendet, für die einzelnen Fits jedoch fixiert. Die Querschnittsfläche der Tunnелеlemente beträgt auch hier $900 (\mu\text{m})^2$ und wurde in Gl. (3.11) eingesetzt. Die Ergebnisse der Fits sind in Abb. 4.10 a) und b) für im parallelen bzw. antiparallelen Zustand aufgenommene Ableitungsmessungen gezeigt. Generell ist auch hier zu beobachten, dass die erhaltenen Barrierenhöhen in vielen Fällen weitaus größer sind als die in der Literatur verbreiteten Barrierenhöhen von 0,39 eV bis 1,1 eV. Wie im vorherigen Abschnitt bereits bemerkt wurde, entsprechen auch die aus den Fits hervorgehenden Barrierendicken kaum dem eigentlich durch die Präparation vorgegebenen Wert. Der Einfluss des Sauerstoffpartialdrucks ist jedoch auch in den Fitergebnissen sichtbar und führt hier zu großen Barrierenhöhen bei zu kleiner Barrierendicke im Fall von niedrigen Partialdrücken und zu niedrigeren Barrierenhöhen < 1 eV in Kombination mit größeren Barrierendi-

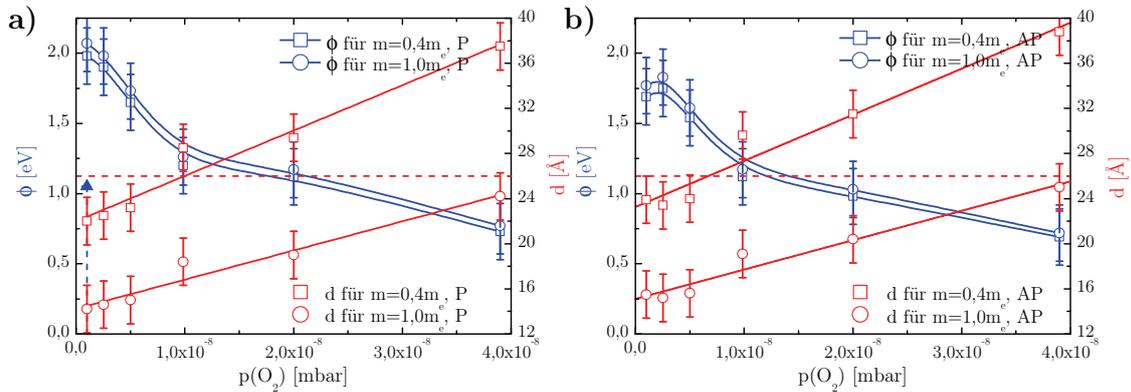


Abbildung 4.10: Ergebnisse der Brinkman-Fits (Gl. (2.24)) in Abhängigkeit vom Sauerstoffpartialdruck für den parallelen Zustand a) und den antiparallelen Zustand b). Eingezeichnet ist auch die im Experiment aufgedampfte Schichtdicke (rote, gestrichelte Linie) und für eine Probe die aus der logarithmischen Leitfähigkeit erhaltene Barrierenhöhe (blaues Dreieck mit gestrichelten Linien). Die Fehler sind abgeschätzt und die Linien sind zur Verdeutlichung des Verlaufs eingezeichnet.

cken bei hohen Partialdrücken. Da im Brinkman-Modell die beiden Parameter jeweils zusammen in Quotienten oder Produkten stehen, ist bei der Interpretation der Ergebnisse Vorsicht geboten. Aus diesem Grund wurden bei dieser Messreihe zusätzlich die Durchschlagsspannung untersucht und anschließend Kennlinien bis zu einer möglichst hohen Spannung aufgenommen. Diese Kennlinien wurden dann im Rahmen des Modells von Gundlach und Hölzl (Abschn. 2.1.5) durch Berechnung der logarithmischen Leitfähigkeit untersucht. Die Durchschlagsspannungen lagen bei den betrachteten Proben zwischen 1,2 V und 2,4 V und sind mit in der Literatur zu findenden Werten vergleichbar [16]. Entsprechend dieser Ergebnisse

waren Kennlinienmessungen bis maximal 1,5 V möglich ohne einen dielektrischen Durchschlag zu riskieren. Die hier nicht gezeigten Auftragungen der logarithmischen Leitfähigkeit zeigten in diesem Spannungsbereich lediglich in einem Fall ein Maximum, sodass diese Messungen Barrierenhöhen größer als ca. 1,2 eV nahelegen. Für die bei $p(\text{O}_2) = 1,09 \cdot 10^{-9}$ mbar hergestellte Probe war aus den Auftragungen der logarithmischen Leitfähigkeit eine mittlere Barrierenhöhe von $\bar{\varphi} = 1,05$ eV und eine Asymmetrie von $\Delta\varphi = 0,03$ eV abzulesen. Dieses Ergebnis ist ebenfalls in Abb. 4.10 a) eingezeichnet und steht im Widerspruch zu den aus Fits des Brinkman-Modells erhaltenen Barrierenhöhen.

Während das Brinkman-Modell, wie in Abschn. 2.1.4 beschrieben, bei amorphen Al_2O_3 -Barrieren anwendbar zu sein scheint und physikalisch sinnvolle Ergebnisse liefert, ist die Anwendbarkeit bei MgO-Barrieren fraglich. Ähnliche Beobachtungen wurden von Matsumoto et al. [23] und Miller et al. [27] bei der Untersuchung von CoFeB|MgO|CoFeB-Tunnelementen gemacht. In beiden Fällen lieferten die Fits der WKB-Modelle zu kleine Werte für die Barrierendicke, ähnlich den Ergebnissen der letzten beiden Abschnitte dieser Diplomarbeit, insbesondere bei Verwendung der Ruhemasse des Elektrons. In der letztgenannten Veröffentlichung wird eine Erweiterung des Brinkman-Modells vorgeschlagen, welche die Berücksichtigung einer Rauigkeit der Grenzfläche zwischen Elektrode und Barriere zulässt. Aus den Gleichungen (2.20) und (2.24) geht hervor, dass die Stromdichte exponentiell mit der Barrierendicke zusammenhängt und eine stellenweise dünnere Barriere aufgrund von Schichtraugigkeit zu einer entsprechenden Gewichtung im Tunnelstrom führt. Miller et al. konnten in ihrer Veröffentlichung zeigen, dass die Berücksichtigung der Schichtraugigkeit die Anwendbarkeit des Brinkman-Modells bezüglich der resultierenden Schichtdicken verbessert. An dieser Stelle sei auch angemerkt, dass in der genannten Veröffentlichung die aktuellen Schwierigkeiten der physikalischen Interpretation von Barrierenhöhen aus Kennlinienmessungen thematisiert werden.

4.3 Transportcharakterisierung von Proben mit hohem Tunnelmagnetowiderstand

Den Abschluss dieses Kapitels bildet die Vorstellung und Analyse der am PPMS durchgeführten Messungen an einer Probe aus Bielefeld, welche TMR-Werte bis zu 220% zeigt. In diesem Rahmen werden in Abschn. 4.3.1 zunächst die Widerstands- und Kennlinienmessungen besprochen, bevor in Abschn. 4.3.2 die aufgenommenen Spektren näher untersucht werden.

Bei der gemessenen Probe handelt es sich um ein *spin-valve*-System mit dem folgenden Schichtstapel (Angaben in nm): Substrat / Ta 5 / Ru 40 / Ta 5 / CoFeB 2.5 / MgO 2.1 / CoFeB 2.5 / Ru 0.88 / CoFe 6 / MnIr 9 / Ru 40. Die Probe wurde bei 400° C eine Stunde lang in einem Magnetfeld von 6500 Oe ausgelagert.

4.3.1 Tunnelmagnetowiderstand und I/U-Kennlinien

Um die Spektroskopiemessungen sowohl bei parallel als auch bei antiparallel magnetisierten CoFeB-Elektroden durchführen zu können, wurden zuerst Widerstandsmessungen mit dem Keithley 2400 bei Raumtemperatur und bei 4,2 K gemacht, wobei der Messvorgang wie in Abschn. 3.2.4 beschrieben erfolgte. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.11 b) aufgetragen und zeigen nur eine geringfügige magnetische Separation. Der Magnetfeldbereich des antiparallelen Zustands ist für eine spin-valve-Probe schon bei Raumtemperatur ziemlich schmal und verschwindet bei $T = 4,2$ K komplett, sodass temperaturabhängige TMR-Messungen an dieser Probe leider nicht möglich sind. Die Spektroskopiemessungen wurden bei Magnetfeldern von mehr als 300 mT für den parallelen Zustand durchgeführt, während die Messungen im mehr oder weniger antiparallelen Zustand bei einem Magnetfeld von $-0,4$ mT durchgeführt wurden. Im Folgenden wird dieser Zustand der Einfachheit halber trotzdem als antiparallel bezeichnet.

Zur Bestimmung der Barrierenhöhe, welche sich aufgrund der Form der Kennlinien und der dI/dU -Messungen (siehe z.B. Abb. 4.16 a) und b)) nicht durch Fits des Brinkman- oder Simmons-Modells bestimmen lässt, wurden Kennlinien bei verschiedenen Temperaturen aufgenommen. In der Veröffentlichung zur Temperaturabhängigkeit des Tunnelstroms stellt Simmons bei der Analyse seines theoretischen Modells fest, dass die Auftragung der normierten Differenz der Stromdichten bei verschiedenen Temperaturen,

$$\Delta J = \frac{J(U, T_1) - J(U, T_2)}{J(U, T_2)}, \quad \text{für } T_1 > T_2, \quad (4.1)$$

gegen die Spannung ein Maximum bei derjenigen Spannung (in Volt) liefert, welche der Barrierenhöhe (in eV) entspricht [38; 47].

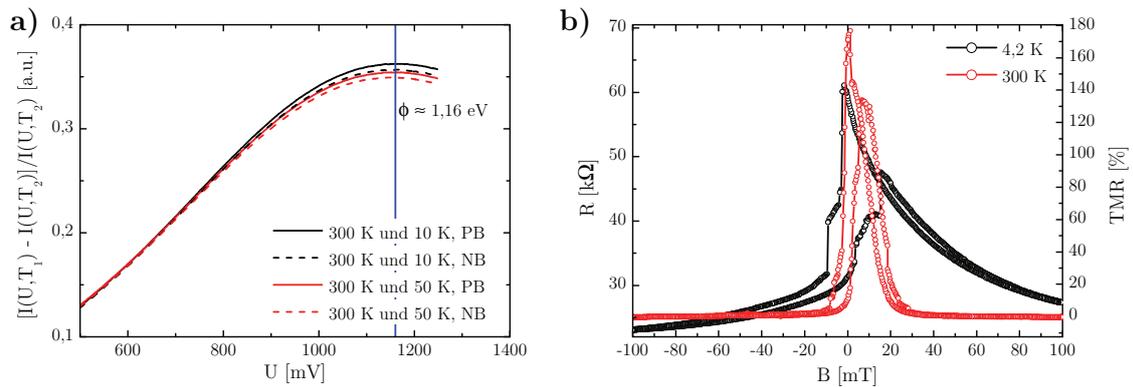


Abbildung 4.11: a) Bestimmung der Barrierenhöhe aus Kennlinien bei verschiedenen Temperaturen, b) Widerstandsmessungen bei 4,2 K und Raumtemperatur.

Die Kennlinien wurden bei Spannungen bis zu 1,25 V aufgenommen, um einen dielektrischen Durchschlag zu vermeiden. Die aus den Messungen berechnete und soeben vorgestellte Auftragung ist in Abb. 4.11 a) gezeigt. Es wurden wieder positive und negative Spannung getrennt aufgetragen, um eine mögliche Barrierenasymmetrie bestimmen zu können. Die Auswertung der gezeigten Messungen liefert eine mittlere Barrierenhöhe $\bar{\varphi} \approx 1,16 \text{ eV}$ und eine sehr geringe Asymmetrie von $\Delta\varphi \approx 0,01 \text{ eV}$. Die zur mittleren Barrierenhöhe gehörende Spannung ist zur Veranschaulichung ebenfalls in Abb. 4.11 a) eingezeichnet.

Darüber hinaus wurde aus den Kennlinien die logarithmische Leitfähigkeit berechnet, aus der sich im Falle der Raumtemperaturmessung eine Barrierenhöhe $\bar{\varphi} \approx 1,13 \text{ eV}$ ohne bestimmbare Barrierenasymmetrie ermitteln lässt. Es sei an dieser Stelle allerdings angemerkt, dass die Messungen bei 50 K und 10 K kein Maximum im Messbereich zeigen, die logarithmische Leitfähigkeit bei 1,25 V jedoch nahe eines Maximums zu sein scheint.

4.3.2 Inelastische Tunnelspektroskopie

Die in diesem Abschnitt vorgestellten Spektren wurden sowohl bei verschiedenen Temperaturen sowie verschiedenen Magnetfeldern aufgenommen, um die Einflüsse dieser Parameter auf die Spektren aufzuzeigen. Zunächst werden die Messungen bei unterschiedlichen Magnetfeldern untersucht, um die beobachteten Peaks verschiedenen physikalischen Prozessen zuordnen zu können. Es ist dabei anzumerken, dass die physikalische Herkunft mancher Eigenschaften der Spektren von CoFeB|MgO|CoFeB-Systemen noch nicht abschließend geklärt ist und in der aktuellen Literatur weiterhin diskutiert wird.

In Abb. 4.12 sind die Messungen der ersten und zweiten Ableitung bei unterschiedlichen Magnetfeldern aufgetragen. Bereits in der ersten Ableitung (Abb. 4.12 a)) sind die verschiedenen Anregungen sichtbar, werden aber erst in der zweiten Ableitung (Abb. 4.12 b)) als Peaks deutlich. Auf den ersten Blick scheinen sich die Messungen im parallelen Zustand der Elektroden zwischen 1 T und 9 T nicht zu unterscheiden. Lediglich zwischen antiparallelem und parallelem Zustand sind größere Unterschiede in den Spektren auszumachen. Der Einsatz in Abb. 4.12 b) zeigt den Bereich um die beiden nahe $U = 0 \text{ mV}$ auftretenden Peaks, und es lässt sich in dieser Vergrößerung eine geringfügige Verschiebung der Peaks in Abhängigkeit vom Magnetfeld vermuten. Da die Mechanismen, welche diese sogenannte *zero-bias-anomaly* hervorrufen, nicht genau bekannt sind und verschiedene Vermutungen dazu existieren, wurden während der zweiten Messzeit am PPMS Messungen mit kleinerer Schrittweite bei Spannungen bis 150 mV aufgenommen. Diese sind in Abb. 4.13 b) aufgetragen. Eine Verschiebung des zero-bias-anomaly-Peaks konnte, wie besonders aus dem Einsatz in Abb. 4.13 b) hervorgeht, durch die späteren Messungen nicht bestätigt werden.

Zur genaueren Analyse wurden Gaußfunktionen an die Spektren gefittet, wo-

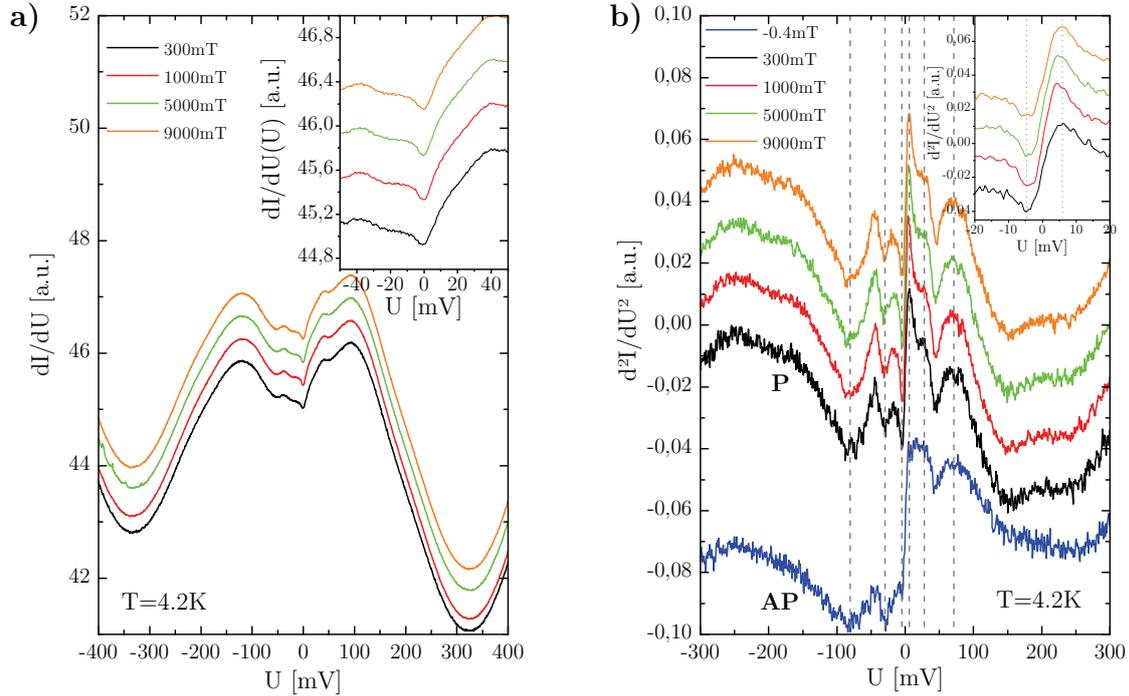


Abbildung 4.12: a) Direkt gemessene erste Ableitungen, b) numerisch abgeleitete d^2I/dU^2 -Kurven. Jeweils für verschiedene Magnetfelder bei $T = 4,2\text{K}$. Die Messungen sind zur Übersicht gegeneinander verschoben.

bei die Verwendung dieser Funktionen zur Beschreibung der Peaks durch die Annahme gerechtfertigt wird, dass bei $T = 10\text{K}$ die thermische Verbreiterung der Peaks dominiert, welche nach den Ausführungen in Abschn. 2.1.6 zu Gaußschen Glockenkurven führt. Bevor die Peaks gefittet werden konnten, musste zunächst der elastische Hintergrund abgezogen werden. Dazu wurde das Simmons-Modell an die, auch im vorherigen Abschnitt verwendete, Kennlinie bei $T = 10\text{K}$ angefitet und das Ergebnis numerisch zweimal abgeleitet. Die zweite Ableitung der Messung ist in Abb. 4.13 a) in grauen Quadraten aufgetragen, die zugehörigen Fits nach dem Brinkman- und Simmons-Modell als schwarze bzw. rote durchgezogene Linien. Darüber hinaus sind die experimentellen Spektren in rot und schwarz gezeigt. Das Simmons-Modell scheint die Messungen besser zu beschreiben und wurde dementsprechend von den experimentellen Spektren abgezogen. Die resultierenden Spektren sind in der Abbildung in blau und orange aufgetragen. Nun wurde zunächst die Messung bis 500mV herangezogen, um die breite Mulde bei ca. 250mV anzufitten. Das Resultat wurde wiederum von den Messungen mit geringerer Schrittweite bis 150mV abgezogen, und die restlichen Peaks bei Spannungen $< 100\text{mV}$ wurden an diese Messwerte gefittet. Das Resultat ist in Abb. 4.13 b) als durchgezogene, schwarze Linie aufgetragen und beschreibt das gemessene Spek-

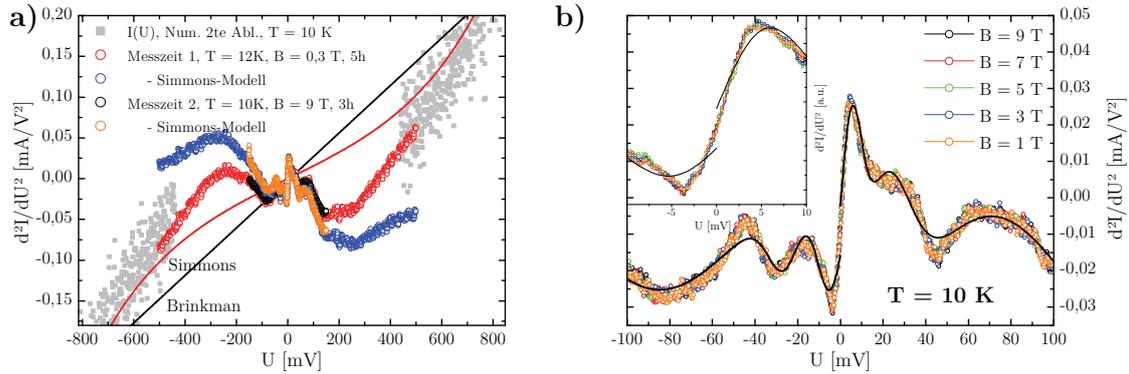


Abbildung 4.13: a) Bestimmung des elastischen Beitrags zum Spektrum, b) Messungen bei kleinen Spannungen mit kleiner Schrittweite im parallelen Zustand für verschiedene Magnetfelder.

trum ziemlich genau. Die aus den Fits erhaltenen Peakpositionen und -breiten sind zusammen mit direkt aus den Messungen abgelesenen Peakpositionen in Tab. 4.2 eingetragen.

Zunächst fällt bei den bestimmten Peakpositionen auf, dass eine gewisse Asymmetrie zur angelegten Spannung besteht. Insbesondere die Peaks bei ca. 25 mV und ca. 80 mV sind bei positiver Spannung zu kleineren Werten verschoben. Dieser Umstand ist im ersteren Fall auch in den Spektren der Abbildungen 4.12 b) und 4.13 b) dadurch zu erkennen, dass der Peak bei negativer Spannung getrennt von der zero-bias-anomaly zu sehen ist, während er bei positiver Spannung eine Schulter von dieser darstellt. Eine derartige Verschiebung der Peakpositionen wur-

Peakpos. [mV]		FWHM [mV]	Peakpositionen [mV]				physikalischer Prozess
abgel.	Fit		Ref.[23]	Ref.[25]	Ref.[29]	Ref.[7]	
-200	-287	307	-400	-300	-300	-200	MgO-,CoFeB-Bs
-80,8	-85,3	77,5	✓	-83	–	-81	Sw,MgO-Ph
-29,5	-26,5	17,2	✓	–	-50	-35 – -20	Sw
-4,8	-5,0	13,9	✓	✓	✓	≤ 15	MV,K,Sw
5,9	4,8	11,8	✓	✓	✓	≤ 15	MV,K,Sw
25,0	20,9	26,4	✓	–	50	20 – 35	Sw
71,1	71,6	84,1	✓	83	–	81	Sw,MgO-Ph
200	230	531	400	300	300	200	MgO-,CoFeB-Bs

Tabelle 4.2: Beobachtete Peakpositionen und -breiten (FWHM) und deren Zuweisung zu physikalischen Prozessen in der Literatur. MgO- und CoFeB-Bs steht hierbei für Bandstruktureffekte der jeweiligen Materialien, Sw für Magnonenanregungen, MgO-Ph für Phononenanregungen im MgO, MV für magnetische Verunreinigungen in der Barriere und K für Kondo-Effekt.

de in [7] vermutlich durch Verwendung verschiedener Schichtstapel hervorgerufen. Die hier vorliegende Probe stammt aus der in dieser Veröffentlichung vorgestellten Versuchsreihe, wurde dort jedoch aufgrund der fehlenden magnetischen Separation nicht verwendet. Die soeben gezeigten Spektren sind allerdings eher vergleichbar mit den in [7] untersuchten pseudo-spin-valve-Systemen und weniger mit dem identisch hergestellten, jedoch lediglich bei 350° C ausgelagerten spin-valve-System mit einem synthetischen Ferrimagneten in der oberen Elektrode. Es ist zu vermuten, dass die Asymmetrien in den Peaks durch eine veränderte atomare Struktur und, wie in der genannten Veröffentlichung beschrieben, durch Diffusion von Mangan hervorgerufen werden.

Im Folgenden werden die zu den Peaks gehörigen Prozesse näher besprochen. Zur weiteren Analyse bietet es sich dabei an, die sogenannten *geraden* und *ungeraden* Teile des Spektrums zu betrachten. Der gerade bzw. ungerade Teil des Spektrums berechnet sich laut [47] nach : $\left(\frac{d^2I}{dU^2}\right)_{g/ug}(U) = \frac{1}{2} \left(\frac{d^2I}{dU^2}(U > 0) \pm \frac{d^2I}{dU^2}(U < 0) \right)$.

Inelastische Anregungen wie beispielsweise Phononen oder Magnonen lassen sich in dem ungeraden Teil des Spektrums finden, während Selbstenergie-Effekte oder elektronische Anregungen im geraden Teil des Spektrums zu sehen sind. In Abb. 4.14 sind für die bereits in Abb. 4.13 a) gezeigten Messungen die geraden und ungerade Teile des Spektrums gezeigt. Zudem sind die aus den Fits bestimmten Peakpositionen aufgetragen. Die zuvor besprochene, geringfügige Asymmetrie der Peaks geht in dieser Auftragung scheinbar verloren, dennoch tauchen die Peaks bei Spannungen kleiner als 100 mV im ungeraden Teil des Spektrums auf, sodass es sich hier um inelastische Anregungen handeln sollte. Die in Tab. 4.2 gemachten Zuweisungen sind in dieser Hinsicht zutreffend. Bei der zero-bias-anomaly erscheint der Kondo-Effekt aufgrund der nicht beobachteten Magnetfeldabhängigkeit unwahrscheinlich; in anderen Systemen wurden magnetfeldabhängige Verschiebungen der Größenordnung $g\mu_B H$ fest-

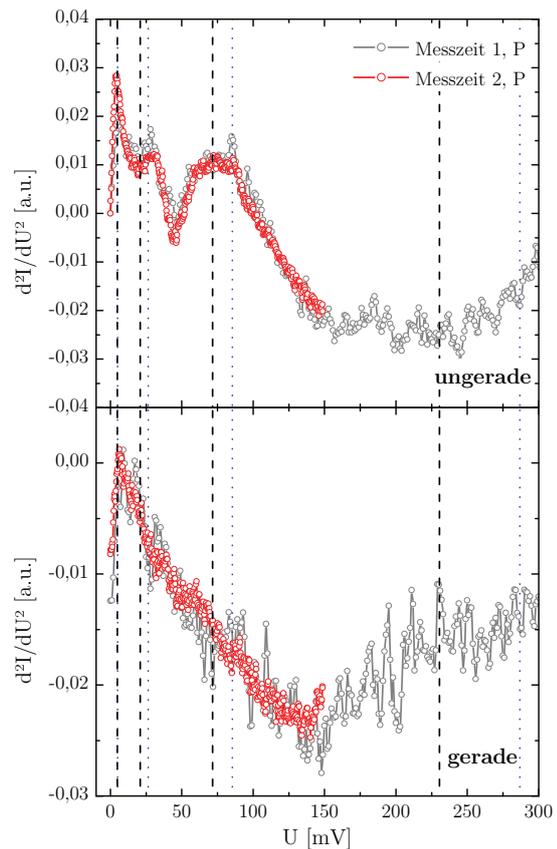


Abbildung 4.14: Auftragung der sogenannten geraden und ungeraden Teile des Spektrums im parallelen Zustand.

gestellt [47] und hätten bei diesen Messungen Veränderungen im Bereich von 1,2 mV bis 2,4 mV hervorrufen müssen. Eine Klärung der Herkunft des Peaks ist anhand dieser Messungen jedoch nicht möglich. Der zweite Peak wird weiter unten in Zusammenhang mit Spektren des antiparallelen Zustands diskutiert. Der dritte Peak bei ca. 80 mV stimmt gut mit einem der im Theorieteil (Abschn. 2.1.6) vorgestellten MgO-Phononenpeaks überein und wird in den meisten Veröffentlichungen auch als solcher identifiziert. Die breite Mulde bei ca. 200 mV wird in der Literatur oft Bandstruktureffekten zugesprochen [19] und erscheint tatsächlich im geraden Teil des Spektrums. In [25] wird auch ein Zusammenhang mit kohärentem Tunneln vermutet, dem wird allerdings in [7] widersprochen, da in letzterer Veröffentlichung auch eine Mulde bei Tunnelementen mit Al_2O_3 -Barriere beobachtet wurde.

Wie bereits Abb. 4.12 am Anfang des Kapitels zu entnehmen ist, ändert sich die Intensität des zweiten Peaks zwischen 20 mV und 30 mV recht stark in Abhängigkeit von den Magnetisierungsrichtungen der Elektroden. So ist im antiparallelen Zustand (blaue Kurve in Abb. 4.12) die zero-bias-anomaly nicht mehr auszumachen. Um dieses Verhalten näher zu untersuchen, wurden die Spektren des antiparallelen und des parallelen Zustands voneinander abgezogen und sind für beide Spannungsrichtungen in Abb. 4.15 a) aufgetragen. Die blauen Linien stellen die abgelesenen Peakpositionen aus Tab. 4.2 dar. In der Tat ist die zero-bias-anomaly im parallelen Zustand stärker ausgeprägt, während das Signal der zweiten Ableitung im antiparallelen Zustand ab dem zweiten Peak größer als im parallelen Zustand ist. Dieses Verhalten wird auch in der Literatur beobachtet (siehe Referenzen aus Tab. 4.2) und spricht dafür, dass der Peak bei ca. 25 mV, aufgrund der Magnetfeldabhängigkeit, durch Magnonen verursacht wird, und dass der inelastische Beitrag durch Magnonenanregungen im antiparallelen Zustand größer ist als im parallelen Zustand. Sehr

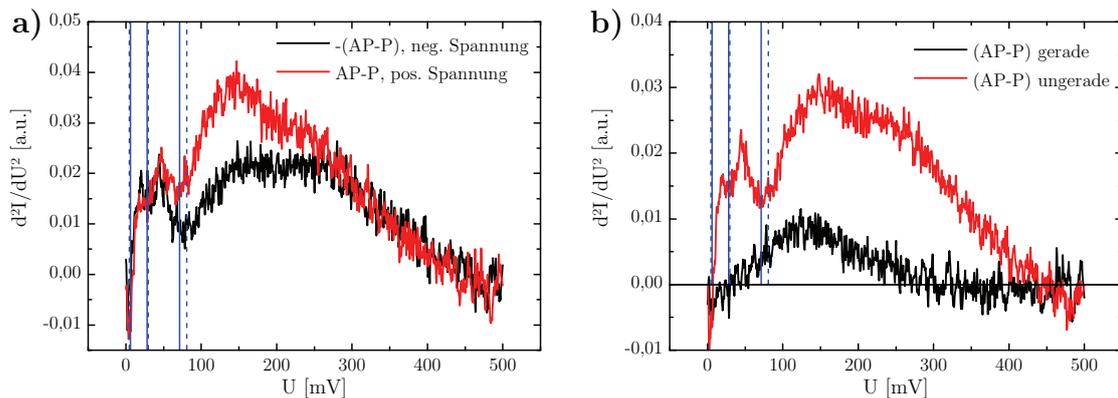


Abbildung 4.15: Vergleich der Spektren des parallelen und antiparallelen Zustands: a) Vergleich des Signals bei positiver und negativer Spannung, b) resultierende gerade und ungerade Spektren.

gut sichtbar ist auch, dass der Phononenpeak im Differenzspektrum fehlt, sodass

die Zuweisung zu einer nicht-magnetischen Anregung korrekt zu sein scheint. In Abb. 4.15 b) sind die geraden und ungeraden Teile des Differenzspektrums aufgetragen. Während die allgemeine Form des Spektrums im ungeraden Teil wiederzufinden ist, besitzt das gerade Spektrum einen Peak bei nahezu derselben Spannung wie im unteren Teil von Abb. 4.14. Das könnte darauf hindeuten, dass auch die Bandstruktureffekte im antiparallelen Zustand leicht überwiegen.

Zum Abschluss des Abschnitts wird die Temperaturabhängigkeit der IET-Spektren diskutiert. Dazu sind in Abb. 4.16 die Messungen der ersten und zweiten Ableitung für den parallelen sowie den antiparallelen Zustand bei verschiedenen Temperaturen aufgetragen. Offensichtlich unterscheiden sich die Messungen bei 4,2 K nicht von denen bei 12 K, sodass die eingeschränkte Funktionsweise des PPMS während der zweiten Messzeit, die dazu führte, dass lediglich Messungen bei 10 K möglich waren, die Brauchbarkeit der Ergebnisse nicht einschränkt.

Bei den Messungen wurde eine effektive Modulationsspannung von 1 mV verwendet, sodass sich für einen normalerweise scharfen Peak bei $T = 10$ K nach Gl. (2.27) die folgende Halbwertsbreite ergibt:

$$\text{FWHM} = \sqrt{(5,4 \cdot k_B \cdot 10 \text{ K})^2 + (1,22 \cdot e \cdot \sqrt{2} \text{ mV})^2} \approx 12,1 \text{ meV}.$$

Aus Tab. 4.2 geht hervor, dass die Peakbreiten der zero-bias-anomaly-Peaks in diesem Bereich liegen. In diesem Fall wäre also, obwohl die in Abb. 4.16 gezeigten Messungen keinen erkennbaren Unterschied zeigen, eine Messung bei geringerer Temperatur wünschenswert. Die Peakbreiten der anderen Peaks sind dagegen bereits größer als die soeben berechnete instrumentelle Peakbreite.

Bei einer Temperatur höher als 10 K läuft man dagegen schnell Gefahr, die Auflösung der Spektren unnötig zu verschlechtern. In Abb. 4.16 c) sind z.B. der Magnonen- und der zero-bias-anomaly-Peak bei $T = 40$ K nicht mehr zu trennen. Bei $T = 100$ K ist auch der Phononenpeak bei ca. 80 mV nicht mehr getrennt sichtbar und sogar die Spektren des antiparallelen Zustands in Abb. 4.16 d) sind bis auf die unterschiedliche Intensität, insbesondere der Mulden bei ungefähr 200 mV, vergleichbar. Es besteht also in jedem Fall die Notwendigkeit, die Spektroskopiemessungen bei möglichst tiefen Temperaturen durchzuführen.

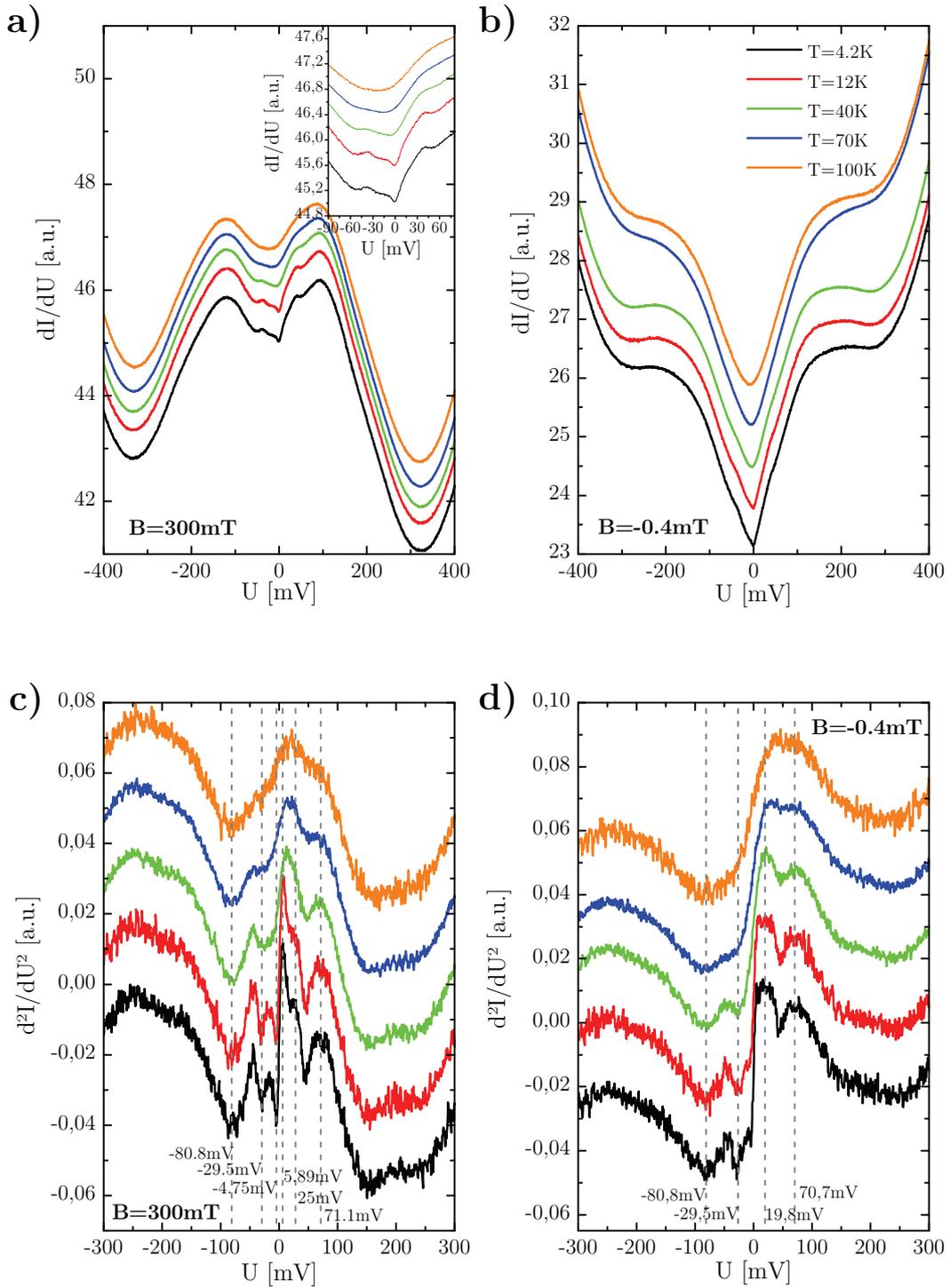


Abbildung 4.16: Temperaturabhängigkeit der IET-Spektren: a) dI/dU parallel, b) dI/dU antiparallel, c) d^2I/dU^2 parallel, d^2I/dU^2 antiparallel. Zur Übersicht wurden die verschiedenen Messungen gegeneinander verschoben.

5 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurde ein Messaufbau entwickelt, welcher der I/U-Charakterisierung von TMR-Elementen dient und die Durchführung von inelastischer Tunnelspektroskopie an diesen Elementen am PPMS ermöglicht.

In diesem Zusammenhang wurden in Kapitel 2 die notwendigen Grundlagen zum Tunneleffekt vermittelt und die geläufigen theoretischen Modelle vorgestellt, welche bei der elektrischen Charakterisierung von Tunnelementen verwendet werden. Nach einer kurzen Erläuterung des physikalischen Prinzips der inelastischen Tunnelspektroskopie wurde sodann der Tunnelmagnetowiderstandseffekt beschrieben und mit dem Schwerpunkt auf kristallinen MgO-Barrieren diskutiert.

Kapitel 3 stellte die Herstellungsprozedur der Proben vor und beinhaltet eine ausführliche Beschreibung der Funktionsweise und der Eigenschaften des im Rahmen dieser Arbeit entstandenen Messaufbaus. Neben einer Beschreibung der Probestation und des PPMS wurde zum Abschluss des Kapitels die Charakterisierung von TMR-Elementen an Beispielen erklärt.

Im Fokus dieser Arbeit standen neben der Entwicklung des Messaufbaus drei Versuchsreihen, bei denen sowohl der Einfluss der CoFeB-Elektroden als auch der Einfluss von Defekten in der MgO-Barriere auf die Eigenschaften der TMR-Elemente untersucht wurden. Dabei stellte sich heraus, dass die Eigenschaften der CoFeB-Elektroden einen erheblichen Einfluss auf den resultierenden TMR haben und es wurden Schwankungen in den Koerzitivfeldern der magnetisch harten Schicht festgestellt, die zu systematischen Abweichungen von dem generellen Verlauf der TMR-Werte mit der Sputterposition führten. Als Konsequenz dieser Messreihe erscheint es sinnvoll, den Einfluss der CoFeB-Schichtdicken auf den TMR und auch das Wachstumsverhalten der CoFeB-Schichten – z.B. mit TEM oder AFM – näher zu untersuchen, da beide Parameter die hier beobachteten Effekte verursachen könnten. Darüber hinaus sollten weitere Anstrengungen unternommen werden, ein getrenntes Schalten der beiden CoFeB-Elektroden ohne zusätzliche Co-Schicht zu realisieren, zumal diese unter Umständen ebenfalls negative Auswirkungen haben könnte.

Die Variation der Aufdampfrate von MgO zeigte keine erkennbaren Auswirkungen auf die TMR-Werte oder die Transporteigenschaften der TMR-Elemente. Die Ergebnisse der Versuchsreihe, bei welcher der Sauerstoffpartialdruck in der UHV-Kammer beobachtet und eingestellt wurde, geben dagegen Grund zu der Annahme, dass Sauerstofffehlstellen in der MgO-Barriere tatsächlich die Transporteigenschaften verändern können. Aufgrund der momentan noch großen Streuung der TMR-

Werte waren Auswirkungen auf diese leider nicht auszumachen. Dennoch erscheint es sinnvoll, eine solche Messreihe nach weiterer Optimierung der TMR-Elemente in Zukunft zu wiederholen. Bei der Charakterisierung der Proben der beiden Messreihen ist aufgefallen, dass sich die zur Verfügung stehenden theoretischen Modelle nicht ohne Weiteres auf die erhaltenen Messdaten anwenden lassen. Diese Tatsache wird auch in der Literatur erwähnt [24; 27] und es wurden bereits Anpassungen des Brinkman-Modells vorgeschlagen [27]. Bei weiter optimierten Proben wären Tests und die Entwicklung solcher Modellanpassungen als Fortführung dieser Arbeit denkbar.

Den Abschluss von Kapitel 4 bildete die Analyse der ersten, am PPMS aufgenommenen IET-Spektren. Der entwickelte Messaufbau lieferte bei einer angemessenen Messdauer qualitativ gute Spektren. Die beobachteten Peaks konnten anhand der vorgestellten Auswerteverfahren und durch Vergleich mit aktueller Literatur verschiedenen physikalischen Prozessen zugewiesen werden. Die inelastische Tunnelspektroskopie erweist sich somit als eine geeignete Methode, um die den Transport- und TMR-Eigenschaften der Proben zugrundeliegenden, physikalischen Prozesse näher zu untersuchen. Wie aus Abschn. 4.3.2 hervorgeht, ist die Ursache für die zero-bias-anomaly noch nicht geklärt, und laut [34] sind die in dieser Arbeit durchgeführten Messungen bei großen Magnetfeldern in der Literatur bislang eine Seltenheit, sodass sich in Zukunft Möglichkeiten für weitere Arbeiten bieten.

Literaturverzeichnis

- [1] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. N. Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich, and J. Chazelas. Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices. *Physical Review Letters*, 61(21):2472–2475, 1988.
- [2] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Physical Review B*, 39(7):4828–4830, Mar 1989.
- [3] W. F. Brinkman, R. C. Dynes, and J. M. Rowell. Tunneling Conductance of Asymmetrical Barriers. *Journal of Applied Physics*, 41(5):1915, 1970.
- [4] W. H. Butler, X. G. Zhang, T. C. Schulthess, and J. M. MacLaren. Spin-dependent tunneling conductance of Fe/MgO/Fe sandwiches. *Physical Review B*, 63:0544146, 2001.
- [5] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, and F. Laloë. *Quantenmechanik Teil 1*. Walter de Gruyter, Berlin, New York, 2. edition, 1999.
- [6] D. D. Djayaprawira, K. Tsunekawa, M. Nagai, H. Maehara, S. Yamagata, N. Watanabe, S. Yuasa, Y. Suzuki, and K. Ando. 230% room-temperature magnetoresistance in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 86(9):092502, 2005.
- [7] V. Drewello, M. Schäfers, O. Schebaum, A. A. Khan, J. Münchenberger, J. Schmalhorst, A. Thomas, and G. Reiss. Inelastic electron tunneling spectra of MgO based magnetic tunnel junctions with different electrode designs. *Physical Review B* (submitted), 2009.
- [8] G. Eilers. Grundlegende Untersuchungen zu Tunnelmagnetowiderstandselementen: Schichtrauigkeit, Tunnelbarriere und mikromagnetische Simulationen. Diplomarbeit, Georg-August-Universität Göttingen, 2004.
- [9] G. Eilers. Dissertation, Georg-August-Universität Göttingen, 2009.
- [10] T. Fließbach. *Quantenmechanik*. Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg, Berlin, 3. edition, 2000.

- [11] M. Gradhand, C. Heiliger, P. Zahn, and I. Mertig. Tunneling magnetoresistance with amorphous electrodes. *Physical Review B*, 77(13):134403, 2008.
- [12] K. H. Gundlach and J. Hölzl. Logarithmic conductivity of Al–Al₂O₃–Al tunneling junctions produced by plasma- and by thermal oxidation. *Surface Science*, 27(1):125–141, 1971.
- [13] W. A. Harrison. Tunneling from an Independent-Particle Point of View. *Physical Review*, 123(1):85, 1961.
- [14] C. Heiliger, M. Gradhand, P. Zahn, and I. Mertig. Tunneling Magnetoresistance on the Subnanometer Scale. *Physical Review Letters*, 99(6):066804, 2007.
- [15] M. Julliere. Tunneling between ferromagnetic films. *Physics Letters A*, 54(3):225–226, 9 1975.
- [16] A. A. Khan, J. Schmalhorst, A. Thomas, O. Schebaum, and G. Reiss. Dielectric breakdown in Co–Fe–B/MgO/Co–Fe–B magnetic tunnel junction. *Journal of Applied Physics*, 103(12):123705, 2008.
- [17] J. Klein, A. Léger, M. Belin, D. Défourneau, and M. J. L. Sangster. Inelastic-Electron-Tunneling Spectroscopy of Metal-Insulator-Metal Junctions. *Physical Review B*, 7(6):2336–2348, 1973.
- [18] J. Lambe and R. C. Jaklevic. Molecular Vibration Spectra by Inelastic Electron Tunneling. *Phys. Rev.*, 165(3):821–832, 1968.
- [19] P. LeClair, J. T. Kohlhepp, C. H. van de Vin, H. Wieldraaijer, H. J. M. Swagten, W. J. M. de Jonge, A. H. Davis, J. M. MacLaren, J. S. Moodera, and R. Jansen. Band Structure and Density of States Effects in Co-Based Magnetic Tunnel Junctions. *Phys. Rev. Lett.*, 88(10):107201, 2002.
- [20] Y. M. Lee, J. Hayakawa, S. Ikeda, F. Matsukara, and H. Ohno. Effect of electrode composition on the tunnel magnetoresistance of pseudo-spin-valve magnetic tunnel junction with a MgO tunnel barrier. *Applied Physics Letters*, 90:212507, 2007.
- [21] J. M. MacLaren, X. G. Zhang, and W. H. Butler. Validity of the Julliere model of spin-dependent tunneling. *Physical Review B*, 56(18):11827–11832, 1997.
- [22] J. Mathon and A. Umerski. Theory of tunneling magnetoresistance of an epitaxial Fe/MgO/Fe(001) junction. *Physical Review B*, 63(22):220403, 2001.
- [23] R. Matsumoto, Y. Hamada, M. Mizuguchi, M. Shiraishi, H. Maehara, K. Tsunekawa, D. D. Djayaprawira, N. Watanabe, Y. Kurosaki, T. Nagahama, A. Fukushima, H. Kubota, S. Yuasa, and Y. Suzuki. Tunneling spectra of

- sputter-deposited CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions showing giant tunneling magnetoresistance effect. *Solid State Communications*, 136(11-12):611–615, 2005.
- [24] R. Matsumoto, S. Nishioka, M. Mizuguchi, M. Shiraishi, H. Maehara, K. Tsunekawa, D. D. Djayaprawira, N. Watanabe, Y. Otani, T. Nagahama, A. Fukushima, H. Kubota, S. Yuasa, and Y. Suzuki. Dependence on annealing temperatures of tunneling spectra in high-resistance CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions. *Solid State Communications*, 143(11-12):574, 2007.
- [25] G.-X. Miao, K. B. Chetry, A. Gupta, W. H. Butler, K. Tsunekawa, D. Djayaprawira, and G. Xiao. Inelastic tunneling spectroscopy of magnetic tunnel junctions based on CoFeB/MgO/CoFeB with Mg insertion layer. *Journal of Applied Physics*, 99(8):08T305, 2006.
- [26] G.-X. Miao, Y. J. Park, J. S. Moodera, M. Seibt, G. Eilers, and M. Münzenberg. Disturbance of Tunneling Coherence by Oxygen Vacancy in Epitaxial Fe/MgO/Fe Magnetic Tunnel Junctions. *Physical Review Letters*, 100(24):246803–4, 2008.
- [27] C. W. Miller, Z.-P. Li, I. K. Schuller, R. W. Dave, J. M. Slaughter, and J. Akerman. Origin of the breakdown of Wentzel-Kramers-Brillouin-based tunneling models. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)*, 74(21):212404–4, 2006.
- [28] T. Miyazaki and N. Tezuka. Giant magnetic tunneling effect in Fe/Al₂O₃/Fe junction. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 139(3):L231–L234, 1995.
- [29] M. Mizuguchi, Y. Hamada, R. Matsumoto, S. Nishioka, H. Maehara, K. Tsunekawa, D. D. Djayaprawira, N. Watanabe, T. Nagahama, A. Fukushima, H. Kubota, S. Yuasa, M. Shiraishi, and Y. Suzuki. Tunneling spectroscopy of magnetic tunnel junctions: Comparison between CoFeB/MgO/CoFeB and CoFeB/Al–O/CoFeB. *Journal of Applied Physics*, 99(8):08T309, 2006.
- [30] J. S. Moodera, L. R. Kinder, T. M. Wong, and R. Meservey. Large Magnetoresistance at Room Temperature in Ferromagnetic Thin Film Tunnel Junctions. *Physical Review Letters*, 74(16):3273–3276, 1995.
- [31] J. S. Moodera and G. Mathon. Spin polarized tunneling in ferromagnetic junctions. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 200:248–273, 1999.
- [32] J. S. Moodera, J. Nowak, and R. J. M. v. d. Veerdonk. Interface Magnetism and Spin Wave Scattering in Ferromagnet-Insulator-Ferromagnet Tunnel Junctions. *Physical Review Letters*, 80(13):2941–2944, 1998.

- [33] T. Nagahama and J. S. Moodera. Magnetic Tunnel Junctions with Magnesium Oxide Barriers. *Journal of Magnetism*, 11(4):170–181, 2006.
- [34] P. V. Paluskar, F. L. Bloom, J. T. Kohlhepp, H. J. M. Swagten, B. Koopmans, and E. Snoeck. Impact of interface crystallization on inelastic tunneling in Al/AlO_x/CoFeB. *Applied Physics Letters*, 91(22):222501, 2007.
- [35] S. S. P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P. M. Rice, B. Hughes, M. Samant, and S. Yang. Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO (100) tunnel barriers. *Nature Materials*, 3:862, 2004.
- [36] Quantum Design. *PPMS Hardware Manual*, Fourth edition.
- [37] J. G. Simmons. Generalized Formula for the Electric Tunnel Effect between Similar Electrodes Separated by a Thin Insulating Film. *Journal of Applied Physics*, 34(6):1793, 1963.
- [38] J. G. Simmons. Generalized Thermal J-V Characteristic for the Electric Tunnel Effect. *Journal of Applied Physics*, 35(9):2655, 1964.
- [39] Stanford Research Systems. *Model SR830 DSP Lock-In Amplifier - Operating Manual and Programming Reference*, Nov. 2002.
- [40] J. Stöhr and H. C. Siegmann. *Magnetism – From Fundamentals to Nanoscale Dynamics*. Solid-State Sciences. Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2006.
- [41] P. M. Tedrow and R. Meservey. Spin-Dependent Tunneling into Ferromagnetic Nickel. *Physical Review Letters*, 26(4):192–195, 1971.
- [42] P. M. Tedrow and R. Meservey. Spin Polarization of Electrons Tunneling from Films of Fe, Co, Ni, and Gd. *Physical Review B*, 7(1):318–326, 1973.
- [43] A. Thomas, V. Drewello, M. Schafers, A. Weddemann, G. Reiss, G. Eilers, M. Münzenberg, K. Thiel, and M. Seibt. Direct imaging of the structural change generated by dielectric breakdown in MgO based magnetic tunnel junctions. *Applied Physics Letters*, 93(15):152508, 2008.
- [44] D. C. Tsui, R. E. Dietz, and L. R. Walker. Multiple Magnon Excitation in NiO by Electron Tunneling. *Physical Review Letters*, 27(25):1729–1732, 1971.
- [45] K. U. Ubben. Diplomarbeit, Georg-August-Universität Göttingen, 2009.
- [46] R. J. M. v. d. Veerdonk, J. S. Moodera, and W. J. M. d. Jonge. Characterization of magnetic tunnel junctions using IETS. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 198-199:152–154, 1999.

- [47] E. L. Wolf. *Principles of electron tunneling spectroscopy*. International series of monographs in physics; 71. Oxford University Press, New York, 1985.
- [48] S. Yuasa and D. D. Djayaprawira. Giant tunnel magnetoresistance in magnetic tunnel junctions with a crystalline MgO(001) barrier. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 40(21):337, 2007.
- [49] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando. Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions. *Nature Materials*, 3:868, 2004.
- [50] S. Yuasa, Y. Suzuki, T. Katayama, and K. Ando. Characterization of growth and crystallization processes in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junction structure by reflective high-energy electron diffraction. *Applied Physics Letters*, 87(24):242503, 2005.
- [51] S. Zhang, P. M. Levy, A. C. Marley, and S. S. P. Parkin. Quenching of Magnetoresistance by Hot Electrons in Magnetic Tunnel Junctions. *Physical Review Letters*, 79(19):3744–3747, 1997.
- [52] X. G. Zhang and W. H. Butler. Large magnetoresistance in bcc Co/MgO/Co and FeCo/MgO/FeCo tunnel junctions. *Physical Review B*, 70(17):172407, 2004.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich zuerst bei *Dr. Markus Münzenberg* für die Betreuung meiner Diplomarbeit und das mir entgegengebrachte Vertrauen bedanken. Die vielen guten Ratschläge, die Unterstützung eigener Ideen und eine jederzeit bestehende Diskussionsbereitschaft waren sehr hilfreich bei der Entstehung dieser Diplomarbeit. Für die Übernahme des Korreferats gebührt mein Dank *Prof. Dr. Angela Rizzi*.

Für eine immer nette und angenehme Arbeitsatmosphäre während und auch außerhalb der Arbeitszeit möchte ich der gesamten Arbeitsgruppe, namentlich Gerrit Eilers, Kai Ubben, Jakob Walowski, Benjamin Lenk, Malte Scherff, Andreas Mann und Henning Ulrichs danken. Insbesondere die Zusammenarbeit mit Kai Ubben und Gerrit Eilers hat mir sehr viel Spaß bereitet. Gerrit's Unterstützung meiner Vorhaben sowie seine Diskussionsbereitschaft und vielen Ideen haben mir sehr geholfen.

Ohne die zur Verfügung gestellten Proben von der Arbeitsgruppe „Thin films and physics of nanostructures“ der Universität Bielefeld wären die IETS Messungen in dieser Form nicht möglich gewesen und mein Dank gilt Dr. Andy Thomas, Volker Drewello und Markus Schäfers.

Für die Korrektur meiner Arbeit und die konstruktiven Vorschläge möchte ich mich bei Benjamin Lenk, Gerrit Eilers und Katharina Ort bedanken.

Bei meinen Freunden möchte ich mich für ihre Unterstützung und die schöne Zeit bedanken. Meiner Familie, insbesondere meinen Eltern und meiner Schwester, gebührt besonderer Dank für ihre Unterstützung und die Finanzierung meines Studiums.