

Magnetische Tunnелеlemente mit Pulsplasma-oxidierten Barrieren und Elektroden aus Kobalt-Chrom Legierungen

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades
der Fakultät für Physik der
Universität Bielefeld

vorgelegt von
Maik Justus
aus Bielefeld

10. Juni 2003

Erklärung

Hiermit erkläre ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel verwendet habe.

Bielefeld, 10. Juni 2003

(Maik Justus)

Gutachter:

Prof. Dr. Günter Reiss
Prof. Dr. Dario Anselmetti

Datum des Einreichens der Arbeit: 10. Juni 2003

Tagungsbeiträge und Publikationen

M. Justus, A. Thomas, J. Schmalhorst, H. Brückl and G. Reiss,
Tunneling magnetoresistance in double barrier junctions with varying Co inter-layer thickness
Statuseminar Magnetoelektronik, Dresden, 297 (2000)

J. Schmalhorst, H. Brückl, M. Justus, A. Thomas, G. Reiss, J. Vieth, G. Gieres and J. Wecker
Evolution of the dielectric breakdown in $Co/Al_2O_3/Co$ junctions by annealing
J. Appl. Phys. **89**, 586 (2001)

M. Justus, H. Brückl and G. Reiss,
Hard magnetic CoCr layer in ferromagnetic tunnel junctions
J. Magn. Magn. Mater. **240**, 212 (2002)

T. Luciński, H. Brückl, M. Justus, A. Hütten and G. Reiss
Combination of antiferromagnetically coupled Co/Cu/Co trilayers and magnetic tunnel junctions
J. Magn. Magn. Mater. **239**, 138 (2002)

G. Reiss, H. Brückl, A. Hütten, J. Schmalhorst, M. Justus, A. Thomas and S. Heitmann
Spinelectronics and its application
phys. Stat, Sol (b) **235**, 221 (2003)

M. Rabe, U. M. May, H. Siegle, A. Hütten, S. Kämmerer, M. Justus and G. Reiss,
Magnetotransport properties of hard magnetic pinned multilayers
eingereicht bei J. Appl. Phys.

M. Justus, A. Thomas, J. Schmalhorst, H. Brückl and G. Reiss
Alternative plasma oxidation of aluminium layers in ferromagnetic tunnel junctions
in Vorbereitung

J. Bornemeier, M. Justus *et al.*
Injection of ballistic electrons into semiconductors
in Vorbereitung

Y.-H. Fan, M. Justus *et al.*
Magnetic tunnel junctions with Gd/NiFe electrodes
in Vorbereitung

M. Brzeska, M. Justus *et al.*

Detection of single molecules by magnetic markers on micrometer-sized magnetic tunnel junctions

in Vorbereitung

K. Rott, M. Justus *et al.*

Contact-arrays of magnetic tunnel junctions produced by electron beam lithography

in Vorbereitung

Sowie jährliche Vorträge/Posterbeiträge auf den Frühjahrstagungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft 1999–2003.

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Grundlagen	3
1.1 Tunneleffekt	3
1.2 Tunnelmagnetowiderstand	6
1.2.1 Experimentelle Realisierung	9
1.2.2 Anwendungen des Tunnelmagnetowiderstands	10
1.3 Oxidation von Metallen	11
1.3.1 Natürliche Oxidation	11
1.3.2 Plasmaoxidation	12
1.4 Magnetismus von Kobalt-Chrom	14
2 Probenpräparation	19
2.1 Schichtaufbau	21
3 Kobalt-Chrom als Elektrodenmaterial	23
3.1 Magnetische Eigenschaften von Kobalt-Chrom	24
3.2 Temperaturstabilität von Kobalt-Chrom	35
3.2.1 Temperaturstabilität von $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$	38
3.2.2 Temperaturstabilität von $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$	40
3.3 TMR-Systeme mit $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$	43
3.4 TMR-Systeme mit $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$	45
3.5 Magnetische Stabilität von $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$	51
4 Pulsplasma Oxidation	55
4.1 Funktionsprinzip und experimentelle Ergebnisse	55
4.2 Homogenität	65
4.3 Bestimmung der optimalen Oxidationsparameter	67
4.4 Durchschläge	69
5 Zusammenfassung	73
Literaturverzeichnis	82

Einleitung

Der Tunnelstrom über eine nichtleitende Barriere zwischen zwei ferromagnetischen Elektroden ist von deren relativen Magnetisierungsrichtungen und den Spinpolarisationen abhängig.

Dieser bereits 1975 von Julliere entdeckte und beschriebene[1] Tunnelmagnetowiderstandseffekt (TMR) bildet eine Brücke zwischen Magnetismus und Mikroelektronik und steht nun nach vielen Jahren intensiver Forschung[2, 3] kurz vor der industriellen Anwendung[4, 5, 6]. Das Potenzial reicht von der Sensorik[7, 8] über Speichertechnik[9, 10, 11, 12] bis hin zu rekonfigurierbaren Logiken[13]. Bereits 2001 hat Motorola einen 256kBit Magnetic Random Access Memory (MRAM) demonstriert[14]. Die Information wird nichtflüchtig in der veränderlichen Magnetisierung einer weichmagnetischen Elektrode gespeichert, während die Magnetisierung der Gegen- bzw. Referenzelektrode fest ist. Mit einer Kombination solcher Elemente können rekonfigurierbare Logiken realisiert werden.

Die magnetische und thermische Stabilität der hartmagnetischen Referenzelektrode begrenzt die Anzahl der möglichen Schreibzyklen bzw. die Lebensdauer eines TMR-Elements[15]. Verschiedene Ansätze zur Verbesserung dieser Stabilitäten werden verfolgt: Hartmagnetische Legierungen[16] und das Pinning an intrinsische[17] oder künstliche Antiferromagneten[15] sowie deren Kombination[18].

In dieser Arbeit werden zwei Kobalt-Chrom Legierungen auf ihre Verwendbarkeit in TMR-Elementen hin untersucht. Es zeigt sich, dass die Koerzitivfeldstärke

über weite Bereiche einstellbar ist. Dieses ermöglicht über die Ummagnetisierung der Referenzelektroden eine alternative Realisierung rekonfigurierbarer Logiken, die bei gleicher Funktion mit weniger TMR-Elementen auskommen.

Die Qualität und Homogenität der Barriere, welche i.d.R. aus oxidiertem Aluminium besteht, ist eine große Herausforderung bei der Präparation magnetischer Tunnelelemente. Die Oxid-Schicht wird entweder direkt abgeschieden[19] oder durch nachträgliches Oxidieren gebildet. Verbreitete Verfahren sind natürliche[20], UV-unterstützte[21] und Plasma-Oxidation[22]. Für die industrielle Anwendung sind zusätzlich niederohmige[23], also dünne, Tunnelbarrieren notwendig. Der Oxidationsvorgang wurde in dieser Arbeit eingehend untersucht und mit der „Pulsplasma Oxidation“ eine neue technische Umsetzung entwickelt, die diesen Ansprüchen genügt.

Kapitel 1

Grundlagen

1.1 Tunneleffekt

Diese Darstellung folgt im Wesentlichen einer Arbeit von R. Meservey und P.M. Tedrow[24] sowie einer Einführung von Patrick LeClair in seiner Dissertation[3], die wiederum auf zwei Büchern[25, 26] fußt: Elektronen-Tunneln ist ein quantenmechanisches Phänomen. Zwischen zwei Elektroden, die durch eine nicht leitende Schicht (Barriere) getrennt sind, kann ein Strom fließen. Die nicht leitende Schicht stellt eine Potenzialbarriere dar, gegen die die Elektronenwelle läuft (siehe Abbildung 1.1a). Da die Wellenfunktion und deren Ableitung stetig sein müssen, ist der

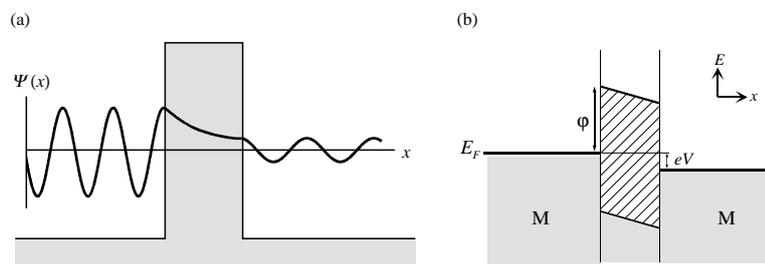


Abbildung 1.1: Elektronentunneln in Metall/Isolator/Metall Strukturen. (a) Die Elektronen-Wellenfunktion fällt in der Barriere exponentiell ab. (b) Potenzialdiagramm eines Metall/Isolator/Metall Systems mit angelegter Spannung U (hier als V bezeichnet). Aus[3]

Betrag in der Barriere nicht sprunghaft null, sondern fällt exponentiell ab. Läuft ein Elektron beispielsweise von links gegen eine hinreichend dünne Potenzialbarriere (typischerweise wenige nm) wird somit einige Intensität der Wellenfunktion auf der rechten Seite der Barriere verbleiben. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit rechts der Barriere ist somit endlich und es wird nicht die gesamte Welle reflektiert.

In den meisten Untersuchungen an Metall/Isolator/Metall Tunnelsystemen wird die Strom/Spannungskennlinie analysiert. Abbildung 1.1b zeigt die Potenzialbarriere eines solchen idealisierten Systems. Ohne angelegte Spannung würde sich ein Gleichgewicht einstellen und die Fermi-Energien (E_F) der beiden Metalle wären gleich. Mit angelegter Spannung U werden die beiden Fermi-Energien um eU gegeneinander verschoben (e ist die Elementarladung). Die Zahl der von einer zur anderen Elektrode tunnelnden Elektronen ist gegeben durch das Produkt der Zustandsdichte an einer gegebenen Energie in der linken Elektrode $\varrho_l(E)$ und der Zustandsdichte der selben Energie in der rechten Elektrode $\varrho_r(E + eU)$ multipliziert mit dem Quadrat eines Matrixelements $|M|^2$, welches im Wesentlichen die Transmissionswahrscheinlichkeit durch die Barriere angibt, und der Wahrscheinlichkeit, dass der Zustand in der linken Elektrode besetzt ist ($f(E)$), sowie der Wahrscheinlichkeit, dass der Zustand in der rechten Elektrode frei ist ($1 - f(E + eU)$), wobei $f(E)$ die Fermi-Dirac Funktion ist. Für den Tunnelstrom von der linken zur rechten Elektrode muss über alle Energien summiert werden:

$$I_{l \rightarrow r}(V) = \int_{-\infty}^{+\infty} \varrho_l(E) \varrho_r(E + eU) |M|^2 f(E) [1 - f(E + eU)] dE \quad (1.1)$$

Um den Netto-Tunnelstrom zu erhalten muss davon der Tunnelstrom von der rechten zur linken Elektrode¹ abgezogen werden:

$$I_{\text{gesamt}}(U) = I_{l \rightarrow r}(U) - I_{r \rightarrow l}(U) \quad (1.2)$$

¹ $I_{r \rightarrow l}$ erhält man aus Gleichung 1.1 durch Vertauschen von l und r sowie Ersetzen von U durch $-U$

Brinkman[27] hat die Quadrate der Matrixelemente $|M|^2$ für trapezförmige Barrieren mittels der WKB-Näherung[28] bestimmt und den Tunnelstrom über alle Raumrichtungen aufintegriert. Die Barrieren beschreibt er mit Höhe $\bar{\varphi}$, Dicke d und Asymmetrie $\Delta\varphi$ und erhält für kleine Spannungen ($eU \ll \bar{\varphi}$) als Ergebnis, dass die differentielle Leitfähigkeit als Polynom 2. Ordnung in U geschrieben werden kann, wobei die drei konstanten Vorfaktoren A, B und C eine Funktion der drei Barrierenparameter sind:

$$G = \frac{dI_{\text{gesamt}}}{dU} = A(\bar{\varphi}, d)U^2 + B(\bar{\varphi}, \Delta\varphi, d)U + C(\bar{\varphi}, d) \quad (1.3)$$

Die Gleichungen für A, B und C können nach den Barrierenparametern aufgelöst werden[15] (m_{eff} ist die effektive Masse der Elektronen, die in Al_2O_3 im Allgemeinen zu $0.4 \cdot m_e$ angenommen wird[29]):

$$\bar{\varphi}^2 = \frac{e^2 C}{32A} \left[\ln \left(\frac{h^3}{\sqrt{2\pi} e^3 m_{\text{eff}}} \sqrt{AC} \right) \right]^2 \quad (1.4)$$

$$d = -\frac{\hbar}{8\sqrt{\bar{\varphi} m_{\text{eff}}}} \ln \left(\frac{h^3}{\sqrt{2\pi} e^3 m_{\text{eff}}} \sqrt{AC} \right) \quad (1.5)$$

$$\Delta\varphi = -\frac{12\hbar\bar{\varphi}^{\frac{3}{2}}B}{\sqrt{2m_{\text{eff}}e}dC} \quad (1.6)$$

Somit können aus gemessenen Strom/Spannungs-Kennlinien die Barrierenparameter bestimmt werden. Dazu wird an die differentielle Leitfähigkeit gemäß Gleichung 1.3 ein Polynom 2. Ordnung angefitet, woraus mittels Gleichungen 1.4-1.6 die Barrierenparameter ermittelt werden. Brinkmann hat bei der Berechnung der Quadrate der Matrixelemente eine vereinfachte Zustandsdichte (freie Elektronen) angenommen, die sich mit der Energieabhängigkeit eben dieser Quadrate der Matrixelemente wegekürzt[30]. Wäre diese Annahme realistisch, so würde es keinen Tunnelmagnetowiderstand geben (siehe nächstes Kapitel). Gleichung 1.5 liefert aber einen realistischen Wert für die Barrierendicke, wie z.B. an TEM-Aufnahmen überprüft werden kann. 1960 hatte Giaever[31, 32] in experimentellen Arbeiten an einem Supraleiter/Nichtleiter/Metall System nachgewiesen, dass der Tunnelstrom entgegen den damaligen theoretischen Modellen nicht unabhängig von der

Zustandsdichte ist. Viele seiner Kollegen standen diesem Experiment sehr skeptisch gegenüber[33], obwohl schon kurz darauf verschiedene Gruppen theoretische Erklärungen veröffentlichten[34, 35, 36]. 1973 erhielt Giaever den Nobelpreis.

1.2 Tunnelmagnetowiderstand

Unter Tunnelmagnetowiderstand (TMR) versteht man die Abhängigkeit des Tunnelwiderstandes eines Ferromagnet/Isolator/Ferromagnet Systems von der Magnetisierung der ferromagnetischen Schichten.

Dieses kann beschrieben werden, indem Gleichung 1.2 auf zwei Spinkanäle (Spin up und Spin down) erweitert wird[2], wobei angenommen wird, dass der Spin eines tunnelnden Elektrons erhalten bleibt und beide Ferromagneten in gleicher Richtung magnetisiert sind:

$$I_{\text{gesamt}}(U) = I_{l \rightarrow r}^{\text{up}}(U) + I_{l \rightarrow r}^{\text{down}}(U) - I_{r \rightarrow l}^{\text{up}}(U) - I_{r \rightarrow l}^{\text{down}}(U) \quad (1.7)$$

Der Einfachheit halber wird nur der Fall $T = 0$ (für $E < E_{\text{fermi}}$ gilt $f(E) = 1$ und für $E > E_{\text{fermi}}$ gilt $f(E)=0$). Somit vereinfacht sich Gleichung 1.1 zu:²

$$I_{l \rightarrow r}(U) = \int_{E_{\text{fermi}} - eU}^{E_{\text{fermi}}} \varrho_l(E) \varrho_r(E + eU) |M|^2 dE \quad (1.8)$$

Für kleine U sind $|M|^2$, ϱ_l und ϱ_r über den Integrationsbereich als konstant anzunehmen und Gleichung 1.8 vereinfacht sich zu:

$$I_{l \rightarrow r}(U) = \varrho_l \varrho_r |M|^2 eU \quad (1.9)$$

In Gleichung 1.7 eingesetzt:

$$I_{\text{gesamt}} = \varrho_l^{\text{up}} \varrho_r^{\text{up}} |M|^2 eU + \varrho_l^{\text{down}} \varrho_r^{\text{down}} |M|^2 eU \quad (1.10)$$

²Durch Beschränkung auf den Fall $U > 0$ gilt dann $I_{r \rightarrow l} = 0$

Die Quadrate des Matrixelements ($|M|^2$) werden hierbei für beide Spinkanäle als gleich angenommen. Bei entgegengesetzter Magnetisierung der beiden Ferromagneten muss für die rechte Elektrode up und down vertauscht werden. Berechnet man nun die relative Widerstandsänderung zwischen antiparallelem ($\uparrow\downarrow$) und parallelem ($\uparrow\uparrow$) Fall bezogen auf den parallelen Fall, so erhält man die Definition des Tunnelmagnetowiderstands:

$$\begin{aligned}
\mathbf{TMR} &= \frac{R_{\uparrow\downarrow} - R_{\uparrow\uparrow}}{R_{\uparrow\uparrow}} \\
&= \frac{I_{\uparrow\uparrow} - I_{\uparrow\downarrow}}{I_{\uparrow\downarrow}} \\
&= \frac{(\varrho_l^{\text{up}} \varrho_r^{\text{up}} + \varrho_l^{\text{down}} \varrho_r^{\text{down}}) - (\varrho_l^{\text{up}} \varrho_r^{\text{down}} + \varrho_l^{\text{down}} \varrho_r^{\text{up}})}{(\varrho_l^{\text{up}} \varrho_r^{\text{down}} + \varrho_l^{\text{down}} \varrho_r^{\text{up}})} \quad (1.11)
\end{aligned}$$

Definieren wir nun die Spinpolarisation P_i als

$$P_i = \frac{\varrho_i^{\text{up}} - \varrho_i^{\text{down}}}{\varrho_i^{\text{up}} + \varrho_i^{\text{down}}} \quad (1.12)$$

so kann Gleichung 1.11 umgeschrieben werden zu

$$\mathbf{TMR} = \frac{2P_l P_r}{1 - P_l P_r}. \quad (1.13)$$

Gleichung 1.13 wurde von Julliere in der ersten Publikation über den Tunnelmagnetowiderstand in dem Jahr 1975 angegeben[1].

Dieser Ansatz beschreibt die Natur natürlich nur unvollkommen. Experimentell findet man eine starke Abhängigkeit sowohl des TMR als auch des Widerstandes selbst von Temperatur und Spannung[37, 38, 39], die beide explizit nicht berücksichtigt wurden.

Für kleine Spannungen findet man insbesondere bei tiefen Temperaturen starke Abweichungen der U/I Kennlinie von dem von Brinkman[27] vorhergesagten Verlauf (Gleichung 1.3)[37], für deren Erklärung es verschiedene Ansätze gibt[2]. Genannt werden Metallpartikel in der Barriere[40], Magnonen (erzeugt in der Barriere[41] oder der ferromagnetischen Elektrode[37, 42]), Wechselwirkungen

der Elektronen mit Phononen[43] sowie mehrstufige Tunnelprozesse über Defekt-Zustände in der Barriere[44].

Ein weiteres Problem ist, dass das Tunnelsystem nicht als ein gesamtes quantenmechanisches System berechnet wird, sondern angenommen wird, dass die Elektronenwellen aus einer Elektrode innerhalb der Barriere so stark abfallen, dass sie in der anderen bei der Berechnung vernachlässigt werden können. Bei dünnen/niedrigen Barrieren ist diese Annahme nicht mehr zulässig. Slonczewski[45] hat für magnetische Systeme als erster hierauf hingewiesen und das Tunnelement als ein gesamtes quantenmechanisches System berechnet, wobei er zur Vereinfachung eine parabolische Bandstruktur (freie Elektronen) angenommen hat. Für hohe Barrieren erhält er Julliere's Ergebnis[1] (Gleichung 1.13) und insbesondere ist sein Ergebnis unabhängig von der (experimentell leicht zugänglichen) Barrierendicke. Allgemein erhält er eine im Vergleich zur klassischen Tunneltheorie um den Faktor A verringerte Polarisation ($-1 < A < 1$), wobei der Vorzeichenwechsel (für kleine Barrierenhöhen) möglicherweise ein Artefakt der parabolischen Bandstruktur ist[2]. Stearns[46] hat 1977 aufgezeigt, dass eine realistische Bandstruktur Voraussetzung für die Berechnung des richtigen Vorzeichens ist.

Erschwerend kommt hinzu, dass die Spinpolarisation der tunnelnden Elektronen kritisch von der Grenzfläche zwischen ferromagnetischen Elektroden und der Barriere abhängen. So reicht eine Monolage Chrom zwischen ferromagnetischer Elektrode und der Barriere um den TMR Effekt zu unterdrücken[47]. Somit kann in theoretischen Arbeiten nicht auf die Bandstruktur des Bulk-Materials zurückgegriffen werden.

Zusammenfassend kann man feststellen, dass bis heute keine abgeschlossene Theorie vorliegt, die alle bekannten Phänomene erklärt.

1.2.1 Experimentelle Realisierung

Die unterschiedlichen Konfigurationen (parallel und antiparallel) der ferromagnetischen Schichten wird am einfachsten durch Verwendung zweier unterschiedlicher Materialien mit unterschiedlichen Koerzitivfeldstärken (H_{C1} und H_{C2}) erreicht. Fährt man ein äußeres Magnetfeld H von $-H_{\max}$ über 0 nach $+H_{\max}$ durch (wobei $H_{\max} > H_{C2} > H_{C1}$ ist), so sind zu Beginn die ferromagnetischen Schichten parallel ausgerichtet, im Allgemeinen ist der Widerstand dann klein[48, 49, 42]. Bei Erreichen von $H = +H_{C1}$ schaltet die erste ferromagnetische Schicht; der Widerstand ist groß. Wenn bei $H = +H_{C2}$ auch die zweite ferromagnetische Schicht schaltet sind beide Magnetisierungen wieder parallel und der Widerstand ist wieder klein. Abbildung 1.2a zeigt dieses schematisch. Eine solche Messung wird

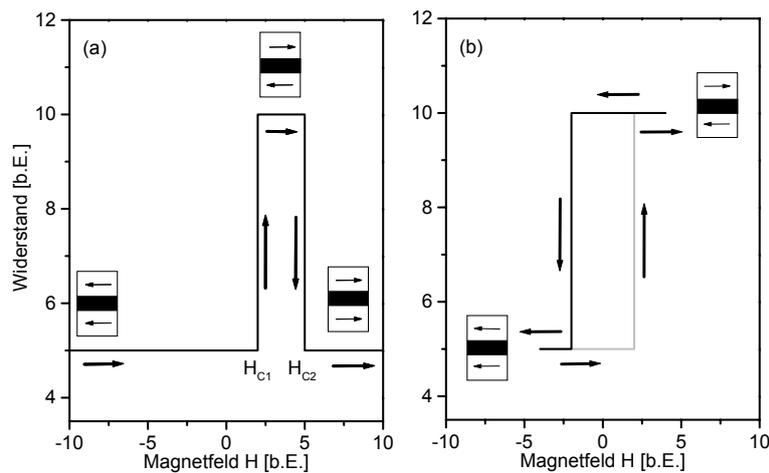


Abbildung 1.2: Schematischer Verlauf des Tunnelmagnetowiderstandes als Funktion eines äußeren Feldes: (a) Majorloop (b) Minorloop, aus[15]

Majorloop genannt. Fährt man das Feld nur von $H = -H_{\max}$ über $H = 0$ nach $H = +H_{12}$ (wobei $H_{C1} < H_{12} < H_{C2}$ ist) und zurück nach $H = -H_{\max}$, schaltet nur eine der beiden ferromagnetischen Schichten und man spricht von einem Minorloop. Abbildung 1.2b zeigt den sich ergebenden Verlauf des Widerstandes.

1.2.2 Anwendungen des Tunnelmagnetowiderstands

Der Tunnelmagnetowiderstandseffekt hat viele technische Anwendungsmöglichkeiten[4, 5], zum Beispiel in der Sensorik[7, 8] oder in Festplattenleseköpfen[50]. Da die weichmagnetische Elektrode auch durch in einen Mikrochip integrierte Leiterbahnen geschaltet werden kann[51, 52, 53], ermöglichen die zwei verschiedenen stabilen Zustände ohne äußeres Feld die Anwendung als Speicherzellen (Magnetic Random Access Memory, MRAM)[9, 10, 11, 12]. Motorola hat bereits einen 256kBit MRAM demonstriert[14] und einige technische Aspekte veröffentlicht[54]. Durch geeignete Verschaltung mehrerer TMR-Elemente können rekonfigurierbare logische Gatter (NAND, NOR etc.) gebildet werden[13], deren Rekonfiguration genauso schnell wie die Logikfunktion selbst funktioniert, so dass zum Beispiel eine völlig neue Art von Prozessoren möglich ist. Durch Isolation der magnetfelderzeugenden Leiterbahnen von den Leiterbahnen des TMR-Elements ist eine galvanische Trennung von Ein- und Ausgangssignal möglich[55]; eine solche Schaltung, vollständig integriert in einen mittels CMOS-Technologie gefertigten IC, wurde von der NVE Corporation demonstriert[56].

Bei einem „Magnetischen Tunnel Transistor“ (MTT) wird die sehr dünne untere Elektrode direkt auf einem halbleitenden Material aufgebracht. Die sich im Halbleiter ausbildende Schottky Barriere kann nur von Elektronen mit einer Energie größer als die Barrierenhöhe überwunden werden. Da aber die untere Elektrode und der Halbleiter auf das gleiche Potenzial gelegt werden, können nur solche Elektronen die Schottky Barriere überwinden, die nach dem Tunneln nicht in der unteren Elektrode gestreut wurden; sogenannte „heiße Elektronen“. Aufgrund der spinabhängigen Streuung im unteren Ferromagnet wirkt dieser als Spinfilter, so dass für die heißen Elektronen theoretisch eine Spinpolarisation nahe 100% erzielbar ist[57]. Die Effektamplitude (hier definiert als $\frac{I_{\uparrow\uparrow}-I_{\uparrow\downarrow}}{I_{\uparrow\uparrow}}$) ergibt sich direkt aus der Spinpolarisation, lediglich verringert durch Leckströme. Die Arbeitsgruppe um Stuart Parkin berichtet von einem MTT auf GaAs mit einer Effektamplitude

von 64% bei Raumtemperatur[57]. Allerdings kompensieren sie die Leckströme durch eine Gegenspannung, wobei nicht klar ist, wie sie den Leckstrom bestimmen. Kürzlich ist es uns gelungen, MTTs herzustellen, die eine Effektamplitude von etwa 140% bei 10K aufweisen (ohne Gegenspannung)[58]. Durch Anlegen einer Gegenspannung kann beispielsweise der Strom in antiparalleler Konfiguration kompensiert werden, so dass der Effekt auch bei Raumtemperatur beliebig hoch gemessen wird.

1.3 Oxidation von Metallen

Die natürliche und thermische Oxidation sind physikalisch gut verstanden[59, 60], während die Unterschiede zwischen thermischer und Plasmaoxidation kaum verstanden sind[3]. Zuerst wird kurz auf die natürliche Oxidation eingegangen.

1.3.1 Natürliche Oxidation

Cabrera und Mott[59] haben bereits 1949 ein im wesentlichen noch heute gültiges Modell für die natürliche Oxidation aufgestellt. Dabei folgt die Oxidation je nach der Dicke der bereits gebildeten Oxidschicht unterschiedlichen Mechanismen. Wird eine Metallschicht reinem molekularen Sauerstoff ausgesetzt, so lagert sich Sauerstoff an der Oberfläche an und aufgrund der direkten Wechselwirkung des Sauerstoffs mit dem Metall bildet sich eine Monolage Metalloxid[61]. Im folgenden dissoziiert Sauerstoff an der Oxidoberfläche und wird absorbiert, kann aber nicht mehr unmittelbar mit dem Metall wechselwirken. Die unterschiedlichen Fermi-niveaus der Metall- und Sauerstoffschicht sind eine treibende Kraft für die Elektronen des Metalls, so dass diese durch die Oxidschicht tunneln bis die Niveaus angeglichen sind. Zwischen Metall und dem absorbierten Sauerstoff bildet sich eine Spannung $\Delta\Phi$ aus, die so genannte *Mott-Spannung*. Abbildung 1.3 zeigt die zugehörigen Energieniveaus.

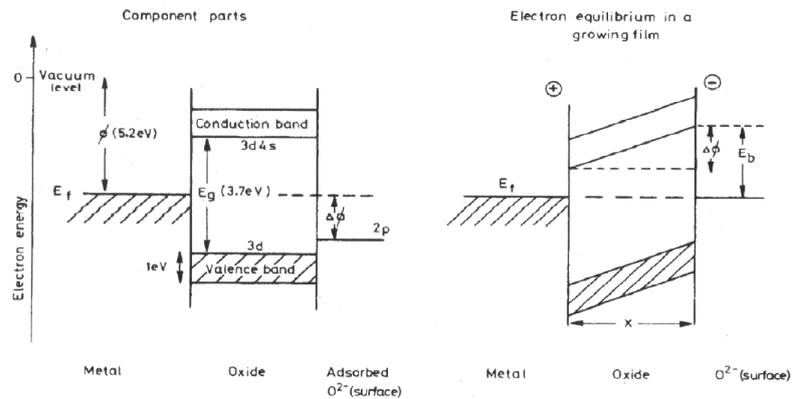


Abbildung 1.3: Energieniveaus an der Grenzfläche Metall-Oxid-Sauerstoff. Links: Ausgangszustand, rechts: nach dem Tunneln von Metallelektronen durch die Oxidschicht bildet sich ein elektrisches Feld. Aus[62].

Das resultierende elektrische Feld verursacht die Diffusion der Metallionen durch das Oxid zu der Oberfläche, wo sie mit dem Sauerstoff zu Metalloxid reagieren. Der Tunnelprozess bestimmt die Oxidationsrate, so dass sich insgesamt eine mit der Zeit exponentiell abnehmende Oxidationsgeschwindigkeit ergibt. Bei höheren Temperaturen bestimmt die thermische Diffusion die Oxidationsrate[63, 64] (thermische Oxidation) und ab etwa 300°C werden beliebig dicke Aluminium-Schichten durchoxidiert[59].

1.3.2 Plasmaoxidation

Experimentelle Arbeiten zeigen, dass bei Plasmaoxidation von Aluminium die Sauerstoffkonzentration im Metall(-oxid) logarithmisch mit der Zeit zunimmt[65]. Durch sukzessive Plasmaoxidation mit zwei verschiedenen Sauerstoffisotopen (¹⁸O₂ und ¹⁶O₂) und anschließender Aufnahme von Tiefenprofilen gelangen Kuiper *et al.*[66] der Nachweis, dass wie bei der natürlichen Oxidation Aluminium zur Oberfläche diffundiert und dort von dem Sauerstoff oxidiert wird. Die Annahme, dass dieser Diffusionsprozess wie bei der natürlichen Oxidation die Oxidationsrate bestimmt, kann die logarithmische Zunahme der Sauerstoffkonzentration erklären.

Die gleiche Arbeitsgruppe[67] hat Kobalt/Aluminium Doppellagen oxidiert und einen linearen Anstieg des Tunnelwiderstandes mit der Oxidationszeit gefunden. Sobald genug Sauerstoff für die vollständige Oxidation des Aluminiums eingebracht ist, beobachten sie ein steileren, aber wieder linearen Anstieg des Widerstandes mit der Zeit. Dieses erklären sie mittels Oxidation der darunterliegenden Kobaltschicht. In einer späteren Veröffentlichung[66] zeigen sie, dass das Kobaltoxid unterhalb der Aluminiumoxidschicht gebildet wird, das Kobalt diffundiert also im Gegensatz zum Aluminium nicht durch die Aluminiumoxidschicht. Sie sehen Anzeichen, dass der in den ersten Sekunden eingebrachte Sauerstoff später das Kobalt oxidiert. Der Sauerstoff ist somit nicht fest an das Aluminium gebunden, sondern wird mit fortschreitender Oxidation kaskadenartig an das darunterliegende Kobalt abgegeben.

Wenn auch die Plasmaoxidation selbst kaum verstanden ist, gibt es doch ein Modell für den Einfluss der kinetischen Energie der Sauerstoffionen auf den Oxidationsprozess. Roos hat dieses Modell in seiner Dissertation aufgestellt[68]: Treffen Sauerstoffionen mit kinetischer Energie auf eine metallische Schicht, so dringen sie in die Schicht ein. Durch Streuung an Metallionen verlieren Sie Energie und verbleiben in der Schicht. Die maximale Eindringtiefe in das Metall hängt von der kinetischen Energie ab. Dieser Prozess wird Ionen-Embedding genannt. Roos nimmt an, dass das Metall bis zur Embedding-Reichweite d_{Emb} (definiert als 98% der maximalen Eindringtiefe) homogen oxidiert wird. Eine Simulation der Embedding-Reichweite von O^+ -Ionen in Aluminium ist in Abbildung 1.4 dargestellt. Diese Ionenreichweite gilt auch für Al_2O_3 , da sich die größere Schichtdicke mit der höheren Ionenreichweite im Oxid kompensiert. Sacher konnte dieses Modell im Rahmen seiner Diplomarbeit experimentell an der ECR-Plasmaquelle bestätigen[69]. Für sehr dünne Tunnelbarrieren, die mittels Plasmaoxidation hergestellt werden sollen, ist somit eine Quelle nötig, die niederenergetische Sauerstoffionen generiert.

In dieser Arbeit wurde bei der Plasmaoxidation von Aluminium mit nieder-

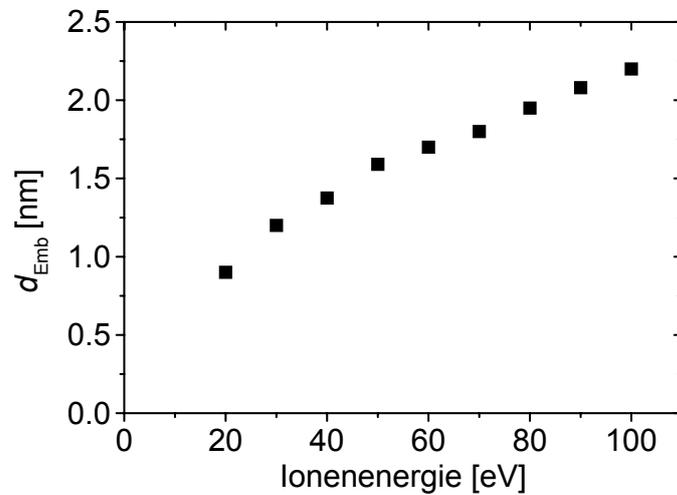


Abbildung 1.4: Simulation der Embedding-Reichweite d_{Emb} von O^+ -Ionen in Aluminium als Funktion der Ionenenergie (nach [68])

energetischen Sauerstoffionen im Vergleich zur natürlichen Oxidation eine deutlich höhere Oxidationsrate gefunden. Dieses kann von der höheren Reaktivität der Ionen an sich verursacht sein, so dass mehr Sauerstoff an der Oxidoberfläche absorbiert wird. Angeregte Zustände spielen aufgrund ihrer Kurzlebigkeit und der Entfernung des Plasmas zur oxidierenden Probe nur eine untergeordnete Rolle.

1.4 Magnetismus von Kobalt-Chrom

Die phänomenologischen Grundlagen des Magnetismus sind gut verstanden und in zahlreichen Lehrbüchern erklärt, z.B.[70, 71, 72].

Die in dieser Arbeit an Kobalt-Chrom Legierungen beobachteten magnetischen Hystereseschleifen (siehe Kapitel 3) sind erklärbar, wenn als Ummagnetisierungsprozess Domänenwandverschiebung angenommen wird. Kim und Oliveria[73] haben dieses Phänomen experimentell an Eisen Schichten untersucht und theoretisch beschrieben. Sie definieren die Koerzitivfeldstärke im Einklang

mit anderen Theorien[74] zu

$$H_C = \frac{1}{2M_S} \left(\frac{\partial \gamma_W}{\partial x} \right), \quad (1.14)$$

wobei M_S die Sättigungsmagnetisierung und γ_W die Domänenwandenergiedichte sind. Den Gradienten der Domänenwandenergie bestimmen sie mittels Kersten's Fremdkörper-Theorie[75]. Kersten geht davon aus, dass sich in jedem ferromagnetischen Werkstoff unvermeidbare Verunreinigungen befinden, teils in echter Lösung, also in atomdisperser Verteilung im Mischkristall, teils in Form heterogener Einschlüsse, von denen jedes einzelne Teilchen zumeist aus sehr vielen Atomen eines Fremdstoffes besteht. Diese Theorie setzt voraus, dass die Domänenwandbreite klein gegenüber der Größe der eingeschlossenen Fremdkörper ist, was in gesputterten Schichten nicht immer gewährleistet ist. Für die Koerzitivfeldstärke erhalten sie

$$H_C = \frac{1.2\gamma_W f^{\frac{2}{3}}}{M_S r}, \quad (1.15)$$

wobei f der Volumenanteil der Fremdkörper und r der Radius der Fremdkörper sind. Für die Energiedichte einer Néel-Domänenwand geben sie

$$\gamma_{W,N} = A \left(\frac{\pi}{\delta} \right)^2 \delta + \frac{1}{2} \delta K + \left(\frac{\pi \delta t}{\delta + t} M_S^2 \right) \quad (1.16)$$

an, wobei δ die Domänenwandbreite, A die Austauschkonstante, K die Anisotropiekonstante und t die Schichtdicke ist. Eingesetzt in Gleichung 1.15 ergibt:

$$H_{C,N} = \frac{1.2\pi f^{\frac{2}{3}}}{r M_S} \left[A \left(\frac{\pi}{\delta} \right) + \frac{\delta}{2\pi} K + \left(\frac{\delta t}{\delta + t} \right) M_S^2 \right]. \quad (1.17)$$

Für reale Werte können laut Kim und Oliveria im (nicht näher definierten) „interessierenden Bereich“ die Austausch- und Anisotropiebeiträge vernachlässigt werden sowie $\frac{\delta t}{\delta + t} = t$ gesetzt werden. Die Gültigkeit dieser Annahmen diskutiere ich später in diesem Kapitel. Sie erhalten somit einen proportionalen Zusammenhang zwischen Schichtdicke und Koerzitivfeldstärke:

$$H_{C,N} = \frac{1.2\pi f^{\frac{2}{3}} M_S t}{r}. \quad (1.18)$$

Ein solches Verhalten wurde experimentell z.B. für dünne Kobalt Schichten gefunden[76]. Für die Energiedichte einer Bloch-Domänenwand geben Kim und Oliveria

$$\gamma_{W,B} = A \left(\frac{\pi}{\delta} \right)^2 \delta + \frac{1}{2} \delta K + \left(\frac{\pi \delta^2}{\delta + t} M_S^2 \right) \quad (1.19)$$

an, die Koerzitivfeldstärke sinkt mit steigender Schichtdicke:

$$H_{C,B} = \frac{1.2\pi f^{\frac{2}{3}}}{r M_S} \left[A \left(\frac{\pi}{\delta} \right) + \frac{\delta}{2\pi} K + \left(\frac{\delta^2}{\delta + t} \right) M_S^2 \right]. \quad (1.20)$$

Der Austauschbeitrag kann wieder vernachlässigt werden, ebenso der Anisotropiebeitrag für kleine Schichtdicken:

$$H_{C,B} = \frac{1.2\pi f^{\frac{2}{3}} M_S}{r} \left(\frac{\delta^2}{\delta + t} \right). \quad (1.21)$$

Bei sehr großen Schichtdicken dominiert der Austauschbeitrag und die Koerzitivfeldstärke ist unabhängig von der Schichtdicke.

Für $t < \delta$ ist die Néel-Domänenwand und für $t > \delta$ ist die Bloch-Domänenwand energetisch günstiger, siehe auch[77, 78].

Die Annahmen, die zur Gleichung 1.18 führen, bedürfen einiger Diskussion. Für die auch von Kim und Oliveria angegebenen Werte von Eisen ist der Austauschbeitrag nicht vernachlässigbar, sondern genauso groß wie der magnetostatische Beitrag einer 3nm dicken Schicht. Für Kobalt beträgt diese Dicke 8nm. Weiterhin gilt die Näherung $\frac{\delta t}{\delta + t} = t$ nur für $t \ll \delta$, aber $t = 0 \dots \delta$. Bei $t = \delta$ ist z.B. $\frac{\delta t}{\delta + t} = \frac{t}{2}$. Daher werden in dieser Arbeit die Gleichungen ohne diese Näherungen verwendet. Warum Kim und Oliveria diese Näherung machen, bleibt unklar. Festzuhalten ist, dass ohne diese Näherung die Übereinstimmung ihrer Messergebnisse mit der phänomenologischen Theorie deutlich schlechter ist.

Somit lässt sich zusammenfassen: Wenn die Ummagnetisierung über Domänenwandverschiebung erfolgt, wird somit für die Koerzitivfeldstärke folgende Abhängigkeit von der Schichtdicke t erwartet:

Für $t < \delta$

$$H_C = H_{ex} + \frac{1.2\pi f^{\frac{2}{3}} M_S}{r} \frac{\delta t}{\delta + t}, \quad (1.22)$$

und für $t > \delta$

$$H_C = H_{ex} + \frac{1.2\pi f^{\frac{2}{3}} M_S}{r} \frac{\delta^2}{\delta + t}, \quad (1.23)$$

wobei

$$H_{ex} = \frac{1.2\pi^2 A f^{\frac{2}{3}}}{M_S \delta r}. \quad (1.24)$$

Da die Koerzitivfeldstärke von der Sättigungsmagnetisierung M_S abhängig ist, wird die Abhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung von der Schichtdicke betrachtet. Die spontane Magnetisierung eines Ferromagneten bei tiefen Temperaturen kann mit Hilfe der Spin-Wellen-Theorie berechnet werden[72]. Atome an der Oberfläche eines Festkörpers haben weniger direkte Nachbarn, so dass die Summe der direkten Austauschkräfte reduziert ist. Je größer der Anteil der Oberflächenatome, desto kleiner ist die spontane Magnetisierung. Berechnungen[79, 80, 81] sagen eine Verringerung für Schichten dünner als 10nm voraus. Bei Experimenten in den fünfziger Jahren wurde genau dieses auch für die Sättigungsmagnetisierung gemessen[82, 83, 84, 85]. Ende der fünfziger Jahre wurde bei Messungen an Schichten, die unter besseren Vakuumbedingungen (10^{-9} mbar im Vergleich zu etwa 10^{-5} mbar) abgeschieden wurden, der Bulkwert bis hinab zu etwa 2nm Dicke gefunden[86]. Später wurde für Eisen[87] und Nickel[88] der Bulkwert für alle Atomlagen ab der dritten gefunden, während die ersten beiden Lagen als „magnetisch tot“ beschrieben wurden. Mittlerweile werden diese „toten Lagen“ mittels Wasserstoff-Kontamination erklärt[89]. Somit kann in den Gleichungen 1.23 und 1.24 M_S als konstant angenommen werden.

H_C wird maximal, wenn $t = \delta$ ist. Kim und Oliveria haben bei Eisen Schichten für diese Dicke je nach Wachstumsbedingungen Werte zwischen 20 und 50nm erhalten. Um die Domänenwandbreite δ zu bestimmen, brauchen obige Gleichungen nur an die gemessene Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke von der Schichtdicke angepasst zu werden. M_S wird in dieser Arbeit mit einem Alternating Gradient Magnetometer (AGM) ermittelt, so dass nur noch f und r bestimmt werden müssen. Kobalt-Chrom Schichten weisen ein säulenartiges Wachstum auf, wobei

Segregation von Chrom in den Säulengrenzen auftritt[90]. Diese chromreichen Säulengrenzen sind die Fremdkörper, deren Volumenanteil f näherungsweise als der Chromanteil der Legierung angenommen werden kann. Allerdings sind die Fremdkörper keine kugel- oder würfelförmige Fremdkörper wie in Kerstens Theorie, sondern umschließen die Säulen. Die Domänenwände müssen durch ringartige Bereiche laufen, deren Radius gleich dem Radius der Säulen ist. Die Form der Fremdkörper geht in den Gleichungen 1.22 und 1.23 ausschließlich in den Exponenten von f ein[75].

Da die direkte Austauschwechselwirkung zwischen den einzelnen Säulen aufgrund der Chrom-reichen Säulengrenzen stark reduziert ist, können die Säulen bezüglich der Formanisotropie unabhängig voneinander betrachtet werden: Für $t > 2r$ sind die Säulen breiter als hoch und somit ist die senkrechte Magnetisierung energetisch günstiger, während für $t < 2r$ entsprechend die in-plane Magnetisierung günstiger ist. Kobalt-Chrom wächst vorzugsweise in hcp-Struktur[91] mit einer uniaxialen Anisotropie in Richtung der c-Achse. Bei texturiertem Wachstum mit c-Achse senkrecht zur Schicht, wie es für Materialien mit hcp-Struktur bevorzugt ist[92], kann auch für $t < 2r$ die leichte Richtung out-of-plane liegen[93, 94]. Die Formanisotropieenergie hängt von M_S ab[72], wobei M_S für Kobalt-Chrom eine Funktion des Chrom-Gehalts ist[90]. Es wurden verschiedene Kobalt-Chrom Legierungen im Hinblick auf magnetische Speichermedien mit senkrechter Magnetisierung untersucht[95, 96, 97]. Mändl fand, dass für zwischen 20 und 26 at% Chrom bei 200nm Schichtdicke die leichte Richtung out-of-plane liegt, während sie für 18, 19 und 29 at% in Schichtebene liegt[90].

Kapitel 2

Probenpräparation

Zur Herstellung der TMR-Schichtsysteme wurden zwei verschiedenen Vakuumapparaturen mit Magnetron-Sputter-Quellen genutzt. Die Vakuumapparatur der Firma Bestec wurde nachträglich mit acht selbstentwickelten Magnetron Quellen ausgerüstet[98]. Die Proben müssen von Hand in die einzelnen Kammern gebracht werden, während der Sputterprozess selbst von einem PC gesteuert wird, wodurch eine hohe Reproduzierbarkeit gewährleistet ist. Die Tunnelbarriere besteht bei allen Proben aus einer nachträglich oxidierten Aluminium-Schicht. Mit beiden in der Kammer verfügbaren Oxidationsmethoden (natürlich und UV-unterstützt[21, 99]) ist keine ausreichende Oxidation der Aluminium-Schicht erzielbar. Daher wurde die Oxidation in einer externen Kammer durchgeführt. Diese Oxidation erfolgte mit der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Pulsplasma-Oxidationsmethode (siehe Kapitel 4). Da das Vakuum wegen dieses Prozessschrittes gebrochen werden musste, konnten die Schichten oberhalb der Tunnelbarriere durch eine Lochmaske gesputtert werden, die vor dem Einschleusen in die Sputterkammer per Hand aufgesetzt wurde. Die so hergestellten Elemente (Größe: 0.03, 0.12 und 0.2mm²) können ohne weitere Strukturierungsschritte hinsichtlich des TMR vermessen werden. In dieser Apparatur wurden die Schichten mit Co₈₃Cr₁₇ als Elektrodenmaterial präpariert. Eine detaillierte Beschreibung die-

ser Apparatur (mit Ausnahme der Pulsplasma-Oxidationskammer) findet sich in meiner Diplomarbeit[98].

Die zweite Apparatur ist eine vollautomatisierte 6-Quellen Sputteranlage der Firma Leybold Dresden. An eine zentrale Handlerkammer sind insgesamt vier Kammern angeflanscht: eine Schleusenkammer, eine Sputterkammer, eine Oxidationskammer mit einer ECR¹-Plasma-Quelle[100] und eine zweite Oxidationskammer mit einer selbst entwickelten und gefertigten Pulsplasma-Quelle. Da der in dieser Apparatur vorhandene Maskenwechsler die Masken nicht reproduzierbar in einem geeignet kleinen Abstand zum Wafer positioniert, wurden die Schichten flächig abgeschieden und anschließend mittels optischer Lithographie und Ionenstrahlätzen strukturiert, wobei Elementgrößen von etwa 50 bis 250000 μm^2 realisiert werden. Eine detaillierte Beschreibung dieses Prozesses (mit Ausnahme der Pulsplasma-Oxidation) findet sich in [69]. In dieser Apparatur wurden die Schichten mit $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ als Elektrodenmaterial präpariert.

Die elektrische Charakterisierung geschah in einer hierfür entwickelten Messapparatur. Die Kontaktierung erfolgte (unter einem Stereomikroskop) unmittelbar durch vier geschliffene Goldnadeln, die jeweils mittels dreier Mikrometertische genau positioniert werden können. Die Goldnadeln sind nach einem vorhergehenden Ausglühprozess hinreichend weich, so dass selbst Elemente, deren Dicke oberhalb der Barriere weniger als 10nm beträgt, ohne Schädigung des Tunnelements sicher und reproduzierbar kontaktiert und vermessen werden können. Das Magnetfeld wird mittels eines Elektromagneten (uniaxial, bis 3500Oe) oder zweier senkrecht zueinander angeordneten Helmholtzspulenpaaren (bis 500Oe) erzeugt. Da die Tunnelemente schon durch Spannungen um 1.5V geschädigt werden², wurde in Zusammenarbeit mit D. Gollay von der Elektronik-Werkstatt der Universität Bielefeld eine Elektronik entwickelt, die auch bei Messungen

¹ECR: Electron-Cyclotron-Resonance

²während der Kontaktierung können aufgrund der Induktivitäten und Kapazitäten der Zuleitungen die Elemente schon durch Potentialdifferenzen von wenigen mV geschädigt werden

in Vierpunkt-Geometrie (und insbesondere während der Kontaktierung selbst) sämtliche Spannungen in unkritischen Größenbereichen hält. Die Schaltung regelt die angelegte Spannung so, dass über dem Element eine Sollspannung (frei wählbar im Bereich von $-2\text{V} \dots 0 \dots +2\text{V}$) abfällt. Der Strom wird über einen in der Elektronik integrierten Elektrometerverstärker gemessen. Der nutzbare Bereich beträgt 100mA bis etwa 100pA , so dass bei den für TMR Systeme üblichen Spannungen von 10 bis 100mV Widerstände von 0.1Ω bis über $1\text{M}\Omega$ mit ausreichendem Signal-Rauschverhältnis gemessen werden können. Der Messprozess selbst ist vollständig rechnergesteuert.

Die Auswertung der Messdaten erfolgte im Wesentlichen mit einem hierfür selbst entwickelten Visualisierungsprogramm, welches die interessierenden Eigenschaften auf Knopfdruck quantifiziert, und auch außerhalb unserer Arbeitsgruppe angewendet wird.

2.1 Schichtaufbau

Der allgemeine Schichtaufbau der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Tunnelsysteme ist in Abbildung 2.1 skizziert. Die untere und obere Zuleitung bestehen aus einer Tantal/Kupfer Doppellage. Das Tantal dient zum einen als Keimschicht, um eine definierte Textur in der folgenden Schicht zu erzielen[101], und zum anderen aufgrund seiner hohen atomaren Masse als Diffusionsbarriere. Die Barriere aus Aluminiumoxid wird durch Plasmaoxidation von Aluminium hergestellt. Die ferromagnetischen Schichten bestehen entweder aus Permalloy ($\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$, kurz Py) oder aus am antiferromagnetischen Mangan-Iridium gepinnten Kobalt-Eisen bzw. Permalloy (Exchange Bias[102]) oder einer der beiden in dieser Arbeit untersuchten Kobalt-Chrom Legierungen. Nach dem Abscheiden des vollständigen Schichtsystems und vor der Strukturierung wurde bei Schichtsystemen mit Mangan-Iridium dieses zum Einstellen des Exchange Bias in einem Vakuumofen bei 250°C für zwei Minuten in einem Magnetfeld von etwa 1000Oe

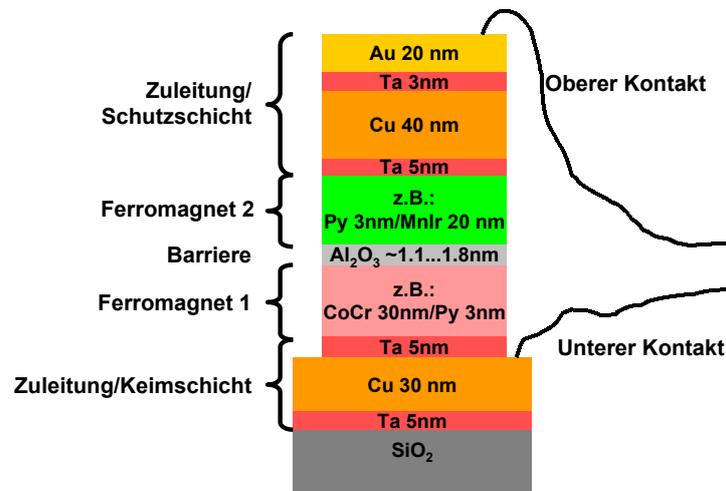


Abbildung 2.1: Schematischer Schichtaufbau der im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Tunnel-systeme

getempert.

Kapitel 3

Kobalt-Chrom als Elektrodenmaterial

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse von Untersuchungen zur Verwendbarkeit zweier Kobalt-Chrom Legierungen (13 at% und 17 at% Chrom) in magnetischen Tunnelementen dargestellt. Eine Zusammenfassung der Ergebnisse über die Legierung mit 17 at% Chrom wurde in [103] veröffentlicht.

Dünne Kobalt-Chrom-Schichten enthalten Regionen mit geringem Chrom Anteil, die voneinander durch paramagnetische Chrom-reichere Bereiche vorwiegend in den Korngrenzen isoliert sind[91, 90]. Diese Separation ist die Hauptursache für die Reduzierung der Austausch-Wechselwirkung der einzelnen Körner, woraus eine Erhöhung der Koerzitivfeldstärke resultiert. Für Untersuchungen der magnetischen Eigenschaften wurden Kobalt-Chrom-Schichten verschiedener Dicken ($t_{CoCr} = 0 \dots 60\text{nm}$) auf verschiedenen Unterlagen (Silizium-Oxid, Tantal_[3.3...5nm], Tantal_[5nm]/Kupfer_[45nm]) aufgesputtert und mit einer 2nm dicken Schutzschicht aus Aluminium abgedeckt. Für Untersuchungen der elektrischen Eigenschaften wurden vollständige Tunnelsysteme hergestellt

Die Textur der Schichtsysteme wurde mittels Röntgenreflektometrie untersucht. Leider war es nicht möglich, die Peaks eindeutig zu identifizieren, so dass

auf die so erzielten Ergebnisse nicht eingegangen wird.

3.1 Magnetische Eigenschaften von Kobalt-Chrom

Die magnetischen Eigenschaften der Kobalt-Chrom-Schichten hängen empfindlich von der Unterlage ab. Weiterhin beeinflusst eine auf die Kobalt-Chrom-Schicht aufgebrauchte Kobalt-Schicht die Hystereseurve stark.

Direkt auf oxidiertem Silizium gesputterte $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ -Schichten zeigen typischerweise eine Hystereseurve wie in Abbildung 3.1 dargestellt: Die Magnetisie-

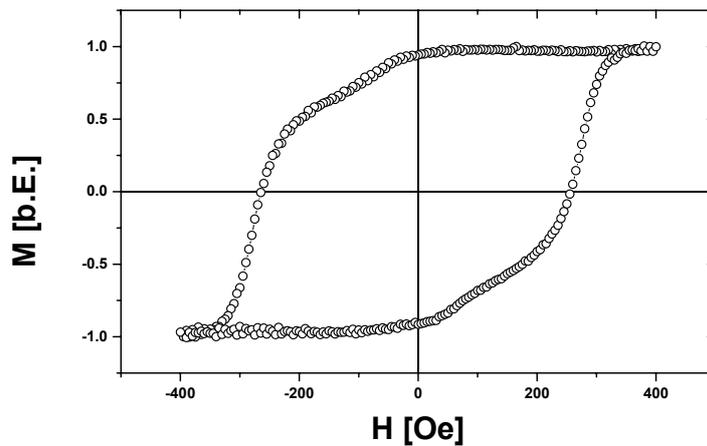


Abbildung 3.1: Die AGM Messung der in-plane Magnetisierung einer $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}[50\text{nm}]/\text{Al}[2\text{nm}]$ Schicht auf oxidiertem Silizium zeigt ein mehrmodales Schaltverhalten mit $H_C \approx 60$ Oe und 270 Oe

rung weist ein H_C von ≈ 270 Oe auf. Bei einem Feld von ≈ 60 Oe zeigt sich jedoch ein zusätzlicher Knick. Ein solcherart gestufter Verlauf findet sich für jede Schicht mit einer Dicke im Bereich von 10...60nm und reproduziert sich für unterschiedliche in-plane Richtungen. Rabe fand ein ähnliches Verhalten für

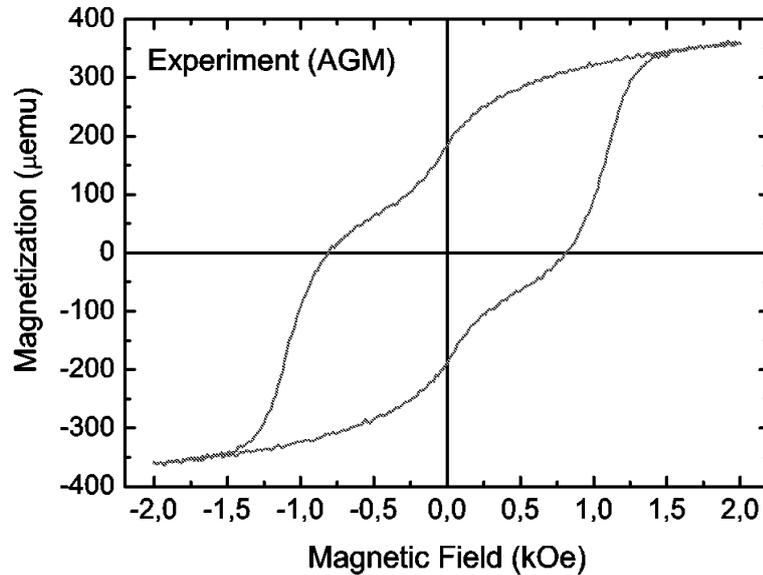


Abbildung 3.2: Die AGM Messung der in-plane Magnetisierung einer Co_5Sm - Schicht auf oxidiertem Silizium zeigt ein mehrmodales Schaltverhalten. Aus [104]

dünne Co_5Sm -Schichten[104]. Abbildung 3.2 zeigt eine Magnetisierungsmessung einer solchen Schicht. Als mögliche Erklärung nennt er die mögliche Kristallisation der einzelnen Körner in zwei verschiedenen Phasen (hcp und fcc), die eine um eine Größenordnung verschiedene Anisotropie aufweisen[105]. Als alternative Erklärung gibt Rabe eine ungleichmäßige Verteilung der Vorzugsrichtungen der magnetischen Anisotropie an. Er simuliert die Hysteresekurve unter folgenden Bedingungen: Die meisten Körner weisen eine in-plane Vorzugsrichtung in etwa der gleichen Richtung (normalverteilt um einen Winkel mit 5° Halbwertsbreite), und ein kleiner Teil der Körner weisen eine um 30° abweichende leichte Richtung auf. Die daraus erhaltene Hysteresekurve ähnelt der in Abbildung 3.2. Allerdings resultiert aus diese Annahmen eine starke Abhängigkeit der Hysteresekurve von der Richtung des externen Feldes, was für $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ nicht gefunden wurde.

Snyder und Kryder[91] vermuten, dass Kobalt-Chrom-Schichten (mit 22.7at% Cr) unter bestimmten Voraussetzungen nicht in zwei Phasen (siehe Kapitel 1.4), sondern in drei Phasen aufwachsen (alle hcp). Von diesen ist eine Chrom-reich

und paramagnetisch, die beiden anderen sind Kobalt-reich und ferromagnetisch. Sie haben die Magnetisierung gegen die Temperatur gemessen und gefunden, dass die Messung als Superposition zweier magnetischer Phasen mit unterschiedlicher Curie-Temperatur erklärt werden kann. Sie haben die Schichten ausschließlich auf geheizten Substraten (200°C - 450°C) abgeschieden, so dass ein direkter Vergleich mit den bei Raumtemperatur gesputterten Schichten nicht möglich ist. Das Magnetisierungsverhalten von $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ kann aber mit diesem Modell erklärt werden.

Während die Form der Hysteresekurve von der Schichtdicke unabhängig ist, nimmt die in-plane Koerzitivfeldstärke mit steigender Schichtdicke zu (Abbildung 3.3).

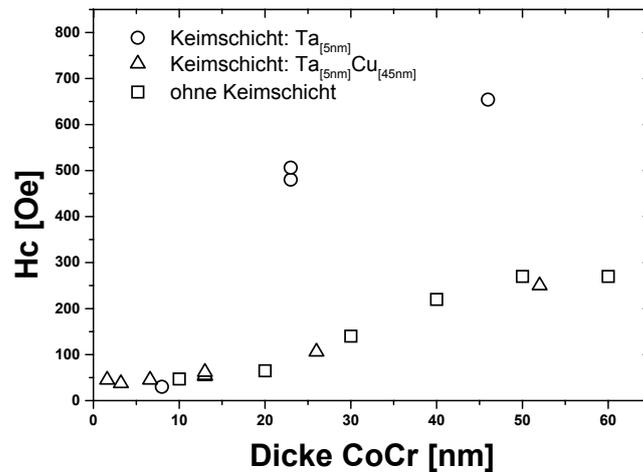


Abbildung 3.3: Die in-plane Koerzitivfeldstärke von $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ -Schichten auf Kupfer und Tantal steigt mit der Schichtdicke. Die Tantal-Keimschicht führt zu höherer Koerzitivfeldstärke als die Tantal/Kupfer-Keimschicht

Da die weichmagnetischere Phase eine relativ kleine Koerzitivfeldstärke aufweist, das Ziel dieser Untersuchungen aber eine hartmagnetische Elektrode für Tunnelmagnetowiderstandssysteme ist, wurde erforscht, ob Kupfer- oder Tantal-Keimschichten eine Verbesserung des magnetischen Verhaltens bewirken. Die

Abhängigkeit der in-plane Koerzitivfeldstärke von der $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ -Schichtdicke auf $\text{Ta}_{[3.3\text{nm}]}$ und $\text{Ta}_{[3.3\text{nm}]}/\text{Cu}_{[45\text{nm}]}$ sowie direkt auf Siliziumoxid ist in Abbildung 3.3 dargestellt. In allen drei Fällen nimmt die in-plane Koerzitivfeldstärke mit steigender $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ -Schichtdicke zu. Die auf $\text{Ta}_{[3.3\text{nm}]}/\text{Cu}_{[45\text{nm}]}$ gesputterten Schichten zeigen eine ähnliche in-plane Koerzitivfeldstärke wie die direkt auf Siliziumoxid gesputterten, allerdings ohne das unerwünschte zweistufige Verhalten, während die auf $\text{Ta}_{[3.3\text{nm}]}$ gesputterten Schichten eine deutlich höhere in-plane Koerzitivfeldstärke und ebenfalls das gewünschte einstufige Verhalten zeigen (Abbildung 3.4). Allerdings ist die Squaresness (das Verhältnis zwischen Remanenz

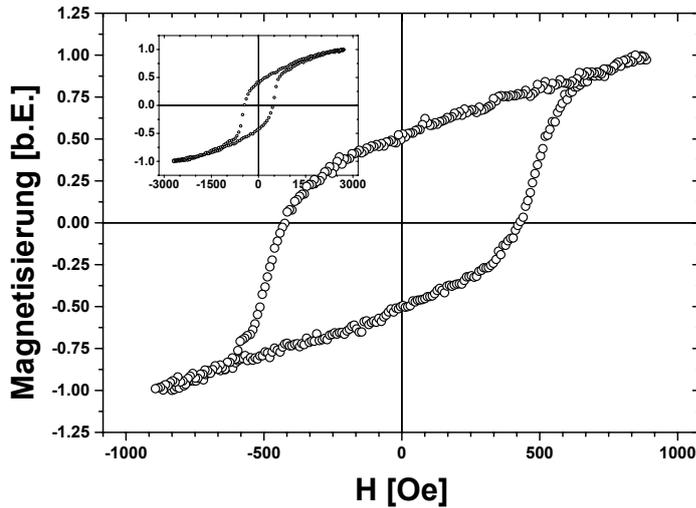


Abbildung 3.4: MOKE Messung der in-plane Magnetisierung einer $\text{Ta}_{[3.3\text{nm}]}/\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}[23\text{nm}]/\text{Al}_{[2\text{nm}]}$ Schicht. Der innere Schaukasten zeigt, dass die Schicht erst oberhalb von 2500 Oe gesättigt ist. Vermutlich liegt eine gering ausgeprägte leichte Achse senkrecht zur Schichtebene vor

und Sättigungsmagnetisierung) relativ klein. Da der Kurvenverlauf sich in unterschiedliche in-plane Richtungen nahezu reproduziert, wurde eine gering ausgeprägte leichte Achse senkrecht zur Schichtebene vermutet. Dieses konnte durch spätere Messungen senkrecht zur Schicht in einem neuen AGM, welches Magnetisierungsmessungen auch senkrecht zur Schicht sowie in größeren Feldern

ermöglicht, bestätigt werden. Abbildung 3.5 zeigt in- und out-of-plane Messungen an einer $\text{Ta}_{[3.3\text{nm}]}/\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17[23\text{nm}]}/\text{Al}_{[2\text{nm}]}$ Schicht. Die in der out-of-plane Messung sichtbare Hysterese zeigt, dass die Verteilung der leichten Richtungen eine senkrechte Komponente aufweist.

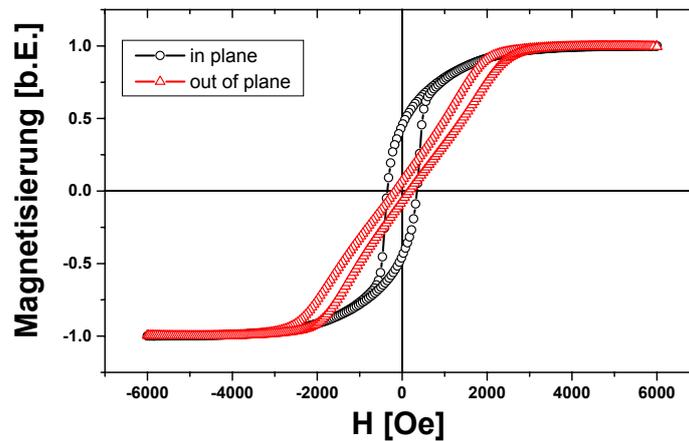


Abbildung 3.5: In- und out-of-plane Messungen an einer $\text{Ta}_{[3.3\text{nm}]}/\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17[23\text{nm}]}/\text{Al}_{[2\text{nm}]}$ Schicht

Es zeigte sich, dass bei $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ -Schichten, die mit einer dünnen Kobalt-Schicht abgedeckt sind ($\text{Ta}_{[3.3\text{nm}]}/\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17[t_{\text{CoCr}}]}$), die Hysteresekurve (Abbildung 3.6) eine Remanenz nahe eins bei einer nur unwesentlich verringerten in-plane Koerzitivfeldstärke aufweisen. Zurückzuführen ist dieses auf die geänderte Formanisotropie. Mit der geschlossenen dünnen Kobalt-Deckschicht ist die in-plane Magnetisierung energetisch günstiger; die Formanisotropieenergie ist nun größer als die Kristallanisotropieenergie. Zudem wird durch die Kobalt-Deckschicht auch eine Erhöhung der Spinpolarisation an der Barriere und somit eine Erhöhung des TMR-Effekts erzielt. Es hat sich gezeigt, dass eine dünne Kobalt-Schicht auch bei hartmagnetischem $\text{Co}_{75}\text{Cr}_{13}\text{Pt}_{12}$ eine Verbesserung der Squareness bewirkt[106].

Ein ähnliches Verhalten wird auch für die zweite untersuchte Kobalt-

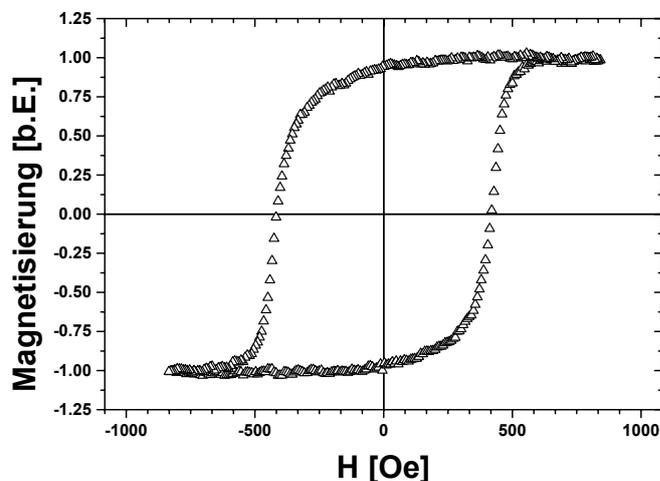


Abbildung 3.6: MOKE Messung der in-plane Magnetisierung einer $Ta_{[3.3nm]}/Co_{83}Cr_{17}[23nm]/Co_{[2.4nm]}/Al_{[2nm]}$ Schicht. Im Gegensatz zur Schicht in Abbildung 3.4 ist sie bei etwa 600 Oe gesättigt und die Remanenz ist nahe eins

Chrom Legierung gefunden. Abbildung 3.7 zeigt, dass auf Tantal aufgebrachte $Co_{87}Cr_{13}$ -Schichten eine höhere in-plane Koerzitivfeldstärke aufweisen als auf Tantal/Kupfer gewachsene Schichten. Während bei direkt auf dem Wafer (oxidiertes Silizium) aufgebrachten $Co_{87}Cr_{13}$ -Schichten die in-plane Koerzitivfeldstärke mit steigender Schichtdicke mindestens bis 100nm zunimmt, weisen die auf Tantal aufgebrachten Schichten bei 50nm ein Maximum auf. Eine 3nm dicke Kobalt-Deckschicht führt bei auf Tantal aufgebrachtem $Co_{87}Cr_{13}$ zu einer nur unwesentlichen Verringerung der Koerzitivfeldstärke. Für auf Tantal/Kupfer/Tantal aufgebrachte $Co_{87}Cr_{13}$ -Schichten wird der gleiche Verlauf wie bei den auf Tantal aufgebrachten Schichten beobachtet.

Auch für $Co_{87}Cr_{13}$ konnte durch spätere AGM-Messungen nachgewiesen werden, dass eine gering ausgeprägte leichte Achse senkrecht zur Schichtebene vorliegt (Abbildung 3.8).

Ein Anstieg der Koerzitivfeldstärke in Abhängigkeit von der Schichtdicke bei Kobalt-Chrom-Schichten findet sich ebenfalls in der Literatur. Bottoni *et*

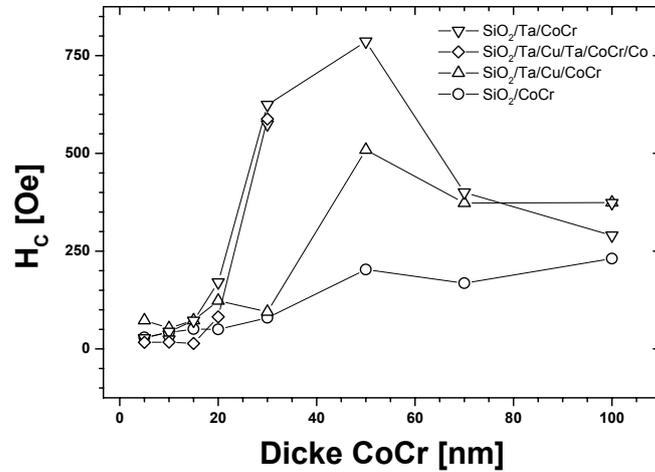


Abbildung 3.7: Die in-plane Koerzitivfeldstärke von auf oxidiertem Silizium aufgebrachtene $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ -Schichten steigt mit zunehmender Schichtdicke bis mindestens 100nm, während bei auf Tantal oder Tantal/Kupfer die Koerzitivfeldstärke bei 50nm ein Maximum erreicht. Wie bei $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ führt eine Tantal-Keimschicht zu höherer Koerzitivfeldstärke als die Tantal/Kupfer-Keimschicht. Die im Grafen eingezeichneten Verbindungen zwischen den einzelnen Messwerten dienen, wie in den folgenden Abbildungen, ausschließlich als Führung für das Auge

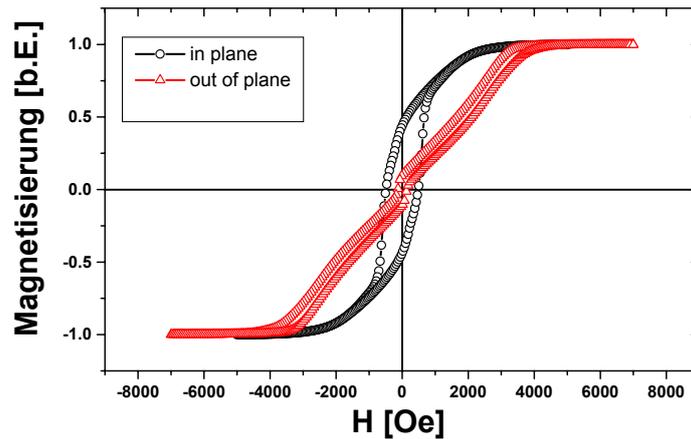


Abbildung 3.8: In- und out-of-plane Messungen an einer $\text{Ta}_{[5\text{nm}]}/\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13[30\text{nm}]}/\text{Al}_{[2\text{nm}]}$ Schicht

al.[107] haben Schichten mit 17, 19 und 22at% Chrom untersucht und erklären den Anstieg mit einer „höheren inneren Gleichmäßigkeit“, die die magnetostatische Wechselwirkung innerhalb der Kobalt-Chrom-Schichten beeinflusst. Das in Kapitel 1.4 dargestellte Modell kommt ohne solche Annahmen aus und kann auch das Maximum der Koerzitivfeldstärke von $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ -Schichten auf Tantal und Tantal/Kupfer bei einer Dicke von 50nm als Übergang von Néel- zu Bloch-Domänenwänden erklären.

Um quantitative Aussagen zu ermöglichen, wurde die Sättigungsmagnetisierung M_S für beide Kobalt-Chrom Legierungen für verschiedene Schichtdicken und Keimschichten bestimmt. Für $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ wurde $M_S = 750\text{G} \pm 10\%$ ermittelt, wobei der Wert nahezu unabhängig von der Keimschicht ist und sehr gut mit Ergebnissen von Mändl[90] übereinstimmt ($780 \pm 40\text{G}$). Er hat Kobalt-Chrom Legierungen von 15% bis 25% Chrom untersucht und einen linearen Anstieg der Sättigungsmagnetisierung mit sinkender Chrom Konzentration gefunden. Extrapoliert auf 13% Chrom ergibt sich ein größerer Wert als für $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ gemessen ($M_S = 830\text{G} \pm 10\%$). Da das von Mändl gefundene Ergebnis extrapoliert auf Null einen größeren Wert ergibt als die bekannte Sättigungsmagnetisierung von Kobalt, ist nicht sicher, ob der lineare Zusammenhang bis 13% gilt. Die Diskrepanz kann auch auf unterschiedliche Herstellungsparameter zurückzuführen sein, wie Mändl festgestellt hat. Die von ihm verwendete Apparatur hat einen um den Faktor zehn schlechteren Basisdruck und einen fünf bis zwanzig mal höheren Sputterdruck als die in dieser Arbeit verwendeten Sputteranlagen. Auch die in dieser Arbeit erzielten Ergebnisse für die beiden Kobalt-Chrom Legierungen können nicht unmittelbar verglichen werden, da sie in unterschiedlichen Apparaturen von konstruktiv verschiedenen Quellen gesputtert wurden. Es zeigte sich, dass sehr dünne Schichten eine höhere Sättigungsmagnetisierung besitzen. So wurde für 5.2nm $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ $M_S = 1036\text{G} \pm 10\%$ bestimmt. Aus der maximalen in-plane Koerzitivfeldstärke von $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ auf Tantal (Abbildung 3.7) bei 50nm Dicke berechnet sich der Radius der Fremdkörper zu etwa 25nm. Nach den Über-

legungen in Kapitel 1.4 ist dieses der Radius der Säulen. Vergleicht man dieses mit der mittels MFM bestimmten mittleren Domänenbreite (Kapitel 3.4, Abbildung 3.21) von 57nm so erhält man als Ergebnis, dass die Domänenbreite gleich dem Säulendurchmesser ist. Allerdings stimmt der von Gleichungen 1.22 und 1.23 vorhergesagte Verlauf (durchgezogene Kurve in Abbildung 3.9) nur tendenziell mit dem gemessenen überein.

Eine wesentlich bessere Übereinstimmung ergibt sich, wenn nicht die Schichtdicke für t eingesetzt wird, sondern die um eine Dicke l verringerte Schichtdicke. Mändl[90] hat bei gesputterten Kobalt-Chrom-Schichten eine mehrere 10nm dicke polykristalline Initialschicht gefunden, aus der die Säulen herauswachsen. Die Dicke l identifiziere ich mit der Dicke dieser Initialschicht. Bis etwa 20nm ist die gemessene in-plane Koerzitivfeldstärke nahezu konstant, um dann schnell mit weiterer Zunahme der Schichtdicke anzusteigen. Setzt man diese 20nm für l ein, so erhält man die beste Übereinstimmung (gestrichelte Kurve in Abbildung 3.9). Auf diese Weise erhält man einen Durchmesser der Fremdkörper bzw. der Säulen von etwa 25nm. Eine Initialschicht könnte auch die Abhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung von der Schichtdicke erklären.

Die auf Kupfer oder direkt auf Siliziumoxid aufgewachsenen Kobalt-Chrom-Schichten weisen eine geringere in-plane Koerzitivfeldstärke auf, als die auf Tantal aufgewachsenen Schichten. Leider konnte nicht die Dicke bestimmt werden, bei der die Koerzitivfeldstärke maximal ist, so dass über die Domänenwandbreite nur geschlossen werden kann, dass sie größer als bei auf Tantal gewachsenen Schichten ist. Da die Steigung von Gleichung 1.22 für kleine Schichtdicken t aber umgekehrt proportional zum Radius r der Fremdkörper bzw. der Säulen ist, sollte der Säulendurchmesser bei auf Kupfer gewachsenen Schichten um ein vielfaches größer sein. Zugleich ist r umgekehrt proportional zu H_C , so dass nach Abbildung 3.7 als obere Grenze für r der 3.5-fache Wert von auf Tantal gewachsenen Schichten angenommen werden kann. Für den Säulendurchmesser erhält man 90nm als obere Grenze. Der größere Säulendurchmesser kann zugleich die Ursache für die größere

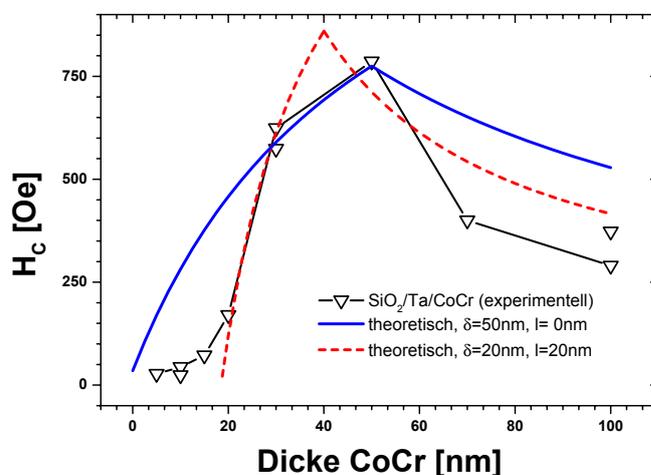


Abbildung 3.9: Vergleich von der gemessenen Abhängigkeit der in-plane Koerzitivfeldstärke von der Schichtdicke bei $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ -Schichten mit dem nach Gleichungen 1.22 und 1.23 berechneten Verlauf

Domänenwandbreite sein.

Abbildung 3.10 zeigt die Squareness der selben Proben wie in Abbildung 3.7. Diese nimmt mit steigender Schichtdicke ab, und zwar stärker bei den Schichten, die auf Tantal aufgewachsen sind und eine höhere in-plane Koerzitivfeldstärke haben, als bei den Schichten auf Kupfer oder oxidierten Siliziumoxid. Trägt man die Squareness über der in-plane Koerzitivfeldstärke auf (Abbildung 3.11), so liegen die Werte nahe einer Geraden, nur für die auf Tantal gewachsenen Schichten mit einer Dicke von über 50nm (durch die Einkreisung hervorgehoben) liegen außerhalb. Das sind dieselben Schichten, die in Abbildung 3.7 rechts vom Maximum der in-plane Koerzitivfeldstärke bei 50nm liegen. Man kann also zusammenfassen, dass eine höhere in-plane Koerzitivfeldstärke nur auf Kosten der Squareness erzielt werden kann, wobei auf Tantal nur Schichten mit maximal 50nm $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ sinnvoll sind.

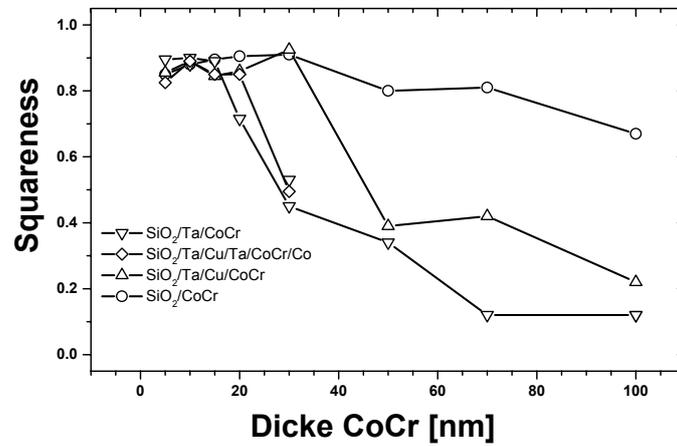


Abbildung 3.10: Die Abhängigkeit der Squareness von der Schichtdicke der selben Proben wie in Abbildung 3.7

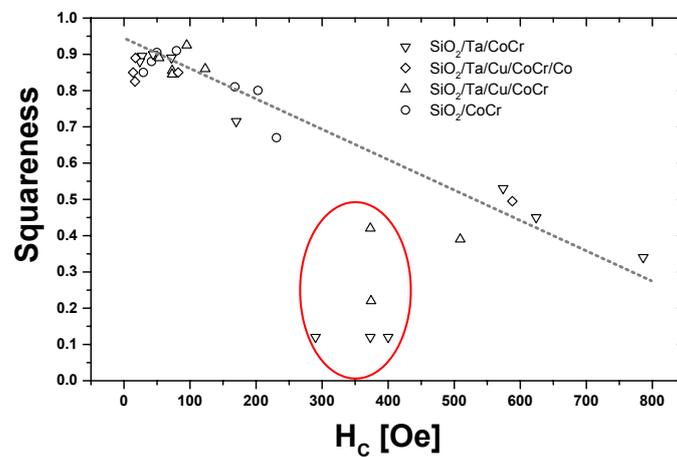


Abbildung 3.11: Das Verhältnis von Squareness zu in-plane Koerzitivfeldstärke der selben Proben wie in Abbildung 3.7. Die Werte für alle Proben liegen nahe an einer Geraden, nur die eingekreisten Werte befinden sich weit entfernt, hierbei handelt es sich um die auf Tantal gewachsenen Schichten, deren Co₈₇Cr₁₃-Dicke größer als 50nm ist

3.2 Temperaturstabilität von Kobalt-Chrom

Für viele Applikationen ist eine hohe Temperaturstabilität notwendig. Zum einen, um in den etablierten CMOS Prozess integriert werden zu können, bei dem zur Zeit je nach Hersteller Temperaturen zwischen 275°C [108] und 450°C [109] auftreten, zum anderen um die Anwendungen in heißen Umgebungen, wie zum Beispiel im KFZ in der Nähe der Bremsen (200°C [110]) oder unmittelbar in dem Verbrennungsmotor, zu ermöglichen. Ergebnisse aus unserer und anderen Arbeitsgruppen[109, 111, 112, 113, 16, 114] zeigen, dass ein kurzzeitiger Temperprozess zwischen 220°C und 300°C den TMR-Effekt erhöht. Die Tunnelbarriere aus Al_2O_3 selbst ist bis mindestens 500°C stabil und bildet eine Diffusionsbarriere für die anderen Schichtmaterialien[15]. Ist das Aluminium jedoch nicht vollständig oxidiert, diffundieren schon bei Temperaturen um 200°C Eisen, Nickel und Kobalt in die Barriere und reagieren mit dem AlO_x , so dass der TMR-Effekt einbricht[115, 116]. Bei vollständiger Oxidation des Aluminiums begrenzen die ferromagnetischen Elektroden somit die Temperaturstabilität eines TMR-Elements.

Im folgenden sind veröffentlichte Ergebnisse über die Temperaturstabilität verschiedener hartmagnetischer Elektroden in Tunnelsystemen aufgelistet:

- Für TMR-Elemente aus $\text{Ta}_{[7\text{nm}]}/\text{Cu}_{[4\text{nm}]}/\text{Ta}_{[7\text{nm}]}/\text{NiFe}_{[6\text{nm}]}/\text{CoFe}_{[3\text{nm}]}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFe}_{[3\text{nm}]}/\text{MnRh}_{[18\text{nm}]}$ oder $\text{TbCo}_{[12\text{nm}]}/\text{Ta}_{[3\text{nm}]}$ bricht der TMR-Effekt ab 220°C um über 50% ein, da das Exchange Bias der Antiferromagneten (Mangan/Rhodium oder Terbium/Kobalt) verloren geht[17].
- Bei Systemen mit Eisen/Mangan ($\text{Ta}_{[5\text{nm}]}/\text{NiFe}_{[6\text{nm}]}/\text{FeMn}_{[8\text{nm}]}/\text{CoFe}_{[4\text{nm}]}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFe}_{[2\text{nm}]}/\text{NiFe}_{[10\text{nm}]}/\text{Ta}_{[2\text{nm}]}$) bricht der TMR-Effekt zwischen 250°C und 300°C aus dem gleichen Grund um über 50% ein[112]. Findet die Auslagerung in einem Magnetfeld statt, so wird das Exchange Bias beim anschließenden Unterschreiten der Néel Temperatur wieder

eingestellt. Bei $\text{Ti/Pd/FeMn}_{[16\text{nm}]}/\text{CoFe}_{[2.4\text{nm}]}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFe}_{[2.4\text{nm}]}/\text{Pd}$ diffundiert ab 250°C Mangan zur Barriere und ab 350°C durch diese hindurch[117].

- Für $\text{Fe}_{[6\text{nm}]}/\text{Cu}_{[30\text{nm}]}/\text{Co}_{[1\text{nm}]}/\text{Cu}_{[1\text{nm}]}/\text{Co}_{[1.5\text{nm}]}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}_{[1\text{nm}]}/\text{Fe}_{[6\text{nm}]}/\text{Cu}_{[2\text{nm}]}/\text{Cr}_{[3\text{nm}]}$ diffundiert ab 270°C Kobalt in Richtung der Kupfer/Eisen Grenzflächen, der Oxidationsschutz der Kupfer/Chrom-Doppelschicht ist nicht mehr gewährleistet und der TMR-Effekt fällt bis etwa 300°C auf die Hälfte ab[15].
- Bei Systemen mit Mangan-Iridium ($\text{Ta}_{[9\text{nm}]}/\text{NiFe}_{[7\text{nm}]}/\text{CoFe}_{[3\text{nm}]}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFe}_{[4\text{nm}]}/\text{MnIr}_{[25\text{nm}]}/\text{Ta}_{[3\text{nm}]}$) wurde ab etwa 320°C ein Abfall des TMR Effekts um 50% gefunden[118]. Bei $\text{Ti/Pd/MnIr}_{[16\text{nm}]}/\text{CoFe}_{[2.4\text{nm}]}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFe}_{[2.4\text{nm}]}/\text{Pd}$ diffundiert ab 300°C Mangan zur Barriere[117].
- Bei $\text{Ta}_{[5\text{nm}]}/\text{Cu}_{[30\text{nm}]}/\text{CoFe}_{[1.5\text{nm}]}/\text{Ru}_{[0.9\text{nm}]}/\text{CoFe}_{[2.2\text{nm}]}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{NiFe}_{[6\text{nm}]}/\text{Ta}_{[5\text{nm}]}$ diffundiert Kobalt ab 250°C zur Tantal/Kupfer-Grenzschicht und ab 300°C Kupfer in Richtung der Barriere. Bis 350°C fällt der TMR-Effekt auf die Hälfte ab[119], was durch eine Monolage Kupfer an der Barriere erklärt werden kann (gezeigt an $\text{Co/Al}_2\text{O}_3/\text{Co}$ Tunnelsystemen)[120]).
- Parkin *et al.* haben 1999 eine hartmagnetische Legierung ($\text{Co}_{75}\text{Pt}_{12}\text{Cr}_{13}$) in magnetischen Tunnelementen untersucht[16] ($\text{CrV}_{[25\text{nm}]}/\text{CoPtCr}_{[15\text{nm}]}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoPt}_{[15\text{nm}]}/\text{Al}_{[20\text{nm}]}$). Die Elemente wurden von 50°C bis 430°C sukzessiv für 65 Minuten ausgelagert. Abbildung 3.12 zeigt die Abhängigkeit des TMR-Effekts und des Flächenwiderstandes von der Auslagerungstemperatur. Bis etwa 300°C variiert der Flächenwiderstand nur geringfügig und der TMR-Effekt bleibt nahezu konstant. Bis 370°C fällt der Widerstand stetig um etwa 20%, der TMR-Effekt nimmt etwas stärker ab, oberhalb von 370°C bricht der TMR-Effekt dann um über 50% ein. Somit ist dieses System thermisch stabiler als die zuvor erwähnten. Allerdings ist der TMR-

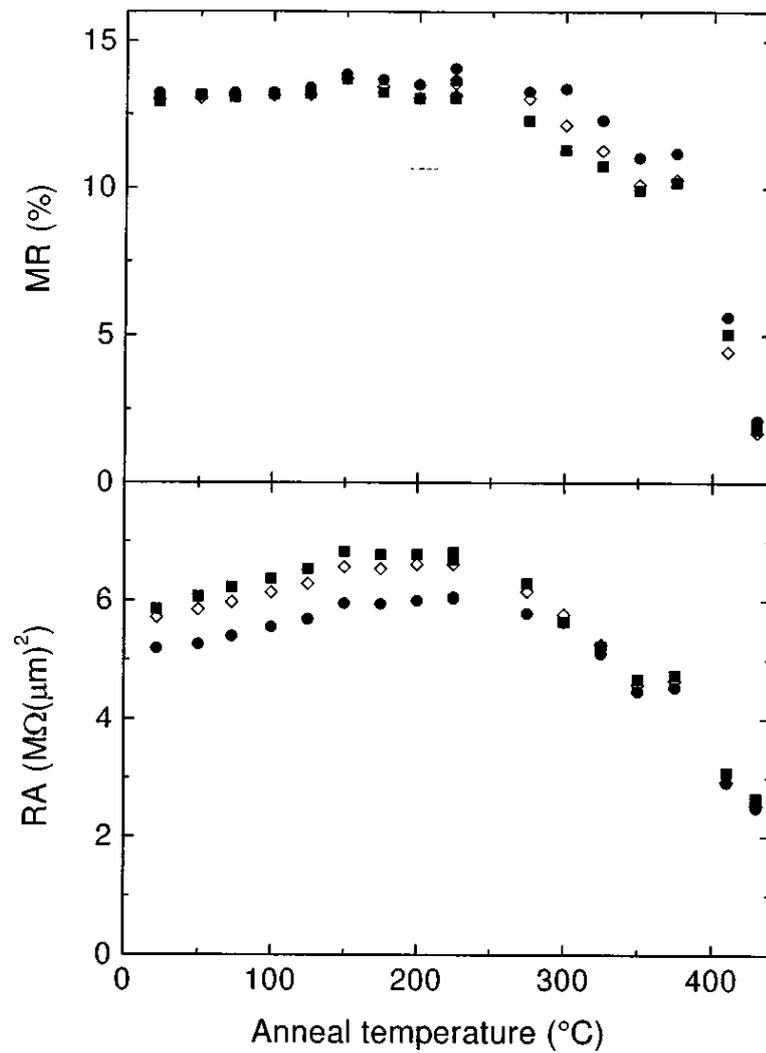


Abbildung 3.12: TMR-Effekt und Flächenwiderstand von TMR-Systemen mit $\text{Co}_{75}\text{Pt}_{12}\text{Cr}_{12}$ als hartmagnetische Elektrode in Abhängigkeit von der Auslagerungstemperatur (sukzessiv, für je 65Min), aus [16]

Effekt recht gering, die Verwendung von Kobalt als weichmagnetische Elektrode oder einer dünnen Kobalt-Schicht zwischen dem $\text{Co}_{75}\text{Pt}_{12}\text{Cr}_{12}$ und der Barriere führten nicht zu einer Erhöhung des TMR-Effekts. Bei der Bewertung der erzielten Effekthöhe muss berücksichtigt werden, dass damals allgemein noch nicht so hohe TMR-Effekte wie heute erreicht wurden, das Maximum lag bei etwa 30%.

Somit scheinen hartmagnetische Legierungen ein guter Kandidat für temperaturstabile Elektroden in magnetischen Tunnелеlementen zu sein.

3.2.1 Temperaturstabilität von $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$

Es wurde die Temperaturstabilität von auf Tantal gewachsenen $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ und $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}/\text{Co}$ -Schichten untersucht. In Abbildung 3.13 ist die Abhängigkeit

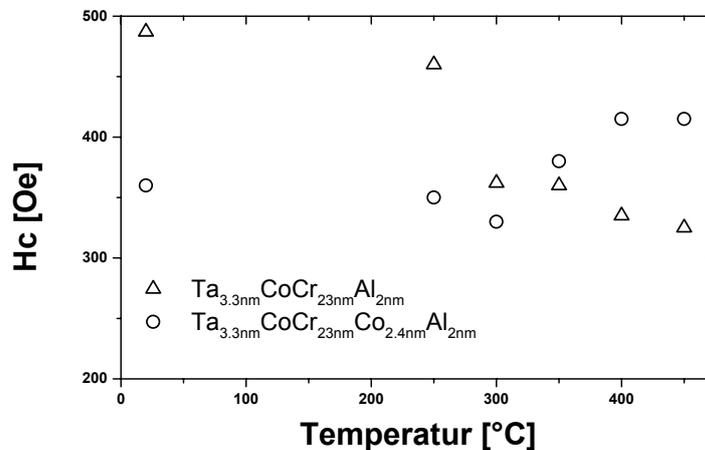


Abbildung 3.13: Die Abhängigkeit von H_C von der Auslagerungstemperatur von für 1 Stunde bei verschiedenen Temperaturen ausgelagerten $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ -Schichten mit und ohne Kobalt-Deckschicht

der in-plane Koerzitivfeldstärke von $\text{Ta}_{[3.3\text{nm}]}/\text{CoCr}_{[23\text{nm}]}/\text{Al}_{[2\text{nm}]}$ und $\text{Ta}_{[3.3\text{nm}]}/\text{CoCr}_{[23\text{nm}]}/\text{Co}_{[2\text{nm}]}/\text{Al}_{[2\text{nm}]}$ Schichten von der Auslagerungstemperatur darge-

stellt. Es wurde bei Temperaturen von 250°C bis 450°C sukzessive in Schritten von 50°C für je 1h getempert. Bei der Schicht ohne Kobalt-Deckschicht sinkt zwischen 300°C und 450°C die in-plane Koerzitivfeldstärke von 480Oe auf 350Oe ab. Bei der Schicht mit Kobalt-Deckschicht nimmt diese bei 300°C ebenfalls leicht ab (von 360 auf 340Oe), steigt aber mit weiterer Erhöhung der Temperatur bis 400°C wieder auf 420Oe an. Mit der Erhöhung der Koerzitivfeldstärke geht eine Verringerung der Squareness einher, die in Abbildung 3.14 gegen die Auslagerungstemperatur aufgetragen ist. Bis 300°C bleibt die Squareness für die mit

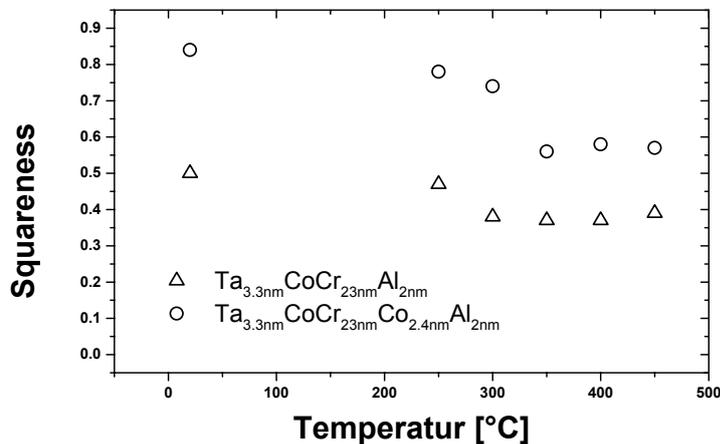


Abbildung 3.14: Die Abhängigkeit der Squareness von der Auslagerungstemperatur von für eine Stunde bei verschiedenen Temperaturen ausgelagerten $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ -Schichten mit und ohne Kobalt-Deckschicht

Kobalt abgedeckte $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ -Schicht nahezu konstant.

Tiefenprofilanalysen mittels Rasteraugermikroskopie zeigen bei der Schicht ohne Kobalt-Deckschicht keinen Unterschied zwischen dem as-prepared und dem bei 450°C getemperten System, während bei der Schicht mit Kobalt-Deckschicht diese gleichmäßig in das $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ diffundiert ist. Die $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}/\text{Co}$ -Doppelschicht ist nur bis 300°C stabil und somit nicht temperaturstabiler als zum Beispiel Systeme mit künstlichem Antiferromagneten ($\text{CoFe}/\text{Ru}/\text{CoFe}$)[15], während die

einzelne $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ -Schicht zwar eine höhere Temperaturstabilität aufweist, aber aufgrund der geringen Squareness nur bedingt geeignet für magnetische Tunnel-systeme ist.

3.2.2 Temperaturstabilität von $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$

$\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ -Schichten auf verschiedenen Unterlagen und abgedeckt durch 2nm Aluminium wurden sukzessive für 60 Minuten bei 200°C bis 450°C in 50°C Schritten ausgelagert und mittels magnetooptischem Kerr-Effekt (MOKE) vermessen. Abbildung 3.15 zeigt die in-plane Koerzitivfeldstärke und Abbildung 3.16 die Squareness in Abhängigkeit der Auslagerungstemperatur. Direkt auf oxidiertem Silizium aufgewachsene $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ -Schichten zeigen bei Dicken von 5 und 10nm keinerlei Veränderungen und bei Dicken von 30 und 100nm einen leichten Anstieg der in-plane Koerzitivfeldstärke ab 300°C , die Squareness liegt jeweils bei etwa 0.9, nur bei der 100nm dicken Schicht sinkt diese von 0.65 im as-prepared Zustand auf 0.3 bei 450°C . Auf Tantal oder Tantal/Kupfer/Tantal gewachsenes $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ zeigt bei einer Dicke von 10nm einen Anstieg der in-plane Koerzitivfeldstärke von 25Oe bei as-prepared bis 350°C auf über 200Oe bei 450°C , wobei die Squareness von 0.85 bei 350°C auf nahezu Null bei 450°C abfällt. Bei einer Dicke von 30nm fällt die in-plane Koerzitivfeldstärke von 570 Oe im as-prepared Zustand und bei 200°C über 500Oe bei 250°C auf 350Oe bei 450°C ab, wobei die Squareness von 0.45 auf 0.25 zurückgeht. Eine $\text{CoCr}_{[30\text{nm}]} \text{Co}_{[2\text{nm}]}$ Doppellage auf Tantal weist durchgehend eine etwas höhere in-plane Koerzitivfeldstärke als die einzelne $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ -Schicht auf, auch ist die Squareness durchgehend höher (0.5 im as-prepared Zustand und 0.4 bei 450°C).

Diese Verhalten kann wie folgt erklärt werden. Nach Gleichung 1.22 geht der Säulendurchmesser umgekehrt proportional in die Koerzitivfeldstärke ein. Eine Abhängigkeit des Säulendurchmessers von der Keimschicht erklärt die unterschiedlichen Koerzitivfeldstärken, wobei die so erhaltenen Säulendurchmesser

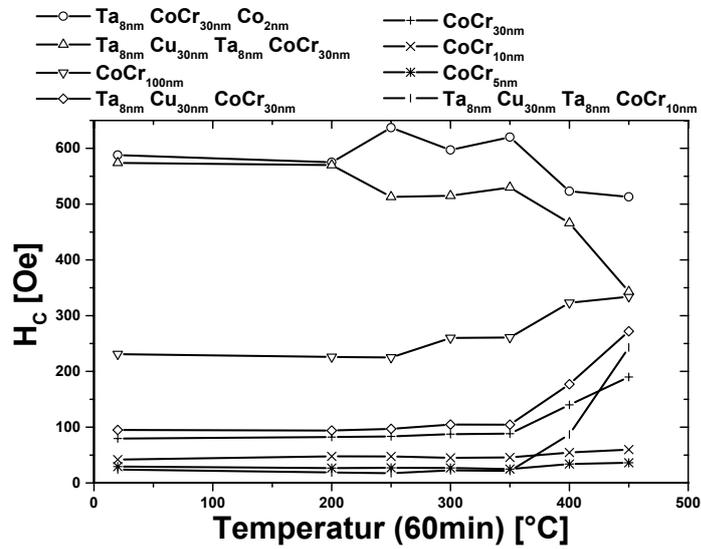


Abbildung 3.15: Abhängigkeit der in-plane Koerzitivfeldstärke von der Schichtdicke von aus-
gesuchten Schichtsystemen mit $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$

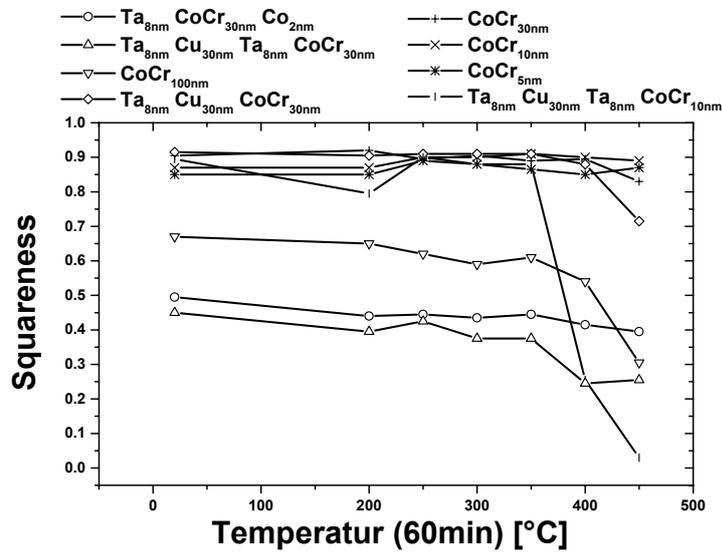


Abbildung 3.16: Abhängigkeit der Squareness von der Schichtdicke von den selben ausge-
suchten Schichtsystemen wie in Abbildung 3.15

nicht die energetisch günstigste Variation im Volumen sein müssen. Daher ist denkbar, dass Diffusion von Chrom (ab 300°C) zu einer Änderung der Säulendurchmesser zu einer energetisch günstigeren Konfiguration führt, was insbesondere die Annäherung der in-plane Koerzitivfeldstärken von Kobalt-Chrom-Schichten gleicher Dicke auf unterschiedlichen Keimschichten erklären kann (vgl. Abbildung 3.15). Die Abnahme der Squareness mit zunehmender Auslagerungstemperatur kann auf die gleiche Ursache zurückgehen: Die Initialschicht könnte ähnlich wie die Kobalt Deckschicht die Squareness erhöhen. Wenn während des Auslagerns die Säulen in die Initialschicht wachsen, würde dieser Effekt reduziert.

Es lässt sich zusammenfassen, dass sich die in-plane Koerzitivfeldstärke der $\text{CoCr}_{[x]}/\text{Co}_{[2\text{nm}]}$ Doppellagen auf Tantal von einigen 10 bis etwa 600 Oe einstellen lässt. Da in Anwendungen als Sensor oder Datenspeicher diese hartmagnetische Schicht in Remanenz ist, skaliert der maximal erzielbare TMR unmittelbar mit der Squareness. Somit ist zu erwarten, dass $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ nur bedingt als hartmagnetische Schicht in TMR-Systemen einsetzbar ist. Für in-plane Koerzitivfeldstärken im Bereich unter 150 Oe liegt die Squareness oberhalb 0.8. Thomas[121] hat die Schichtparameter von Kobalt und Kobalt/Eisen hinsichtlich der Verwendung als hartmagnetische Schicht in TMR-Systemen optimiert. Die größte in-plane Koerzitivfeldstärke (75Oe) erzielte er bei 3nm Kobalt, welches in einem Magnetfeld von etwa 80Oe gesputtert wurde. Die Squareness betrug dabei 0.75[121]. Es gibt ein Konzept von programmierbaren Logik-Gattern, basierend auf vier ähnlich einer Wheatstoneschen Brücke miteinander verschalteten TMR-Elementen, wobei die Magnetisierung der hartmagnetischen Schichten fest ist, die Magnetisierung der weichmagnetischen Schicht zweier TMR-Elemente die Funktionsweise des Gatters definieren (z.B. zwischen NAND und NOR wählen) und die Magnetisierung der verbleibenden zwei TMR-Elemente die Eingänge darstellen[122]. Kommt für die „hartmagnetische“ Schicht ein Material mit mittlerer Koerzitivfeldstärke zum Einsatz, welches wie das weichmagnetische Material „on the chip“ mittels Strompulsen in benachbarten Leiterbahnen geschaltet werden kann, so

kann die Programmierung eines solchen Gatters durch die Magnetisierung der hartmagnetischen Schicht erfolgen[123]. Die Änderung der Magnetisierung der hartmagnetischen Schicht eines der Eingangs-TMR-Elemente im oben zitierten Konzept kommt einer Invertierung des zugehörigen Eingangssignals gleich, so dass ein solches Gatter nicht nur in zwei (NAND und NOR), sondern in acht Zuständen (NAND, NOR, AND, OR sowie AND und OR mit je einem invertierten Eingang) programmiert werden kann. Auch werden dadurch neue Konzepte ermöglicht, die mit weniger TMR-Elementen pro Gatter auskommen. $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ scheint mit seiner einstellbaren Koerzitivfeldstärke für derartige Anwendungen geeignet zu sein.

3.3 TMR-Systeme mit $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$

Transportmessungen an vollständigen Tunnelmagnetowiderstandssystemen spiegeln das zuvor beschriebene magnetische Verhalten wider. Systeme mit $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}/\text{Co}$ -Doppelschicht weisen einen etwa doppelt so hohen TMR-Effekt auf als Systeme mit $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ -Einzelschicht. Sowohl die größere Remanenz als auch eine mögliche höhere Spinpolarisation von Kobalt im Vergleich zu $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ können dieses Verhalten erklären. Die in Abbildung 3.17 gezeigte Serie von TMR-Messungen an Systemen mit unterschiedlicher Dicke der $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ -Schicht veranschaulicht den Anstieg der in-plane Koerzitivfeldstärke mit steigender $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ Dicke. Zusätzlich steigt das Schaltfeld der weichmagnetischen Kobalt/Permalloy-Doppelschicht, hervorgerufen durch Orange-Peel Kopplung oder Streufeldern, beispielsweise von Domänenwänden[124, 125]. Minor Loop Messungen (Abbildung 3.18) zeigen einen Anstieg der Orange-Peel Kopplung[126, 127] von 40e bei $t_{\text{CoCr}} = 17\text{nm}$ auf über 200e bei $t_{\text{CoCr}} = 23\text{nm}$, das Schaltfeld der weichmagnetischen Elektrode steigt von 12 auf 220e.

In Zusammenarbeit mit Tadeusz Luciński wurden aufbauend auf diesen Ergebnissen Tunnelmagnetowiderstandssysteme mit $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ als hartmagnetische

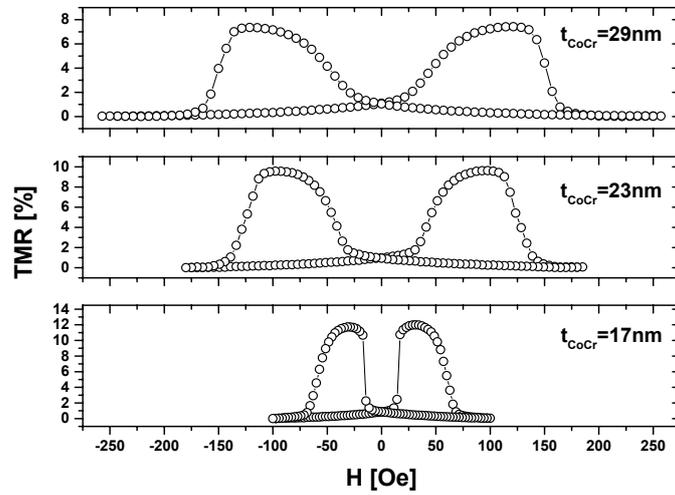


Abbildung 3.17: TMR Messungen an $Ta_{[5nm]}/Cu_{[45nm]}/CoCr_{[t_{CoCr}]} / Co_{[2nm]} / Al_{[1.4nm+Oxid]} / Co_{[2nm]} / Py_{[15nm]} / Cu_{[45nm]}$

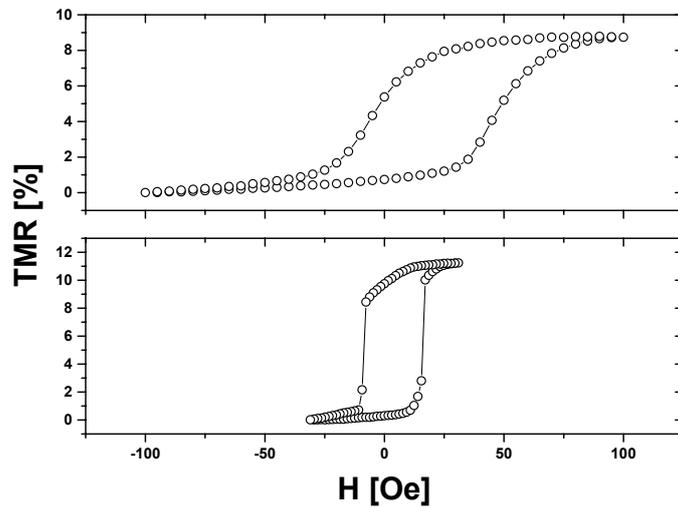


Abbildung 3.18: Minor Loop Messungen an $Ta_{[5nm]}/Cu_{[45nm]}/CoCr_{[t_{CoCr, nm}]} / Co_{[2nm]} / Al_{[1.4nm+Oxid]} / Co_{[2nm]} / Py_{[15nm]} / Cu_{[45nm]}$

und Kobalt als weichmagnetische Elektrode untersucht. Die Kobalt Elektrode ist dabei antiferromagnetisch an eine weitere Kobalt-Schicht gekoppelt (Co/Cu/Co Dreilagensysteme). Da das Thema dieser Zusammenarbeit nicht im direkten Zusammenhang zum Thema dieser Arbeit steht, wird hier nicht weiter auf die Ergebnisse, die in [128] veröffentlicht sind, eingegangen.

3.4 TMR-Systeme mit $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$

Abbildung 3.19 zeigt eine TMR Messung an $\dots\text{Ta}_{[5\text{nm}]}/\text{CoCr}_{[15\text{nm}]}/\text{Py}_{[6\text{nm}]}/\text{Al}_{[1.8\text{nm}]}/\text{Py}_{[3\text{nm}]}/\text{MnIr}_{[20\text{nm}]}\dots$. Die Koerzitivfeldstärke der $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}/\text{Py}$ Dopp-

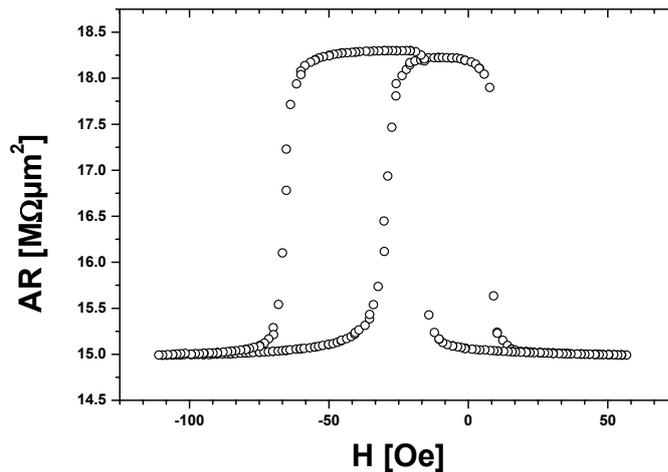


Abbildung 3.19: TMR Messung an $\dots\text{Ta}_{[5\text{nm}]}/\text{CoCr}_{[15\text{nm}]}/\text{Py}_{[6\text{nm}]}/\text{Al}_{[1.8\text{nm}]}/\text{Py}_{[3\text{nm}]}/\text{MnIr}_{[20\text{nm}]}\dots$

pellage beträgt etwa 10Oe. Variiert man die $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}/\text{Py}$ Doppellage hin zu dickerer $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ -Schicht oder dünnerer Permalloy-Deckschicht, so erhält man TMR Messungen wie in Abbildung 3.20 gezeigt. Man erkennt, dass das Permalloy unter der antiferromagnetischen Mangan-Iridium-Schicht nicht von ihr gepinnt wird. Entweder ist die nachträgliche Aufmagnetisierung der antiferromagnetischen Mangan-Iridium-Schicht nicht gelungen, oder am Ort der Permalloy-

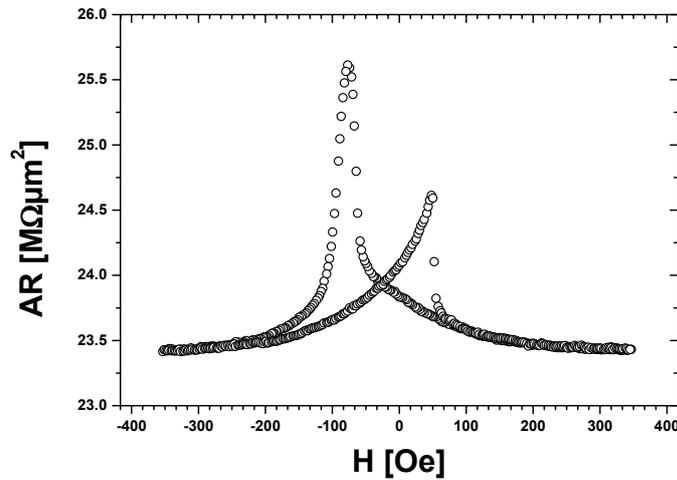


Abbildung 3.20: TMR Messung an ... $Ta_{[5nm]}/CoCr_{[15nm]}/Py_{[3nm]}/Al_{[1.8nm]}/Py_{[3nm]}/MnIr_{[20nm]}$...

Schicht existieren Felder, die größer als das Kopplungsfeld der Mangan-Iridium-Schicht von etwa 50Oe (siehe Abbildung 3.19) sind. Ersteres kann ausgeschlossen werden, da das für die Aufmagnetisierung des Antiferromagneten verwendete Magnetfeld (≈ 1000 Oe) sämtliche ferromagnetische Schichten sättigt. Das Streufeld von $Co_{87}Cr_{13}$ -Schichten wurde in Remanenz mittels eines magnetischen Kraft Mikroskops (MFM) untersucht. Die MFM Aufnahme einer 50nm dicken $Co_{87}Cr_{13}$ -Schicht auf Tantal (Abbildung 3.21) zeigt senkrecht zur Schicht magnetisierte Streifendomänen. Bei senkrechter Magnetisierung ist es aufgrund der Dipol-Dipol Wechselwirkung energetisch günstiger, wenn benachbarte Säulen antiparallel magnetisiert sind. Da zwei benachbarte Säulen i.d.R. einen gemeinsamen weiteren Nachbarn haben, müssen auch einige benachbarte Säulen parallel magnetisiert sein, woraus die Streifendomänen resultieren. Die Breite der Streifendomänen ist folglich dem Säulendurchmesser gleichzusetzen. Für die mittlere Dömänenbreite in Abbildung 3.21 ergibt sich 57 nm.

Dem in Abbildung 3.20 gezeigten Ergebnis ist zu entnehmen, dass deren Streufeld selbst bei einer Schichtdicke von nur 15nm und einer Abdeckung mit 3nm Per-

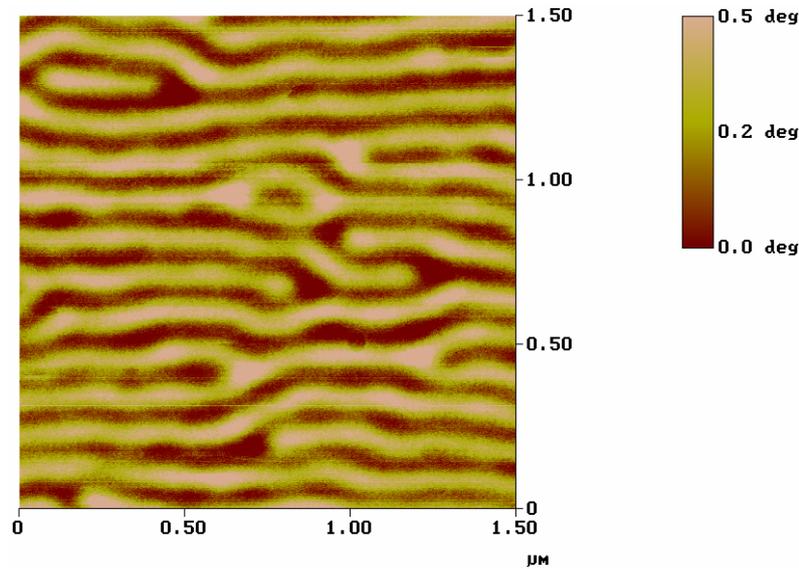


Abbildung 3.21: Die MFM Messung einer ... $Ta_{[5nm]}/CoCr_{[50nm]}/Al_{[2nm]}$ Schicht (in Remanenz gemessen) zeigt Streifendomänen die senkrecht zur Schicht magnetisiert sind

malloy stärker als das Kopplungsfeld des Mangan-Iridium sein muss (siehe Abbildung 3.22). Da bei gleicher $Co_{87}Cr_{13}$ und doppelter Permalloy Dicke das Pinning gelang und TMR messbar ist (Abbildung 3.19), wurde von einer entsprechenden Doppelschicht ebenfalls eine MFM Aufnahme erstellt (Abbildung 3.23). Es ist kein Streufeld zu erkennen. Die Magnetisierung liegt somit in der Schichtebene. Die geschlossene Permalloy-Deckschicht bewirkt eine geänderte Formanisotropie. Ohne Deckschicht ist die uniaxiale Kristallanisotropieenergie des Kobalts größer als die Formanisotropie der Säulenstruktur. Permalloy selbst hat eine im Vergleich zum Kobalt vernachlässigbare Kristallanisotropieenergie, so dass nur der Beitrag zur Formanisotropie relevant ist. Bei der Abdeckung mit 3nm Permalloy überwiegt weiterhin die uniaxiale Kristallanisotropieenergie des Kobalts gegenüber der Formanisotropieenergie, während bei 6nm das Verhältnis umgekehrt ist.

Die Verwendung einer einzelnen $Co_{87}Cr_{13}$ -Schicht als untere Elektrode, also ohne Kobalt-Deckschicht, führt bei den TMR Messungen zu den in Abbildung 3.24 gezeigten Verlauf und einer stark verringerte Amplitude. Erklärbar ist der Verlauf, wenn man eine Magnetisierung der $Co_{87}Cr_{13}$ -Schicht ähnlich der in

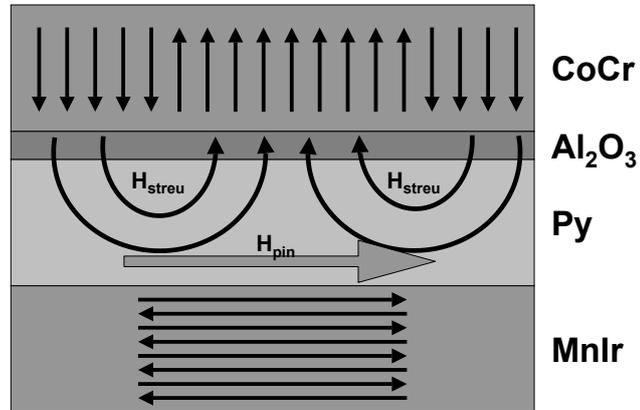


Abbildung 3.22: Streufeld der Kobalt-Chrom-Schicht und das Pinning Feld des Mangan-Iridiums überlagern sich in der Permalloy-Schicht

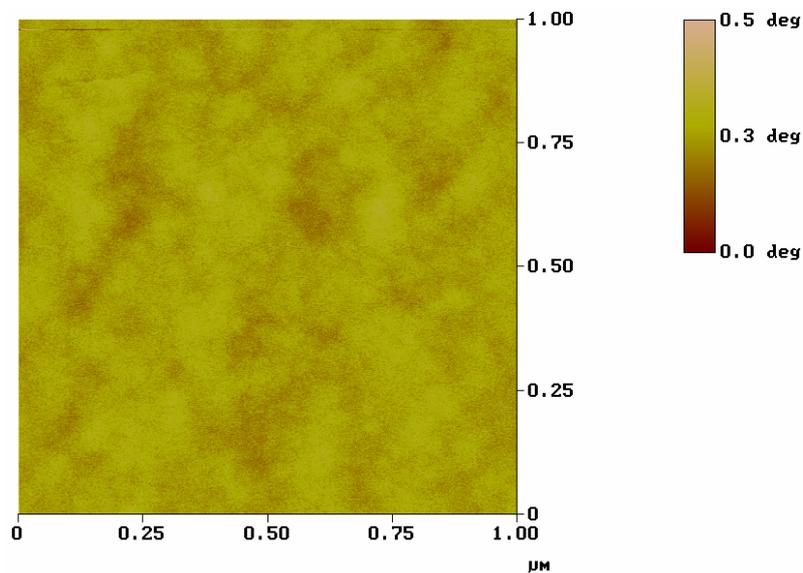


Abbildung 3.23: Die MFM Messung einer ...Ta_[5nm]/CoCr_[15nm]/Py_[6nm]/Al_[2nm] Schicht (in Remanenz gemessen) zeigt kein aus der Schicht austretendes Streufeld

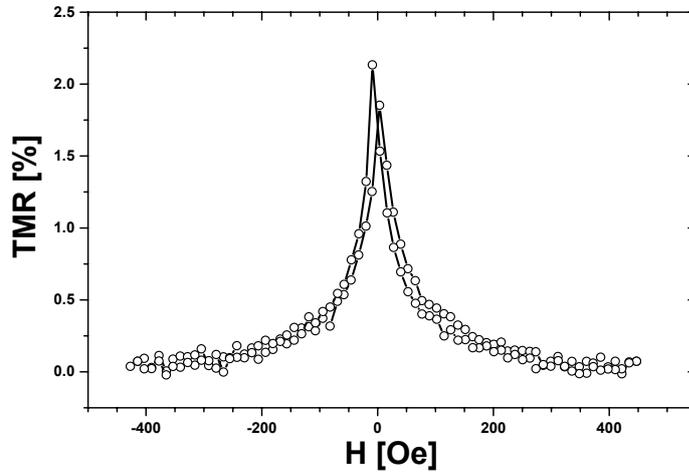


Abbildung 3.24: TMR Messung an ... $Ta_{[5nm]}/CoCr_{[7nm]}/Al_{[1.8nm]}/Co_{[3nm]}$... Die Amplitude beträgt lediglich 2%

Abbildung 3.21 gezeigten Schicht annimmt. Die leichte Richtung liegt senkrecht zur Schichtebene und die Magnetisierung der $Co_{87}Cr_{13}$ -Schicht dreht mit größerem Feld in Schichtebene. B. G. Demczyk hat ein ähnliches Verhalten für $Co_{78}Cr_{22}$ gefunden[129]. Bis 10nm liegt die Magnetisierung in-plane, darüber steigt die out-of-plane Komponente, bis sie schließlich bei 50nm überwiegt.

Um auszuschließen, dass die geringe Amplitude von etwa 2% von einer nur kleinen Spin-Polarisation des $Co_{87}Cr_{13}$ verursacht ist, wurden TMR Elemente mit $Co_{87}Cr_{13}[0...1.5nm]/CoFe_{[7nm]}$ als weichmagnetische Schicht hergestellt. Die Spinpolarisation wurde mit Gleichung 1.13 für die $Co_{87}Cr_{13}[1.5nm]/CoFe_{[7nm]}$ Doppel-
lage zu 22% bestimmt¹. Somit scheint die geringe Amplitude nicht alleine von der geringeren Spinpolarisation des $Co_{87}Cr_{13}$ verursacht zu sein. Vermutlich wird die Magnetisierung der Kobalt-Schicht von den Streufeldern der $Co_{87}Cr_{13}$ -Schicht

¹Bei diesem Schluss muss berücksichtigt werden, dass das Wachstum der Kobalt-Chrom-Schicht von der Unterlage abhängt und somit die hier bestimmte Spinpolarisation nicht eins zu eins auf die anderen $Co_{87}Cr_{13}$ -Schichten übertragen werden darf, sondern nur als Anhaltswert dienen kann.

aus der Schichtebene herausgedreht.

TMR-Messungen senkrecht zur Schicht (out-of-plane) weisen den in Abbildung 3.25 gezeigten Verlauf auf. Eine nur 7nm dünne $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ -Schicht hat somit die leichte Richtung senkrecht zur Schichtebene bei einer Koerzitivfeldstärke von etwa 150Oe. Da die Schichten nie antiparallel stehen, sondern maximal

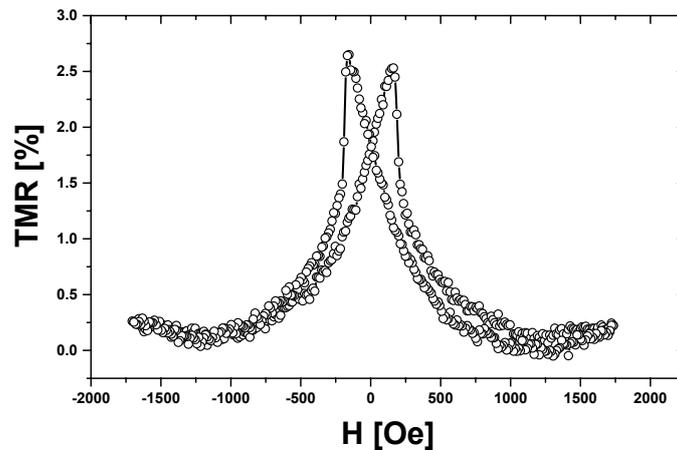


Abbildung 3.25: TMR Messung (out-of-plane) an $\dots\text{Ta}_{[5\text{nm}]}/\text{CoCr}_{[7\text{nm}]}/\text{Al}_{[1.8\text{nm}]}/\text{Co}_{[3\text{nm}]}\dots$

90° zueinander gedreht sind, wird im Vergleich zu Gleichung 1.13 nur die halbe Amplitude erwartet. Für Kobalt erhält man aus gemessenen Amplituden für $\dots\text{Co}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Co}\dots$ von etwa 50% und Gleichung 1.13 eine Polarisation von etwa 45%. Falls die Magnetisierungen 90° zueinander gedreht stehen, würde sich für die Spinpolarisation von $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ ein Wert von etwa 5% ergeben. Aufgrund der zuvor wesentlich höher bestimmten Spinpolarisation kann geschlossen werden, dass die Magnetisierung der Kobalt-Schicht von Streufeldern der $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ -Schicht parallel zur Magnetisierung der $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ -Schicht verkippt ist.

Da $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ schon bei geringen Schichtdicken eine leichte Achse senkrecht zur Schichtebene aufweist, wurde dieses Material von Dirk Brinkmann verwendet, um den Einfluss magnetischer Partikel, die sich oberhalb eines TMR-Elements

befinden und senkrecht zur Ebene des TMR-Elements magnetisiert sind, auf das Schaltverhalten des TMR-Elements zu untersuchen[130].

3.5 Magnetische Stabilität von $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$

Für die Anwendung als Sensor oder Speicherzelle ist die magnetische Langzeitstabilität von großer Wichtigkeit; die remanente Magnetisierung darf nicht durch wiederholte Schaltzyklen verändert werden. Es finden sich einige Arbeiten in der Literatur, in denen die magnetische Stabilität von Spin-Valves und Tunnелеlementen untersucht wurde[15, 131, 132, 133, 134, 135]. Dabei bestanden die hartmagnetischen Elektroden aus einer hartmagnetischen Legierung (z.B. $\text{Co}_{75}\text{Pt}_{12}\text{Cr}_{13}$ [131, 132]), oder aus Kobalt-Schichten, die an einen intrinsischen Antiferromagneten (z.B. MnFe [131]) gepinnt waren oder aus einem künstlichen Antiferromagneten ($\text{Co}/\text{Cu}/\text{Co}$ [15, 135]). Die weichmagnetische Elektrode bestand aus Kobalt, $\text{Ni}_{40}\text{Fe}_{60}$ und $\text{Co}_{84}\text{Fe}_{16}$ Einzellagen oder Kobalt/Eisen und Kobalt/Permalloy Doppellagen. Die Magnetisierung der hartmagnetischen Legierung und der an einen intrinsischen Antiferromagneten gepinnten Kobalt-Schicht bleibt bei kohärenten Drehungen der weichmagnetischen Elektrode in einem magnetischen Drehfeld unverändert, ebenso der künstliche Antiferromagnet, wenn die weichmagnetische Elektrode aus einer Kobalt/Eisen Doppellage besteht und das Rotationsfeld hinreichend klein ist(siehe Abbildung 3.26). Nur die an einen intrinsischen Antiferromagneten gepinnte Kobalt-Schicht ist auch bei uniaxialem Schalten stabil ($\geq 10^7$ Schaltzyklen)[131]. Die bei den anderen Systemen durch das uniaxiale Schalten induzierte Instabilität der Magnetisierung der hartmagnetischen Schicht wird durch große magnetische Streufelder der Domänenwände in weichmagnetischen Schicht erzeugt[133].

Abbildung 3.27 zeigt die magnetische Stabilität bezüglich uniaxialem Schalten eines TMR-Elements mit dem gleichen Schichtaufbau ($\dots\text{Ta}_{[5\text{nm}]}/\text{CoCr}_{[15\text{nm}]}/\text{Py}_{[6\text{nm}]}/\text{Al}_{[1.8\text{nm}]}/\text{Py}_{[3\text{nm}]}/\text{MnIr}_{[20\text{nm}]}\dots$) wie jenes in Abbildung 3.19. Der TMR-

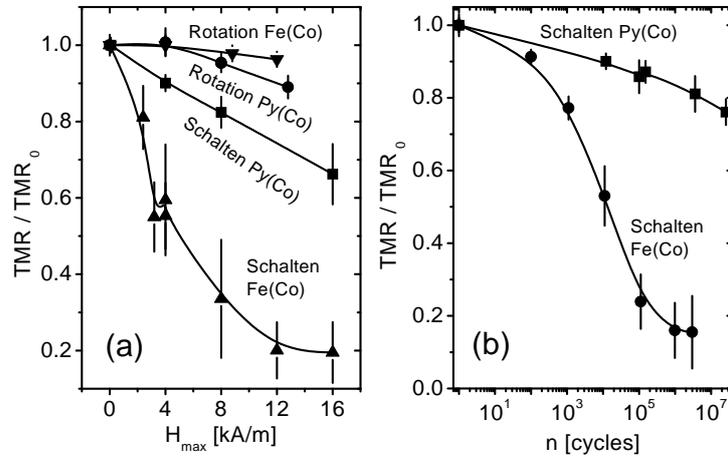


Abbildung 3.26: a) Feldabhängigkeit des TMR Effekts (normiert auf den Startwert TMR_0) nach $1.2 \cdot 10^4$ Schalt- bzw. Rotationszyklen zweier Proben mit unterschiedlichen weichmagnetischen Elektroden: $Co_{[1nm]}/Py_{[6nm]}$ (Py(Co)) und $Co_{[1nm]}/Fe_{[6nm]}$ (Fe(Co)). Als hartmagnetische Elektrode wird ein künstlicher Antiferromagnet ($Co_{[1nm]}/Cu_{[1nm]}/Co_{[1.5nm]}$) verwendet. b) Normierter TMR Effekt in Abhängigkeit der Schaltzyklenzahl n bei festem $H_{max} = 4kA/m$. Aus [15]

Effekt oszilliert stark und nimmt im Mittel während der ersten 3000 Zyklen von 19.2% auf 18.4% ab und schwankt dann während der folgenden 3500 Zyklen um diese 18.4%, wobei um zwei verschiedene Werte Häufungen auftreten. Ob dieses auf eine Umorientierung der Magnetischen Momente des Antiferromagneten mit einer Verringerung des Exchange Bias oder auf eine Änderung der Domänenstruktur in dem $Co_{87}Cr_{13}$ zurückzuführen ist, kann nicht unterschieden werden. Jedoch zeigt dieses Ergebnis, dass $Co_{87}Cr_{13}$ als weichmagnetische Elektrode in Tunnelmagnetowiderstandssystemen nicht in Anwendungen eingesetzt werden kann, die eine hohe Reproduzierbarkeit der Effekthöhe erfordern.

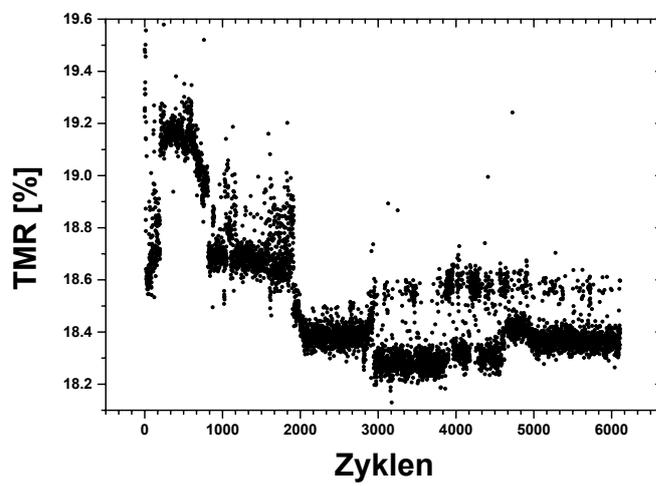


Abbildung 3.27: TMR Effekt in Abhängigkeit der Schaltzyklen (uniaxial) bei ...Ta_[5nm]/CoCr_[15nm]/Py_[6nm]/Al_[1.8nm]/Py_[3nm]/MnIr_[20nm]...

Kapitel 4

Pulsplasma Oxidation

4.1 Funktionsprinzip und experimentelle Ergebnisse

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine neuartige Oxidationstechnik entwickelt, die einfacher zu handhaben ist als herkömmliche Oxidationsmethoden. Dabei ist die Probe keinen hochenergetischen Ionen ausgesetzt, die zu einer Schädigung führen könnten. Im Gegensatz zu konventionellen Plasmatechniken[136] befindet sich die Probe auf Anodenpotenzial. Wird das Plasma mit einer Gleichspannungsquelle versorgt, bleibt die Probe in einem weiten Druckbereich nahezu unoxidiert. Für die Oxidation wird die Quelle über einen den Strom begrenzenden Widerstand mit einer Wechselstromquelle versorgt, die über ein Diodennetzwerk gleichgerichtet ist (siehe Abbildung 4.1). Folglich ist das Plasma periodisch unterbrochen (Pulsplasma) und eine schnelle Oxidation wird beobachtet.

Der Vergleich mit der ausbleibenden Oxidation bei Gleichspannungsversorgung führt zu der Schlussfolgerung, dass die Oxidation über thermalisierte Ionen stattfindet, während die Biasspannung nahe Null ist.

Ein Teil der zugeführten Energie wird zu einer Erwärmung der Kathode führen, da die erzeugten Ionen auf diese beschleunigt werden. Jedoch ist die

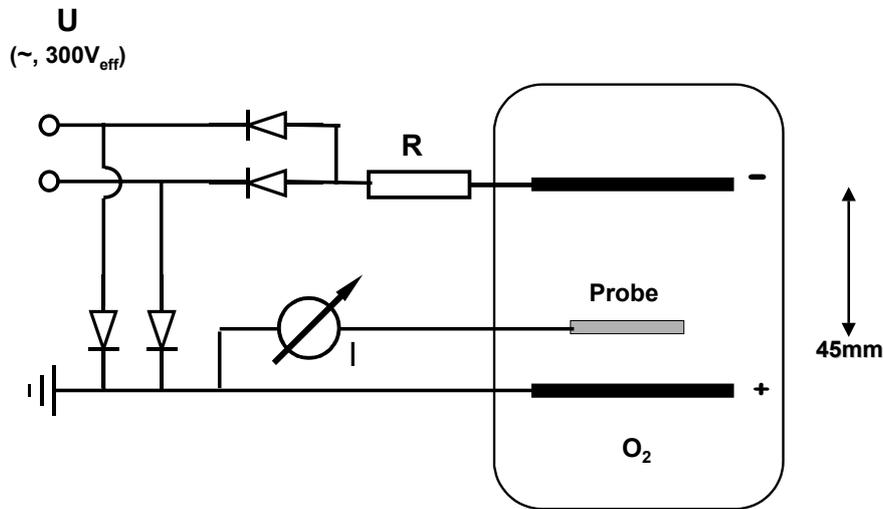


Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau der Pulsplasma-Quelle

Leistung so gering, dass eine besondere Kühlung nicht erforderlich ist. So beträgt die Leistungsdichte, um $0.95nm$ dicke Aluminium-Schichten in 100 Sekunden zu oxidieren, etwa $10mW$ pro cm^2 Kathodenoberfläche.

Abbildung 4.2 zeigt die mittels AFM bestimmte Topographie einer Plasmaoxidierten Probe, die während der Oxidation auf Kathodenpotenzial lag. Einige Spikes sind deutlich zu erkennen. Die Probe in Abbildung 4.3 ist auf gleiche Weise hergestellt, nur die Oxidation erfolgte mit der Pulsplasma-Methode. Die Oberfläche weist keine Spikes auf. Weil die gemessene Rauigkeit (RMS) von den Spikes nicht beeinflusst wird, da deren Gesamtfläche vernachlässigbar klein ist, wird für beide Proben ein Wert von $0.3nm$ gefunden (Scan-Fläche $1 * 1\mu m^2$).

Im folgendem werden die Prozesse im Plasma beschrieben. Die Ionisationsenergie von O_2 beträgt $12eV$, während die Dissoziationsenergie lediglich $0.9eV$ beträgt[137]. Zwei Dissoziationsprozesse treten auf:

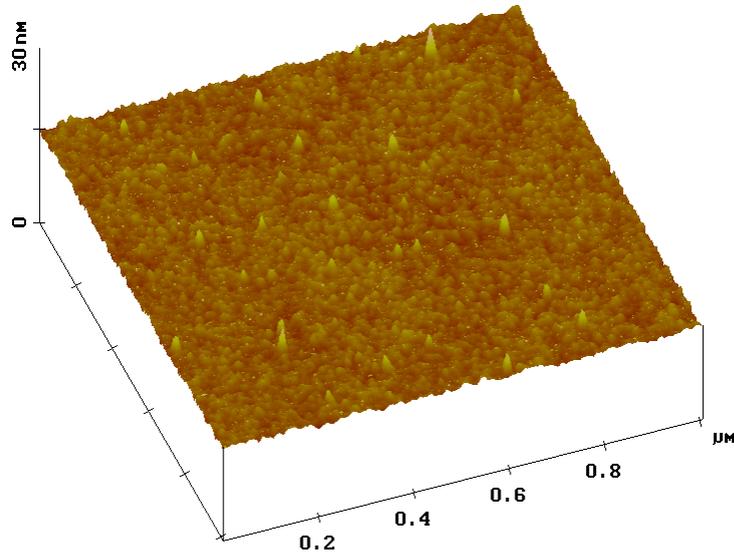


Abbildung 4.2: AFM Aufnahme einer Aluminium-Schicht, die während der Oxidation auf Kathodenpotenzial lag. Defekte an der Oberfläche (Spikes) sind zu erkennen

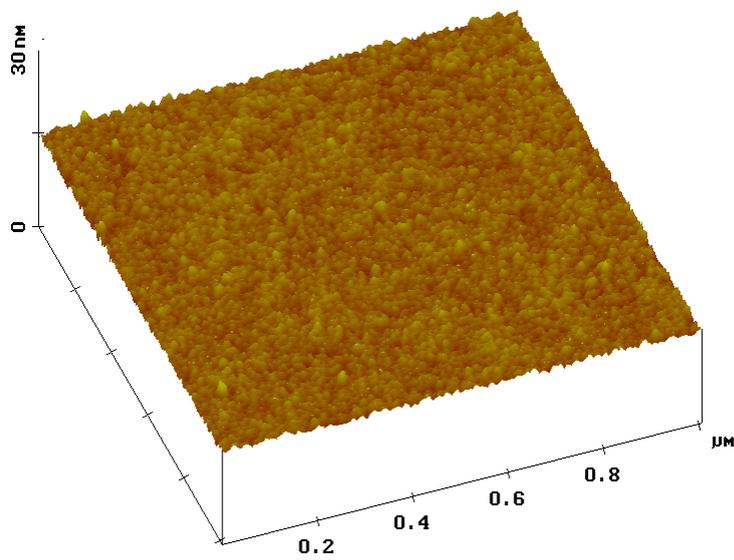
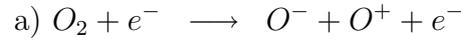
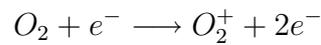


Abbildung 4.3: AFM Aufnahme einer Aluminium-Schicht, die mit dem Pulsplasma Verfahren oxidiert wurde



Beide Prozesse tragen nicht zum Plasma bei, da die Zahl der freien Elektronen nicht erhöht wird. Elektronen mit Energien größer als 12eV führen zur Ionisation:



Da O^- Ionen zur Probe beschleunigt werden und zu Schädigungen dieser führen können, muss deren Bildung weitgehend vermieden werden, was durch die Wahl eines geeigneten Druckbereiches möglich ist. Abbildung 4.4 zeigt die Streuquerschnitte für die Stoßanregung von Sauerstoff durch Elektronen. Zwischen 12eV und 50eV überwiegt die Zahl der positiven Ionen die der negativen um mehr als drei Größenordnungen. Die freie Weglänge der Elektronen muss folglich groß genug sein, um Energien von 12eV oder mehr zu erreichen. Da nur bei der Ionisation die Zahl der freien Elektronen zunimmt, während bei der Dissoziation deren Zahl abnimmt, ist bei hohem Druck das Zünden dieses Plasmas bei der verwendeten Spannung von ca. $550V_{\text{max}}$ nicht möglich. Im Umkehrschluss gilt, dass kaum Dissoziation auftritt, wenn der Druck deutlich kleiner ist als der, bei dem das Plasma erlöscht. Es hat sich gezeigt, dass bei Drücken oberhalb von 3.5mbar ein Zünden des Plasmas nicht möglich ist.

Zusätzlich ist davon auszugehen, dass sich die Probenoberfläche, sobald sie etwas oxidiert ist, negativ auflädt. Vorhandene O^- Ionen werden daher nicht oder zumindest nur schwach zur Probe beschleunigt, was die ausbleibende Oxidation bei Gleichspannungsversorgung erklärt. Das daraus resultierende Potential kann allerdings nicht sehr hoch sein, da sonst aufgrund des Ionen Embeddings die Oxidation dünner Aluminium-Schichten nicht ohne eine Oxidation der darunterliegenden Metall-Schicht möglich wäre. Im Verlauf dieses Kapitels wird aber

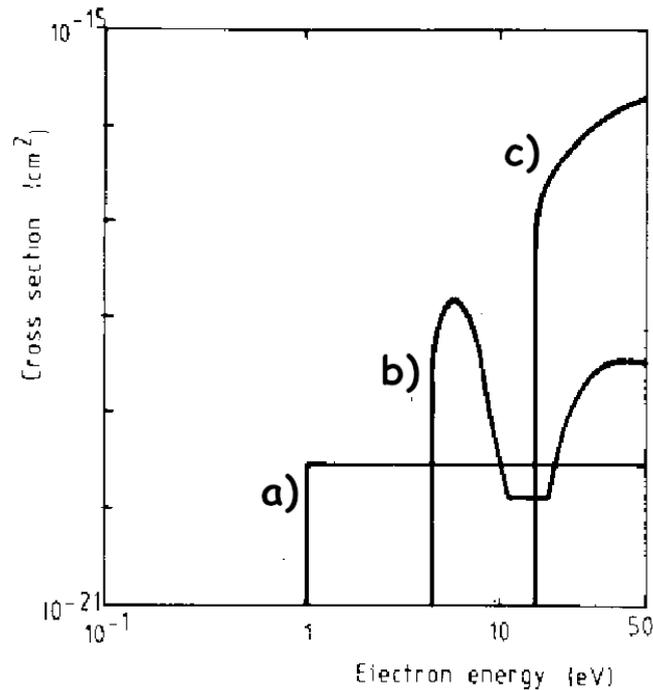


Abbildung 4.4: Streuquerschnitte für die Stoßanregung von Sauerstoff durch Elektronen. a) Bildung atomaren Sauerstoffs, b) Bildung negativer Ionen, c) Bildung positiver Ionen. Aus [138]

gezeigt, dass mit der Pulsplasmamethode auch Aluminium-Schichten mit einer Dicke unterhalb von 1nm oxidiert werden können.

Abbildung 4.5 zeigt den Flächenwiderstand von 1.4nm dicken Aluminium-Schichten, die für 15s bei unterschiedlichen Drücken oxidiert wurden. Zwischen 0.7 und 1.0mbar fällt der Flächenwiderstand etwa exponentiell mit steigendem Druck. Ab 1.0mbar ist dieser Abfall verlangsamt und ab 1.3mbar steigt der Flächenwiderstand an, was mit Dissoziation und daraus resultierendem O^- Beschuss erklärt werden kann. Bei einem Druck von 0.2mbar beträgt der Flächenwiderstand der Barriere etwa $1M\Omega\mu m^2$ und steigt bis 0.7mbar auf etwa $1G\Omega\mu m^2$, verursacht von der steigenden Zahl der Sauerstoffionen im Plasma. Wenn der Sauerstoffdruck weiter erhöht wird, nimmt die Zahl der Stöße zwischen den Teilchen zu, zuletzt erreichen nur noch die nächsten O_2^+ Ionen die Probe, so dass bis 1.3mbar der Flächenwiderstand um über 3 Größenordnungen abnimmt. Eine solche Abnahme

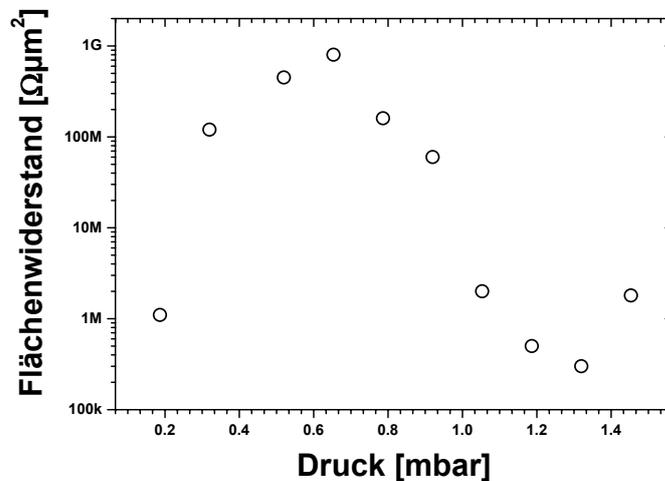


Abbildung 4.5: Flächenwiderstand 1.4nm dicker Aluminium-Schichten, die bei unterschiedlichen O_2 Drücken mit der Pulsplasmamethode 15s lang oxidiert wurden

der Oxidationsgeschwindigkeit mit steigendem Druck ist auch schon für andere Plasmaquellen gefunden worden[66, 139]. Diese empfindliche Abhängigkeit der Oxidation vom Sauerstoffdruck lässt auf den ersten Blick große Probleme bei der Reproduzierbarkeit des Flächenwiderstandes erwarten. Ein Arbeiten im Maximum (etwa 0.7mbar) erscheint nicht möglich, da der Widerstand weit über dem für technische Anwendungen sinnvollen Bereich¹ liegt (einige $k\Omega\mu\text{m}^2$)[113, 23], und im Minimum (1.2mbar) schon eine Schädigung der Barriere durch O_2^+ -Beschuss zu erwarten ist. Im weiteren Verlauf dieses Kapitels wird aber gezeigt, dass bei einem Druck unterhalb von 0.12mbar die Oxidation nur noch gering vom Sauerstoffdruck abhängt und der Flächenwiderstand durch Verändern der Oxidationszeit und Variation des Vorwiderstandes an der Plasmaquelle (**R** in Abbildung 4.1) auch im Bereich einiger $k\Omega\mu\text{m}^2$ präzise eingestellt werden kann.

¹Bei technischen Anwendungen ist der entscheidende Faktor das Signal zu Rausch Verhältnis. Um das Rauschen klein zu halten darf der Widerstand des Tunnelements (Fläche weit unter $1\mu\text{m}^2$) nicht zu groß sein. Insbesondere bei Leseköpfen für Festplatten begrenzt die Zeitkonstante RC die Geschwindigkeit beim Lesen und Schreiben[5, 140].

Aufgrund dieser ermutigenden Ergebnisse wurde, wie schon in der Einleitung erwähnt, die neue und größere Sputteranlage mit einer Pulsplasma Oxidationskammer erweitert. Die Sauerstoffzuführung erfolgt mittels eines Massenflussreglers (konstant 80 sccm bei allen hier veröffentlichten Ergebnissen), die Druckregulierung geschieht mittels eines elektrisch verstellbaren Schiebers vor der Pumpe. Der Abstand zwischen Kathode und Probe beträgt 80mm. Diese Anlage verfügt zusätzlich über eine weitere Oxidationskammer, die mit einer Electron-Cyclotron-Resonance (ECR) Plasmaquelle ausgerüstet ist. Damit können ... /Py/Al₂O₃/CoFe/... Tunnelelemente mit einem Flächenwiderstand von etwa 10 MΩμm² und einer Effektamplitude von 47% hergestellt werden. Für die Pulsplasma Oxidation kann mit Hilfe von Abbildung 4.5 der geeignete O₂-Druck abgeschätzt werden. Als erste Funktionsprüfung wurden TMR Systeme bei leicht unterschiedlichen O₂-Drücken hergestellt. Bei 0.7mbar O₂ und 100s Oxidationszeit wurde der gleiche Flächenwiderstand wie bei der ECR-Plasma Oxidation erzielt. Die TMR-Effektamplitude (Abbildung 4.6) ist mit 48% sogar geringfügig höher als bei ECR-Plasma Oxidation. Dieser schnelle Erfolg verdeutlicht, wie einfach die Handhabung dieser Plasma-Quelle ist.

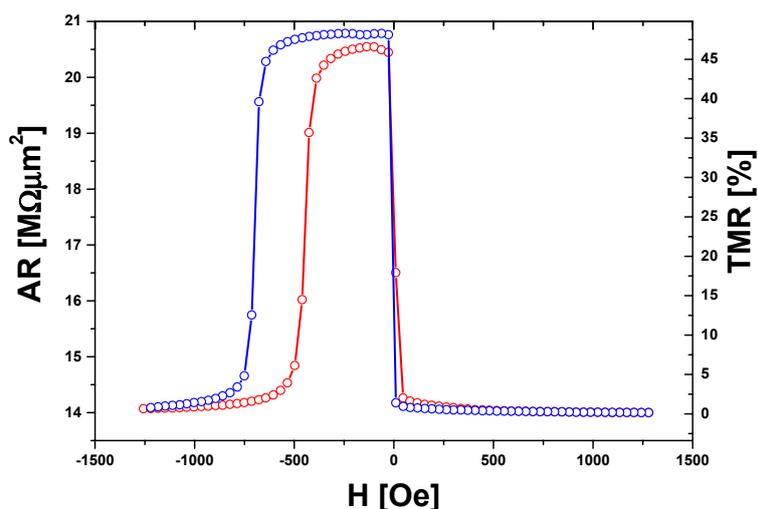


Abbildung 4.6: Majorloop eines mittels Pulsplasma Oxidation hergestellten Tunnelements

Die technische Anwendung von TMR-Systemen insbesondere als Speicher (MRAM) erfordert, wie oben erläutert, deutlich niedrigere Flächenwiderstände im Bereich bis unter $10\text{k}\Omega\mu\text{m}^2$. Daher wurde der Bereich unterhalb von 0.2mbar O_2 -Druck eingehend untersucht. Zusätzlich wurde der den Strom begrenzende Vorwiderstand (R in Abbildung 4.1) von 180Ω auf $2\text{k}\Omega$ erhöht (Siehe Abbildung 4.7). Der Flächenwiderstand verringert sich durch die Erhöhung von R um

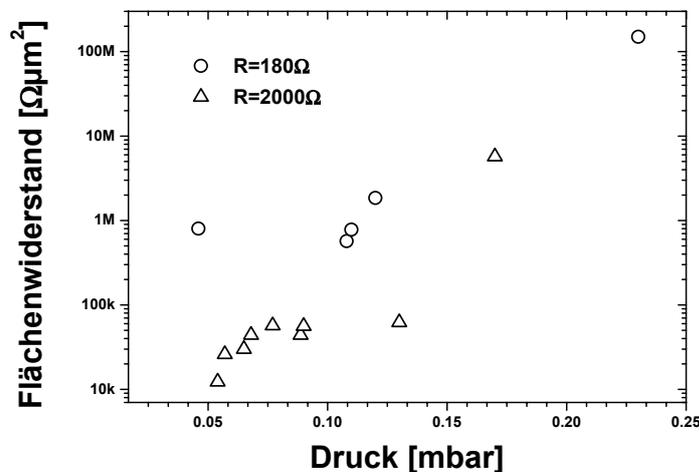


Abbildung 4.7: Flächenwiderstand 0.95nm dicker Aluminium-Schichten, die bei unterschiedlichen O_2 Drücken mit der Pulsplasmamethode 100s lang oxidiert wurden. Der strombegrenzende Vorwiderstand R wurde variiert

gut eine Größenordnung. Zwischen 0.07 und 0.13mbar ist der Flächenwiderstand nahezu unabhängig von dem O_2 -Druck, womit dieser Druckbereich sich für die Herstellung niederohmiger Tunnelbarrieren auszeichnet.

Die Anpassung an eine bestimmte Dicke der Aluminium-Schicht kann durch Variation des Vorwiderstandes R und der Oxidationszeit erfolgen. Der Einfluss der Oxidationszeit bei konstantem Vorwiderstand ($R = 2\text{k}\Omega$) ist in Abbildung 4.8 aufgetragen, der O_2 -Druck betrug 0.08 mbar. Wie im Kapitel 1.3 ausgeführt, ist zuerst ein linearer Anstieg des Flächenwiderstandes mit der Oxidationszeit zu erwarten. Sobald die Oxidation der darunterliegenden Kobalt-Eisen Elektrode

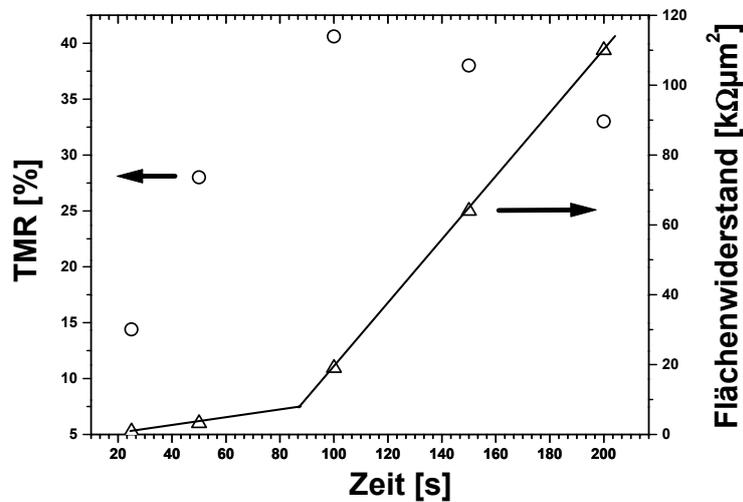


Abbildung 4.8: Flächenwiderstand und TMR Effektamplitude von .../CoFe/Al₂O₃/Py/... TMR-Systemen mit vor der Oxidation 0.95nm dicken Aluminium-Schichten in Abhängigkeit der Oxidationszeit, bei 0.08 mbar O₂ und R=2kΩ

startet, wird ebenfalls ein lineares Verhalten, jedoch mit anderer Steigung erwartet. Der beobachtete Verlauf stimmt mit dieser Erwartung überein, die Änderung der Steigung ist bei etwa 90s zu erkennen, genau dort wird auch die höchste TMR Effektamplitude gemessen. Kuiper *et al.*[66] haben gezeigt, dass bei Plasma Oxidation von Kobalt/Aluminium-Schichten die Oxidation der Kobalt-Schicht startet bevor die Aluminium-Schicht vollständig oxidiert ist. Allerdings wurden die Systeme zur Aufmagnetisierung der antiferromagnetischen Mangan-Iridium-Schicht vor Strukturierung und Messung für etwa 2 Minuten bei 250°C getempert. Durch die höhere Affinität von Sauerstoff zu Aluminium als zu Kobalt und Eisen kann davon ausgegangen werden, dass bei einer nicht vollständigen Oxidation der Aluminium-Schicht der eventuell in der Kobalt-Eisen-Schicht vorhandene Sauerstoff bis zur vollständigen Oxidation des Aluminiums in dieses diffundiert. Dem steileren Anstieg des Flächenwiderstandes nach Beginn der Oxidation der Kobalt-Eisen-Schicht in Abbildung 4.8 ist zu entnehmen, dass das Oxid der ferromagnetischen Schicht einen höheren Flächenwiderstand hat als Aluminiumoxid, bezogen

auf die gleiche Menge Sauerstoff. Somit müsste, falls die Diffusion von Sauerstoff aus dem Ferromagneten in das Aluminium stattfindet, der Widerstand sinken. Genau dieses wird von uns bei Kobalt-Eisen als ferromagnetische Schicht beobachtet. Der Flächenwiderstand von mittels ECR-Plasma oxidierten Aluminium-Schichten, wobei die Oxidationsparameter auf maximale TMR-Effektamplitude optimiert ist, sinkt im allgemeinen während des Temperns um etwa 30%.

Abbildung 4.9 zeigt die aus den zugehörigen U/I Kennlinien ermittelten Bar-

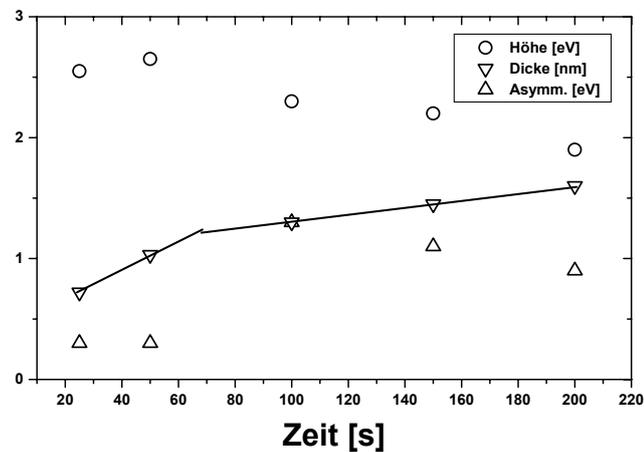


Abbildung 4.9: Barrierenparameter nach Brinkman[27] von .../CoFe/Al₂O₃/Py/... TMR-Systemen mit vor der Oxidation 0.95nm dicken Aluminium-Schichten in Abhängigkeit der Oxidationszeit, bei 0.08 mbar O₂ und R=2kΩ

rierenparameter. Die Barrierendicke steigt etwa linear an, mit einer Änderung der Steigung unterhalb von 100s. Die Barrierenhöhe steigt von 2.5eV bei 25s Oxidation auf 2.6eV bei 50s an, während sie bei 100s nur noch 2.3eV beträgt und mit steigender Oxidationszeit weiter abfällt. Da die Systeme mit höchster TMR Effektamplitude auch die höchste Barrierenhöhe aufweisen (> 3eV bei „dicken“ Aluminiumoxid-Barrieren[37, 69, 141, 142]), kann geschlossen werden, dass die optimale Oxidationszeit zwischen 50s und 100s liegt.

4.2 Homogenität

Für die industrielle Anwendung der Pulsplasma Oxidation ist eine großflächige Homogenität erforderlich. Um diese zu untersuchen, ist eine homogene Schichtabscheidung, insbesondere des Aluminiums, erforderlich. Daher wurden die magnetischen Schichten und das Aluminium dynamisch im „wobble-mode“ abgeschieden. Dabei fährt das Substrat mit konstanter Geschwindigkeit mehrfach über die mit einer Lochblende abgeschirmte Sputterquelle. Die Prozesssteuerung der Sputteranlage der Firma Leybold Dresden wurde entsprechend angepasst. Jede Stelle des Substrats auf einer gedachten Linie in Bewegungsrichtung sieht somit die Sputterquelle für die gleiche Zeit und unter den gleichen Bedingungen, so dass entlang dieser Linie die Schicht homogen aufwächst. Die mittels Röntgenreflektometrie bestimmte Inhomogenität einer etwa 30nm dicken Schicht liegt unterhalb der Auflösungsgenauigkeit dieser Methode (0.3%). Durch Anpassung der Form der Blende kann zusätzlich eine Homogenisierung senkrecht zur Bewegungsrichtung erfolgen. Da das Substrat aus apparativen Gründen in einigen cm Abstand über die Blende geführt wird, ist zur Bestimmung der Blendenform ein iterativer Prozess notwendig, der zur Zeit noch nicht abgeschlossen ist, so dass die Homogenitätsuntersuchung nur entlang eines Durchmessers (in Bewegungsrichtung) möglich war. Da die Pulsplasmaquelle symmetrisch aufgebaut ist, reicht die Untersuchung eines Radius, wie durch Stichproben bestätigt werden konnte. Zusätzlich wurden Proben mittels der ECR-Quelle oxidiert. Es wurden die gleichen Ergebnisse für die Barrierenparameter und der TMR-Effektamplitude wie bei statisch gesputterten Schichten gefunden.

Flächenwiderstand, TMR-Effektamplitude und Barrierenparameter in Abhängigkeit des Radius sind in den Abbildungen 4.10 und 4.11 aufgetragen. Der Flächenwiderstand steigt innerhalb der ersten 35mm um gut 20% an und fällt dann zum Rand hin stark ab. Da die Kathode der Pulsplasmaquelle die gleiche Größe wie der Wafer hat, muss für eine homogenere Oxidation die

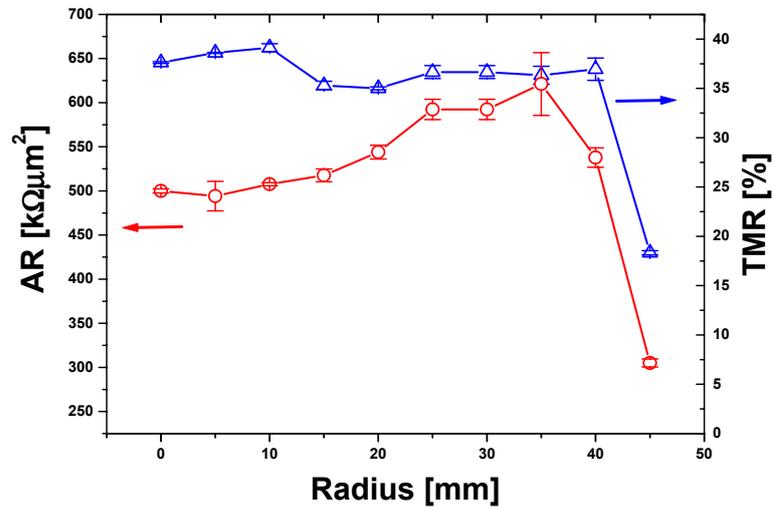


Abbildung 4.10: Flächenwiderstand und TMR-Effekt entlang eines Radius. Die Inhomogenität der unoxidierten Aluminium-Schicht (Dicke 3.1 nm) ist kleiner 0.3%

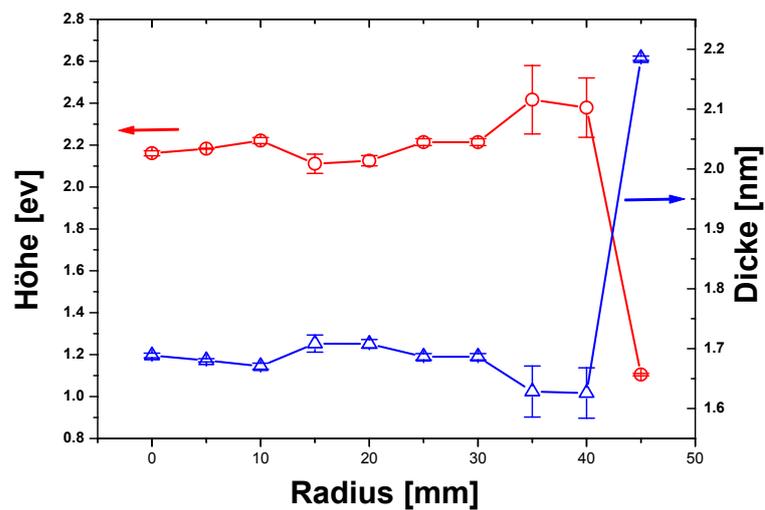


Abbildung 4.11: Barrierenparameter entlang eines Radius

Kathode etwa 50% größer sein als die zu oxidierende Probe.

Versuche mit verschiedenen Abständen zwischen Substrat und Kathode haben gezeigt, dass die Oxidationsrate mit steigendem Abstand abfällt. Somit könnte die Inhomogenität durch Verwendung einer sphärischen Kathode kompensiert werden. Durch Verwendung verstellbarer konzentrischer Ringe als Kathode sollten nahezu beliebige Gradienten der Oxidationsrate einstellbar sein.

Ein Vergleich mit ECR-oxidierten Proben, die auf die gleiche Weise untersucht wurden (Abbildung 4.12), zeigt im Gegensatz zur Pulsplasmaoxidation einen nicht zur Wafermitte symmetrischen Kurvenverlauf. Der Flächenwiderstand variiert zwischen Wafermitte und 35mm außerhalb um 300% und somit fünfzehn mal stärker als bei der Pulsplasmaoxidation. Aus der Abnahme des TMR-Effekts mit steigendem Flächenwiderstand folgt, dass diese Proben überoxidiert sind. Zwar erhöht sich die Abhängigkeit des Flächenwiderstandes von den Oxidationsparametern sobald die Probe vollständig oxidiert ist (Vgl. Abbildung 4.8), da aber der maximale TMR-Effekt nur 30% beträgt, kann von einer starken Überoxidation ausgegangen werden, so dass für optimal bzw. leicht unteroxidierte Proben der gleiche relative Verlauf erwartet wird. Der Flächenwiderstand variiert unabhängig von der absoluten Position auf dem Wafer um gut 35% pro cm.

4.3 Bestimmung der optimalen Oxidationsparameter

Um eine möglichst hohe Amplitude des TMR-Effekts zu erzielen, ist eine optimale Oxidation der Aluminium-Schicht notwendig. Es hat sich gezeigt, dass bei Unteroxidation (verbleibendes Aluminium) als auch bei Überoxidation (Oxidation der unteren ferromagnetischen Elektrode) die Effektamplitude gegenüber optimaler Oxidation verringert ist, wobei der Abfall bei Unteroxidation deutlich stärker als bei Überoxidation ausfällt. Es müssen nicht nur für jede Dicke der Aluminium-

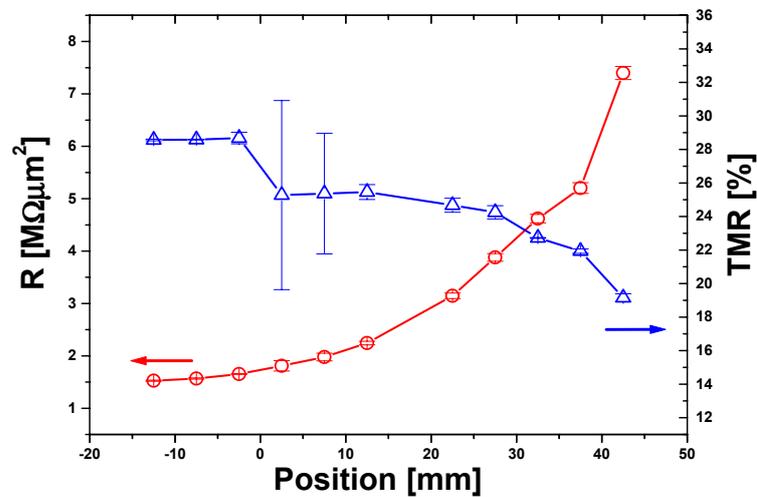


Abbildung 4.12: Flächenwiderstand und TMR-Effekt in Abhängigkeit der Position auf dem Wafer bei ECR-oxidierten Proben

Schicht geeignete Oxidationsparameter gefunden werden, sondern auch bei Variation der unteren Elektrode, da das Wachstum der Aluminium-Schicht kritisch in die Oxidation eingeht, was zum Beispiel anhand der vergrößerten Oberfläche bei höherer Rauigkeit leicht nachvollziehbar ist. Das naheliegende Verfahren besteht in der Herstellung einer Serie von Proben mit unterschiedlichen Oxidationsparametern. Durch Vergleich der Effektamplituden werden die besten Parameter eingegrenzt. Dieses Verfahren wird solange fortgesetzt, bis hinreichend gute Parameter gefunden sind. Hilfreich wäre eine Messmethode, die eine Unterscheidung zwischen Über- und Unteroxidation ermöglicht. Wird als oberes Elektrodenmaterial das gleiche wie für die untere Elektrode verwendet, was während der Optimierung der Oxidation problemlos möglich ist, da die obere Elektrode erst nach der Oxidation aufgewachsen wird, so ist das Tunnелеlement elektrisch symmetrisch (gleiche Textur und somit gleiche Austrittsarbeit der ferromagnetischen Elektroden vorausgesetzt). Die Asymmetrie der Barriere kann leicht durch Messung einer U-I Kennlinie bestimmt werden[27, 15] und verschwindet dann bei optimaler Oxidation. Am Beispiel von Kobalt als Elektrodenmaterial hat sich

herausgestellt, dass die Asymmetrien für Unteroxidation und Überoxidation ein unterschiedliches Vorzeichen besitzen. In Abbildung 4.13 sind die Asymmetrie

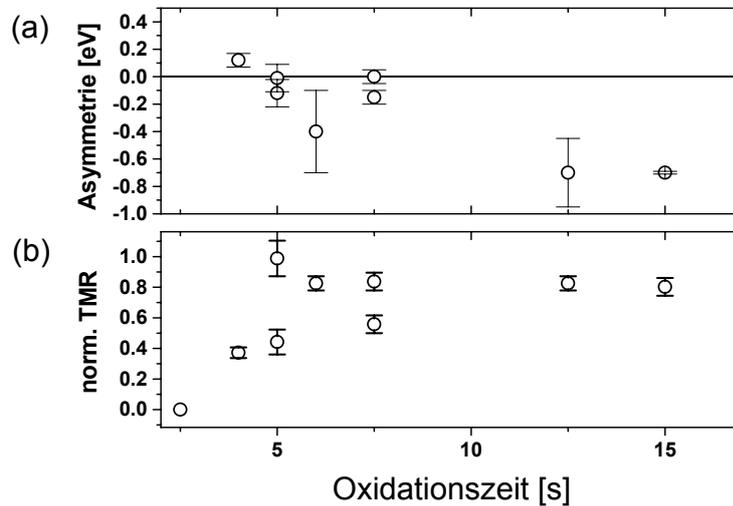


Abbildung 4.13: Barrierenasymmetrie und normierte TMR-Effektamplitude von $Co/Al_2O_3/Co$ Systemen in Abhängigkeit der Oxidationszeit. Bei maximalem TMR verschwindet die Asymmetrie

und die normierte TMR-Effektamplitude gegen die Oxidationszeit aufgetragen.

Wenn der optimale Flächenwiderstand für die gegebene Aluminium-Schicht bekannt ist, kann natürlich direkt aus dem Widerstand auf Über- oder Unteroxidation geschlossen werden. Es hat sich aber gezeigt, dass selbst bei nominell gleicher Dicke der Aluminium-Schicht der Flächenwiderstand bei maximaler TMR-Effektamplitude von der Unterlage der Aluminium-Schicht abhängt.

4.4 Durchschläge

Die Kathode besteht in den beiden Versuchsaapparaturen aus hochreinem Aluminium, damit, falls die auf der Kathode auftreffenden Ionen zu einem Sputterprozess führen, die zu oxidierende Aluminium-Schicht nicht mit anderen Materialien verunreinigt wird. Die Kathode wird auch oxidiert, es bildet sich somit an der ge-

samten Kathodenoberfläche nichtleitendes Aluminiumoxid. Die erste Vermutung war, dass die Oberfläche von den auftreffenden Ionen solange aufgeladen wird, bis die Durchbruchspannung erreicht ist und ein Durchschlag (Arcing) erfolgt. Es ist nicht auszuschließen, dass sich hierbei größere Partikel von der Kathode ablösen und die zu oxidierende Probe erreichen, wobei diese möglicherweise geschädigt wird. Es gibt zwei Möglichkeiten diesen Prozess zu verhindern. Einerseits kann die Spannungsversorgung mittels einer hochfrequenten Wechselstromquelle im MHz Bereich (ohne den Gleichrichter) erfolgen. Aufgrund der höheren Beweglichkeit der Elektronen im Plasma wird sich die Kathodenoberfläche aus Aluminiumoxid negativ aufladen. Die Aluminiumoxid-Schicht der Kathode muss dabei hinreichend dick sein um einen Durchschlag zu verhindern. Entsprechende Spannungsquellen sind als Versorgungen für das (Magnetron-) Sputtern von Isolatoren verfügbar. Diese hochfrequente Wechselspannung müsste dann, wie in Abbildung 4.14 veranschaulicht, im niederfrequenten Bereich, z.B. 100Hz wie bei der in dieser Arbeit verwendeten Quelle, unterbrochen werden. Andererseits kann die Kathode aus einem edleren Material (z.B. Gold) gefertigt werden, so dass keine isolierende Oxid-Schicht entstehen kann. Allerdings würde ein eventueller Sputterprozess dann die zu oxidierende Aluminium-Schicht verunreinigen. Daher wurden spezielle Substrate (Kohlenstoff-dotiertes Quarzglas) ein- bzw. zehnmal oxidiert und dann von R. Mattheis vom IPHT-Jena mittels WDX (Wavelength Dispersive X-Ray Analysis — wellenlängendispersive Röntgenanalyse) auf Kontamination durch Aluminium(-oxid) untersucht. Die verwendete Kathode war zuvor schon vielfach verwendet worden und somit oxidiert. Es war kein Aluminium (-oxid) auf den Substraten nachweisbar, die Nachweisgrenze liegt bei $\frac{1}{10}$ Monolage. Somit ist es nicht notwendig, dass die Kathode aus hochreinem Aluminium besteht. Durch Verwendung einer Elektrode aus einem edlen Material (eine Beschichtung der Oberfläche reicht) kann Arcing vollständig verhindert werden.

Auch bei Verwendung der Aluminiumelektrode wird kein Arcing beobachtet. Dieses sollte sich als kleine Strom- oder Spannungspeaks nachweisen lassen, die

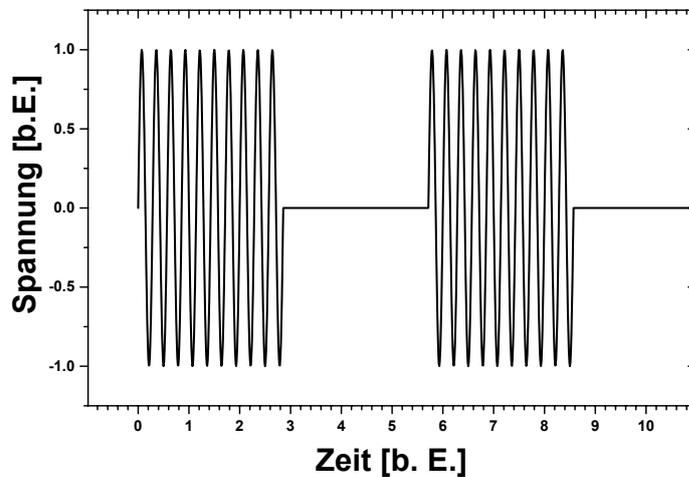


Abbildung 4.14: Schematische Darstellung einer möglichen Spannungsversorgung der Pulsplasmaquelle zur Unterdrückung eventueller Durchschläge. Eine hochfrequente Wechselspannung (z.B. 13.6MHz) an der Kathode führt aufgrund der im Vergleich zu den Ionen höheren Beweglichkeit der Elektronen zu einer negativen Aufladung der isolierenden Kathodenoberfläche. Um die Pulsplasma-Oxidation zu ermöglichen, wird diese Wechselspannung niederfrequent (z.B. 100Hz) unterbrochen

aber bei Untersuchungen des Spannungsabfalls an dem Vorwiderstand und der Spannung an der Elektrode mit einem Speicheroszilloskop nicht gefunden wurden. Das Ausbleiben der Durchschläge ist auf den ersten Blick überraschend: Die Aluminiumelektrode ist oxidiert, zugleich fließt ein Strom (beispielsweise $30\mu\text{A}$ pro cm^2 Kathodenoberfläche). Die Ladungen müssen folglich durch die Oxid-Schicht tunneln. Nur ein Teil der angelegten Spannung ($300V_{eff}$) kann an dem Oxid abfallen. Aluminiumelektrode und Ladungen auf der Oberfläche der Oxidschicht können als Plattenkondensator aufgefasst werden, das Oxid selbst wirkt als Dielektrikum und seine Dicke bestimmt den Abstand der „Kondensatorplatten“. Eine Extrapolation der im vorhergehenden Kapitel gefundenen Tunnelwiderstände für Aluminiumoxid ergibt, dass bei einer angenommenen Aufladung des Kondensators auf 10V (100V) die Oxid-Schicht etwa 3nm (3.1nm) dick sein darf, um

einen Strom von $30\mu\text{A}$ pro cm^2 zu erhalten. Um eine 3nm dicke Aluminiumoxid-Schicht zu erhalten (Flächenwiderstand $= \frac{10}{30 \cdot 10^{-6}} \frac{\text{Vcm}^2}{\text{A}} = 3.3 \cdot 10^{13} \Omega \mu\text{m}^2$), müsste eine Aluminium-Schicht etwa $2 \cdot 10^{11}\text{s}$ bzw. 7000 Jahre mittels Pulsplasma oxidiert werden (extrapoliert, vgl. Abbildung 4.8). Sicherlich oxidiert die Elektrode aufgrund des Potentials schneller als die Probe, dennoch dürfte diese Dicke nicht während der Lebensdauer der Oxidationsanlage erreicht werden.

Falls die Oxid-Schicht wesentlich für den Betrieb der Quelle sein sollte, kann durch Beschichtung der Elektrode mit einer Gold/Aluminium Doppellage die Dicke der Aluminiumoxid-Schicht fest eingestellt werden.

Eine Veröffentlichung der Ergebnisse dieses Kapitels ist in Vorbereitung.

Kapitel 5

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden zwei Kobalt-Chrom Legierungen ($\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ und $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$) auf ihre Verwendbarkeit in magnetischen Tunnelementen als magnetische Elektrode untersucht.

Für die Herstellung der Tunnelbarriere durch Plasmaoxidation von Aluminium wurde eine neuartige Plasmaquelle (Pulsplasma) entwickelt und charakterisiert.

Die Kobalt-Chrom Legierungen weisen interessante Eigenschaften auf. Durch Variation der Schichtdicken können die Koerzitivfeldstärken beider Legierungen in weiten Bereichen eingestellt werden und eine Abscheidung auf Tantal führt im Vergleich zur Abscheidung auf Kupfer oder Siliziumoxid zu einer Erhöhung der Koerzitivfeldstärke. Beides kann verstanden werden, wenn als Ummagnetisierungsprozess Domänenwandverschiebung angenommen wird, da die von der Schichtdicke abhängige Domänenwandenergiedichte dann proportional in die Koerzitivfeldstärke eingeht. Der von dieser Theorie vorhergesagte Übergang von Néel- zu Bloch-Domänenwänden wurde für $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ beobachtet.

Die für die Höhe des TMR-Effekts entscheidende Spinpolarisation der beiden Kobalt-Chrom Legierungen ist etwa 50% geringer als die für reines Kobalt. Eine dünne Kobalt-Schicht zwischen der Kobalt-Chrom-Schicht und der Tunnelbarriere

re erhöht die Spinpolarisation an der Barriere, während die Koerzitivfeldstärke im Wesentlichen von der dickeren Kobalt-Chrom-Schicht bestimmt wird. Zusätzlich ist die Squareness der Kobalt-Chrom/Kobalt Doppelschicht gegenüber einer einzelnen Kobalt-Chrom-Schicht erhöht. Für $\text{Co}_{83}\text{Cr}_{17}$ kann die Koerzitivfeldstärke zwischen 50 und 650 Oe, für $\text{Co}_{87}\text{Cr}_{13}$ zwischen 10 und 150 Oe bei einer Squareness größer als 0.8 eingestellt werden.

Ab etwa 300°C diffundiert das Kobalt der Kobalt-Chrom/Kobalt Doppelschicht in die Kobalt-Chrom-Schicht, so dass dieser Ansatz nicht für TMR-Elemente mit hohen Anforderungen an die Temperaturstabilität funktioniert. Bei Kobalt-Chrom Einzelschichten verringert sich der Einfluss der Keimschicht mit zunehmender Auslagerungstemperatur; ein pre-anneal Prozess („burn-in“) bei Temperaturen oberhalb der Betriebstemperatur erscheint bei technischen Anwendungen sinnvoll.

Die Pulsplasma-Oxidationsmethode erweist sich als vielseitiges Oxidationsverfahren für die Herstellung von Aluminiumoxidbarrieren. TMR Effektamplituden um 50% (bei .../Py/Al₂O₃/CoFe/...) und Flächenwiderstände von 1GΩμm² bis unter 10KΩμm² sind bei einer Oxidationszeit von einigen zehn Sekunden erzielbar. Der Verdacht der Kontamination der Probenoberfläche konnte widerlegt werden. Die Homogenität der Oxidationsrate (20% auf 100mm) ist verglichen mit der ECR-Plasmaquelle (300%) sehr gut; eine weitere Homogenisierung sollte sich mittels einer sphärischen Elektrode erzielen lassen. Die Pulsplasmaquelle zeichnet sich durch ihren sehr einfachen und auch preiswerten Aufbau aus. Ihr Hauptvorteil ist die niedrige Energie der von ihr erzeugten Ionen. Aufgrund der wenigen einzustellenden Parameter, deren Wirkungen untersucht und verstanden sind, ist die Anpassung an einen neuen Prozess sehr schnell und einfach möglich.

Literaturverzeichnis

- [1] M. Julliere, Phys. Lett. **54A**, 225 (1975).
- [2] J. S. Moodera and G. Mathon, J. Magn. Magn. Mater. **200**, 248 (1999).
- [3] P. LeClair, *Fundamental Aspects of Spin Polarized Tunneling*, Dissertation, Technische Universität Eindhoven, 2002.
- [4] S. Mengel, *XMR-Technologien* (VDI-Technologiezentrum, 1997).
- [5] J. M. Daughton, J. Magn. Magn. Mater. **192**, 334 (1999).
- [6] G. Reiss, H. Brückl, A. Hütten, J. Schmalhorst, M. Justus, A. Thomas, and S. Heitmann, Phys. Stat. Sol. (b) **235**, 221 (2003).
- [7] M. Tondra, J. M. Daughton, D. Wang, R. S. Beech, A. Fink, and J. A. Taylor, J. Appl. Phys. **83**, 6688 (1998).
- [8] M. Tondra, J. M. Daughton, C. Nordman, D. Wang, and J. A. Taylor, J. Appl. Phys. **87**, 4679 (2000).
- [9] J. M. Daughton, J. Appl. Phys. **81**, 3758 (1997).
- [10] S. S. P. Parkin *et al.*, J. Appl. Phys. **85**, 5828 (1999).
- [11] J. Wecker and J. Bangert, *Nichtflüchtige Datenspeicherung mit magnetischen Tunnelementen: Das Magnetic Random Access Memory (MRAM)(Vorlesungsmanuskripte des 30. IFF-Ferienkurses, S. D6.1-D6.17)* (Forschungszentrum Jülich GmbH, 1999).
- [12] J. Henkel, *Magnetoelektronik aus Sicht der Innovationsforschung (Tagungsband zum Statusseminar Magnetoelektronik in Dresden, S. 175-186)* (VDI, 2000).
- [13] R. Richter, *Logic gates realized with spin dependent tunneling elements*, Dissertation, Universität Bielefeld, 2002.
- [14] P. K. Naji, M. Durlam, S. Tehrani, J. Calder, and M. F. DeHerrera, IEEE ISSCC Dig. Tech. Papers **A4**, 122 (2001).

- [15] J. Schmalhorst, *Magnetische, thermische und dielektrische Stabilität von magnetischen Tunnelementen*, Dissertation, Universität Bielefeld, 2001.
- [16] S. S. P. Parkin, K. S. Moon, K. E. Pettit, D. J. Smith, and R. E. Dunin-Borkowski, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 543 (1999).
- [17] R. C. Sousa, J. J. Sun, V. Soares, P. P. Freitas, A. Kling, M. F. da Silva, and J. C. Soares, *J. Appl. Phys.* **85**, 5258 (1999).
- [18] J. Schmalhorst, H. Brückl, G. Reiss, G. Gieres, and J. Wecker, Thermal stability of a pinned artificial antiferromagnet in magnetic tunnel junctions, in Vorbereitung.
- [19] H. Kubota, T. Watabe, Y. Fukumoto, and T. Miyazaki, *J. Magn. Soc. Japan* **23**, 67 (1999).
- [20] H. Tsuge and T. Mitsuzuka, *Appl. Phys. Lett.* **71**, 3296 (1997).
- [21] P. Rottländer, *Magnetic Tunnel Junctions with Barriers Fabricated by Means of UV-Light Assisted Oxidation*, Dissertation, Universität Köln, 1999.
- [22] P. LeClair, J. T. Kohlhepp, A. A. Smits, H. J. M. Swagten, B. Koopmans, and W. J. M. de Jonge, *J. Appl. Phys.* **87**, 6070 (2000).
- [23] K. Inomata, Y. Saito, K. Nakajima, and M. Sagoi, *J. Appl. Phys.* **87**, 6064 (2000).
- [24] R. Meservey and P. M. Tedrow, *Phys. Rep.* **238**, 173 (1994).
- [25] C. B. Duke, *Tunneling in Solids* (Academic Press, New York, 1969).
- [26] E. L. Wolf, *Principles of Electron Tunneling Spectroscopy* (Oxford University Press, London, 1985).
- [27] W. F. Brinkman, R. C. Dynes, and J. M. Rowell, *J. Appl. Phys.* **41**, 1915 (1970).
- [28] Messiah, *Quantenmechanik I* (de Gruyter, 1976).
- [29] A. M. Bratkovsky, *Phys. Rev. B* **56**, 2344 (1997).
- [30] W. A. Harrison, *Phys. Rev.* **123**, 85 (1961).
- [31] I. Giaever, *Phys. Rev. Lett.* **5**, 147 (1960).
- [32] I. Giaever, *Phys. Rev. Lett.* **5**, 464 (1960).

- [33] I. Giaever, *in Nobel Lectures in Physics, 1971-1980, S. 144* (World Scientific, Singapore, 1992).
- [34] J. Bardeen, *Phys. Rev. Lett.* **6**, 57 (1961).
- [35] M. H. Cohen, L. M. Falicov, and J. C. Phillips, *Phys. Rev. Lett.* **8**, 316 (1962).
- [36] J. R. Schrieffer, D. J. Scalapino, and J. M. Wilkins, *Phys. Rev. Lett.* **10**, 336 (1963).
- [37] J. S. Moodera, J. Nowak, and R. J. M. van de Veerdonk, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2941 (1998).
- [38] C. H. Shang, J. Nowak, R. Jansen, and J. S. Moodera, *Phys. Rev. B* **58**, R2917 (1998).
- [39] R. Jansen and J. S. Moodera, *Phys. Rev. B* **61**, 9047 (2000).
- [40] J. A. Appelbaum, *Phys. Rev.* **154**, 633 (1967).
- [41] D. Tsui, R. Dietz, and L. Walker, *Phys. Rev. Lett.* **27**, 1729 (1971).
- [42] Y. Lu, X. W. Li, G. Xiao, R. A. Altmann, W. J. Gallagher, A. Marley, and K. R. ans S. Parkin, *J. Appl. Phys.* **83**, 6515 (1998).
- [43] A. V. Khaetskii and K. A. Matveev, *Phys. Rev. B* **44**, 3444 (1991).
- [44] J. Zhang and R. M. White, *J. Appl. Phys.* **83**, 6512 (1998).
- [45] J. C. Slonczewski, *Phys. Rev. B* **39**, 6995 (1989).
- [46] M. B. Stearns, *J. Magn. Magn. Mater.* **5**, 167 (1977).
- [47] P. LeClair, J. T. Kohlhepp, H. J. M. Swagten, and W. J. M. de Jonge, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1066 (2001).
- [48] J. S. Moodera, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3273 (1995).
- [49] T. Miyazaki and N. Tezuka, *J. Magn. Magn. Mater.* **139**, L231 (1995).
- [50] K. Ohashi *et al.*, *IEEE Trans. Magn.* **36**, 2549 (2000).
- [51] R. C. Sousa, V. Soares, F. Silva, J. Bernardo, and P. P. Freitas, *J. Appl. Phys.* **87**, 6382 (2000).
- [52] D. Wang, M. Tondra, A. V. Pohm, C. Nordman, J. Anderson, J. M. Daughton, and W. C. Black, *J. Appl. Phys.* **87**, 6385 (2000).

- [53] F. Z. Wang, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2036 (2000).
- [54] J. M. Slaughter *et al.*, *J. Sup.: Inc. Nov. Magn.* **15**, 19 (2002).
- [55] G. Rieger, M. Vieth, and J. Hauch, *GMR-magnetokopler zur galvanisch getrennten Signalübertragung (Tagungsband zum Statusseminar Magneto-elektronik in Dresden, S. 51-54)* (VDI, 2000).
- [56] D. Wang *et al.*, *J. Appl. Phys.* **91**, 8405 (2002).
- [57] S. van Dijken, X. Jiang, and S. S. P. Parkin, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 3364 (2002).
- [58] J. Bornemeier *et al.*, Injection of ballistic electrons into semiconductors, in Vorbereitung.
- [59] N. Cabrera and N. F. Mott, *Rep. Prog. Phys.* **12**, 163 (1949).
- [60] *The Science and Engeneering of Microelectronic Fabrication* (Oxford University Press, Oxford, 1996).
- [61] L. Bergmann and C. Schaefer, *Festkörper* (de Gruyter, 1992).
- [62] A. Atkinson, *Rev. Mod. Phys.* **57**, 437 (1985).
- [63] M. J. Dignam, *J. Electrochem. Soc.* **109**, 192 (1962).
- [64] G. L. Hunt and I. M. Ritchie, *Oxid. Met.* **2**, 361 (1970).
- [65] M. F. Gillies, W. Oepts, A. E. T. Kuiper, R. Coehoorn, Y. Tamminga, J. H. M. Sniijders, and W. A. Bik, *IEEE Trans. Magn.* **35**, 2991 (1999).
- [66] A. E. T. Kuiper *et al.*, *J. Appl. Phys.* **89**, 1965 (2001).
- [67] M. F. Gillies, A. E. T. Kuiper, R. Coehoorn, and J. J. T. M. Donkers, *J. Appl. Phys.* **88**, 429 (2000).
- [68] B. F. P. Roos, *Ultradünne Metalloxid-Barrierenschichten hergestellt mit ionisierter Atomstrahl-Oxidation für magnetische Tunnel-Widerstandsschichtsysteme*, Dissertation, Universität Kaiserslautern, 2001.
- [69] M. D. Sacher, Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 2002.
- [70] R. F. Soohoo, *Magnetic thin films* (Harper and Row, New York, 1965).
- [71] R. M. Bozorth, *Ferromagnetism* (IEEE Press, New York, 1993).
- [72] A. H. Morrish, *The physical principles of magnetism* (IEEE Press, New York, 2001).

- [73] Y. K. Kim and M. Oliveria, J. Appl. Phys. **74**, 1233 (1993).
- [74] C.-W. Chen, *Magnetism and Metallurgy of Soft Magnetic Materials* (North-Holland, Amsterdam, 1977).
- [75] M. Kersten, *Grundlagen einer Theorie der ferromagnetischen Hysterese und der Koerzitivkraft* (Hirzel, Leipzig, 1943).
- [76] Q. Jiang, H. N. Yang, and G. C. Wang, Surf. Sci. **373**, 181 (1997).
- [77] L. Néel, Comptes Rendus hebdomadaires des Séances de l'Académie des Sciences Paris **241**, 533 (1955).
- [78] M. Prutton, *Thin Ferromagnetic Films* (Butterworth, London, 1964).
- [79] M. J. Klein and R. S. Smith, Phys. Rev. **81**, 378 (1951).
- [80] S. J. Glass and M. J. Klein, Phys. Rev. **109**, 288 (1958).
- [81] L. Valenta, Czech. J. Phys. **7**, 127 (1957).
- [82] E. C. Crittenden, Jr. and R. W. Hoffman, Rev. Mod. Phys. **25**, 310 (1953).
- [83] M. H. Seavey, Jr. and P. E. Tannenwald, J. Appl. Phys. **29**, 292 (1958).
- [84] W. Ruske, Ann. Phys. **2**, 274 (1958).
- [85] H. J. Bauer, Z. Phys. **153**, 484 (1959).
- [86] C. A. Neubauer, *Structure and Properties of Thin Films* (John Wiley and Sons, New York, 1959, p. 358).
- [87] L. N. Liebermann, D. R. Fredkin, and H. B. Shore, Phys. Rev. Lett. **22**, 539 (1969).
- [88] L. Liebermann, J. Clinton, D. M. Edwards, and J. Mathon, Phys. Rev. Lett. **25**, 232 (1970).
- [89] M. Weinert and J. W. Davenport, Phys. Rev. Lett. **54**, 1547 (1985).
- [90] H. Mändl, *Magnetische und morphologische Eigenschaften gesputterter CoCr-Schichten*, Dissertation, Universität Regensburg, 1988.
- [91] J. E. Snyder and M. H. Kryder, J. Appl. Phys. **73**, 5551 (1993).
- [92] W. Schweika, *Schichtpräparation mit Sputterverfahren (Vorlesungsmuskripte des 30. IFF-Ferienkurses, S. A5.1-A5.24)* (Forschungszentrum Jülich GmbH, 1999).

- [93] S. Iwasaki and K. Ouchi, IEEE Trans. Magn. **14**, 849 (1978).
- [94] Y. Nakamura and S. Iwasaki, IEEE Trans. Magn. **15**, 1456 (1979).
- [95] J. Zhu and H. N. Bertram, J. Appl. Phys. **69**, 6084 (1991).
- [96] J. C. Lodder, J. Magn. Magn. Mater. **159**, 238 (1996).
- [97] G. Wastlbauer, G. D. Skimore, C. Merton, J. Schmidt, E. Dan Dahlberg, and J. Skorjanec, Appl. Phys. Lett. **76**, 619 (2000).
- [98] M. Justus, Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 1999.
- [99] P. Rottländer, H. A. M. de Gronckel, H. Kohlstedt, E. Girgis, J. Schelten, and P. Grünberg, J. Magn. Magn. Mater. **210**, 251 (2000).
- [100] A. Thomas, H. Brückl, M. D. Sacher, J. Schmalhorst, and G. Reiss, Aluminium oxidation by a remote electron cyclotron resonance plasma in magnetic tunnel junctions, eingereicht bei Thin Solid Films 2002.
- [101] H. Kumoni and G. S. F, Fundamentals for the formation and structure control of thin films: nucleation, growth, solid-state transformations, in *Handbook of thin film materials, volume 1*, edited by H. S. Nalwa, Academic Press, San Diego, 2002.
- [102] J. Nogués and I. K. Schuller, J. Magn. Magn. Mater. **192**, 203 (1999).
- [103] M. Justus, H. Brückl, and G. Reiss, J. Magn. Magn. Mater. **240**, 212 (2002).
- [104] M. Rabe, *Magnetismus von hartmagnetischen Biasschichten für Anwendungen in Magnetoresistiven Elementen*, Dissertation, Universität Bielefeld, 2003.
- [105] W. Sucksmith and J. E. Thompson, Proc. R. Soc. **A225**, 362 (1954).
- [106] M. Rabe, U. M. May, H. Siegle, A. Hütten, S. Kämmerer, M. Justus, and G. Reiss, Magnetotransport properties of hard magnetic pinned multilayers, eingereicht bei J. Appl. Phys.
- [107] G. Bottoni, D. Candolfo, and A. Cecchetti, J. Magn. Magn. Mater. **193**, 237 (1999).
- [108] D. Wang, M. Tondra, C. Nordman, and J. M. Daughton, IEEE Trans. Magn. **35**, 2886 (1999).
- [109] S. Cardoso, P. P. Freitas, C. de Jesus, P. Wei, and J. C. Soares, Appl. Phys. Lett. **76**, 610 (2000).

- [110] A. Hütten, S. Heitmann, T. Hempel, and G. Reiss, *Tailor-made GMR — characteristics for automotive sensor applications (Tagungsband zum Statusseminar Magnetoelektronik in Dresden, S. 45-49)* (VDI, 2000).
- [111] eigene Messungen an magnetischen Tunnelementen.
- [112] K. I. Lee, J. H. Lee, W. Y. Lee, K. K. W. Rhie, J. G. Ha, and C. S. Kim, *J. Magn. Magn. Mater.* **239**, 120 (2002).
- [113] R. C. Sousa, J. J. Sun, V. Soares, P. P. Freitas, A. Kling, M. F. da Silva, and J. C. Soares, *Appl. Phys. Lett.* **73**, 3288 (1998).
- [114] H. Kikuchi, M. Sato, and K. Kobayashi, *J. Appl. Phys.* **87**, 6055 (2000).
- [115] C. C. Liao *et al.*, *J. Magn. Magn. Mater.* **239**, 116 (2002).
- [116] M. T. Lin, C. H. Ho, Y. D. Yao, R. T. Huang, C. C. Liao, F. R. Chen, and J. J. Kai, *J. Appl. Phys.* **91**, 7475 (2002).
- [117] M. Samant, J. Luning, J. Stohr, and S. S. P. Parkin, *Appl. Phys. Lett.* **176**, 3097 (2000).
- [118] S. Cardoso, P. P. Freitas, C. de Jesus, and J. C. Soares, *J. Appl. Phys.* **87**, 6058 (2000).
- [119] J. Schmalhorst, H. Brückl, G. Reiss, M. Vieth, G. Gieres, and J. Wecker, *J. Appl. Phys.* **87**, 5191 (2000).
- [120] P. LeClair, H. J. M. Swagten, J. T. Kohlhepp, R. J. M. van de Verdonk, and W. J. M. de Jonge, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2933 (2000).
- [121] A. Thomas, persönliche Mitteilung.
- [122] R. Richter, L. Bär, J. Wecker, and G. Reiss, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 1291 (2002).
- [123] R. Richter, L. Bär, J. Wecker, and G. Reiss, *J. Appl. Phys.* **91**, 8402 (2002).
- [124] J. L. Prieto, P. Sánchez, C. Aroca, M. aicas, E. López, and M. C. Sánchez, *J. Magn. Magn. Mater.* **177-181**, 215 (1998).
- [125] M. Labrune and J. Miltat, *J. Magn. Magn. Mater.* **151**, 231 (1995).
- [126] L. Néel, *C. R. Acad. Sci., Paris* **255**, 1676 (2000).
- [127] B. D. Schrag *et al.*, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 2373 (2000).
- [128] T. Luciński, H. Brückl, M. Justus, A. Hütten, and G. Reiss, *J. Magn. Magn. Mater.* **239**, 138 (2002).

- [129] B. G. Demczyk, *Ultramicroscopy* **47**, 425 (1992).
- [130] D. Brinkmann, Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 2002.
- [131] S. Gider, B. U. Runge, A. C. Marley, and S. S. P. Parkin, *Science* **281**, 797 (1998).
- [132] L. Thomas, J. Lüning, A. Scholl, F. Nolting, S. Anders, J. Stöhr, and S. S. P. Parkin, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 3462 (2000).
- [133] M. R. McCartney, R. E. Dunin-Borkowski, M. R. Scheinfein, D. J. Smith, S. Gider, and S. S. P. Parkin, *Science* **286**, 1337 (1999).
- [134] L. Thomas, M. G. Samant, and S. S. P. Parkin, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 1816 (2000).
- [135] J. Schmalhorst, H. Brückl, G. Reiss, R. Kinder, G. Gieres, and J. Wecker, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 3456 (2000).
- [136] L. Chesler and G. Robinson, *J. Vac. Sci. Technol.* **15**, 1525 (1978).
- [137] P. Friedel and S. Gourrier, *J. Phys. Chem. Solids* **44**, 353 (1983).
- [138] A. Bell, *Techniques and Applications of Plasma Chemistry* (Wiley, New York, 1974).
- [139] T. E. Clark, F. B. Mancoff, S. X. Wang, B. M. Clemens, and R. Sinclair, *IEEE Trans. Magn.* **35**, 2922 (1999).
- [140] J. F. Gregg, I. Petej, E. Jouguelet, and C. Dennis, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **35**, R121 (2002).
- [141] M. Covington, J. Nowak, and D. Song, *Appl. Phys. Lett.* **76**, 3965 (2000).
- [142] M. Tsunoda, K. Nizuhiro, S. Ogata, and M. Takahashi, *Appl. Phys. Lett.* **80**, 3135 (2002).

zum Schluss...

...danke ich all denen, die direkt oder indirekt Anteil an der Erstellung dieser Arbeit haben. Allen voran danke ich meinen hervorragenden Betreuern DR. HUBERT BRÜCKL, PD DR. ANDREAS HÜTTEN, DR. WILLI SCHEPPER und PROF. DR. GÜNTER REISS, die stets für die Diskussion von Fragen und Problemen ansprechbar waren, für das entgegengebrachte Vertrauen.

Meinem Kollegen ANDY THOMAS, mit dem ich zusammen die Evolution des „Bielefelder TMR“ von „Rauschen“ über „sichtbar“ bis hin zu „beachtlich“ mit all ihren Erfolgen und Rückschlägen durchlebt habe, danke ich ganz ausdrücklich für die sehr erfolgreiche und stets angenehme Zusammenarbeit. Ganz besonders danke ich auch meinen Kollegen DR. KARSTEN ROTT, DR. THOMAS KAPS, DR. JAN SCHMALHORST, MARC SACHER, JAN BORNEMEIER, JÖRG SCHOTTER und DIRK MEYNERS für die praktische Hilfe sowie allen Mitarbeitern der Arbeitsgruppe „Dünne Schichten und Nanostrukturen“ für die lehrreichen und oft unterhaltsamen Diskussionen, das sehr angenehme Arbeitsklima und die schöne gemeinsame Zeit.

JAN BORNEMEIER, MARC SACHER und ANDY THOMAS, die vorläufige Fassungen des Manuskripts durchgesehen haben, danke ich für die Verbesserungsvorschläge.

Vielen Dank auch an all diejenigen, die Messungen für mich durchgeführt haben: DIRK MEYNER (MFM), SONJA HEITMANN (XRD), SVEN KÄMMERER (XRD) und DR. JAN SCHMALHORST (SAM).

Den Mitarbeitern der Mechanikwerkstatt, die für jedes Problem eine Lösung gefunden haben, danke ich für die jederzeit schnelle und unkomplizierte Zusammenarbeit. Der Elektronikwerkstatt danke ich für die unbürokratische und zuverlässige Durchführung meiner Aufträge und der stets kompetenten Beratung. Namentlich danke ich DIETER GOLLAY für die Entwicklung vieler ausgezeichneter Messelektroniken, ohne die die zügige Messung vieler Proben nicht möglich gewesen wäre.

Mein größter Dank gilt aber meiner Freundin NICOLE MATULLA für ihr stetes Verständnis und ihre niemals ermüdende Unterstützung sowie unserer Tochter MADLEEN ELISA für die viele Freude, die sie mir in ihrem noch jungen Leben schon bereitet hat.