

Charakterisierung von magnetischen Tunnelementen

Dissertation zur Erlangung des Grades einer
Doktorin der Naturwissenschaften
der Fakultät für Physik der
Universität Bielefeld

vorgelegt von
Andrea Niemeyer
aus Bielefeld

23. Dezember 2008

Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Bielefeld, den 23. Dezember 2008

(Andrea Niemeyer)

Gutachter:

Prof. Dr. G. Reiss

Prof. Dr. A. Gölhäuser

Datum des Einreichens der Arbeit: 23. Dezember 2008

Einleitung

Die Spintronik, ein noch recht neues Gebiet der Festkörperphysik, welches eine Kombination aus Magnetismus und Elektronik bildet, hat sich in den vergangenen zwei Jahrzehnten seit ihrer Entstehung rasant entwickelt[1]. Dabei wird der Spin der Elektronen z.B. in ferromagnetischen Materialien zusätzlich zur Ladung ausgenutzt[2]. Der Beginn der Spintronik kann auf die Entdeckung des Riesenmagnetowiderstandes (giant magnetoresistance: GMR) im Jahre 1988 durch die Gruppen von A. FERT[3] und P. GRÜNBERG[4], die dafür 2007 mit dem Nobelpreis gewürdigt wurden, datiert werden[5]. Voraussetzung dafür waren ständige Verbesserungen in der Dünnschichttechnologie[1], so dass zusätzlich zum GMR, der schon sehr bald nach seiner Entdeckung erste technische Anwendungen nach sich zog[6], auch andere interessante Effekte entdeckt wurden. Einer der wichtigsten und für diese Arbeit relevante Effekt ist der Tunnelmagnetowiderstand (tunneling magnetoresistance: TMR) in magnetischen Tunnellelementen (magnetic tunnel junction: MTJ). Als 1995 reproduzierbar hohe TMR-Effekte bei Raumtemperatur berichtet wurden[7], erhielt dieser schon 1975 von JULLIÈRE entdeckte Effekt[8] ein enormes Interesse. Zusätzlich zur Grundlagenforschung[9] war schnell die Idee verschiedenster Anwendungen, zu denen magnetische Datenspeicher[10] und Logiken[11] gehören, entstanden.

Schon im Jahr 2001 stellte Motorola einen 256 kBit MRAM (magnetic random access memory) Demonstrator vor[12], 2006 beginnt Freescale den Verkauf von 4 MBit MRAM[13] und 2008 kündigt Toshiba die ersten 1 Gbit MRAM an[14]. Die Basiszelle eines MRAM ist ein MTJ; dieses besteht im einfachsten Fall aus zwei ferromagnetischen Schichten (Elektroden), die durch eine isolierende nicht magnetische Schicht getrennt sind. Tatsächlich besteht ein reales MTJ aus zahlreichen zusätzlichen Schichten, diese dienen z.B. der Kontaktierung und verbessertem Schichtwachstum. Um eine Verbesserung magnetischer Tunnellelemente zu erreichen, gibt es verschiedene Ansätze: Das Schichtsystem kann verändert werden, die Präparationsparameter können variiert werden, und es können neue Materialien getestet werden. Für Anwendungen ist es zusätzlich wichtig, dass ein hoher TMR gemessen werden kann, dass die Schaltverhalten stabil ist, und dass die MTJ reproduzierbar hergestellt werden können[15]. Diese Arbeit widmet sich dem Testen neuer Materialien. Dabei wird zum Einen die hartmagnetische Elektrode verändert (Kapitel 4), und zum Anderen das Barrierenmaterial ausgetauscht (Kapitel 5 und 6).

Für Anwendungen sind magnetische Tunnellelemente mit hohen Schaltfeldern der hartmagnetischen Elektrode, sowie geringer Néel- und Dipolkopplung der weichmagnetischen Elektrode, erwünscht[16]. Momentan wird dieses Verhalten durch den Einbau eines künstlichen Ferrimagneten (z.B. ein CoFeB/Ru/CoFeB Dreilager[17]), innerhalb dem sich die magnetischen Mo-

menten kompensieren, erreicht[18]. In dieser Arbeit wird gezeigt, wie dieses Verhalten der hartmagnetischen Elektrode auch durch ein Schichtsystem bestehend aus NiFe/Co-Gd/NiFe Dreilagern erreicht werden kann. Selten-Erd-Legierungen zeigen auf Übergangsmetallen und deren Legierungen eine negative Austauschkopplung[19], so dass bei geeigneter Wahl der Zusammensetzung und der Schichtdicke eine Kompensation des Gesamtmomentes beobachtet werden kann. Dafür wurden sowohl die Zusammensetzung als auch die Dicke der Co-Gd Schicht variiert. Das Schaltverhalten der Dreilager wurde einzeln und integriert in einem magnetischen Tunnелеlement untersucht (Kapitel 4).

In den vergangenen Jahren hat ein Wechsel des Barrierenmaterials in magnetischen Tunnелеlementen stattgefunden. Statt dem bis dahin hauptsächlich genutzten Al_2O_3 [7] hat sich mittlerweile MgO als das vielversprechendste Material durchgesetzt. Dieses zeigt im Vergleich einen höheren TMR bei gleichzeitig niedrigerem Flächenwiderstand[20]. Beides ist für Anwendungen erwünscht[21].

In dieser Arbeit werden Al-Zr-O Barrieren verschiedener Zusammensetzungen untersucht, da für diese Barrieren sowohl ein geringer Widerstand[22], als auch eine Steigerung des TMR[23] gegenüber Al_2O_3 Barrieren berichtet wird. Oxidiertes Al-Zr formt eine sehr gleichmäßige amorphe Schicht, welche wichtig für eine Tunnelbarriere guter Qualität ist. Dies wird mit Elektroden aus Co-Fe-B kombiniert, die zusammen mit Al_2O_3 Barrieren einen hohen TMR von über 70% bei Raumtemperatur ergeben[24]. Die Kombination verspricht eine weitere Steigerung des Effektes. Der TMR wurde für verschiedene Al-Zr Zusammensetzungen in Abhängigkeit von der Dicke der Barriere untersucht. Dies wurde mit Elektroden aus $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ (Kapitel 5) und $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ (Kapitel 6) kombiniert.

Inhaltsverzeichnis

| | |
|--|------------|
| Einleitung | iii |
| 1 Theoretische Grundlagen | 1 |
| 1.1 Der Tunnelmagnetowiderstand | 1 |
| 1.1.1 Der Tunneleffekt | 5 |
| 1.1.2 Die Tunnelbarriere | 7 |
| 1.1.3 Das Elektrodenmaterial | 9 |
| 1.1.4 Kopplungsphänomene | 10 |
| 1.1.5 Künstliche Ferrimagnete | 14 |
| 1.2 Co-Gd Legierungen | 15 |
| 1.2.1 Übergangsmetall-Selten-Erd-Legierungen | 15 |
| 1.2.2 Co-Gd | 16 |
| 1.3 Al-Zr Legierungen | 19 |
| 1.3.1 Magnetische Tunnelemente mit Al-Zr Barrieren | 20 |
| 2 Herstellung & Präparation | 25 |
| 2.1 Herstellung | 25 |
| 2.2 Präparation | 25 |
| 2.3 Der Schichtaufbau | 26 |
| 2.3.1 CoGd-Proben | 26 |
| 2.3.2 AlZr-Proben | 27 |
| 3 Charakterisierungsmethoden | 29 |
| 3.1 Röntgendiffraktometrie (XRD) | 29 |
| 3.2 Atomkraftmikroskop (AFM) | 30 |
| 3.3 Energiedispersive Röntgenspektroskopie (EDX) | 30 |
| 3.4 Augerelektronenspektroskopie (AES) | 32 |
| 3.5 Magnetooptischer Kerr-Effekt (MOKE) | 32 |
| 3.6 Alternating Gradient Magnetometer (AGM) | 33 |
| 3.7 Transportmessungen | 33 |
| 3.7.1 Magnetowiderstand | 33 |
| 3.7.2 UI-Kennlinie | 34 |
| 3.7.3 Temperaturabhängige Messungen | 34 |

| | | |
|----------|---|-----------|
| 3.7.4 | Tiefentemperaturmessungen | 34 |
| 4 | Ergebnisse Co-Gd | 35 |
| 4.1 | Py/Co-Gd/Py als Dreilager | 36 |
| 4.2 | Schichtdickenabhängigkeit | 39 |
| 4.3 | Temperaturabhängigkeit | 42 |
| 4.4 | Fazit | 45 |
| 5 | Ergebnisse Al-Zr I | |
| | planare Schichten | 47 |
| 5.1 | CoFe Elektroden | 47 |
| 5.2 | CoFeB Elektroden | 49 |
| 5.3 | Abhängigkeit von der Auslagerungstemperatur | 50 |
| 5.4 | Schichtdickenabhängigkeit | 51 |
| 5.5 | Konzentrationsabhängigkeit | 53 |
| 5.6 | Fazit | 57 |
| 6 | Ergebnisse Al-Zr II | |
| | keilförmige Schichten | 59 |
| 6.1 | Referenzproben | 59 |
| 6.2 | Schichtdickenabhängigkeit | 60 |
| 6.2.1 | 5 at.% Zr | 60 |
| 6.2.2 | 12 at.%Zr | 64 |
| 6.2.3 | 31 at.% Zr | 67 |
| 6.3 | Konzentrationsabhängigkeit | 69 |
| 6.4 | Vergleich von $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ mit $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ als Elektrodenmaterial | 72 |
| 6.5 | Fazit | 73 |
| | Zusammenfassung und Ausblick | 77 |

Kapitel 1

Theoretische Grundlagen

1.1 Der Tunnelmagnetowiderstand

Der Tunnelmagnetowiderstand (tunneling magnetoresistance: TMR) kann an Systemen, bestehend aus zwei Ferromagneten, die durch eine dünne Isolatorschicht (Barriere) getrennt sind, beobachtet werden. Erstmals entdeckt wurde dieser Effekt 1975 von JULLIÈRE [8] bei Tieftemperaturmessungen an Fe/Ge/Co-Systemen, die eine Widerstandsänderung in Abhängigkeit von einem externen Magnetfeld zeigten. Aber erst die Entdeckung hoher und reproduzierbarer Effekte bei Raumtemperatur im Jahr 1995 [7] hat zu intensiver Forschung auf diesem Gebiet geführt.

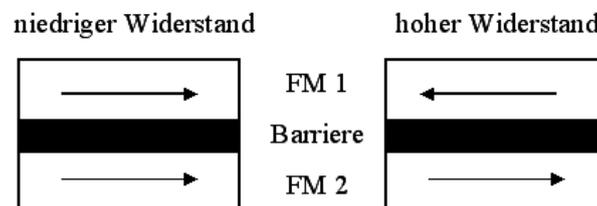


Abbildung 1.1: Einfachster Fall eines magnetischen Tunnellelementes, das nur aus zwei ferromagnetischen Elektroden (FM1 und FM2), die durch eine Barriere getrennt sind, besteht. Stehen die Magnetisierungen in den Elektroden parallel, misst man einen geringen Widerstand, bei antiparalleler Stellung einen hohen Widerstand.

Abbildung 1.1 zeigt schematisch den einfachsten Aufbau eines magnetischen Tunnellelementes. Wie sich die Stellung der Magnetisierungen in den beiden Elektroden auf den Widerstand auswirkt, ist in Abbildung 1.2 dargestellt. Der Widerstand, der bei angelegter Spannung zwischen den ferromagnetischen Elektroden (FM1/2) gemessen wird, ist niedrig bei paralleler und hoch bei antiparalleler Ausrichtung der ferromagnetischen Schichten.

Die Effektamplitude des Tunnelmagnetowiderstandes kann definiert werden als die Differenz der Widerstände normiert auf den Widerstand bei paralleler Ausrichtung der Magnetisierungen in den Elektroden:

$$TMR = \frac{R_{ap} - R_p}{R_p} \quad (1.1)$$

Im Allgemeinen misst man einen hohen Widerstand für eine antiparallele Ausrichtung der Elektrodenmagnetisierungen und einen geringeren Widerstand für die parallele Stellung. Um diese beiden Stellungen der Elektrodenmagnetisierungen zueinander zu erreichen, gibt es die Möglichkeit, Materialien mit verschiedenen großen Koerzitivfeldern zu benutzen. Abbildung 1.2 zeigt, wie die Abhängigkeit des Widerstandes von einem äußeren Magnetfeld für ein solches Tunnелеlement aussieht. Je nach Größe des angelegten Feldes erhält man einen sogenannten Majorloop (Abb. 1.2(a)) oder Minorloop (Abb. 1.2(b)).

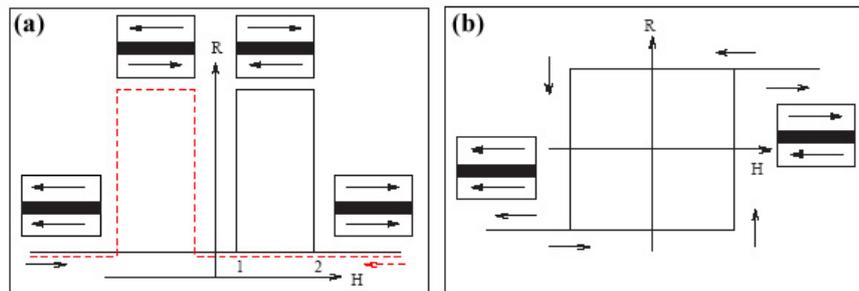


Abbildung 1.2: Abhängigkeit des Widerstandes vom Magnetfeld, die eingezeichneten Pfeile stellen die Richtung der Elektrodenmagnetisierung dar. Bei paralleler Magnetisierung der beiden Elektroden zueinander misst man einen geringen Widerstand, bei antiparalleler Magnetisierung einen hohen Widerstand. a) Majorloop b) Minorloop eines magnetischen Tunnелеlementes

Der in Abbildung 1.2(a) gezeigte Majorloop wird beginnend bei großen negativen Feldstärken gemessen. Dort befinden sich beide ferromagnetischen Schichten in Sättigung. Das externe Magnetfeld wird nun solange erhöht, bis ein Sättigungsverhalten für positive Feldstärken erreicht ist. Dabei wird erst das Koerzitivfeld der weichmagnetischen Schicht erreicht (Punkt 1), was dazu führt, dass diese schaltet; die Magnetisierungen stehen antiparallel, was einen höheren Widerstand bewirkt. Bei Erreichen des Koerzitivfeldes der hartmagnetischen Schicht (Punkt 2) schaltet auch diese, und der Widerstand sinkt zurück auf seinen Anfangswert. Der Rückweg verläuft analog, beginnend bei positiven Feldstärken zurück zu negativen Feldern.

Wird nur ein sogenannter Minorloop gemessen (Abbildung 1.2(b)), so wird nach Erreichen des Koerzitivfeldes der weichmagnetischen Elektrode das Magnetfeld wieder verringert, die hartmagnetische Elektrode bleibt ungeschaltet und man erhält nur Auskunft über das Schaltverhalten der weichmagnetischen Schicht.

Eine andere Möglichkeit, um auch mit gleichen Elektrodenmaterialien die antiparallele Stellung der Magnetisierungen zu realisieren, ist das Pinnen durch einen Antiferromagneten (exchange bias, Abschnitt 1.1.4). Die direkte Austauschwechselwirkung zwischen Elektrode und Antiferromagnet führt zu einer unidirektionalen Anisotropie. Um diese einzustellen, wird das System auf eine Temperatur oberhalb der Néeltemperatur des Antiferromagneten, aber unterhalb der Curietemperatur des Ferromagneten erhitzt und anschließend in einem Magnetfeld gekühlt (field

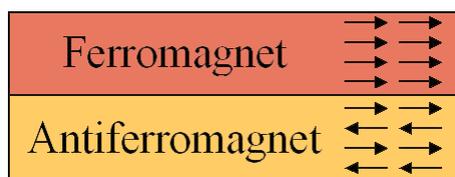


Abbildung 1.3: Ferromagnetische Elektrode, die auf einem Antiferromagneten aufgebracht ist

cooling [25]). Dies bewirkt beim Majorloop eine Verschiebung der Hysterese entgegengesetzt der Richtung des beim Kühlen angelegten Magnetfeldes. Der Unterschied zum Schaltverhalten des vorher beschriebenen ungepinnten Majorloops zeigt sich auf dem Rückweg der Hysterese-kurve: beim Verringern des angelegten Magnetfeldes schaltet erst die am Antiferromagneten gepinnte Elektrode und die Elektrodenmagnetisierungen stehen antiparallel (siehe Abbildung 1.4), bevor auch die weichmagnetische Elektrode schaltet und die Magnetisierungen ihren Ursprungszustand erreicht haben. Eine ausführliche Erklärung der Hintergründe erfolgt auf Seite 10).

Um zu verstehen, warum die Richtung der Magnetisierung in den Elektroden eine Auswirkung

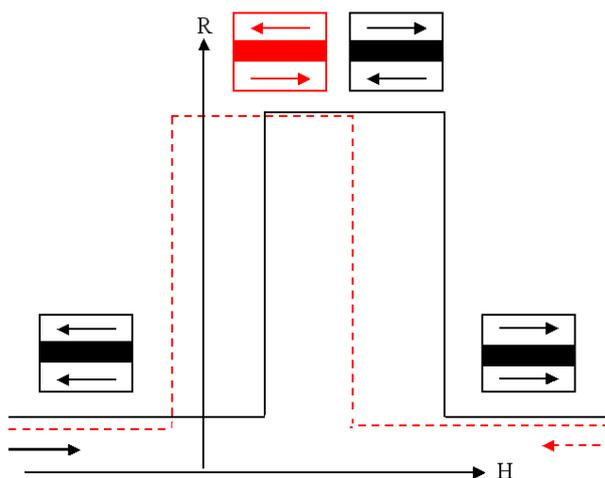


Abbildung 1.4: Abhängigkeit des Widerstandes vom Magnetfeld für ein magnetisches Tunnellelement, dessen Elektrode durch einen Antiferromagneten gepinnt ist.

auf den Widerstand hat, kann auf ein stark vereinfachtes Modell der Zustandsdichten der beiden Elektroden (Abbildung 1.5) zurückgegriffen werden.

Der Widerstand kann als eine Parallelschaltung zweier getrennter Spinkanäle betrachtet werden [26], da die Elektronen der Ferromagneten an der Fermikante spinpolarisiert sind. Annahmen dazu sind, dass beim Tunnelprozeß durch die Barriere der Elektronenspin erhalten bleibt und für beide Spinarten energieunabhängig die gleiche Tunnelwahrscheinlichkeit angenommen werden kann[27].

Im Folgenden werden die Elektronen als Majoritätsladungsträger bezeichnet, deren Spin parallel

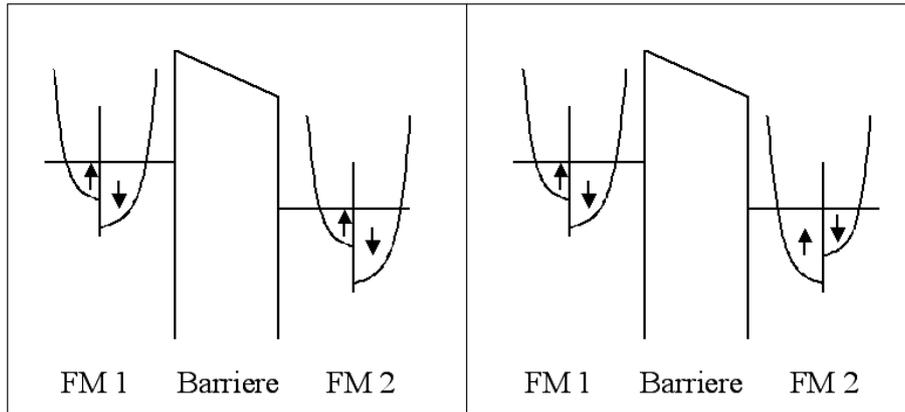


Abbildung 1.5: Stark vereinfachte Darstellung der Zustandsdichten der ferromagnetischen Elektroden an der Fermikante, die aufgespalten sind in Minoritäts- und Majoritätsladungsträger, links für eine parallele und rechts für eine antiparallele Ausrichtung der Magnetisierungen der beiden Elektroden.

zur Magnetisierung der Schicht ausgerichtet ist, als Minoritätsladungsträger diejenigen Elektronen, deren Spin antiparallel zur Magnetisierung steht. In Abbildung 1.5 ist die Aufspaltung der Zustandsdichten der Ferromagnete beidseitig der Barriere dargestellt. Bei einer parallelen Ausrichtung der Magnetisierungen in den Ferromagneten finden sich für die Minoritäts- und Majoritätsladungsträger entsprechend freie Zustände beidseitig der Barriere. In beiden Elektroden existieren an der Fermikante wenige freie Zustände für die Minoritätselektronen, und viele für die Majoritätselektronen. Das bedeutet, dass ein hoher Tunnelstrom fließen kann, dieser ist proportional zu den spinabhängigen Zustandsdichten $n_{1,2}^{\uparrow,\downarrow}$ in den beiden Elektroden (FM1 und FM2):

$$I_p \sim n_1^{\uparrow} n_2^{\uparrow} + n_1^{\downarrow} n_2^{\downarrow} \quad (1.2)$$

Der daraus resultierende Gesamtwiderstand R_p ist geringer als für den Fall entgegengesetzt magnetisierter Elektroden. Sind die Elektroden entgegengesetzt magnetisiert, kann nur ein schwacher Tunnelstrom fließen, da die Anzahl der freien Zustände für die Majoritäts- und Minoritätsladungsträger vertauscht ist. Es existieren zwar genügend freie Zustände für die tunnelnden Majoritätsladungsträger, nicht aber für die vielen Minoritätsladungsträger.

$$I_{ap} \sim n_1^{\uparrow} n_2^{\downarrow} + n_1^{\downarrow} n_2^{\uparrow} \quad (1.3)$$

Statt den TMR anhand der Widerstandsänderung (Gl. 1.1) auszudrücken, ist auch eine Definition über die Spinpolarisationen -ausgehend von Gleichung 1.2 und 1.3- möglich:

$$\begin{aligned} TMR &= \frac{I_p - I_{ap}}{I_{ap}} \\ &= \frac{n_1^{\uparrow} n_2^{\uparrow} + n_1^{\downarrow} n_2^{\downarrow} - n_1^{\uparrow} n_2^{\downarrow} - n_1^{\downarrow} n_2^{\uparrow}}{n_1^{\uparrow} n_2^{\downarrow} - n_1^{\downarrow} n_2^{\uparrow}} \\ &= \frac{2p_1 p_2}{1 - p_1 p_2} \end{aligned} \quad (1.4)$$

wobei $p_{1,2} = \frac{n_{1,2}^{\uparrow} - n_{1,2}^{\downarrow}}{n_{1,2}^{\uparrow} + n_{1,2}^{\downarrow}}$ die Spinpolarisation in der entsprechenden Elektrode 1 bzw. 2 ist.

Diese Definition wird auch schon in einer ersten Veröffentlichung zum TMR-Effekt von JULLIÈRE[8] angegeben. Was dabei allerdings noch vollkommen unberücksichtigt bleibt, sind Abhängigkeiten des Effektes von der angelegten Spannung oder der Temperatur, die experimentell nachgewiesen werden können.

MESERVEY und TEDROW fanden schon 1971 bei Tunnelexperimenten zwischen supraleitendem Aluminium und Nickel, die durch eine Isolatorschicht getrennt waren, einen polarisierten Tunnelstrom[27]. Das bedeutet, dass es einen Unterschied zwischen den Anteilen des Stromes, der von Spin-Up- und Spin-Down-Elektronen getragen wird, gibt. Dies lieferte den Hintergrund zu den Experimenten von JULLIÈRE und damit zur Entdeckung des TMR.

1.1.1 Der Tunneleffekt

Der Tunneleffekt ist ein klassisch verbotener Vorgang, der auf den quantenmechanischen Eigenschaften der Elektronen beruht. Wichtig dabei ist der Welle-Teilchen-Dualismus: Betrachtet man die Wellenfunktion eines Elektrons, das sich einer Potentialbarriere solcher Höhe nähert, dass es sie klassisch nicht überwinden dürfte, so hat das Elektron aufgrund seiner Welleneigenschaften eine Aufenthaltswahrscheinlichkeit auch auf der anderen Seite der Barriere, obwohl der Hauptteil der Welle reflektiert wird.

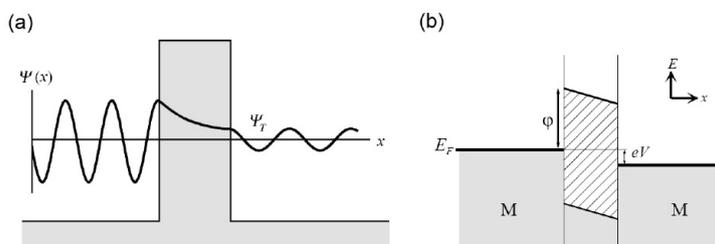


Abbildung 1.6: a) Wellenfunktion eines einlaufenden Elektrons, die innerhalb der Barriere exponentiell abfällt und mit verringerter Intensität auf der anderen Seite der Barriere weiterläuft. b) Energiediagramm einer Trapezbarriere mit Höhe ϕ , Dicke d und Asymmetrie $\Delta\phi$ (aus [9])

Innerhalb der Barriere fällt die Wellenfunktion exponentiell ab, auf der anderen Seite bewegt sich die Welle mit verringerter Amplitude weiter (dargestellt in Abb. 1.6a). Abbildung 1.6b zeigt das Energieschema einer solchen Potentialbarriere. Das Anlegen einer Spannung V führt zu einer Verschiebung der Fermi-Energie der einen Elektrode um den Betrag eV , und somit zu einer Barriere in Trapezform, wie sie auch 1970 von BRINKMAN[28] angenommen wird, der damit ein Modell zum Tunneln durch eine Metall/Isolator/Metall-Verbindung beschreibt.

Der Tunnelstrom von einer Elektrode (M1) in die andere Elektrode (M2) kann ganz allgemein beschrieben werden durch eine Integration über alle möglichen Energien E [1]:

$$I_{M1 \rightarrow M2}(V) = \int_{-\infty}^{+\infty} n_1(E)n_2(E + eV) |T|^2 f(E) [1 - f(E + eV)] dE \quad (1.5)$$

Dabei bezeichnet $n_{1,2}$ die Zustandsdichte in der jeweiligen Elektrode M1, bzw. M2, $f(E) = (1 + e^{\frac{E-E_F}{k_B T}})^{-1}$ ist die Fermi-Dirac-Funktion. Das Produkt $f(E)(1 - f(E + eV))$ gibt an, ob für ein tunnelndes Elektron aus einem besetzten Zustand auch ein freier Zustand in der anderen Elektrode vorhanden ist, und das Matrixelement $|T|^2$ beinhaltet im Wesentlichen die Transmissionswahrscheinlichkeit durch die Barriere. Der gesamte Tunnelstrom ist nun die Differenz aus den Tunnelströmen in beide Richtungen $I(V) = I_{M1 \rightarrow M2}(V) - I_{M2 \rightarrow M1}(V)$, wobei man den Strom in die umgekehrte Richtung durch Austauschen der Indizes 1 und 2 sowie V durch $-V$ erhält.

SIMMONS[29, 30] hat den Tunnelstrom für eine rechteckige Potentialbarriere mit Höhe φ und Dicke d , eingeschlossen zwischen zwei gleichen Elektroden, berechnet. Trotz der Einfachheit des Modells gibt sein Ergebnis die richtige Abhängigkeit von Barrierenhöhe und -dicke wieder ($R \propto \exp(const. \cdot d \cdot \sqrt{\varphi})$).

BRINKMAN[28] hat die Barriere um einen Asymmetriefaktor $\Delta\varphi$ erweitert, der eine Verzerrung der Barriere durch unterschiedliche Austrittsarbeiten bei verschiedenen Elektrodenmaterialien berücksichtigt. Zusätzlich nahm er eine vereinfachte Zustandsdichte für freie Elektronen an. Mit Hilfe der WKB-Näherung [31], die zur Berechnung der Tunnelwahrscheinlichkeit für ein Teilchen in Abhängigkeit von seiner Energie dient, und der Annahme, dass die Grenzfläche zwischen Metall und Isolator perfekt ist, wurde das Matrixelement $|M|^2$ berechnet und der Tunnelstrom in Abhängigkeit von der Spannung. Für kleine Spannungen ($eV \ll \varphi$) erhält man eine parabolische Abhängigkeit der Leitfähigkeit G von der angelegten Spannung V : $G = \frac{dI(V)}{dV} = AV^2 + BV + C$. Dabei sind A , B und C Funktionen der Barrierenparameter.

Wird nun experimentell eine Strom-Spannungs-Kennlinie (UI-Kennlinie) aufgenommen und diese numerisch differenziert, so können daraus mittels eines parabolischen Fits die Barrierenparameter bestimmt werden. Dies geschieht anhand folgender Gleichungen:

$$\Phi^2 = \frac{eC^2}{32A} \ln^2 \left(\frac{h^3}{\sqrt{2\pi e^3 m_{eff}}} \sqrt{AC} \right) \quad (1.6)$$

$$d = \frac{\hbar}{8\sqrt{\Phi m_{eff}}} \ln \left(\frac{h^3}{\sqrt{2\pi e^3 m_{eff}}} \sqrt{AC} \right) \quad (1.7)$$

$$\Delta\Phi = -\frac{12\hbar\Phi^{\frac{3}{2}}B}{\sqrt{2m_{eff}edC}} \quad (1.8)$$

Die effektive Masse m_{eff} , die hier zu $0.4m_e$ angenommen wird[32], hängt von der Bandstruktur ab und ist für die verschiedenen Bänder nicht gleich groß.

1.1.2 Die Tunnelbarriere

Als Barrierenmaterial wurde seit den Tunnelexperimenten von MESERVEY und TEDROW[27] hauptsächlich oxidiertes Aluminium (Al_2O_3) verwendet[7], weil es leicht oxidiert und Al auf den Ferromagneten gute Benetzungseigenschaften besitzt[33]. Es kann in guter Qualität hergestellt werden[34] und die Spinerhaltung während des Tunnelprozesses wurde gezeigt[35]. Es gab allerdings auch Experimente mit verschiedenen anderen Materialien: NiO [36], HfO_2 [37], MgO [38], AlN, AlO_xN_y [33, 39], Ga_2O_3 [40], Ta_2O_5 [41], ZrO [42], AlZrO [22] und Al/Hf/Al [43].

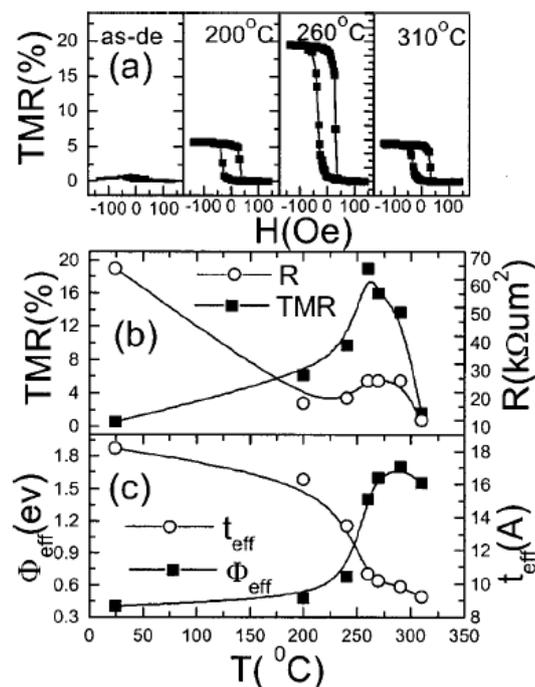


Abbildung 1.7: Abhängigkeit a) des Minorloops, b) des TMR und des Flächenwiderstandes, c) der effektiven Barrierenhöhe und -dicke eines magnetischen Tunnelelementes mit ZrOx Barriere von der Auslagerungstemperatur [42]

Als Beispiel soll hier etwas näher auf die Ergebnisse von Untersuchungen an ZrO Barrieren eingegangen werden, die 2001 durchgeführt wurden[42]. Das band gap von ZrO_2 beträgt 5.6 eV[44], und ist damit etwa 1 eV geringer als das band gap von Al_2O_3 . In Abbildung 1.7a) sind Minorloops von Tunnelementen mit ZrO_2 Barriere und CoFe-Elektroden für verschiedene Auslagerungstemperaturen dargestellt. Abbildung 1.7b) und c) zeigt in Abhängigkeit von der Auslagerungstemperatur den TMR-Effekt und Flächenwiderstand, sowie die mittels Fit gewonnenen Barrierenparameter. Der maximale Effekt von 19.2% ist vergleichbar mit dem Effekt, der bei sehr dünnen Al_2O_3 Barrieren erreicht wird. Allerdings weisen die Tunnelemente mit ZrO_2 Barriere,

wie es für Anwendungen erwünscht ist, einen geringen Flächenwiderstand sowie eine geringere Barrierenhöhe auf und führten so zu Untersuchungen an Barrieren bestehend aus oxidierten Al-Zr Legierungen.

In Tabelle 1.1 ist eine Übersicht verschiedener Barrierenmaterialien mit einigen experimentellen Ergebnissen dieser Arbeiten aufgeführt. Die verschiedenen Barrierenmaterialien sind zeitlich

| Material | Jahr | TMR | (Flächen-) Widerstand | Barrieren- | | band gap |
|--------------------------------|------|------------|-------------------------------|------------|-------------------------|-------------------|
| | | | | Dicke | Höhe | |
| NiO | 1982 | $\ll 1\%$ | $\sim 100k\Omega$ | | $\geq 1 - 1.5\text{eV}$ | |
| GdO | 1991 | $\ll 1\%$ | $k\Omega$ | 4 - 6.5 Å | 0.1 - 0.3 eV | |
| Al ₂ O ₃ | 1995 | 10% | $\sim 10M\Omega\mu\text{m}^2$ | 16 Å | 1.9 eV | 6.7 eV |
| HfO ₂ | 1996 | $\leq 1\%$ | $\sim M\Omega$ | 20 Å | 1.7 eV | 5.6 eV |
| MgO | 1997 | $\sim 1\%$ | $k\Omega - M\Omega$ | | | |
| AlN | 2000 | 15.5% | $8.3k\Omega\mu\text{m}^2$ | 0.79 nm | 2.59 eV | $\sim 8\text{eV}$ |
| AlON | 2000 | 18% | $25k\Omega\mu\text{m}^2$ | 0.99 nm | 1.84 eV | |
| Ga ₂ O ₃ | 2000 | 18.2% | $k\Omega$ | 1.66 nm | 2.3 eV | 4.8 eV |
| Ta ₂ O ₅ | 2001 | 2.5% | $10^9\Omega\mu\text{m}^2$ | 2.5 - 3 nm | 0.4eV | |
| ZrO ₂ | 2001 | 19.2% | $25k\Omega\mu\text{m}^2$ | 10.6 Å | 1.65 eV | $\sim 5\text{eV}$ |
| AlZrO | 2001 | 15.2% | $6\Omega\mu\text{m}^2$ | 8.2 Å | 0.28 eV | |
| Al/Hf/Al | 2002 | 38% | | | 2.2 eV | |
| MgO | 2004 | 180% | $0.3-10k\Omega\mu\text{m}^2$ | | 0.39eV | |

Tabelle 1.1: Übersicht verschiedener Materialien, die als Barrieren in magnetischen Tunnelementen zum Einsatz gekommen sind. Die angegebenen Daten beziehen sich entweder auf die erste Veröffentlichung, in der das jeweilige Material genannt wird, oder die Veröffentlichung, bei der eine deutliche Steigerung des Effektes erreicht wurde. Unberücksichtigt dabei bleiben Unterschiede in der Herstellung der Schichten, der Oxidation der Barriere und die unterschiedlichen Elektrodenmaterialien, die verwendet wurden.

sortiert, aufgeführt ist immer nur die erste „erfolgreiche“ Erwähnung des jeweiligen Materials. Während es bei der Untersuchung der vorderen Materialien (bis einschließlich HfO₂) hauptsächlich darum ging, überhaupt spinabhängiges Tunneln zu beobachten, hat sich die Zielsetzung bei der späteren Barrierenmodifikation verändert. Im Vordergrund stand nicht mehr nur die Erforschung der Grundlagen des TMR-Effektes, sondern anwendungsbezogen die Suche nach einem Isolatormaterial mit einem geringeren Widerstand[45], gleichzeitig aber möglichst keiner Verringerung des TMR gegenüber Al₂O₃ Barrieren, da dies für viele Anwendungen (MRAM[46], programmierbare Logiken[47], Magnetfeldsensoren, Leseköpfe[48]) nötig wäre[1, 21]. Dabei wurden Materialien mit einer geringeren Barrierenhöhe d.h. einem kleinen band gap als (Al₂O₃) getestet. Die in Tabelle 1.1 aufgeführten Barrierenparameter wurden alle mit einem Fit entweder nach SIMMON'S Modell[30] oder nach BRINKMAN[28] gewonnen. Von den Barrieren, die einen geringen Widerstand liefern, konnte sich epitaktische gewachsenes MgO durchsetzen.

2004 wurde von sehr hohen TMR-Werten bei Raumtemperatur berichtet (180% [20] bzw. 220%

[49]). Das war mehr als doppelt soviel Tunnelmagnetowiderstandseffekt, wie mit anderen Materialien bis dahin erreicht werden konnte. Seitdem konnte der TMR auf 500% bei Raumtemperatur und 1010% bei tiefen Temperaturen[50] gesteigert werden. Auch die für epitaktische Barrieren aus MgO theoretisch vorhergesagten Werte von über tausend Prozent[51] mit bcc Co Elektroden konnten ansatzweise erreicht werden[52]. Der Grund für diese starke Erhöhung des Effektes mit MgO Barrieren sind kohärentes Tunneln und ein Filtereffekt der MgO Barriere für bestimmte Symmetrien der Wellenfunktion. Dieses in Kombination mit einem Elektrodenmaterial, welches für eine Spinrichtung eine Wellenfunktion mit der von der Barriere gefilterten Symmetrie besitzt, nicht aber für die andere Spinrichtung, führt zu einem großen Unterschied der Leitfähigkeiten für die antiparallele und die parallele Ausrichtung der Magnetisierungen in den Elektroden, und somit zu hohen TMR-Effektamplituden[5].

1.1.3 Das Elektrodenmaterial

Polykristalline 3d-Ferromagnete und deren Legierungen sind geeignet als Elektrodenmaterial in magnetischen Tunnelementen und werden seit den ersten erfolgreichen Experimenten bei Raumtemperatur dafür verwendet[7]. In Verbindung mit Al_2O_3 Barrieren besitzt Co-Fe als Le-

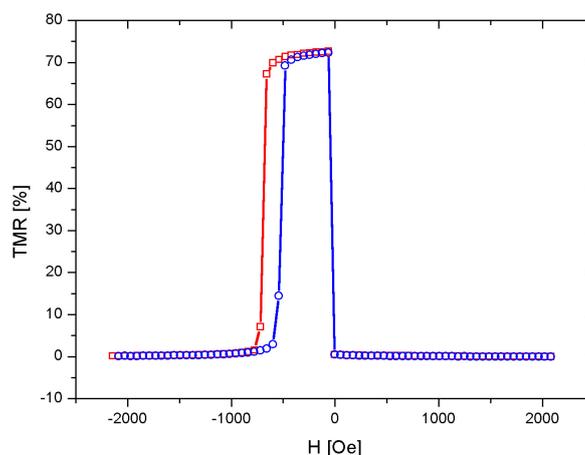


Abbildung 1.8: Major loop eines TMR-Elementes mit CoFeB Elektroden, welches 72% Effektamplitude zeigt.

gierung eine Spinpolarisation von 0.55, die höher ist, als die von Co (0.42) bzw. Fe (0.45) einzeln[53], ebenso ist es bei Permalloy. So bezeichnet werden Ni-Fe Legierungen in einem Zusammensetzungsbereich von 35 at.% bis 90 at.% Nickel. Die Eigenschaften dieser Legierungen können durch die passende Wahl der Zusammensetzung in einem weiten Bereich eingestellt werden. Für Anwendungen in magnetischen Tunnelementen wird weichmagnetisches $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ genutzt, dieses besitzt eine Spinpolarisation von 0.48[54], während die Werte für reines Ni 0.46[55] bzw. 0.45 für Fe[54] sind.

Eine Steigerung des TMR-Effektes auf 70% bei Raumtemperatur[24] lieferten amorphe Ferromagnete wie Co-Fe-B, die als weichmagnetische Elektrode ebenso geringe Koerzitivfelder wie Permalloy besitzen, gleichzeitig aber auch eine hohe Spinpolarisation besitzen und zu einer Barrierengrenzfläche von sehr guter Qualität führen[56]. Abbildung 1.8 zeigt den major loop eines solchen TMR-Elementes mit CoFeB Elektroden und einer Al_2O_3 Barriere. Eine weitere Steigerung des Effektes versprechen Tunnelemente mit Elektroden aus Halbmetallen[57]. Diese zeigen für die eine Spinrichtung einen metallischen Charakter, für die andere einen isolierenden und sind damit an der Fermikante vollständig spinpolarisiert. Zu den Halbmetallen gehören neben verschiedenen Oxiden (z.B. CrO_2 [58], Fe_3O_4 [59]) und Manganiten[60] auch Heusler Legierungen[1], bei denen mittlerweile mit MgO Barrieren TMR-Effekte von bis zu 220% bei Raumtemperatur gemessen werden können[61].

Die hartmagnetische Elektrode bildet häufig einen künstlichen Ferrimagneten (Abschnitt 1.1.5). Dieser besteht aus drei Schichten: Zwei ferromagnetische Schichten sind von einer nichtmagnetischen metallischen Schicht getrennt. Die Magnetisierungen der ferromagnetischen Schichten können über eine Zwischenschichtaustauschkopplung analog der RKKY-Wechselwirkung[62] (Seite 12) für bestimmte Schichtdicken antiparallel eingestellt werden. Dies führt zu einem verschwindenden Gesamtmoment des Systems. Damit werden Streufelder verringert[63], gleichzeitig wird die Steifigkeit der hartmagnetischen Elektrode verstärkt [18]. Ein typisches Beispiel dafür sind Dreilagern aus zwei Co-Fe(-B) Schichten, die über eine Ru Zwischenschicht gekoppelt sind. Zu berücksichtigen ist dabei, dass schon geringe Schichtdickenunterschiede die Art der Kopplung (ferromagnetisch oder antiferromagnetisch) stark beeinflussen.

1.1.4 Kopplungsphänomene

In magnetischen Schichtsystemen können verschiedene Kopplungstypen auftreten. Manche davon sind erwünscht, wie z.B. die direkte Austauschkopplung beim Exchange Bias, ohne das viele Anwendungen nicht denkbar wären. Andere, wie die Zwischenschichtaustauschkopplung, sind nützlich, da sich anhand der Zwischenschichtdicke einstellen lässt, ob die Kopplung zwischen zwei ferromagnetischen Schichten ferromagnetisch oder antiferromagnetisch sein soll. Und wieder andere Kopplungen sind unerwünscht und sollten möglichst vermieden bzw. verringert werden.

Exchange Bias

Beim exchange bias handelt es sich um eine magnetische Anisotropie, die 1956 von MEIKLEJOHN und BEAN[64] entdeckt wurde, und seit 1978 technische Anwendung findet[65]. Es handelt sich hierbei um eine Wechselwirkung zwischen antiferromagnetischen und ferromagnetischen Materialien. Die Hysterese eines ferromagnetischen Materials, das auf einen Antiferromagneten aufgebracht ist, wird durch das Kühlen in einem externen magnetischen Feld in die

entgegengesetzte Richtung des äußeren Feldes verschoben (siehe Abbildung 1.4 bzw. 1.9a). Voraussetzung dafür sind unkompenzierte Spins an der Grenzfläche des Antiferromagneten [66, 67].

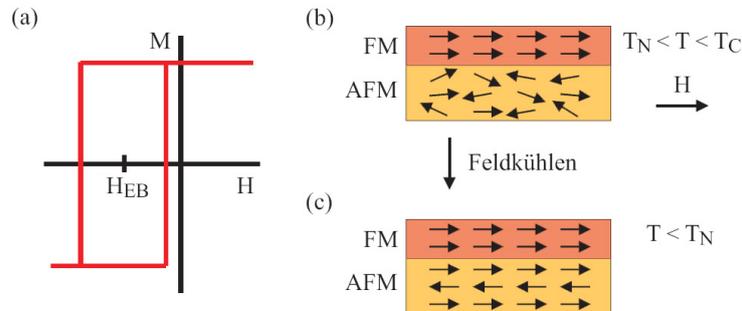


Abbildung 1.9: a) Durch Exchange Bias verschobene Hysteresis b) Schematische Darstellung der Situation beim Erhitzen des Schichtsystems c) Eingestellte Austauschwechselwirkung zwischen Ferromagnet und Antiferromagnet nach dem Abkühlen des Schichtsystems (aus [15])

Die Materialien werden in einem homogenen Magnetfeld bis zu einer Temperatur, die höher als die Néeltemperatur des Antiferromagneten, aber geringer als die Curietemperatur des Ferromagneten ist, erhitzt. Der Ferromagnet ist parallel zum externen Magnetfeld ausgerichtet, während die Spins des Antiferromagneten zufällig orientiert bleiben. Erst beim Abkühlen unter die Néeltemperatur findet eine Ausrichtung des Antiferromagneten statt. Diese führt aufgrund der Austauschwechselwirkung an der Grenzfläche zwischen ferromagnetischer und antiferromagnetischer Schicht zu einer antiparallelen Ausrichtung von Teilen der ersten Lage der magnetischen Momente des Antiferromagneten, an der sich die weiteren Momente jeweils antiparallel ausrichten (siehe Abb. 1.9).

Néel-Kopplung

Bei der Néel-Kopplung (die auch unter der Bezeichnung orange peel Kopplung bekannt ist) handelt es sich um eine magnetostatische Kopplung, die zu einer parallelen Ausrichtung zweier ferromagnetischer Schichten führt. Diese Schichten sind durch eine dünne nichtmagnetische Schicht getrennt und besitzen eine korrelierte Rauigkeit (siehe Abb. 1.10 links), die an den Grenzflächen der ferromagnetischen Schichten zu magnetischen Polen führt und somit eine ferromagnetische Kopplung energetisch begünstigt. Diese Kopplung bewirkt eine Verschiebung der Hysteresis H_N gemäß $H_N = \frac{J_N}{\mu_0 M_1 t_1}$ entlang der Achse des angelegten Magnetfeldes. Dabei sind M_1 die Magnetsierung und t_1 die Dicke der weichmagnetischen Schicht, und die Stärke J_N der Kopplung ist gegeben durch:

$$J_N = \mu_0 \frac{\pi^2 h^2}{\sqrt{2\lambda}} M_1 M_2 \cdot \exp\left(-\frac{2\pi\sqrt{2}t_{nm}}{\lambda}\right) \quad (1.9)$$

Wobei M_2 die Magnetsierung der hartmagnetischen Elektrode angibt, t_{nm} die Dicke der Zwischenschicht (Barriere) und λ die Korrelationslänge der Rauigkeit. Beschrieben wurde dieses Modell 1962 von NÉEL[68].

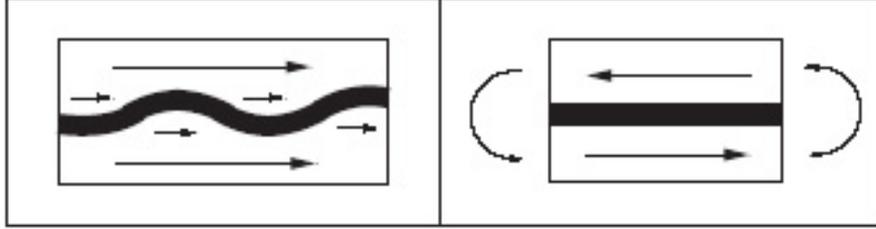


Abbildung 1.10: Vergleich zwischen (links) Néel- und (rechts) Dipolkopplung in vereinfachter Darstellung. Die Néelkopplung führt zu einer parallelen Ausrichtung der magnetischen Schichten, und damit zu einer Verschiebung der Hysteresekurve, die entgegengesetzt ist zu der bei einer Dipolkopplung, bei der eine antiparallele Schichtstellung vorliegt, auftretenden Verschiebung.

Dipolkopplung

Diese Kopplung tritt bei magnetischen Schichten auf, die durch eine nichtmagnetische Zwischenschicht getrennt sind. Die Dipolkopplung tritt an den Rändern von strukturierten Proben auf und führt zu einer antiparallelen Ausrichtung der magnetischen Schichten, da ein Schließen des magnetischen Flusses an den Elementrändern energetisch günstig ist[69]. Dies ist auf der rechten Seite von Abbildung 1.10 dargestellt. Die Kopplungsenergie von zwei Dipolen mit den magnetischen Momenten $m_{1,2}$, die sich im Abstand r voneinander befinden, lässt sich beschreiben durch:

$$E_{Dipol} = \frac{1}{4\pi\mu_0 r^3} [(\vec{m}_1 \cdot \vec{m}_2) - 3(\vec{m}_1 \cdot \vec{r})(\vec{m}_2 \cdot \vec{r})] \quad (1.10)$$

Für eine strukturierte Probe der Breite W und der Länge L wurde die von der Dipolkopplung bewirkte Feldstärke zu $H_{Dipol} = AW^\alpha/L$ berechnet[70]. Dabei A ist eine Konstante und $\alpha = 0.22$ ein Resultat der Probengeometrie.

Zwischenschichtaustauschkopplung

Bei der Zwischenschichtaustauschkopplung handelt es sich um eine indirekte magnetische Austauschkopplung zweier ferromagnetischer Schichten, die über s-d-Leitungselektronen vermittelt wird. Die Wechselwirkungsenergie ist proportional zu der bilinearen (J_1) und biquadratischen (J_2) Kopplungskonstante und lässt sich schreiben als[71]:

$$E \propto J_1 \frac{\vec{M}_1 \vec{M}_2}{|\vec{M}_1| \cdot |\vec{M}_2|} - J_2 \left(\frac{\vec{M}_1 \vec{M}_2}{|\vec{M}_1| \cdot |\vec{M}_2|} \right)^2 \quad (1.11)$$

$\vec{M}_{1,2}$ ist die Magnetisierung in der jeweiligen Elektrode. Der bilineare Kopplungsterm $J_1 = -\mu_0 \frac{M_S H_S d}{2}$ entscheidet, ob die Kopplung der ferromagnetischen Schichten ferro- oder antiferromagnetisch ist. Dabei ist M_S die Sättigungsmagnetisierung, H_S das Sättigungsfeld und d die Schichtdicke.

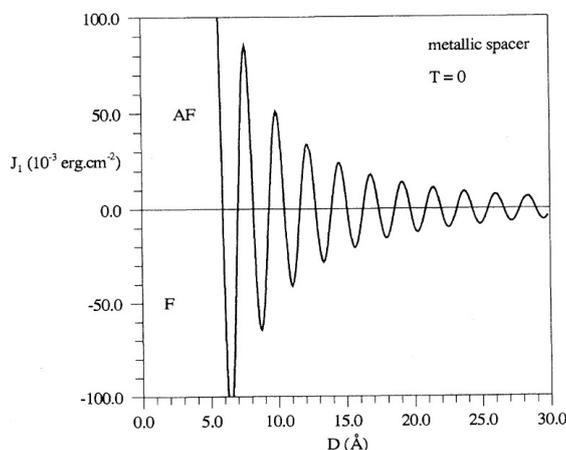


Abbildung 1.11: Berechnung der Zwischenschichtaustauschkopplung mit dem freien Elektronen Modell für eine metallische Zwischenschicht. Es zeigt die Abhängigkeit der Kopplungskonstante J_1 von der Dicke der Zwischenschicht. Bei positiven Werten tritt eine antiferromagnetische, bei negativen Werten eine ferromagnetische Kopplung auf. (aus [72])

Ist $J_1 < 0$ handelt es sich um eine ferromagnetische Kopplung, ist $J_1 > 0$ ist die Kopplung antiferromagnetisch. Die biquadratische Kopplungskonstante J_2 ist abhängig von der Zwischenschichtdicke, sowie der Homogenität der Grenzflächen und führt zu einer Anordnung der ferromagnetischen Schichten im 90° -Winkel zueinander[73]. Abbildung 1.11 zeigt das oszillierende Verhalten der Kopplungskonstante J_1 in Abhängigkeit von der Dicke der Zwischenschicht, und das langsame Abklingen der Kopplung mit zunehmender Zwischenschichtdicke. Die Kopplung wurde mit dem Freien Elektronen Modell für eine metallische Zwischenschicht berechnet [72].

Erstmals identifiziert wurde die antiferromagnetische Zwischenschichtaustauschkopplung 1986 von GRÜNBERG an Fe/Cr Multilagen[74]. Dies lieferte die Grundlage für den zwei Jahre später entdeckten Riesenmagnetowiderstandseffekt (giant magneto resistance: GMR)[3, 4]. Im einfachsten Fall kann der GMR an zwei ferromagnetischen Schichten, die durch eine nichtmagnetische Schicht getrennt sind, gemessen werden. Der Widerstand hängt von der relativen Orientierung der Magnetisierungen in den Schichten ab. Bei antiferromagnetischer Austauschkopplung stehen die Magnetisierungen der ferromagnetischen Schichten ohne angelegtes Feld antiparallel zueinander.

Das Anlegen eines Magnetfeldes orientiert die Magnetisierungen in beiden Schichten parallel und verringert somit den gemessenen Widerstand. Da die Austauschkopplung der ferromagnetischen Schichten von der Dicke der Zwischenschicht abhängt, wurde eine oszillierende Abhängigkeit des GMR von der Dicke der Zwischenschicht gefunden[75]. Diese Oszillation

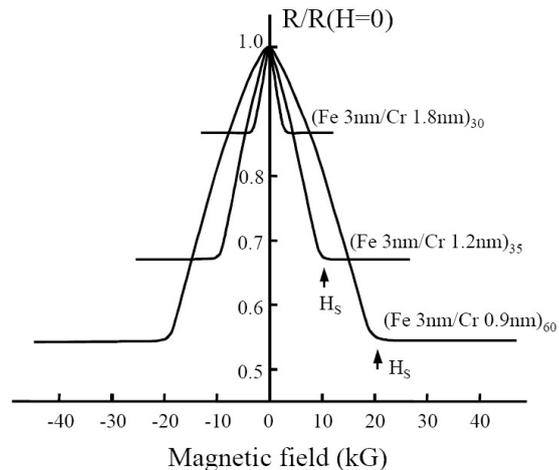


Abbildung 1.12: Erste Beobachtung des GMR-Effektes in der Gruppe von A. Fert an Fe/Cr Multilagen mit einem maximalen Effekt von 85% (aus [3])

steht in Analogie zur RKKY-Kopplung (-benannt nach Ruderman, Kittel[62], Kasuya[76] und Yosida[77], die diese Kopplung 1956/1957 beschrieben haben, um damit die Kopplung magnetischer Einschlüsse in einem nichtmagnetischen Material zu erklären) und ist bedingt durch die Existenz und Form der Fermiflächen.

1.1.5 Künstliche Ferrimagnete

Im Vergleich zu einem Ferromagneten, dessen magnetische Momente sich spontan parallel ausrichten, stehen die magnetischen Momente eines Ferrimagneten antiparallel zueinander, aber aufgrund verschiedener Beträge der magnetischen Momente existiert eine Nettomagnetisierung. Eine Beschreibung wurde 1948 von NÉEL gegeben [78], der bei der Untersuchung von Ferriten (Fe_2O_3MO) auf die „seltsame Eigenschaft“ gestoßen war, dass ferromagnetische Ferrite (mit $M = Mn, Ni, Co, \dots$) ein deutlich geringeres Sättigungsmoment aufweisen, als das totale magnetische Moment der beteiligten Atome erwarten ließe. Auch die Temperaturabhängigkeit der Suszeptibilität zeigt oberhalb der Curie-Temperatur nicht die für eine ferromagnetische Substanz zu erwartende Kurvenform. Die Ursache/Erklärung ist ein Ferromagnetismus, der auf „negativer“ Wechselwirkung beruht und völlig andere Eigenschaften aufweist als ein klassischer Ferromagnet. Daher schlug NÉEL die Bezeichnung Ferrimagnet vor. Dieser besteht aus zwei Untergittern A und B, deren magnetische Momente untereinander jeweils parallel ausgerichtet sind, während die magnetischen Momente der beiden Untergitter antiparallel zueinander stehen. Das liegt daran, dass zwar alle Austauschintegrale negativ sind, jedoch J_{AB} stärker ist als J_{AA} und J_{BB} . Die Bezeichnung künstlicher Ferrimagnet meint im Gegensatz dazu ein Schichtsystem, bestehend aus zwei dünnen ferromagnetischen Schichten, die durch eine nichtmagnetische metallische Zwischenschicht getrennt sind und durch eine Zwischenschichtaustauschkopplung (RKKY-ähnlich) antiferromagnetisch gekoppelt sind (vgl. Seite 12).

1.2 Co-Gd Legierungen

Co-Gd gehört zu den Übergangsmetall-Selten-Erd-Legierungen, die in der Literatur schon ausführlich beschrieben wurden. Eine Zusammenfassung zahlreicher Ergebnisse findet sich in [79].

Co gehört zu den ferromagnetischen Übergangsmetallen, die Curie-Temperatur beträgt 1150°C [80]. Das magnetische Moment beträgt $\mu = 1.7\mu_B$ [81]. Bei Raumtemperatur kristallisiert Co (α -Co) als hcp-Kristall, der Übergang zu β -Co, welches eine fcc Gitterstruktur bildet, findet bei 421°C statt[80].

Gadolinium tritt auf als hcp-Kristall mit einer Dichte von $7.9\frac{g}{cm^3}$. Es ist das einzige einfach ferromagnetische Selten-Erd-Metall, und besitzt eine Curie-Temperatur von 293,1K und ein magnetisches Moment von $\mu = 7,63\mu_B$ [80, 82].

Gadolinium zeigt auf Eisen-Oberflächen eine in-plane Magnetisierung und eine antiparallele Kopplung zwischen dem 4f-Gadolinium-Moment und dem Eisen-Moment[83].

1.2.1 Übergangsmetall-Selten-Erd-Legierungen

Innerhalb der Übergangsmetall-Selten-Erd-Legierungen (TM-RE: transition metal rare earth) treten drei verschiedene Kopplungen auf (Tabelle 1.2), eine direkte Austauschkopplung zwischen den 3d-Elektronen der Übergangsmetallatome führt zu einer ferromagnetischen Kopplung dieser Atome.

| $R_{1-x}T_x$ | x | $J_{T-T}(10^{-23} J)$ | $J_{R-T}(10^{-23} J)$ | $J_{R-R}(10^{-23} J)$ |
|--------------|-------------------------|------------------------------|-------------------------------|-----------------------|
| Gd-Fe | $0.5 < x < 1$ | $20.5 + 120(1 - x)$ | $2.25 + 53.0(1 - x)$ | 1.6 |
| | $0.7 < x < 0.75$ | $48.5 + 20.1(1 - x)/x$ | $33.5(1 - x)/x - 34.2$ | 2.0 |
| Nd-Fe | 0.74 | 60 | 7.0 | 2.0 |
| Gd-Co | $0.76 < x < 0.9$ | $510x - 280$ | -23.0 | 2.0 |
| Tb-Co | $0.65 \leq x \leq 0.85$ | $240 - 250x$ | -24 | 2.0 |
| Dy-Co | $0.65 \leq x \leq 0.85$ | $200 - 120[(1 - x)/x]^{1.2}$ | $-25.5 + 31[(1 - x)/x]^{2.3}$ | 2.0 |
| Nd-Co | $0.65 \leq x \leq 0.76$ | $210 - 630[(1 - x)/x]^{2.5}$ | $18(0.79 - x)$ | $1.27(0.2 - x)$ |
| Nd-Co | $0.76 < x \leq 0.85$ | $210 - 630[(1 - x)/x]^{2.5}$ | 8.0 | 2.0 |
| | 0.76 | 150 | 9.0 | 2.0 |

Tabelle 1.2: Aus mean field analysis gewonnene Kopplungsparameter für verschiedene Metall-Selten-Erd-Legierungen[79]

Die RKKY-Wechselwirkung führt zu einer parallelen Ausrichtung der Momente der Seltenen Erden, wobei die Kopplung zwischen den Übergangsmetallatomen größer ist als die auftretende RKKY-Kopplung. Der dritte Kopplungsmechanismus ist der Austausch zwischen den Elektronen der 3d-Übergangsmetalle und den 5d-Selten-Erd-Atomen, der zu einer negativen Austauschwechselwirkung führt.

Daraus ergibt sich eine parallele Ausrichtung der Momente für Legierungen aus Übergangsmetallen und leichten (La bis Eu) Selten-Erd-Metallen, so dass frühe Forschungen darauf zielten, diese Legierungen für Permanentmagnete zu nutzen [84]. Im Gegensatz dazu ergibt sich eine antiparallele Ausrichtung für Legierungen mit den schweren (Gd bis Lu) Selten-Erd-Metallen, diese Materialien verhalten sich daher ferrimagnetisch (siehe Seite 14). Verstehen lässt sich dieses Verhalten mit Hilfe der Hund'schen Regel: bei weniger als halbgefüllten Schalen koppeln das Orbital- und das Spinmoment antiparallel zueinander, bei volleren Schalen parallel. Für leichte Seltene Erden ist das Orbitalmoment immer größer, so dass das totale magnetische Moment antiparallel zum Spinmoment koppelt. Weil das 4f Spinmoment antiparallel zum Übergangsmetall koppelt, ergibt sich die Aufspaltung in paralleles Koppeln für leichte Seltene Erden, und antiparalleles Koppeln für schwere Seltene Erden[19].

Amorphe Kobalt-Selten-Erd-Legierungen sind durch eine signifikant höhere Austauschwechselwirkung als andere Legierungen gekennzeichnet, diese bewirkt ein kollineares Co-Untergitter und eine stark erhöhte Curie-Temperatur für Co-reiche Legierungen[85].

Wählt man einen Dreilager aus einem ferromagnetischen Selten-Erd-Metall zwischen zwei Übergangsmetallen, so kann eine antiparallele Austauschkopplung beobachtet werden, bei der die magnetischen Momente der Übergangsmetallschichten in die entgegengesetzte Richtung der Momente des Selten-Erd-Metalls zeigen[86]. Nutzt man solch einen Dreilager als hartmagnetische Elektrode in magnetischen Tunnelementen, so können bei der Kompensation des totalen magnetischen Moments des Dreilagern ein erhöhtes exchange bias Feld[87], sowie verringerte Néel-Kopplung und eine Reduktion der Streufelder beobachtet werden[63] und man erhält somit eine Alternative zu den gängigen künstlichen Ferrimagneten (vgl. Abschnitt 1.1.5). Dies konnte an gepinnten NiFe/Gd/NiFe Dreilagern gezeigt werden, eignet sich aufgrund der geringen Curie Temperatur von Gd aber nicht für technische Anwendungen.

1.2.2 Co-Gd

Co-Gd Legierungen werden in optischen Speichermedien verwendet (thermo magneto-optic recording: TMO/TMR[88]).

Abbildung 1.13 zeigt das Phasendiagramm für Co-Gd Legierungen. Aufgetragen ist die Löslichkeit von Gd in Co in einem Temperaturbereich von 0°C bis 1600°C . In dem in dieser Arbeit untersuchten Bereich zwischen 58 at.% und 70 at.% Co gibt es drei intermetallischen Phasen Co_3Gd , Co_2Gd und Co_3Gd_4 . Die stärkste Kopplung in einer Co-Gd Legierung ist die Wechselwirkung zwischen Seltener Erde und Übergangsmetall, die zu einer antiparallelen Ausrichtung der magnetischen Momente beider Atomsorten führt. Dieses Verhalten wird je nach Zusammensetzung der Legierung entweder von den magnetischen Momenten des Co oder denen des Gd dominiert.

Hinzu kommt, dass in einem gewissen Zusammensetzungsbereich der Legierung das Co-Gd, wie schon von reinem Gd bekannt ist, eine antiparallele Kopplung zu Übergangsmetallen und deren Legierungen aufweist und so als künstlicher Ferrimagnet genutzt werden kann[87]. Die für diese Arbeit relevanten Eigenschaften Co-Gd Legierungen sollen im Folgenden beschrieben werden.

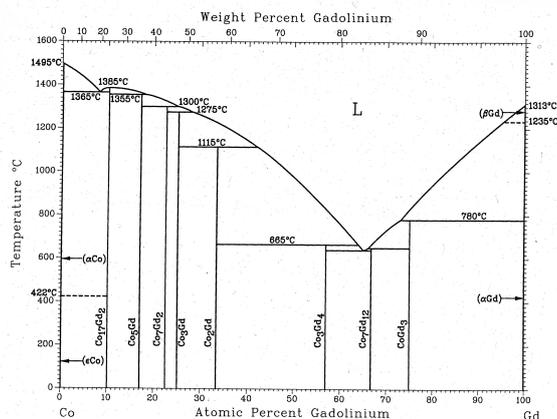


Abbildung 1.13: Phasendiagramm für Co-Gd Legierungen[89]

Curie-Temperatur T_C

Der Grund, aus dem Co-Gd Legierungen für diese Arbeit gewählt wurden, besteht darin, dass es Zusammensetzungen der Legierung gibt, die eine Curie-Temperatur oberhalb von Raumtemperatur besitzen, was sinnvoll im Hinblick auf mögliche Anwendungen ist. Sie haben, besonders für kobaltreiche Legierungen, deutlich erhöhte Werte der Curie Temperatur (Tabelle 1.3).

| $R_{1-x}T_x$ | T_C [K] | |
|---------------------------------|-------------|-----------|
| | Crystalline | Amorphous |
| GdCo ₂ | 409 | 550 |
| GdCo ₃ | 612 | 750 |
| Gd ₂ Co ₇ | 775 | 500 |
| GdCo ₅ | 1008 | > 500 |

Tabelle 1.3: Curie Temperaturen verschiedener CoGd Legierungen in kristalliner und amorpher Phase [79]

Temperaturabhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung: $M_S(T)$

Die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung folgt für einfache Ferromagnete meist dem Blochschen $T^{\frac{3}{2}}$ -Gesetz[90].

$$M_S(T) = M_S(0)(1 - \alpha T^{\frac{3}{2}}) \quad (1.12)$$

Dabei ist M_S die Sättigungsmagnetisierung, T die Temperatur und α eine materialabhängige Konstante.

Die Sättigungsmagnetisierung M_S nimmt bis zur Curie-Temperatur T_C ab, dort findet ein Phasenübergang von ferromagnetischem zu paramagnetischem Verhalten statt. Genau dieses Verhal-

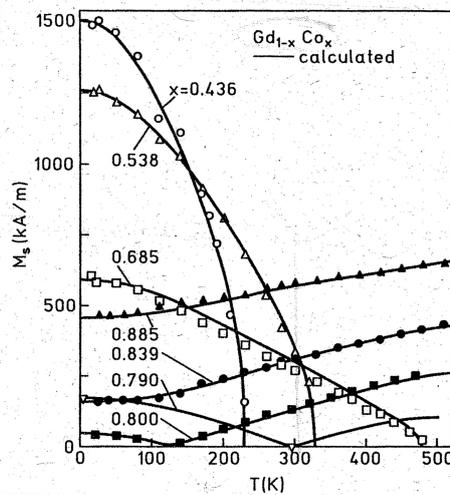


Abbildung 1.14: Abhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung verschiedener CoGd Legierungen von der Temperatur. Der Kobaltanteil beträgt zwischen 43.6 at.% und 88.5 at.% Co (aus [79])

ten ist in Abbildung 1.14 für die Co-Gd Legierungen mit einem Co-Anteil von weniger als 68.5 at.% zu beobachten. Bei Legierungen mit einem größeren Co-Anteil sinkt die Sättigungsmagnetisierung bis zur sogenannten Kompensationstemperatur auf Null ab, und steigt dann wieder. Die Kompensationstemperatur ist genau die Temperatur, bei der sich die magnetischen Momente der Co und der Gd Atome kompensieren und damit die Nettomagnetisierung der Legierung Null ist. Obwohl dort die Magnetisierung verschwindet, liegt kein Phasenübergang zum Paramagnetismus vor.

Sättigungsmagnetisierung in Abhängigkeit von der Zusammensetzung der CoGd-Legierung: $M_S(Co_xGd_{1-x})$

In Abbildung 1.15 ist die Abhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung bei Raumtemperatur von der Zusammensetzung der Legierung zu sehen. Bei weniger als 54at.%Co ist die Legierung aufgrund von Curie-Temperaturen unterhalb der Raumtemperatur (siehe Abb. 1.14) nicht ferromagnetisch. Im Bereich zwischen 54at.% und 80at.% Co dominiert das Gadolinium das Verhalten der Legierung, bei genau 80at.% Co tritt eine Kompensation der Momente von Co und Gd auf, und bei höherem Co-Anteil wird das Verhalten der Legierung vom Co dominiert.

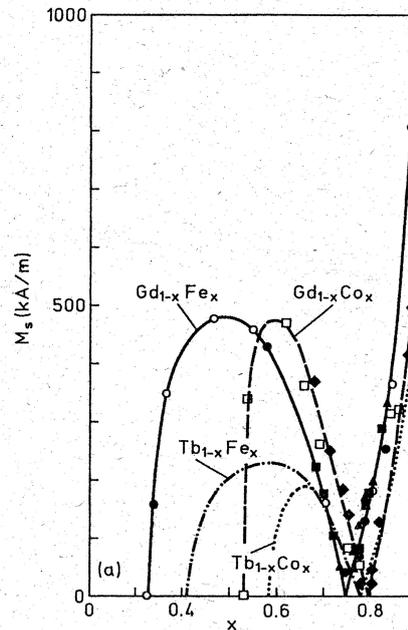


Abbildung 1.15: Zusammenhang zwischen Sättigungsmagnetisierung und der Zusammensetzung von Gd-Fe und Gd-Co Legierungen bei Raumtemperatur [79]

1.3 Al-Zr Legierungen

Natürliches Aluminium tritt nur oxidiert auf, und es bildet intermetallische Verbindungen mit fast allen Metallen. Die Dichte von reinem Aluminium beträgt $2.699 \frac{g}{cm^3}$, in Verbindung mit Sauerstoff gibt es das $\alpha-Al_2O_3$ mit einer Dichte von $3.4 \frac{g}{cm^3}$ und das $\gamma-Al_2O_3$, dessen Dichte $3.99 \frac{g}{cm^3}$ beträgt [80].

In der Natur tritt Zirkonium nur gebunden auf, die technologischen Eigenschaften ähneln denen von Kupfer, es ist weich, biegsam und gut formbar. Es ist stabil in Luft, in Pulverform reagiert es bei Hitze aktiv mit Sauerstoff. Unterhalb von $863^\circ C$ kristallisiert Zirkonium (α -Zr) in hcp-Struktur, darüber als bcc-Gitter. Bei geringer Sauerstoffzugabe steigt die Gitterkonstante mit zunehmendem Sauerstoffanteil, ebenso wie die Dichte, ausgehend von $6.508 \frac{g}{cm^3}$ bei $20^\circ C$ für α -Zr. Reines Zirkonium ist paramagnetisch mit einer Suszeptibilität $\chi = 1.3 \cdot 10^{-6}$ [80].

Abbildung 1.16 zeigt das Phasendiagramm für Al-Zr-Legierungen [89].

Aufgetragen ist die Temperatur in $^\circ C$ gegen die Zusammensetzung der Legierung in at.% Aluminium. Es gibt insgesamt 14 Gleichgewichtszustände, neben der gemischten flüssigen Phase (L) sind das Bereiche, die eine Löslichkeit von Al in Zr besitzen (maximal 11.5 at.% Al in α Zr bei $940^\circ C$ bzw. bis zu 26 at.% in β Zr bei $1350^\circ C$), und einen kleinen Bereich (0.07 at.% Zr) der

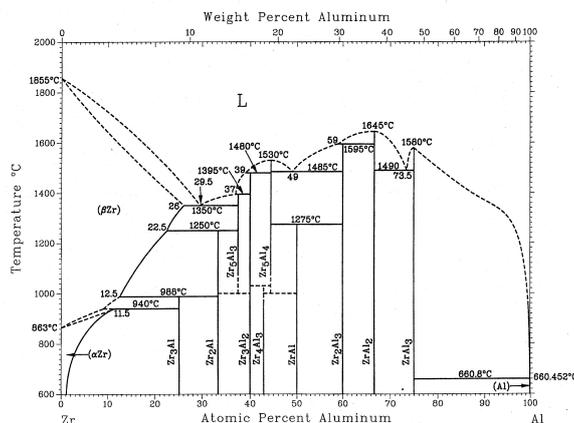


Abbildung 1.16: Phasendiagramm für Al-Zr Legierungen[89]

Löslichkeit von Zr in fcc Al. Dazwischen gibt es zehn intermetallische Phasen. In dem in dieser Arbeit untersuchten Zusammensetzungsbereich von bis zu 31 at.% Zr befindet sich das $ZrAl_3$, sowie ein eutektischer Punkt, der bei 28.5 at.% Zr und 1490°C liegt.

1.3.1 Magnetische Tunnelelemente mit Al-Zr Barrieren

2001 wird von einer Gruppe um FREITAS infolge von Untersuchungen an ZrO_x -Barrieren[42] erstmals von Untersuchungen an niedrig-ohmigen magnetischen Tunnelementen mit $AlZrO_x$ Barrieren berichtet[22]. Zur Herstellung der Al-Zr Legierung wurden zwei verschiedene Methoden genutzt, die beide zu vergleichbaren Ergebnissen führen. Eine Möglichkeit ist es, die Probe über beiden Quellen rotieren zu lassen und so eine Co-Deposition beider Materialien zu erreichen. Die andere Methode ist das aufeinanderfolgende Sputtern einer Zr- und einer Al-Schicht, die dann gemeinsam in kontrollierter Sauerstoff-Umgebung oxidiert werden.

Auf diese Weise hergestellte magnetische Tunnelelemente mit ($2.5 \text{ \AA} \text{ Zr} / 4.5 \text{ \AA} \text{ AlO}_x$) Barrieren und $Co_{90}Fe_{10}$ -Elektroden weisen sehr geringe Flächenwiderstände von nur $6 \Omega \mu m^2$ auf und zeigen bei Raumtemperatur eine TMR-Effektamplitude von 15.3%. Dies ist vergleichbar mit Ergebnissen, die an AlO_x Barrieren mit ähnlich niedrigen Flächenwiderständen erzielt wurden[91]. Bei höherohmigen Elementen mit AlO_x Barriere und CoFe-Elektroden erreicht diese Gruppe einen Effekt von 30%.

Die Abhängigkeit des TMR-Effektes, Flächenwiderstandes, sowie der effektiven Barrierenhöhe und -dicke (Fit nach Simmon's Modell [30]) von der Auslagerungstemperatur zeigt Abbildung 1.17. Die insgesamt niedrige effektive Barrierenhöhe wird zurückgeführt auf möglicherweise vorhandene Reste metallischen Zirkoniums. Eine Erklärung für den abrupten TMR-Abfall bei Auslagerungstemperaturen oberhalb von $240^\circ C$ konnte nicht gefunden werden, allerdings wurden Kurzschlüsse aufgrund des Verhaltens des Flächenwiderstandes als genauso unwahrscheinlich angesehen wie eine Diffusion des Barrierenmaterials.

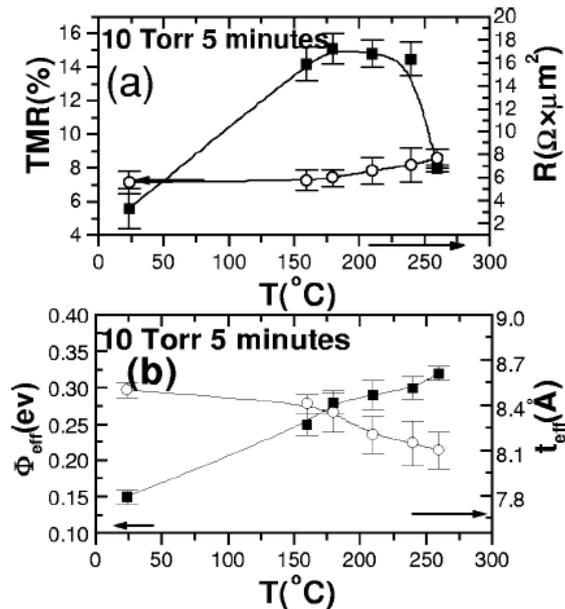


Abbildung 1.17: (a) TMR und Flächenwiderstand, sowie (b) Barrierendicke und -höhe in Abhängigkeit von der Auslagerungstemperatur für magnetische Tunnellelemente mit (4.5 Å Zr/4.5 Å Al) Barriere und CoFe-Elektroden [22]

Untersuchungen an dickeren Barrieren (4.5ÅZr/4.5ÅAl) ergeben, dass die oxidierte ZrAl-Legierung über einen weiten Bereich eine ausgesprochen glatte und homogene Barriere ausbildet. Daraus wird geschlossen, dass die Zugabe von Zr eine bessere Benetzung der Elektroden ermöglicht. Abbildung 1.18 zeigt das TEM (Transmissions-Elektronen-Mikroskop)-Bild einer solchen Probe, auf dem deutlich zu sehen ist, dass die Barriere über den gesamten Bildausschnitt durchgängig und sehr eben ist. Zusätzliche HR(high resolution)TEM-Untersuchungen ergeben, dass die Barriere eine Dicke von insgesamt 2.5nm aufweist und amorph ist. Gleiche Untersuchungen an ZrO_x Barrieren zeigen eine kristalline Struktur [42], während AlO_x ebenfalls amorph ist. Bei einer Zugabe von bis zu 50at.-% Zr bleibt diese amorphe Struktur erhalten.

2003 gab es eine systematische Untersuchung der Abhängigkeit des Effektes der Zr Konzentration auf die Mikrostruktur von Aluminium sowie den Magnetowiderstandseffekt in mit Zr legierten AlO_x Barrieren mit Elektroden bestehend aus $\text{Co}_{90}\text{Fe}_{10}$ [23]. Die Herstellung der Legierung erfolgte durch Dekoration eines Al-Targets mit Zr-Stückchen, die Zusammensetzung wurde durch induktiv gekoppelte, optische Plasmaemissions-Spektroskopie bestimmt. Ausgelagert wurden die Schichtsysteme bei 250°C , trotz des von der Gruppe um FREITAS gefundenem abrupten TMR-Abfall oberhalb von 240°C . Bei Magnetowiderstandsmessungen wurde eine deutliche Zunahme des TMR-Effektes bei einer Zulegierung von bis zu 10at.-% Zr gefunden. Für Proben, die bei 250°C ausgelagert wurden, konnte eine Zunahme des TMR-Effektes bei

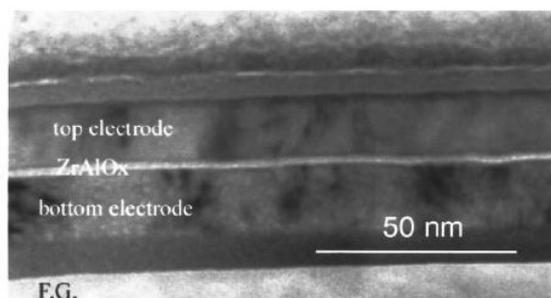


Abbildung 1.18: TEM-Bild einer oxidierten (4.5ÅZr/4.5ÅAl) Barriere, beide Elektroden bestehen aus CoFe (aus [22])

Raumtemperatur von 25% für reine AlO_x Barrieren auf 40% bei einem Zr-Anteil von 10at.-% beobachtet werden, vgl. Abbildung 1.19. Oberhalb von 10at.-% Zr sinkt der Effekt wieder.

In direktem Zusammenhang dazu stehen die Ergebnisse mikrostruktureller Untersuchungen (siehe Abb. 1.20), die für unoxidierte AlZr Schichten mit steigendem Zr-Anteil einen Übergang zu amorpher Struktur zeigen. Mit steigendem Zr-Anteil sinkt die Korngröße des ehemals polykristallinen Aluminiums stark, zwischen 9at.-% Zr und 11at.-% Zr wird die Legierung amorph. Das Zr ist komplett in der Al-Matrix gelöst und formt eine metastabile gesättigte feste Lösung. Bei höherem Zr-Anteil wird eine Mischstruktur aus ausgefallenem polykristallinen AlZr sowie amorphem Al-Zr gefunden.

Die von dieser Gruppe gefundene Steigerung des TMR durch eine Zr-legierte Al-Barriere diene als Motivation, in dieser Arbeit ebenfalls Al-Zr Barrieren zu verwenden. Statt CoFe wurde CoFeB als Elektrodenmaterial verwendet. So sollte untersucht werden, ob sich die Steigerung des TMR durch die Zr Zugabe mit der Erhöhung des Effektes, die bei der Verwendung von

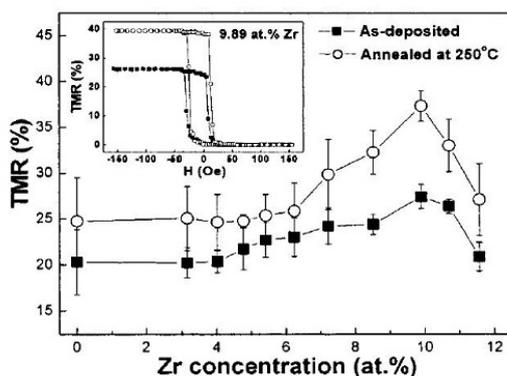


Abbildung 1.19: Abhängigkeit des TMR-Effektes eines Tunnелеlementes mit Zr-legierter AlO_x -Barrierе von der Zr-Konzentration im as-deposited und im ausgelagerten Zustand bei Raumtemperatur [23]

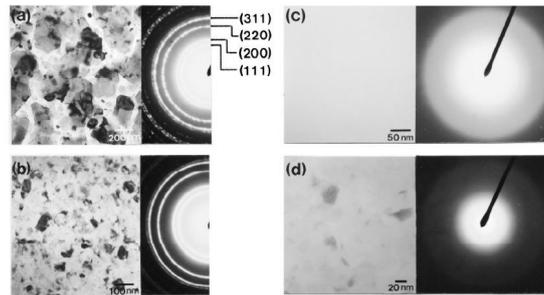


Abbildung 1.20: TEM Bilder und SAD Beugungsbilder von einer (a) reinen Al-Schicht, (b) einer AlZr Legierung mit 7.59 at.% Zr (c) einer AlZr Legierung mit 9.89 at.% Zr und (d) einer AlZr Legierung mit 11.59 at.% Zr (aus [23])

CoFeB-Elektroden berichtet wurde[24], kombinieren lässt und eventuell noch höhere TMR-Effektamplituden erreicht werden können. Nicht unerwähnt bleiben darf an dieser Stelle der Hinweis, dass 2003 in Bielefeld mit $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$ -Elektroden und reinen Al_2O_3 Barrieren schon deutlich höherer TMR ($\sim 50\%$) gemessen wurde, als die in dieser Veröffentlichung genannten 25% bzw. 40% mit Zr-Zulegierung.

Kapitel 2

Herstellung & Präparation

2.1 Herstellung

Die Herstellung sämtlicher in dieser Arbeit beschriebener Schichtsysteme wurde in einer Vakuumanlage der Firma *Leybold Dresden*, Typ *Clab 660* durchgeführt. Die Anlage besitzt sieben (ab 2006 acht) Quellen, so dass es möglich ist, mit bis zu sieben (acht) verschiedenen Materialien ohne Vakuumbruch zu arbeiten. Die Oxidation des Barrierenmaterials erfolgte in einer ECR- (electron-cyclotron-resonance)-Remote-Plasmaquelle der Firma *Roth und Rau*. Eine ausführliche Beschreibung erfolgt in [92]. Die einzelnen Schichten werden durch DC-Magnetronspütern [93] auf das Substrat aufgebracht.

2.2 Präparation

Der komplette Schichtstapel wurde ausgelagert und in einem Magnetfeld von 80 kA/m gekühlt, um die Kopplung zwischen unterer Elektrode und Antiferromagnet zu erreichen (exchange bias [94]).

Um vergleichbare Messergebnisse zu erzielen und Abhängigkeiten von der Elementgröße ausschließen zu können, wird das Schichtsystem mittels optischer Lithographie zu Elementen der Größen $10000\mu\text{m}^2$, $40000\mu\text{m}^2$ und $90000\mu\text{m}^2$ strukturiert.

Um die Strukturen aufzubringen, wird das Schichtsystem mittels spin coating mit einem Lack (*ARP-535* der Firma *Allresist*) versehen. Während des anschließenden Lithographieprozesses durch einen Parallelbelichter der Firma *Thermo Oriel* werden die Strukturen durch die Belichtung einer invers gefertigten Maske auf die Proben übertragen, indem der Lack so verändert wird, dass die belichteten Stellen mit einem Entwickler entfernt werden können.

Das anschließende Ionenstrahlätzen in einem Gerät der Firma *Roth & Rau*, Typ *UniLab* dient dem Abtragen der Schichtpartien ohne Lack. Es wird solange geätzt, bis die untere Kupferschicht sichtbar wird, diese läßt sich farblich gut sowohl von den im Schichtaufbau benachbarten Schichten (Silizium, Mangan-Iridium) unterscheiden, als auch von der Gold-Deckschicht. Nach dem Ätzprozess werden die Lackreste mit einem Remover (*AR-300-70* der Firma *Allresist*) entfernt.

2.3 Der Schichtaufbau

Insgesamt besteht ein magnetisches Tunnелеlement aus deutlich mehr als den minimal benötigten drei Schichten. Es entsteht ein komplexer Schichtaufbau, der an die jeweiligen Anforderungen des Experimentes angepasst werden muss, um bestmögliche Ergebnisse zu erzielen.

2.3.1 CoGd-Proben

Der Schichtaufbau der Co-Gd Proben ist in Abbildung 2.1 dargestellt: Auf einen Siliziumwafer mit 50 nm dicker Oxidschicht wurden 30 nm Cu aufgebracht, darüber befinden sich 15 nm antiferromagnetisches $Mn_{83}Ir_{17}$, welches mit dem darauf aufgetragenen Dreilager die hartmagnetische Elektrode bildet.

Der Dreilager besteht aus 1.5 nm Permalloy (Py: $Ni_{80}Fe_{20}$), einer Co-Gd Schicht, und darauf weiteren 1.5 nm Py. Oberhalb dieser Schicht befindet sich die 1.8 nm dicke Al_2O_3 Barriere. Darauf 3 nm Py, welches als obere Elektrode dient, und 3 nm Ta als Diffusionssperre, sowie 55 nm Cu und 30 nm Au als Abdeckschicht.

Der für diese Arbeit wesentliche Teil des Schichtsystems ist die untere Elektrode, die aus einem an die MnIr Schicht gepinnten Dreilager Py/Co-Gd/Py besteht. Die zwei Permalloy-Schichten haben jeweils eine Dicke von 1.5 nm, während sowohl die Dicke als auch die Zusammensetzung der Co-Gd Schicht variiert wurde. Die Schichtdicke variiert zwischen 4 nm und 21 nm, die Zusammensetzung der Legierung bewegt sich zwischen 56 at.% und 71 at.% Co. Aufgrund der antiparallelen Austauschkopplung[86] zwischen Py und Co-Gd kann das magnetische Moment des Dreilagere eingestellt werden.

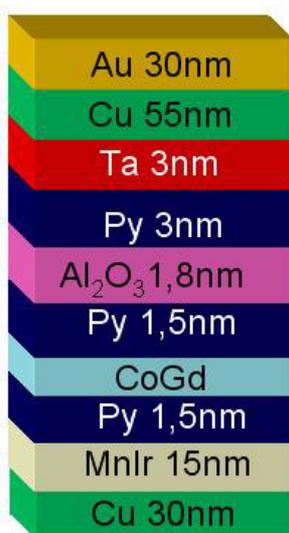


Abbildung 2.1: Schichtaufbau für Proben mit NiFe/CoGd/NiFe Elektrode

Das Ziel der Variation ist es, zu erreichen, dass sich das totale magnetische Moment dieser drei Schichten zu Null addiert, oder zumindest möglichst gering wird. Das Gesamtmoment lässt sich nach [18] aus den Sättigungsmagnetisierungen und Schichtdicken der einzelnen Schichten berechnen: $\mu_{tot} = 2M_S(Py)d(Py) - M_S(CoGd)d(CoGd)$

Für die beiden Py-Schichten von 1.5 nm Dicke mit einer Sättigungsmagnetisierung von 800 kA/m bei Raumtemperatur ergibt sich ein Wert von $4.8 \cdot 10^{-3} A$. Nun müssen Zusammensetzung und Dicke der Co-Gd Schicht so angepasst werden, dass sich die magnetischen Momente kompensieren. Das Hauptproblem dieser an sich einfachen Forderung ergibt sich aus der Herstellung der Co-Gd Legierung. Diese wird beim Sputtern mittels Dekoration eines Targets mit kleinen Stückchen des jeweils anderen Materials hergestellt, da so die Möglichkeit besteht, beliebige Zusammensetzungen zu erreichen.

Allerdings werden beim Sputtern die aufgelegten Stückchen langsam aufgebraucht[95], so dass jede hergestellte Schicht dazu führt, dass sich die Zusammensetzung ein wenig ändert. Dies wirkt sich auf die Sputterrate aus, so dass die Schichtdicke der gesputterten Schicht ebenfalls abhängig von der Zusammensetzung ist. Um die Zusammensetzung bestimmen zu können, müssen dicke Schichten (200 nm) für EDX-Messungen hergestellt werden. Diese verändern allerdings die Zusammensetzung der Legierung, was sich auf die Schichtdicken auswirkt und ebenso auf die Sättigungsmagnetisierung, die, wie in Abb. 1.15 zu sehen ist, eine starke Abhängigkeit von der Zusammensetzung aufweist.

Um mit möglichst dünnen Schichtdicken ($\leq 20\text{nm}$) arbeiten zu können, bietet es sich an, die Zusammensetzung der maximalen Sättigungsmagnetisierung ($\approx 500\text{kA/m}$) bei etwa 60 at.% Co zu nutzen und die Dicke der Py-Schichten so gering wie möglich zu halten. Für die hier gewählte Py-Schichtdicke von 1.5 nm würde das eine Co-Gd Schichtdicke von 9 - 10 nm bedeuten.

2.3.2 AlZr-Proben

Abbildung 2.2 zeigt die Schichtfolge der Proben mit Zr-legierter Al_2O_3 Barriere. Auf dem Substrat, einem Siliziumwafer mit 100 nm dicker Oxidschicht, befindet sich aufgrund des so verbesserten Wachstums eine Kombination aus 5 nm Ta / 30 nm Cu / 5 nm Ta / 5 nm Cu. Erst darauf befindet sich der Antiferromagnet, eine 12 nm dicke MnIr-Schicht. Die Elektroden oberhalb und unterhalb der Barriere bestehen beide aus dem gleichen Material: entweder aus 4 nm $\text{Co}_{70}\text{Fe}_{30}$ oder 3.5 nm $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$. Die Barriere wird aus einer oxidierten Aluminium-Zirkonium-Legierung hergestellt, bei der sowohl die Zusammensetzung als auch die Schichtdicke variiert wurden, damit bei fester Oxidationszeit von 100 s in jedem Fall auch die Dicke mit optimaler Oxidation erreicht werden konnte. Oberhalb der Top-Elektrode befinden sich 3 nm Py / 5 nm Ta / 20 nm Cu / 30 nm Au, die als Abdeckschicht und zur Kontaktierung dienen.

Für die Variation der Schichtdicke wurden einerseits einzelne Proben mit Schichtdicken im Bereich von 1.1 nm bis 2.8 nm AlZr-Dicke hergestellt (siehe Kap. 5), andererseits aber auch Keilproben, bei denen die Schichtdicke auf einer Probe kontinuierlich von 0 nm bis zu 4.1 nm Dicke verändert wird (siehe Kap. 6). Dazu wird die Probe beim Sputtern der Schicht über der Quelle hin



Abbildung 2.2: Schichtaufbau für die Messungen an AlZr-Barrieren

und her bewegt. Die Dicke verändert sich dabei allerdings nicht linear mit der Position auf der Probe, sondern folgt einer Boltzmann-Verteilung. Daher sollte zur weiteren Verwendung nur der mittlere Bereich auf einer Länge von 3 cm verwendet werden. Eine ausführliche Beschreibung dieser Methode findet sich in [96].

Kapitel 3

Charakterisierungsmethoden

Dieses Kapitel wird sich mit den in dieser Arbeit verwendeten Charakterisierungsmethoden beschäftigen. Darunter befinden sich Methoden, die an einzelnen dünnen (30nm), bzw. etwas dickeren Schichten (70nm...150nm) angewendet wurden, um Auskunft über die eingeführten Legierungen zu erhalten. Da sind zum einen AFM- bzw. XRD-Messungen zur Schichtdickenbestimmung und zur Identifikation der Textur zu nennen, und zum anderen EDX- und AES-Messungen, um die Zusammensetzung der Legierungen zu quantifizieren. Andere Methoden wurden zur Untersuchung von mehrlagigen Schichten verwendet, AGM- und MOKE-Messungen wurden durchgeführt, um mehr Informationen über das magnetische Schaltverhalten und die Kopplung der Py/CoGd/Py Dreilager zu erhalten. Der Hauptteil der Messungen besteht aus Magneto-Transportmessungen an kompletten magnetischen Tunnелеlementen.

3.1 Röntgendiffraktometrie (XRD)

XRD-Messungen (x-ray diffraction) wurden in einem *X'Pert Pro MRD* von *Philips Analytical* durchgeführt. Eine drehbare Kupferanode liefert die einfallende monochromatische Röntgenstrahlung der Kupfer- K_{α} -Linie mit einer Wellenlänge von $\lambda = 0.154nm$. Diese wird unter einem Winkel Θ eingestrahlt und von einem ebenfalls drehbaren Detektor unter dem selben Winkel aufgenommen. Bei bestimmten materialabhängigen Winkeln kommt es zu konstruktiver Interferenz. Mit Hilfe der Bragg-Beugung am Gitter lässt sich der Abstand d zweier Gitterebenen wie folgt bestimmen.

$$2d\sin\theta = n\lambda \quad (3.1)$$

Allerdings können so nur Gitterebenen parallel zur Probenoberfläche gefunden werden.

Eine weitere Möglichkeit zur Analyse liefert die Scherrer-Formel, diese ermöglicht Aussagen über die Struktur einer Schicht und gibt den Zusammenhang zwischen der Korngröße δ und der Halbwertsbreite der Beugungspeaks H an.

$$\delta = \frac{K\lambda}{H\cos\theta} \quad (3.2)$$

θ ist der Streuwinkel, λ die eingestrahlte Wellenlänge und K ist ein von der Kristallstruktur abhängiger Formfaktor, der bei kubischen Gittern mit 0.9 angenommen wird [97]. Eine ausführliche Beschreibung der Anlage sowie der damit möglichen Charakterisierungsmethoden findet sich in [98].

Mit Kleinwinkel-Scans (typischerweise $2\Theta = 0^\circ \dots 10^\circ$) wurde die Schichtdicke von „dicken“ Einzelschichten ($\sim 30nm$) aus Co-Gd und Al-Zr Legierungen bestimmt, um daraus die Sputterrate dieser Materialien bei verschiedenen Zusammensetzungen zu erhalten.

Die Mikrostruktur der Al-Zr Legierungen wurde mit Großwinkel-Scans ($2\Theta = 20^\circ \dots 120^\circ$) bei einer Schrittweite von 0.05° untersucht.

3.2 Atomkraftmikroskop (AFM)

Um Schichtdicken bestimmen zu können, wurden AFM-Messungen mit einem *Nanoscope IIIa* der Firma *Digital Instruments* durchgeführt. Dafür wird eine Probe vor dem Sputtern so vorbereitet, dass hinterher im Ultraschallbad ein Teil der aufgedampften Schicht gelöst wird, und man eine scharfe Kante durch die ganze Dicke erhält. Diese Höhendifferenz kann mit dem zugehörigen Computerprogramm bestimmt werden. Eine dünne Spitze, befestigt an einem Kantilever, dessen Rückseite einen Laserstrahl reflektiert, wird durch eine Piezokeramik in konstantem Abstand über die Probenoberfläche gerastert. Aus der an der Piezokeramik anliegenden Spannung kann die Oberflächentopographie, und damit in diesem Fall die Schichtdicke, bestimmt werden.

3.3 Energiedispersive Röntgenspektroskopie (EDX)

Um die Zusammensetzung der Co-Gd und Al-Zr Legierungen zu bestimmen, wurden EDX-Messungen (energy dispersive x-ray spectroscopy) durchgeführt, da die gemessenen Spektren anhand der charakteristischen Röntgenstrahlung eine Quantifizierung der beteiligten Atome liefern.

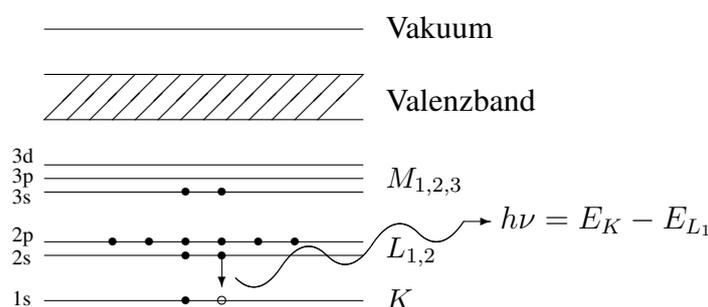


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung eines elementspezifischen Überganges, der zur Entstehung eines EDX-Spektrums beiträgt[99]

Die Probe wird von hochenergetischen Elektronenstrahlen beschossen, die durch das Heraus-schlagen von Elektronen aus den unteren Schalen Löcher erzeugen, die durch herabfallende Elektronen aus höheren Schalen wieder aufgefüllt werden (Abb. 3.1). Dabei wird charakteristische Röntgenstrahlung emittiert und von einem Sensor detektiert. Die möglichen Übergänge sind elementspezifisch, daher kann das Spektrum zur Identifikation der in der Probe vorhandenen Atomsorten genutzt werden. Dies geschieht durch den Vergleich mit spezifischen Spektren bekannter Atome. Das Anregungsvolumen, das birnenförmig aufgespannt wird durch die Eindringtiefe des Elektronenstrahls, die etwa $1\mu\text{m}$ beträgt, ist abhängig von der Energie des Elektronenstrahls (typischerweise sind das 10keV bis 20keV) und der Massenzahl der untersuchten Elemente. Die laterale Auflösung an der Oberfläche liegt bei nur 1- 2 nm, dabei handelt es sich im Wesentlichen um den Durchmesser des Elektronenstrahls [93].

Die Messungen in dieser Arbeit wurden mit einem *Link ISIS System Series 300* der Firma *Oxford Instruments* durchgeführt, welches im Rasterelektronenmikroskop (REM), einem *Leo 1530* der Firma *Leo Elektronenmikroskopie GmbH*, eingebaut ist. Das Computerprogramm *ISIS 2000* liefert die Auswertung der Spektren und damit auch die für diese Arbeit relevanten Daten zur Komposition von Legierungen. Um aussagekräftige Ergebnisse zu erhalten, müssen „dicke“ Schichten untersucht werden. Das beinhaltet aber auch direkt die Schwäche dieser Untersuchungsmehtode, denn aufgrund der gewählten Herstellungsmethode der Legierungen durch Dekoration eines Targets kann nicht gewährleistet werden, dass die Zusammensetzung der Legierung während des Sputterns einer solchen Schicht konstant bleibt [95]. So musste ein Kompromiss eingegangen werden zwischen den ganz dicken Schichten (mehrere μm), die die Zusammensetzung der Legierung mit nur geringem Fehler liefern, und den weniger dicken Schichten (etwa 30 nm), über deren Schichtdicke die Legierung konstant bleibt.

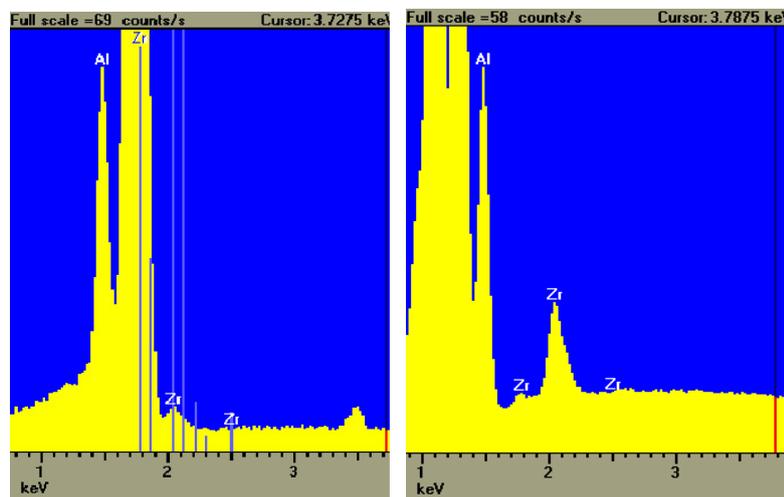


Abbildung 3.2: EDX-Messungen an Al-Zr Schichten, die auf einem Si-wafer(links) bzw. einem GaAs-wafer(rechts) aufgebracht sind.

Die Zusammensetzung der Co-Gd Legierung wurde an etwa 80 nm dicken Schichten, die auf

einen Siliziumwafer aufgebracht wurden, bestimmt. Bei den Al-Zr Legierungen waren es Schichten mit einer Dicke von etwa 60 nm.

Abbildung 3.2 zeigt die gemessenen Spektren von Al-Zr Schichten. Der große Unterschied bei den Spektren ist durch die Wahl des Wafers bedingt. Während auf dem Si Wafer der erste Zr-peak mitten im gemessenen Si-peak liegt, und das Auswerteprogramm damit vollkommen falsche Werte der Zr Konzentration liefert, lassen sich die peak-Positionen von Al und Zr auf dem GaAs Wafer eindeutig vom Wafermaterial trennen und liefern damit zuverlässige Zusammensetzungen, die in Einklang mit den AES-Messungen stehen.

3.4 Augerelektronenspektroskopie (AES)

Ein hochenergetischer Elektronenstrahl ($2keV$) trifft auf die Probe, dabei werden durch folgende Prozesse Augerelektronen erzeugt[93] und diese dann ausschließlich detektiert: Durch den einfallenden Elektronenstrahl wird ein Elektron aus einer unteren Atomschale herausgeschlagen, dieses Loch wird von einem aus einer höheren Schale herabfallendem Elektron aufgefüllt, und die dabei frei gewordene Energie wird übertragen auf ein Elektron in einer noch höheren Schale, so dass es aus dieser emittiert wird. Man erhält ein energieabhängiges Spektrum, wobei die Peaks charakteristisch für die vorhandenen Atome sind.

Das Anregungsvolumen für Augerelektronen beträgt nur etwa $1nm$ Tiefenauflösung, so dass die Probenoberfläche vor jeder Messung mittels Ionenstrahlätzen abgetragen werden muss. Benutzt wurde diese Methode, um die Zusammensetzung von Legierungen zu bestimmen. Allerdings sind diese Ergebnisse mit Vorsicht zu betrachten, da nicht ausgeschlossen werden kann, dass die in der Legierung vorhandenen Atomsorten selektiv abgetragen werden, so dass die entstandene Fläche möglicherweise kein Abbild der tatsächlichen Komposition liefert. Als Vergleich zu den EDX-Messungen können die Ergebnisse auf diese Art aber bestätigt werden.

3.5 Magnetooptischer Kerr-Effekt (MOKE)

Der magnetooptische Kerr-Effekt nutzt eine Wechselwirkung zwischen polarisiertem Licht und magnetischen Materialien. Fällt linear polarisiertes Licht auf eine magnetische Probenoberfläche und wird dort reflektiert, so erfährt es eine Drehung der Polarisationssebene (Kerr Rotation), die proportional zur Gesamtmagnetisierung der Probe ist. Auf diese Weise lässt sich aus der Intensität des reflektierten, elliptisch polarisierten Lichts nach einem Analyse-Polarisator das magnetische Moment parallel zur Feldrichtung eines externen magnetischen Feldes bestimmen. Da dieser Effekt materialabhängig ist, kann so zwar nicht das absolute magnetische Moment bestimmt werden, aber die Form der Hysteresekurve. Die Eindringtiefe des Lichts beträgt etwa 10nm, das ist besonders bei dickeren Schichtsystemen zu berücksichtigen. Genaue Spezifikationen des Aufbaus finden sich in [100].

3.6 Alternating Gradient Magnetometer (AGM)

Um das absolute magnetische Moment einer Probe zu bestimmen, können AGM-Messungen in einem *MicroMagTM2900* der Firma *Princeton Measurements Corporation* an einer Probe mit bekanntem magnetischen Volumen durchgeführt werden. Die Probe hängt in einem homogenen Magnetfeld von maximal 14 kOe, welches von zwei mit Wasser gekühlten Eisenkernspulen erzeugt wird. Dieses wird von einem Gradientenfeld überlagert und so die Probe zu Schwingungen angeregt. Gemessen wird die daraus resultierende Schwingung der Probe in dem angelegten Magnetfeld, welches mit einer Hallsonde gemessen wird. Die Schwingung hängt vom magnetischen Moment der Probe ab und kann über den Probenhalter mit einem Piezokristall bestimmt werden. Eine ausführliche Beschreibung findet sich in [16].

3.7 Transportmessungen

Für die Magnetowiderstandsmessungen und die Aufnahme der UI-Kennlinien steht ein selbstgebauter Messplatz zur Verfügung [53],[101]. Ein Spulenpaar mit Ferritkern liefert ein homogenes Magnetfeld von maximal $\pm 3500 Oe$, welches über eine Hallsonde und ein *Bell 6010 Gauss* Teslameter gemessen wird. Die strukturierte Probe wird mit zwei dünnen Goldspitzen kontaktiert. Aufgrund hoher Widerstände der magnetischen Tunnelelemente im Vergleich zu den Zuleitungswiderständen kann auf 4-Punkt-Messungen verzichtet werden. Eine Goldspitze wird vorsichtig auf dem Element platziert, während die andere, etwas dickere kräftig bis in die untere Zuleitung gestochen wird.

3.7.1 Magnetowiderstand

Bei der Messung der Major- und Minorloops wird der Widerstand bei einer angelegten konstanten Biasspannung von $10 mV$ in Abhängigkeit vom angelegten Feld gemessen. Aus den dabei gemessenen Widerständen bei paralleler und antiparalleler Ausrichtung der Elektrodenmagnetisierung wird nach Gleichung 1.1 der TMR-Effekt bestimmt. Zusätzlich dazu lässt sich der Flächenwiderstand bestimmen, der definiert ist als das Produkt aus dem mittleren Widerstand und der Elementfläche: $R_A = \frac{1}{2}(R_{ap} + R_p) \cdot A$

Beim Majorloop wird das Magnetfeld ausgehend von hohen negativen Feldstärken bis zu hohen positiven Werten erhöht, so dass sich die Elektroden zu Beginn und am Ende der Messung möglichst in Sättigung befinden. Später wird sich zeigen, dass das aufgrund des erhöhten Pinning-Feldes nicht bei allen Proben möglich ist. Das Pinning-Feld kann aus den Majorloops bestimmt werden. Aus den Minorloops, bei denen das Magnetfeld nur soweit erhöht wird, dass die weichmagnetische Elektrode schaltet, können ebenfalls noch weitere Informationen gewonnen werden. Aus der Verschiebung der Hysterese erhält man das Koerzitivfeld der weichmagnetischen Elektrode und Auskunft über die Kopplung zwischen beiden Elektroden. Eine Verschiebung in Richtung antiparalleler Ausrichtung kann als ferromagnetische Kopplung identifiziert

werden, im Gegensatz zur Néel Kopplung, die eine Verschiebung in die andere Richtung bewirkt.

3.7.2 UI-Kennlinie

Für die Aufnahme einer UI-Kennlinie wird der Strom in Abhängigkeit von der Biasspannung zwischen $-500mV$ und $500mV$ bei einem konstanten Magnetfeld gemessen. Aus dem Fit einer nach oben geöffneten Parabel auf die differentielle Leitfähigkeit erhält man Auskunft über die Barrierenhöhe Φ , die -dicke d und die Asymmetrie $\Delta\Phi$ (vergleiche Seite 6, Gleichung 1.6-1.8).

3.7.3 Temperaturabhängige Messungen

Für temperaturabhängige Messungen in einem Bereich zwischen $10^{\circ}C$ und $80^{\circ}C$ wurde der Messplatz mit einem Peltier-Element so verändert, dass die Probe bei verschiedenen Temperaturen gemessen werden konnte. Um Schwankungen der Temperatur während der Messung zu vermeiden, wurde vor dem Beginn so lange gewartet, bis sich die Temperatur mehrere Minuten lang konstant hielt. Das Bestimmen der Temperatur geschah mit einem einfachen Temperaturfühler *ama digit*, Modell *ad14th*, welcher Temperaturen in einem Bereich von $-35...500^{\circ}C$ messen kann.

3.7.4 Tieftemperaturmessungen

Für Tieftemperaturmessungen wurde ein Kryostat der Firma *Oxford*, Typ *Cryodrive* verwendet. Damit sind Messungen in einem Temperaturbereich von 12K bis 330K möglich. Das maximale Magnetfeld, das hierbei angelegt werden kann, beträgt $\pm 2kOe$, es können Majorloops, Minorloops und UI-Kennlinien aufgenommen werden. Um Proben in diesem Gerät vermessen zu können, müssen die strukturierten Proben mittels Ultraschallbonden mit Golddrähten kontaktiert und auf ein IC-Gehäuse aufgebracht sein.

Kapitel 4

Ergebnisse Co-Gd

Im ersten Teil dieses Kapitels werden die Ergebnisse von MOKE- und AGM-Messungen an Dreilagern aus Py/Co-Gd/Py beschrieben. Anschließend folgen Transportmessungen an kompletten magnetischen Tunnelementen bestehend aus 30 nm Cu/15 nm MnIr/Py/Co-Gd/Py/1.8 nm Al₂O₃/3 nm Py/5 nm Ta/55 nm Cu/30 nm Au. Diese sollen schichtdickenabhängig und temperaturabhängig den Übergang von Co-Gd zu Py dominiertem Verhalten des Dreilagers zeigen. Die Dicke der Co-Gd Schicht wurde variiert, ebenso deren Zusammensetzung. Diese verändert sich in einem Bereich zwischen 56 at.% Co und 70 at.% Co.

Die Veränderung wird durch die Herstellung der Schichten, insbesondere die der dicken Eichschichten bewirkt, und ist nur bedingt kontrollierbar. Die Zusammensetzung der zwischen zwei Eichschichten gesputterten Proben kann nicht genauer als das Ergebnis der für die Eichschichten gewonnenen Komposition bestimmt werden. Dabei ist aber nicht klar, wie stark sich die Zusammensetzung auch während des Sputterns einer Eichschicht, der Dreilager, oder der kompletten Tunnelemente verändert. Teilweise werden die Kompositionen der Legierung bei der Auswertung zusammengefaßt, teilweise wird auch versucht, die Änderung der Zusammensetzung auf die einzelnen Proben zu übertragen.

Auf einer Eichschicht mehrfach gemessene gleiche Zusammensetzungen der Co-Gd Schicht weichen nur um maximal 1.5 at.% voneinander ab, der Unterschied zwischen zwei in Folge gesputterten Eichschichten beträgt aber bis zu 5 at.%. Insgesamt ist über den gesamten Herstellungszeitraum eine Abnahme des Co-Anteils zu beobachten, damit einhergehend auch eine Abnahme der Sputterrate. Auch diese verändert sich zwischen/während zwei in Folge gesputterten Eichschichten, so dass die angegebenen Dickenangaben der Co-Gd Schicht mit einem Fehler von bis zu 0.5 nm behaftet sind. Diese Ungenauigkeiten beeinträchtigen die Auswertung der Ergebnisse allerdings nur minimal, da sowohl bei der Zusammensetzung, als auch bei der Schichtdicke die Tendenzen klar sind. Trotz einer Änderung der Sputterrate bleiben Schichten, die länger gesputtert wurden dicker, als Schichten, die kürzer gesputtert wurden. Genauso ist es bei der Zusammensetzung. Da die Reihenfolge der hergestellten Schichten nachvollzogen werden kann, ist damit auch immer klar, wie sich die Zusammensetzung von Schicht zu Schicht verändert.

4.1 Py/Co-Gd/Py als Dreilager

In diesem Abschnitt werden Ergebnisse vorgestellt, die das Verhalten der Dreilager Py/Co-Gd/Py beschreiben. Zuvor soll an einem Beispiel das Schaltverhalten einer einzelnen Co-Gd Schicht gezeigt werden. Abbildung 4.1 zeigt die Magnetisierungsmessung einer 29 nm dicken Co-Gd Schicht im Vergleich zu einem Schichtsystem bestehend aus Ta/9 nm CoGd/10 nm Cu/10 nm Py/Au. Der Co-Anteil der Co-Gd Schichten beträgt bei beiden Proben 71 at.%, das Koerzitivfeld beträgt 10 Oe. Dies ist deutlich weniger im Vergleich zu einem Py/Co-Gd/Py Dreilager mit gleicher Co-Gd Zusammensetzung, der ein Schaltfeld von 44 Oe besitzt. Co-Gd Schichten

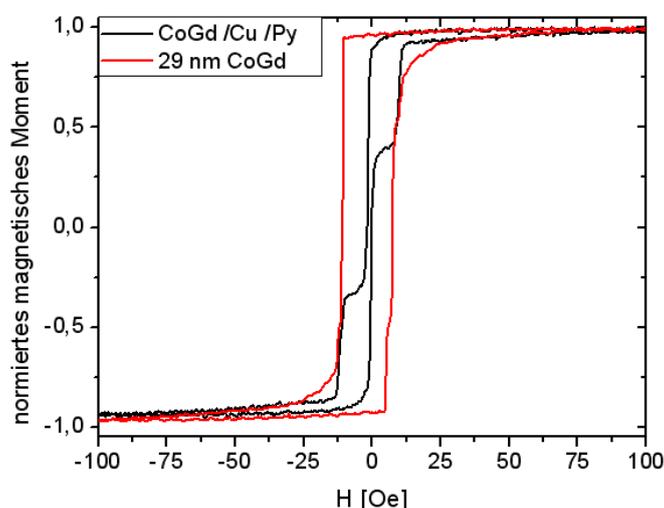


Abbildung 4.1: Vergleich der AGM-Messung an einer reinen $\text{Co}_{71}\text{Gd}_{29}$ Schicht mit einem Schichtsystem bestehend aus Ta/9 nm $\text{Co}_{71}\text{Gd}_{29}$ / 10 nm Cu/10 nm Py / Au, bei dem getrenntes Schalten der ferromagnetischen Schichten vorliegt. Das Koerzitivfeld der $\text{Co}_{71}\text{Gd}_{29}$ Schicht beträgt 10 Oe.

mit geringerem Co-Anteil weisen ein deutlich kleineres Koerzitivfeld von maximal 2 Oe auf. Damit ist es auch nicht möglich, in einem Schichtsystem das Schaltverhalten von Py und Co-Gd getrennt zu beobachten.

In den Py/Co-Gd/Py Dreilagern wurde die Dicke der Co-Gd Schicht zwischen 3 nm und 36 nm variiert, die Zusammensetzung variiert zwischen 56 at.% Co und 70 at.% Co. Da die Dicke der Py-Schichten bei allen Proben 1.5 nm beträgt, ist die Eindringtiefe der MOKE-Messungen bei allen Proben ausreichend, um zusätzlich zur oberen Py Schicht die Co-Gd Schicht, und bei dünnen Co-Gd Schichten auch die untere Py-Schicht zu sehen. Alle Proben zeigen ein vergleichbares Schaltverhalten, welches sich lediglich in der Größe der Koerzitivfelder unterscheidet.

Bei Proben zwischen 56 at.% Co und 59 at.% Co kann eine Abnahme des Koerzitivfeldes mit zunehmender Co-Gd Schichtdicke beobachtet werden. Dieses sinkt bis auf 1.1 Oe. Im Gegensatz dazu nimmt das Koerzitivfeld bei den Proben mit einem Co-Anteil zwischen 60 at.% und 70 at.% insgesamt zu. Dabei wird ein Bereich von 3 nm bis 10 nm CoGd abgedeckt, und es gibt zwei Ausnahmen. Bei der Probe mit 5 nm dicker Co-Gd Schicht, die einen Co-Anteil von etwa 64 at.% besitzt, findet sich ein deutliches Maximum mit einem Feld von 740 Oe. Dieses Verhalten wird im Folgenden näher untersucht. Auch die 6 nm dicke Schicht mit etwas höherem Co-Anteil zeigt ein erhöhtes Koerzitivfeld von 115 Oe, alle anderen Proben besitzen Schaltfelder von weniger als 60 Oe.

Abbildung 4.2 zeigt die AGM-Messungen einiger ausgewählter Proben. Die rechte Seite zeigt die Probe mit 5 nm CoGd, die schon bei der MOKE-Messung ein außergewöhnlich hohes Schaltfeld aufwies.

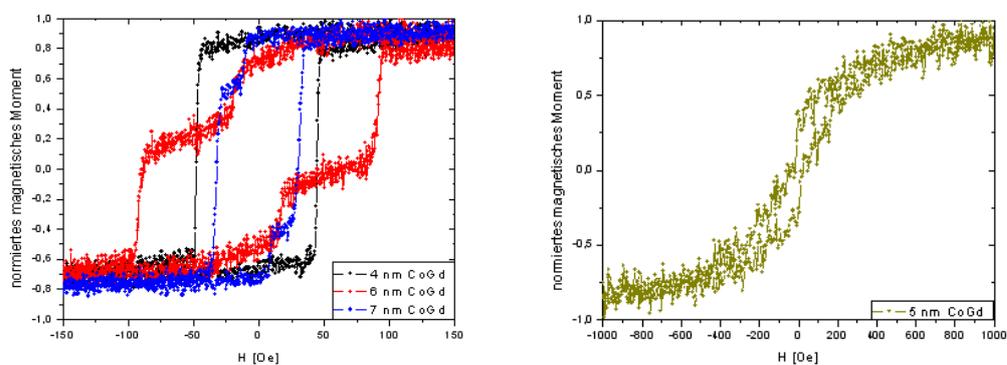


Abbildung 4.2: AGM-Messungen an Dreilagern mit verschiedenen dicken CoGd Zwischenschichten mit einem etwa gleichen Co-Anteil von 66 at.%. Zu sehen ist das normierte magnetische Moment in Abhängigkeit vom Feld, links für 4 nm, 6 nm und 7 nm dicke CoGd Schichten, rechts für 5 nm CoGd. Zu beachten ist dabei besonders die unterschiedliche Skalierung der x-Achse.

Es ist die einzige Probe, die ein so langsames, rundes Schaltverhalten aufweist. Bei 9 Oe ist ein Sprung zu sehen, der typisch ist für Domänenwandverschiebung. Ein Fit der Magnetisierungskurve ergibt ein Koerzitivfeld von 57 Oe, das Sättigungsfeld beträgt etwas mehr als 1000 Oe. Auf der linken Seite von Abbildung 4.2 sind zum Vergleich die Magnetisierungsmessungen der an diese Co-Gd Dicke anschließenden Proben zu sehen. Dabei zeigt sich ein grundsätzlicher Unterschied im Schaltverhalten der Proben untereinander. Es gibt einfaches Schalten, wie es hier bei der Probe mit 4 nm dicker Co-Gd Schicht auftritt. Zusätzlich kann bei anderen Proben ein getrenntes Schalten zweier magnetischer Schichten beobachtet werden. Dies ist hier bei der 6 nm und 7 nm dicken Co-Gd Schicht der Fall.

In Abbildung 4.3 sind die aus den AGM-Messungen ermittelten Koerzitivfelder in Abhängigkeit von der Zusammensetzung der Co-Gd Schicht aufgetragen.

Bei Proben, die ein getrenntes Schalten aufweisen, sind sowohl das äußere Schaltfeld, als auch

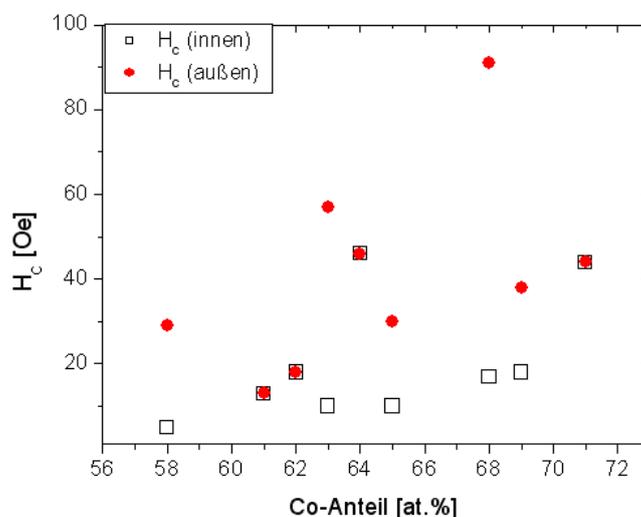


Abbildung 4.3: Aus AGM-Messungen erhaltene Koerzitivfelder von Py/Co-Gd/Py Dreilagern aufgetragen in Abhängigkeit von der Zusammensetzung der Co-Gd Schicht

das innere Schaltfeld aufgeführt ($H_C(\text{innen}) \leq H_C(\text{außen})$). Die äußeren Schaltfelder sind durch rote Kreise gekennzeichnet, unausgefüllte Quadrate stehen für die inneren Schaltfelder. Dreilager mit einfachem Schalten sind an einem kombinierten Symbol zu erkennen.

Insgesamt ist es nicht möglich, aus diesem Schaltverhalten eindeutige Abhängigkeiten abzuleiten. Eine weitere Aufschlüsselung der Daten nach Dicke der Co-Gd Schicht deutet bei den (äußeren) Schaltfeldern eine Zunahme des Feldes mit steigendem Co-Anteil an. Bei der Herstellung der Proben stand im Hinblick auf die Verwendung der Dreilager in magnetischen Tunnel-elementen (Kapitel 4.2 und 4.3) die Variation der Schichtdicke im Vordergrund, so dass kaum Proben mit annähernd gleicher Schichtdicke vorhanden sind, daher ist die Interpretation der Daten bei jeweils nur zwei Meßpunkten mit sehr großer Vorsicht zu betrachten. Mit der gleichen Argumentation muss die der Abhängigkeit der (inneren) Schaltfelder von der Schichtdicke angegangen werden. Hier deutet sich bei fester Zusammensetzung eine Zunahme des Feldes mit steigender Schichtdicke an.

Eine Auftragung der (äußeren) Schaltfelder in Abhängigkeit von der Dicke der Co-Gd Schicht ist vergleichbar mit den Ergebnissen der MOKE-Messungen, mit dem Unterschied, dass die aus den MOKE-Messungen gewonnenen Schaltfelder durchgängig ~ 10 Oe höher liegen, als die aus den AGM-Messungen gewonnenen Daten. Es scheint weder eine Abhängigkeit von der Dicke der Co-Gd Schicht, noch von der Zusammensetzung zu geben.

Tatsächlich lässt sich aus der Auflistung aller Daten eine Vermutung treffen. Ausgehend von der Probe, die sich sowohl bei der MOKE-, als auch bei der AGM-Messung auf den ersten Blick

von allen anderen Proben unterscheidet, weisen sowohl dünnere als auch dickere Proben ein getrenntes Schalten auf, während die Proben mit den dünnsten, als auch die mit den dicksten Co-Gd Schichten einfach schalten. Eine schematische Darstellung des jeweiligen Schaltverhaltens ist in Abbildung 4.4 dargestellt. Nimmt man dies als eine Art Gütefaktor des Schaltverhaltens ($ein\,fach \leq getrennt \leq rund$) und berechnet das magnetische Moment der Co-Gd Schicht aus dem Produkt von Magnetisierung und Schichtdicke, $m_{CoGd} = M_S(CoGd) \cdot d(CoGd)$, so lässt sich diese Abhängigkeit des Schaltverhaltens von der Nettomagnetisierung grob reproduzieren.

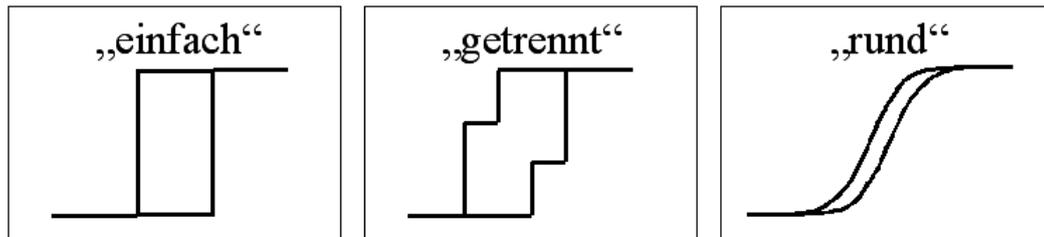


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung der verschiedenen Arten des Schaltverhaltens der Dreilagern. Aufgetragen ist das magnetische Moment in Abhängigkeit vom angelegten Feld.

Eine genaue Aussage lässt sich aufgrund der schon beschriebenen Abhängigkeiten nicht treffen. Die Bestimmung der Schichtdicke ist mit einem Fehler behaftet, der Fehler bei der Zusammensetzung der Legierung in Zusammenhang mit dem starken Abfall der Sättigungsmagnetisierung (siehe Abb. 1.14) macht es sehr schwer, eine genaue Aussage über die für jede Probe relevante Magnetisierung zu treffen.

4.2 Schichtdickenabhängigkeit

Aus den Majorloops der Tunnelelemente mit Py/Co-Gd/Py Dreilagern als hartmagnetische Elektrode wird das Pinning-Feld bestimmt. Der TMR-Effekt aller untersuchter Proben liegt zwischen 25% und 34%. Abbildung 4.5 zeigt die Majorloops zweier magnetischer Tunnelelemente mit verschiedenen dicken Co-Gd Zwischenschichten und unterschiedlicher Zusammensetzung. Bei der Probe mit 9 nm dicker Zwischenschicht handelt es sich um $Co_{70}Gd_{30}$, bei der 10 nm dicken Zwischenschicht um $Co_{58}Gd_{42}$. Dabei ist deutlich zu sehen, wie sich die Unterschiede im Pinning-Feld auf die Form der Majorloops auswirken. Bei der Probe mit 10 nm dicker $Co_{70}Gd_{30}$ Schicht ist eine ganz normale TMR-Kurve zu sehen. Die Probe mit 9 nm dicker $Co_{58}Gd_{42}$ Zwischenschicht lässt sich bei einem Magnetfeld von 2000 Oe nicht mehr sättigen. Auch ein Magnetfeld von 3500 Oe reicht nicht aus, um die hartmagnetische Elektrode in Sättigung zu bringen, so dass die Bestimmung des Pinning-Feldes erschwert wird. Dies geschieht entweder nach einem Fit-Mechanismus, der folgenden Ausdruck einer Funktion der Hysterese ferromagnetischer Schichten nach [102] nutzt:

$$M(H) = \frac{2M_S}{\pi} \tan^{-1} \left(\frac{H - H_{ex} \pm H_C}{H_C} \tan \frac{\pi S}{2} \right)$$
, oder durch eine Extrapolation der ungesättigten Kurven, bei denen der Fit-Mechanismus keine zuverlässigen Werte liefern kann. Zur Bestimmung

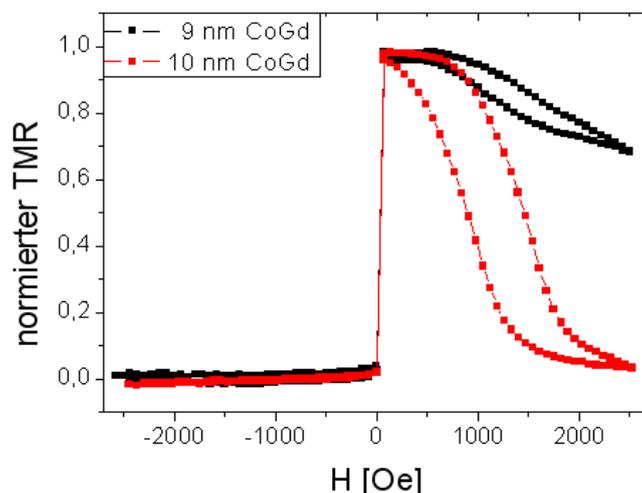


Abbildung 4.5: Vergleich der Majorloops zweier magnetischer Tunnellelemente mit verschieden dicker CoGd Zwischenschicht. Der tatsächliche TMR-Effekt dieser beiden Proben beträgt 26% und 32%. Die Zusammensetzung beträgt 58 at.% Co für die 9 nm dicke Schicht und 70 at.% Co für die 10 nm dicke Schicht.

des Pinning-Feldes wurde der TMR der Majorloops normiert. Der Effekt dieser beiden Proben beträgt 26% und 32%, die Flächenwiderstände liegen etwas über $10 M\Omega\mu m^2$.

Abbildung 4.6 zeigt die Abhängigkeit des Pinning-Feldes von der Dicke der Co-Gd Schichtdicke für verschiedene Zusammensetzungen. Für alle Kompositionen steigt das Feld mit zunehmender Dicke, eine Aussage über das weitere Verhalten lässt sich nur für die Proben mit $Co_{58}Gd_{42}$ treffen. Das Pinning Feld steigt, bis es bei einer Schichtdicke von 9 nm ein Maximum erreicht. Bei kleinen Schichtdicken wird das Verhalten der hartmagnetischen Elektrode (Py/CoGd/Py) von den beiden Permalloy Schichten dominiert, bei größeren Schichtdicken dominiert die CoGd Schicht das Verhalten des Dreilagers und das Feld nimmt wieder ab. Der Übergang findet bei etwa 9-10 nm CoGd Schichtdicke statt, dort wird ein maximales Pinning Feld von fast 2500 Oe erreicht. Dies steht in sehr guter Übereinstimmung zu den angenommen 9-10 nm CoGd Schichtdicke, die für eine Zusammensetzung im Maximum der Sättigungsmagnetisierung (vergleiche Abb. 1.15) erwartet wurden. Die Berechnung[18] des Gesamtmomentes des Dreilagers aus den Sättigungsmagnetisierungen und Schichtdicken der einzelnen Schichten $\mu_{tot} = 2M_S(Py)d(Py) - M_S(CoGd)d(CoGd)$ ergibt ein verschwindendes magnetisches Moment für eine $Co_{58}Gd_{42}$ Schicht von etwa 10 nm Dicke. Dies wurde für zwei Py-Schichten von 1,5 nm Dicke mit einer Sättigungsmagnetisierung von 800 kA/m bei Raumtemperatur berechnet[103], indem für die CoGd Schicht die maximale Sättigungsmagnetisierung von fast 500 kA/m angenommen wurde[79]. Vernachlässigt werden bei dieser Berechnung des Gesamtmomentes andere Beiträge, die von Wechselwirkungen an den Grenzflächen, Hybridisierung

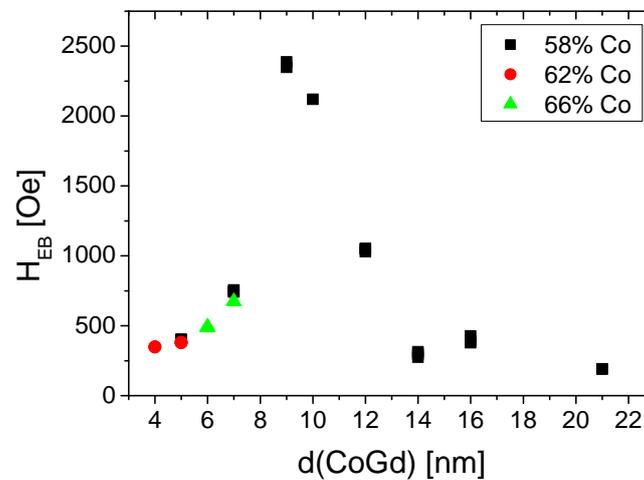


Abbildung 4.6: Exchange Bias Feld für verschiedene CoGd Zusammensetzungen zur Ermittlung der optimalen Dicke der Co-Gd Zwischenschicht

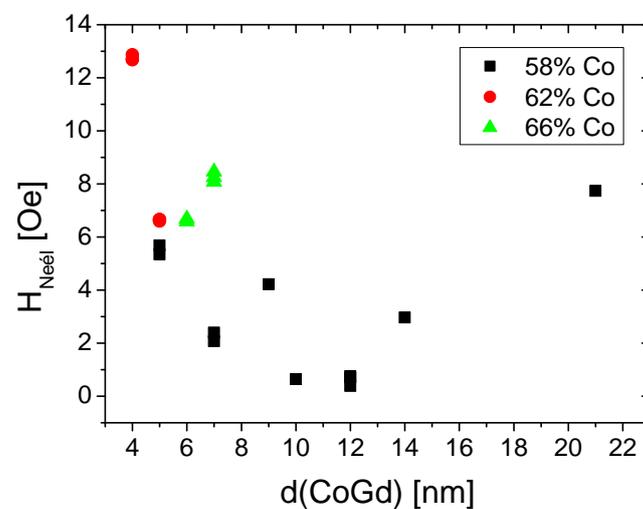


Abbildung 4.7: Abhängigkeit der Néel-Kopplung von der Dicke der Co-Gd Schicht für verschiedene Kompositionen der Legierung.

gen oder Oberflächenanisotropien hervorgerufen werden. Sieht man sich die korrespondierenden Minorloops an, um das Verhalten der weichmagnetischen Elektrode genauer zu untersuchen, dann zeigt sich das Minimum der Néelkopplung für die Probe mit $\text{Co}_{58}\text{Gd}_{42}$ Zwischenschicht

im passenden Dickenbereich (Abbildung 4.7). Es liegt bei 10-12 nm. Für die Proben mit höherem Co-Anteil ist ein Minimum der Néelkopplung bzw. das Maximum des Pinningfeldes erst bei größeren Schichtdicken zu erwarten. Dies ist durch die mit zunehmendem Co-Anteil stark abfallende Sättigungsmagnetisierung begründet. Das Koerzitivfeld zeigt kein deutliches Minimum, hat aber für alle gemessenen Elemente einen sehr geringen Wert von maximal 2.5 Oe.

4.3 Temperaturabhängigkeit

Der Übergang von Co-Gd zu Py dominiertem Verhalten des Dreilagers lässt sich auch temperaturabhängig beobachten. Dazu wurde ein simpler Aufbau, bestehend aus einem Peltier-Element und einem Temperaturfühler benutzt. Die Majorloops von Tunnелеlementen mit hartmagnetischer Py/ $\text{Co}_{58}\text{Gd}_{42}$ /Py Elektrode wurden bei Temperaturen zwischen 27°C und 66°C gemessen.

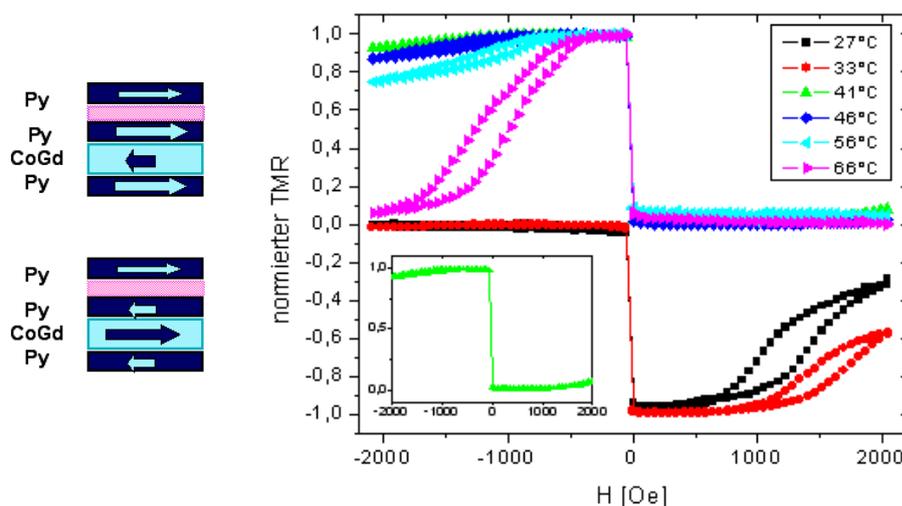


Abbildung 4.8: TMR Majorloops eines magnetischen Tunnелеlementes mit einer 12 nm dicken $\text{Co}_{58}\text{Gd}_{42}$ Schicht gemessen bei verschiedenen Temperaturen. Die Kurve im Inlet zeigt den bei 41°C gemessenen Majorloop. Bei dieser Temperatur findet der Übergang von CoGd- zu Py-dominiertem Verhalten des Dreilagers statt. Auf der linken Seite ist eine schematische Darstellung der magnetischen Elektroden dargestellt. Größe und Richtung der Pfeile symbolisieren die Stärke und Richtung der Magnetisierung der einzelnen Schichten.

Abbildung 4.8 zeigt die Majorloops einer Probe mit 12 nm dicker CoGd Schicht bei verschiedenen Temperaturen. Bei Raumtemperatur sieht man eine umgedrehte TMR-Kurve. Das liegt daran, dass die Magnetisierungsrichtung des Dreilagers dominiert wird von der CoGd Schicht (dies wird ganz schematisch durch die Größe der Pfeile im nebenstehenden Bild dargestellt) und daher die Py-Schichten beidseitig der Barriere antiparallel stehen. Mit zunehmender Temperatur sinkt die Magnetisierung der CoGd Schicht schneller als die des Py, so dass diese Schichten

beginnen, das Verhalten des Dreilagers zu dominieren. Die hartmagnetische Elektrode lässt sich mit steigender Temperatur mit einem externen Feld von 2 kOe nicht mehr sättigen, der Übergang von negativem zu positivem magnetischen Moment findet bei etwa 41°C statt, dort ist das Pinning-Feld so groß, dass sich lediglich ein Minorloop beobachten lässt. Dieser im Inlet von Abbildung 4.8 einzeln dargestellt. Bei weiter steigender Temperatur dominiert das Py das Verhalten des Dreilagers, der Effekt wird positiv und die Größe des Pinning-Feldes nimmt wieder ab.

Abbildung 4.9 zeigt die daraus gewonnenen Werte für das Pinning Feld, die hier in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen wurden.

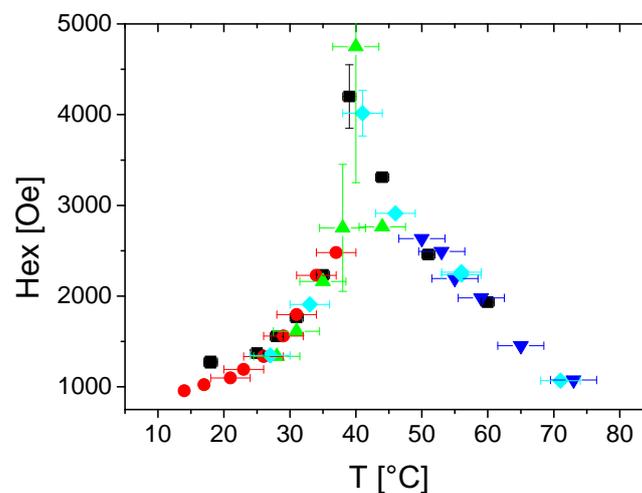


Abbildung 4.9: Temperaturabhängigkeit des Pinning Feldes für ein magnetisches Tunnелеlement mit einer 12 nm dicken $\text{Co}_{58}\text{Gd}_{42}$ Schicht. Dies ist dargestellt für verschiedene Elemente der gleichen Probe.

Dies ist jeweils für verschiedene Elemente auf einer Probe geschehen, um mögliche Schwankungen der Temperatur vernachlässigen zu können. Bei Raumtemperatur und darunter wird das Verhalten des Dreilagers von der CoGd Schicht dominiert, und es wird eine umgedrehte TMR-Kurve gemessen. Mit steigender Temperatur wird die Sättigung der Probe schwieriger und damit der Betrag des Pinning Feldes größer. Die Maximalwerte liegen zwischen 35°C und 45°C . Große Fehlerbalken in y-Richtung gehören zu Majorloops, die fast komplett ungesättigt blieben, so dass die für das Pinning-Feld gewonnenen Werte nur extrapoliert werden konnten. Mit weiter steigender Temperatur dominieren die beiden Py-Schichten das Verhalten des Dreilagers, es wird eine normale/positive TMR-Kurve gemessen, und die Probe lässt sich mit sinkendem Pinning-Feld auch wieder sättigen.

Aus dem Sättigungsfeld lässt sich die Kopplungskonstante J aus den magnetischen Momenten

der Einzelschichten ($m_{1,2}$) berechnen[18].

$$J = -\mu_0 H_S \frac{m_1 m_2}{m_1 + m_2} \quad (4.1)$$

Für identische Einzelschichten ergibt sich mit $m = Md$ als Abschätzung des magnetischen Moments aus Schichtdicke und Sättigungsmagnetisierung eine Kopplungsstärke $J = -\frac{1}{2}\mu_0 H_S M d$. Das hohe Sättigungsfeld von über 2500 Oe führt zu einer Kopplungsstärke des Py/Co₅₈Gd₄₂/Py Dreilagern von mindestens $0.15mJ/m^2$.

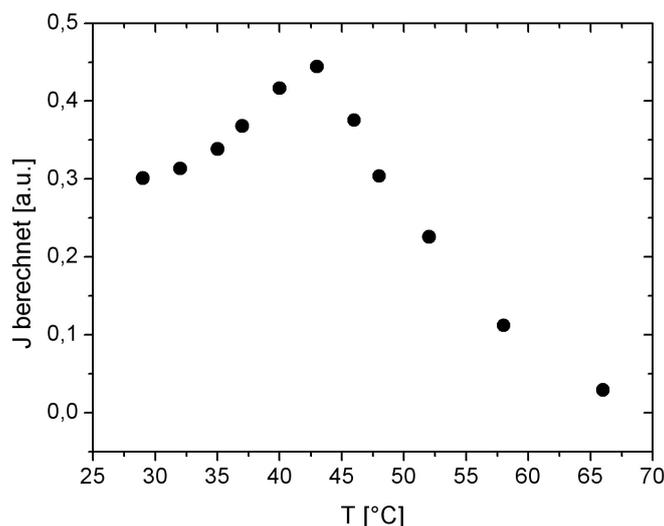


Abbildung 4.10: Berechnung der Kopplungsstärke J aus den gemessenen Sättigungsfeldern und der Magnetisierung unter Berücksichtigung der Abhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung von der Temperatur für eine Co₅₃Gd₄₇ Schicht.

Dies liegt zwischen den antiferromagnetisch gekoppelten CoFeB/Ru/CoFeB Dreilagern mit einer Kopplungsstärke von $0.08mJ/m^2$ und $0.5mJ/m^2$ für CoFe/Ru/CoFe Dreilagern[17].

In Abbildung 4.10 ist die Abhängigkeit der Kopplungsstärke J von der Temperatur dargestellt. Die Kopplung wurde ohne Berücksichtigung der Vorfaktoren aus den gemessenen Sättigungsfeldstärken und der Magnetisierung berechnet. Eingegangen in die Rechnung ist auch die Abhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung von der Temperatur (Abb.1.14), so dass die Form der Kurve den qualitativen Verlauf der Kopplungsstärke für Py/Co-Gd/Py verschiedener Co-Gd Zusammensetzungen darstellt.

4.4 Fazit

Ausgehend von der Untersuchung des Schaltverhaltens von Py/Co-Gd/Py Dreilagern mit verschiedenen Dicken und Zusammensetzungen der Co-Gd Schicht, bei dem eine qualitative Abhängigkeit des Schaltverhaltens vom Gesamtmoment des Dreilagers gefunden wurde, wurde der Dreilager anschließend als hartmagnetische Elektrode in magnetischen Tunnelementen implementiert. Aufgrund einer antiparallelen Austauschkopplung zwischen den Py-Schichten und der CoGd Schicht kann das Gesamtmoment des Dreilagers bei geeigneter Wahl der Schichtdicken und der Zusammensetzung der Co-Gd Schicht minimiert werden. Damit einhergehend wurde in Abschnitt 4.2 in Abhängigkeit von der Dicke der Co-Gd Schicht für verschiedene Zusammensetzungen gezeigt, wie sich das Pinning-Feld der hartmagnetischen Elektrode ändert. Dieses weist ein Maximum bei der Schichtdicke auf, bei der das Gesamtmoment des Dreilagers verschwindend klein wird und ein Minimum der Néelkopplung im entsprechenden Dickenbereich.

In Abschnitt 4.3 wurde das verschwindende Gesamtmoment des Dreilagers in Abhängigkeit von der Temperatur für eine feste Zusammensetzung der Co-Gd Schicht beobachtet. An den Majorloops der untersuchten Tunnelemente zeigt sich ein Übergang von negativem zu positivem TMR. Dies ist bedingt durch die Vorgabe der Ausrichtung der Magnetisierung des Dreilagers durch entweder das magnetische Moment des Py oder das der CoGd Schicht. Wegen der für CoGd und Py verschieden starken Abhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung von der Temperatur, lässt sich auch auf diese Weise das Gesamtmoment des Dreilagers verringern und damit auch das Pinning Feld maximieren. Ein Vergleich mit den üblicherweise genutzten künstlichen Ferrimagneten CoFe/Ru/CoFe oder CoFeB/Ru/CoFeB zeigt, dass die Stärke der Kopplung vergleichbar ist. Py/Co-Gd/Py Dreilager könnten also eine Alternative zu den üblichen künstlichen Ferrimagneten sein und bieten den Vorteil, dass die Kompensation des Gesamtmoments je nach Zusammensetzung der Co-Gd Schicht sowohl schichtdicken-, als auch temperaturabhängig in einem weiten Bereich eingestellt werden kann.

Kapitel 5

Ergebnisse Al-Zr I planare Schichten

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit den Ergebnissen der Transportmessungen an Tunnelementen mit Al-Zr-O Barriere, diese werden im Folgenden nur noch als Al-Zr Barrieren bezeichnet. Der Schichtaufbau besteht aus 5 nm Ta/ 30 nm Cu/ 5 nm Ta/ 5 nm Cu / 12 nm MnIr / **Elektrode/ Al-Zr+Ox/ Elektrode/** 3 nm Py/ 5 nm Ta/ 20 nm Cu/ 30 nm Au. Dieser Aufbau wurde für magnetische Tunnelemente mit CoFeB-Elektroden und Al₂O₃ Barriere auf den maximalen Effekt optimiert und deshalb für diese Arbeit gewählt. Die Zusammensetzung und Schichtdicke der Al-Zr Barriere wurde variiert. In Abschnitt 5.1 wird Co₇₀Fe₃₀ als Elektrodenmaterial verwendet, die darauf folgenden Abschnitte beziehen sich auf magnetische Tunnelemente mit Co₆₂Fe₂₆B₁₂ Elektroden. Dieses Material wird in Abschnitt 5.2 eingeführt und anschließend mit Al-Zr Barrieren kombiniert.

Untersucht wurden die magnetischen und elektrischen Eigenschaften der Proben, für EDX-Messungen zur Identifikation der Legierungszusammensetzung und Röntgenmessungen, die der Strukturanalyse dienen, wurden separate dickere Schichten aus (50 nm... 70 nm) Al-Zr Legierungen hergestellt. Die Zusammensetzung wird durch das Auflegen von Zr-Plättchen gesteuert, innerhalb einer Reihe nacheinander gesputterter Proben gleicher Plättchenanzahl variiert die Zusammensetzung der Eichschichten um maximal 1.5 at.% Zr, diese Schwankungen wurden bei der Auswertung vernachlässigt. Die Sputterrate nimmt mit zunehmendem Zr-Anteil zu, sie steigt 0.28 nm/s bei reinem Al auf 0.37 nm/s bei Al mit einem Zr-Anteil von 14 at.%. Eine Schwankung der Sputterrate bei fester Zr-Belegung von 0.01 nm/s führt zu einem möglichen Fehler von bis zu 0.2 nm (für sehr dicke Barrieren: $d \geq 2.5\text{nm}$) bei der Schichtdicke der Barriere.

5.1 CoFe Elektroden

Der vor Beginn dieser Experimente hier in Bielefeld gemessene Effekt von TMR-Elementen mit CoFe- bzw. Py-Elektroden betrug etwa 50% (siehe [53, 101, 92]). In der Literatur [104] wurde 2002 von maximal 60% Effektamplitude bei einem Tunnelement mit Co₇₀Fe₃₀ Elektroden und

Al₂O₃ Barriere berichtet.

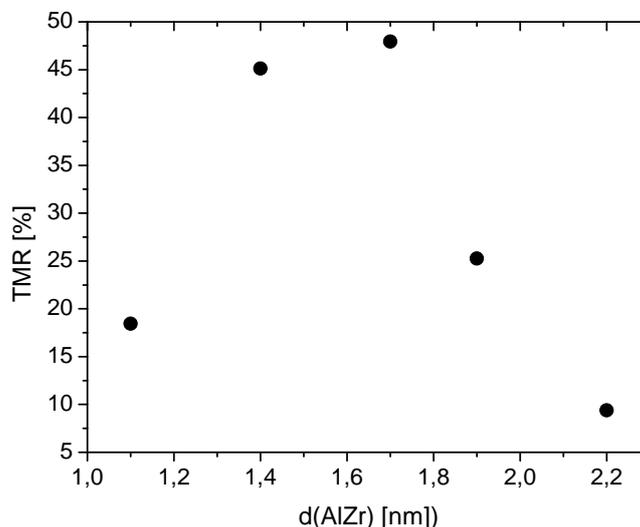


Abbildung 5.1: TMR-Effekt einer Probe mit CoFe-Elektroden in Abhängigkeit von der Dicke der AlZr-Barriere. Der Zr-Anteil beträgt hier nur 1.5 at-%.

Abbildung 5.1 zeigt die Abhängigkeit des TMR-Effektes von der Dicke der Al-Zr Barriere, die bei festen Oxidationsparametern zwischen 1.1 nm und 2.2 nm variiert wurde. Der Anteil an Zr in der Barriere beträgt bei diesen Proben etwa 1.5 at-%, die Ergebnisse sind vergleichbar mit Messungen an magnetischen Tunnelementen mit reiner Al₂O₃-Barriere[53]. Die geringe Zr-Zulegerung scheint kaum eine Auswirkung auf die Höhe des TMR zu haben.

Bei magnetischen Tunnelementen mit reinen Aluminiumoxid-Barrieren ergeben sich aus 1.4 nm gesputtertem Aluminium 1.8 nm Al₂O₃ [105]. Hier tritt der maximale Effekt von fast 50% bei einer Barrierendicke von 1.7 nm unoxidiertem AlZr auf, aber auch schon bei einer Dicke von 1.4 nm AlZr ist ein hoher Effekt von 45% messbar. Eine dünnere Barriere führt zu einer starken Abnahme des Effektes. Ist die Barriere für die gewählten Oxidationsparameter zu dünn (Überoxidation), wird die untere CoFe-Elektrode teilweise mit oxidiert und die Spinpolarisation an der Grenzfläche verändert. Eine genauere Untersuchung [96] zeigt, dass Mn zur Barriere diffundiert, an der Grenzfläche bildet sich MnO_x, welches beim Auslagern der Probe teilweise in FeO_x umgewandelt wird. Diese paramagnetischen Materialien führen zur Spinstreuung der tunnelnden Elektronen und damit zu einer starken Abnahme des TMR-Effektes. Bei einer zu dicken Barriere (Unteroxidation) verbleibt unoxidiertes metallisches Al bzw. Zr an der Grenzfläche zwischen Barriere und unterer Elektrode. Der Effekt sinkt mit zunehmender Barrierendicke, da der Tunnelprozeß durch immer mehr verbliebenes, unoxidiertes Metall, welches Spinstreuung begünstigt,

gestört wird. Auch eine beim Auslagern auftretende Interdiffusion, die für Tunnелеlemente mit einer CoFe-Elektrode und Al_2O_3 -Barriere berichtet wird[96], kann auftreten und so zur Formation anderer Legierungen führen.

Ein Unterschied zu Barrieren aus Al_2O_3 zeigt sich an den gemessenen Flächenwiderständen. Der Flächenwiderstand steigt von $11\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$ bei der 1.1 nm dicken Barriere auf $1129\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$ bei der 2.2 nm dicken Barriere. Für die Elemente mit dem höchsten Effekt, welcher bei 1.4 nm und 1.7 nm Barrierendicke gemessen wurde, beträgt der Flächenwiderstand $R_A = 30\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$ bzw. $90\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$. Bei Al_2O_3 -Barrieren sind es für optimierte Tunnелеlemente Flächenwiderstände von typischerweise $10\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$ [96].

5.2 CoFeB Elektroden

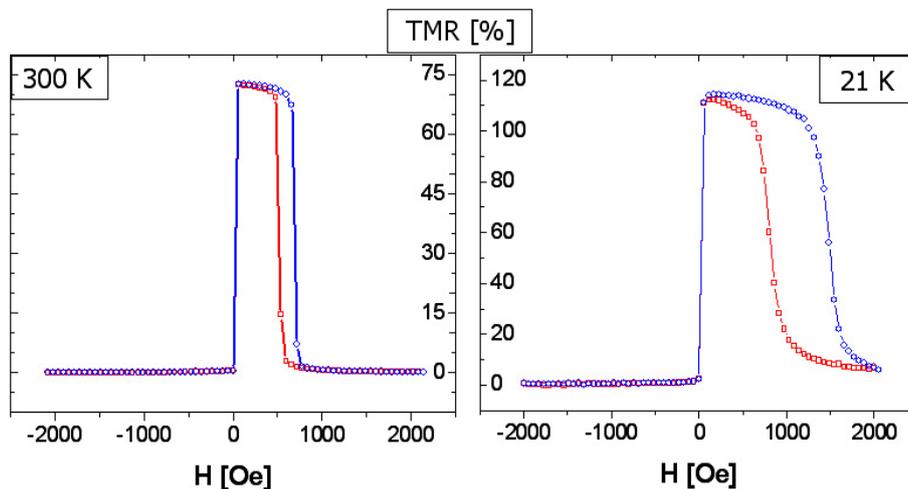


Abbildung 5.2: Major loop eines TMR-Elementes mit 1.2 nm dicker Al_2O_3 Barriere und Elektroden aus CoFeB gemessen bei 21 K und 300 K

Im Vergleich zu TMR-Elementen mit CoFe- oder Py-Elektroden erhöht die Verwendung von amorphem CoFeB als Elektrodenmaterial den gemessenen Effekt (vgl. Kapitel 1.1.3) und die Temperaturstabilität[106]. Bei TMR-Elementen mit Al_2O_3 Barriere und CoFe/Py Elektroden wurden in dieser Arbeitsgruppe Effekte von etwa 50% gemessen (siehe voriger Abschnitt).

Abbildung 5.2 zeigt den gemessenen Effekt eines TMR-Elementes mit 1.2 nm dicker Al_2O_3 Barriere bei Raumtemperatur (linke Seite), sowie bei tiefen Temperaturen (rechte Seite)[107]. Bei Raumtemperatur beträgt der maximale Effekt 72% und nimmt mit abnehmender Temperatur fast linear zu und erreicht 115% bei 21 K.

Die Dicke der Aluminumoxid-Barriere wurde zwischen 1.1 nm und 1.7 nm variiert (Abbildung 5.3). Dies geschah bei konstanten Oxidationsparametern (Oxidationsdauer, Druck,...), um die

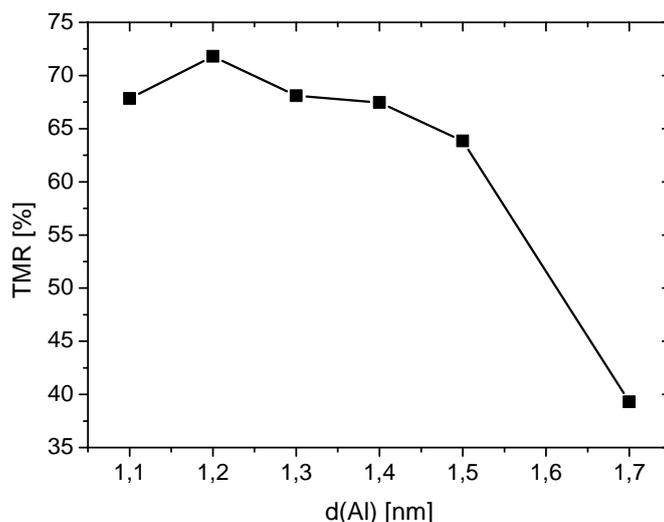


Abbildung 5.3: gemessener TMR mit CoFeB Elektroden in Abhängigkeit von der Dicke der Al Barriere

bestmögliche Barriere zu erhalten. Während die optimale Barriendicke für TMR-Elemente mit CoFe oder NiFe Elektroden bei einer gesputterten Aluminiumschicht von 1.4 nm Dicke liegt, aus der sich nach der Oxidation 1.8 nm Al_2O_3 ergeben [105], erhält man den höchsten TMR-Effekt mit CoFeB-Elektroden bei einer Dicke von 1.2 nm Aluminium. Allerdings bewegt sich der Effekt in einem Dickenintervall zwischen 1.1 nm und 1.5 nm auf einem insgesamt hohen Niveau. Mit zunehmender Barriendicke nimmt der Effekt aufgrund von Resten unoxidierten Aluminiums an der Grenzfläche zwischen Elektrode und Barriere ab. Die Höhe des Effektes ist vergleichbar mit 70% TMR bei Raumtemperatur, die in der Literatur berichtet werden[24].

5.3 Abhängigkeit von der Auslagerungstemperatur

In der Literatur[22] wird von einem abruptem Abfall des TMR-Effektes bei Auslagerungstemperaturen über $240^\circ C$ berichtet. Untersucht wurden sehr dünne Barrieren mit hohem Zr-Anteil ($2.5 \text{ \AA} Zr / 4.5 \text{ \AA} Al$) zwischen CoFe Elektroden. Da die magnetischen Tunnelemente, die im Folgenden näher charakterisiert werden sollen, Auslagerungstemperaturen von $250^\circ C$ ausgesetzt waren, wird am Beispiel eines magnetischen Tunnelementes mit CoFeB Elektroden und 1.77 nm dicker AlZr Barriere mit einem Zr-Anteil von 3.5 at.% gezeigt, dass dieser TMR-Abfall bei Elementen mit geringem Zr-Anteil nicht auftritt.

Dies ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Der TMR steigt mit zunehmender Auslagerungstemperatur. Bei einer Auslagerungstemperatur von $250^\circ C$ wird der höchste Effekt gemessen, bei $275^\circ C$ ist

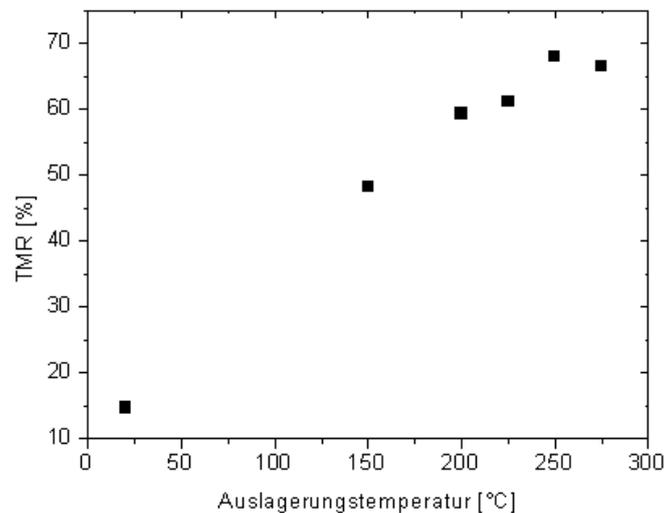


Abbildung 5.4: Abhängigkeit des TMR einer Probe mit 1.77 nm dicker AlZr Barriere mit einem Zr-Anteil von 3.5 at.% von der Auslagerungstemperatur

der Effekt leicht gesunken. Schon bei einer Auslagerungstemperatur von 150°C ist eine deutliche Steigerung des anfänglich geringen Effektes zu sehen. Der geringe Effekt der Tunnelelemente im as-prepared Zustand kann durch das fehlende Exchange Bias erklärt werden. Der Flächenwiderstand bleibt bis 225°C nahezu konstant bei $70\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$ und springt danach auf fast $300\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$. Eine Zunahme des Flächenwiderstandes mit steigender Auslagerungstemperatur im Temperaturintervall zwischen 150°C und 275°C wird in der Literatur sowohl bei AlZrO Barrieren[22], als auch bei reinen Al_2O_3 [108, 109] und ZrO_2 Barrieren[42] berichtet.

5.4 Schichtdickenabhängigkeit

Am Beispiel eines magnetischen Tunnelelementes mit Elektroden aus CoFeB und einer AlZr Barriere, bei der der Zr-Anteil 6 at.% beträgt, soll gezeigt werden, wie sich die Kombination eines Elektrodenmaterials, welches zu einem sehr hohen TMR-Effekt führt, mit einer Zr-legierten AlO_x Barriere auswirkt. Abbildung 5.5 zeigt das TEM-Bild des gesamten Schichtsystems (vgl. Seite 28) mit einer solchen Barriere mit 6 at.% Zr. Der Bildausschnitt hat eine Breite von etwa 250 nm. Die helle Schicht in der Mitte stellt die Barriere dar, dabei ist zu sehen, dass diese die Welligkeit übernimmt, die von der unteren Cu Schicht induziert wird. Die Wellenlänge beträgt etwa 20 nm... 40 nm.

Die nominell gesputterte Dicke der AlZr Schicht vor der Oxidation betrug 1.5 nm, aus der Auswertung dieses TEM-Bildes erhält man eine durchschnittliche Dicke von 2.92 nm für die oxidierte AlZr Schicht. Diese wird bei der Oxidation um das doppelte ihrer eigentlich Dicke aufge-

weitet. Das entspricht der in der Literatur durch Oxidation berichteten Aufweitung einer Al-Zr mit weniger als 12 at.% Zr[23].



Abbildung 5.5: TEM-Bild des gesamten Schichtsystems einer Probe mit einer 1.5 nm dicken AlZr-Barriere, welche einen Zr-Anteil von 6 at.% besitzt.

Die Dicke der AlZr Barriere wurde bei einer festen Oxidationszeit zwischen 1.2 nm und 2.0 nm variiert. Abbildung 5.6 zeigt die Abhängigkeit des TMR-Effektes von der Dicke der Barriere, ebenso wie die mittels BRINKMAN-Fit [28] gewonnene Barrierendicke im Vergleich zu der nominell gesputterten Dicke der noch unoxidierten AlZr-Schicht. Die eingefügte Gerade bei einer Effektamplitude von 72% bezieht sich auf den maximalen Effekt bei magnetischen Tunnelementen mit einer reinen Al_2O_3 Barriere.

Den mit 63% Effektamplitude höchsten Effekt erhält man bei einer 1.5 nm dicken Barriere. Dies korrespondiert mit den besten mittels BRINKMAN-Fit erhaltenen Barrierenparametern, einer Dicke von 2 nm, sowie einer Höhe von 2.8 eV. Während die Barrierenhöhe bei dünneren Barrieren stark abfällt, nimmt sie mit steigender Dicke nur langsam ab. Dieses Verhalten tritt umgekehrt für die Barrierendicke auf (Abb. 5.6). Die aus den Fits gewonnene Barrierendicke sinkt mit zunehmender gesputterter Schichtdicke bis hin zu den Tunnelementen mit dem höchsten Effekt und steigt bei weiterer Diczunahme nur noch langsam an. Die Oxidationszeit war für alle Schichtdicken gleich.

Im gesamten Dickenbereiche zwischen 1.35 nm und 1.7 nm Barrierendicke beträgt der TMR über 55%, das ist mehr als mit den CoFe Elektroden erreicht wurde, liegt aber noch deutlich unter den Höchstwerten, die mit den Tunnelementen mit $\text{CoFeB}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFeB}$ gemessen werden konnten. Vergleicht man die Schichtdickenabhängigkeit des TMR der Tunnelemente mit CoFeB -Elektroden und Al_2O_3 Barriere (Abb. 5.3) mit denen mit Zr-zulegierter Barriere (Abb. 5.6), so ist zu erkennen, dass der größte Effekt, der mit Zr-zulegierter Barriere gemessen werden konnte, gut übereinstimmt mit dem bei der gleichen Barrierendicke gemessenen Effekt der Elemente mit Al_2O_3 Barriere. Für dickere Barrieren liegt die maximale TMR-Effektamplitude mit legierter Barriere knapp 20% oberhalb des Effektes der Tunnelemente mit der normalen Al_2O_3 Barriere, sinkt dann aber mit zunehmender Dicke der Barriere mit etwa dem gleichen Gefälle.

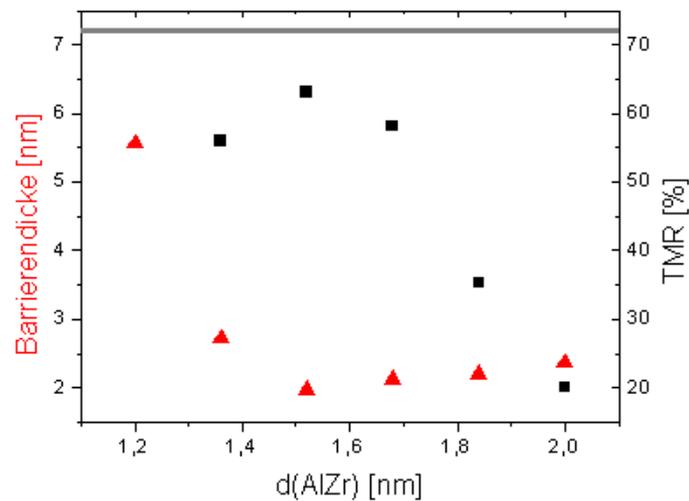


Abbildung 5.6: Vergleich der Barrierendicke (ermittelt nach BRINKMAN-Fit) mit dem gemessenen TMR an Elementen mit CoFeB Elektroden in Abhängigkeit von der Dicke der AlZr-Barriere mit einem Zr-Anteil von 6 at.%. Die eingefügte Linie dient als Vergleich zu dem für CoFeB Elektroden maximalen Effekt.

Der gemessene TMR-Effekt der Tunnelemente mit 1.35 nm dicker AlZr Barriere, deren Barrierendicke unterhalb derjenigen liegt, die zu dem höchsten Effekt führt, ist zwar mit 56% im Mittel recht hoch, weist allerdings im Vergleich zu allen anderen bisher besprochenen Proben eine sehr hohe Streuung zwischen einzelnen Elementen auf der Probe auf, diese weichen um bis zu 15% voneinander ab. Dies spiegelt sich auch im Flächenwiderstand wieder, der zwischen $650 M\Omega\mu m^2$ und $1200 M\Omega\mu m^2$ variiert. Allerdings ist keine Korrelation zwischen Flächenwiderstand und Effektamplitude vorhanden. Vermutlich ist die Barriere zu dünn, und die Streuung tritt infolge einer nicht gleichmäßigen Spinpolarisation aufgrund einer nicht homogenen Barrierengrenzfläche auf. Bei den Tunnelementen mit einer Barrierendicke ab 1.5 nm steigt der Flächenwiderstand linear von $100 M\Omega\mu m^2$ auf $1500 M\Omega\mu m^2$ für die 2 nm dicke Barriere an.

5.5 Konzentrationsabhängigkeit

Die Untersuchungen in Abhängigkeit von der Zusammensetzung der Al-Zr Barriere sollen Aufschluß darüber geben, wie sich der Zr-Anteil in der Barriere auf die Eigenschaften der magnetischen Tunnelemente auswirkt. Abbildung 5.7 zeigt einen Überblick über den TMR-Effekt von magnetischen Tunnelementen verschiedener Al-Zr Kompositionen in Abhängigkeit von der Dicke der Barriere. Die eingefügte Linie gibt die Meßkurve der Proben mit CoFeB Elektroden und reiner Al_2O_3 Barriere wieder.

Die Kombination aus CoFeB Elektroden und einer mit Zr zulegierten Aluminiumbarriere führt zu keiner Steigerung des TMR-Effektes gegenüber magnetischen Tunnelementen mit Al_2O_3 Barriere.

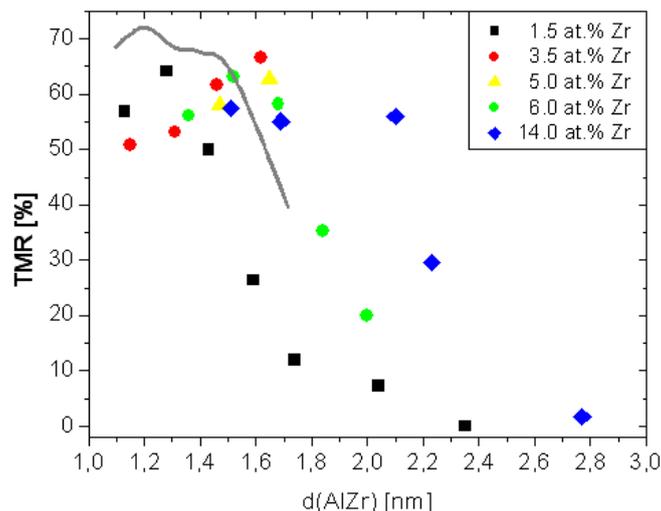


Abbildung 5.7: Abhängigkeit des TMR-Effektes von der Dicke der Al-Zr Barriere für verschiedene Kompositionen der Legierung, die Linie dient als Vergleich zu den Proben mit reiner Al_2O_3 Barriere.

Es ist nicht möglich, den höchsten gemessenen TMR-Effekt von 72% bei $\text{CoFeB}/\text{Al}_2\text{O}_3$ Proben mit Zr legierten Barrieren zu übertreffen. Allerdings führt die Zugabe von Zirkonium zum Barrierenmaterial zu einer Verschiebung des maximalen TMR-Effektes zu höheren Barrierendicken hin. Diese Verschiebung hoher Effekte hin zu dickeren Barrieren ist kein Ergebnis der Umrechnung zwischen Sputterzeit und Dicke, sondern auch bei nur der Berücksichtigung der Sputterzeit als Maßstab für die absolute Dickenangabe existent. Bis zu einer Dicke von 2,1 nm (gesputterte Schichtdicke vor der Oxidation) bewegt sich der gemessene TMR-Effekt (auf einem relativ hohen Niveau) zwischen 50% und 67%.

Vergleicht man den Effekt von Tunnelementen verschiedener Al-Zr Zusammensetzungen mit etwa gleich dicken Barrieren, so ergibt sich ein erheblicher Unterschied von bis zu 60% Effektamplitude. Dieses zeigt sehr deutlich, dass beim Vergleich des TMR-Effektes verschiedener Zusammensetzungen immer auch die für den höchsten Effekt optimale Barrierenschichtdicke berücksichtigt werden sollte. Einfache Vergleiche des TMR, die bei einer festen Dicke der Barriere gezogen werden, müssen nichts über die tatsächlich möglichen Maximaleffekte aussagen.

In Tabelle 5.1 sind der TMR-Effekt und der Flächenwiderstand für die für jede Zr-Konzentration

| Zr-Anteil | d [nm] | RA [$M\Omega\mu m^2$] | TMR [%] |
|-----------|--------|-------------------------|---------|
| 0 at. % | 1.20 | 12 | 72.7 |
| 1.5 at. % | 1.28 | 89 | 64.1 |
| 3.5 at. % | 1.62 | 190 | 66.6 |
| 5 at. % | 1.65 | 112 | 62.7 |
| 6 at. % | 1.52 | 145 | 63.0 |
| 14 at. % | 1.51 | 3641 | 57.4 |

Tabelle 5.1: Abhängigkeit des Flächenwiderstandes und des TMR-Effektes von der Zusammensetzung der Al-Zr Barriere bei den Dicken, die zu dem jeweils höchsten Effekt geführt haben.

jeweils beste Probe aufgeführt. Während der Effekt mit zunehmendem Zr-Anteil langsam geringer wird, steigt der Flächenwiderstand oberhalb von 6 at. % Zr stark an. Vergleicht man die Proben verschiedener Dicke mit 14 at. % Zr untereinander, so fällt auf, dass der Flächenwiderstand insgesamt sehr hoch ist. Eine Untersuchung der Barrierenparameter mittels BRINKMAN-Fit ergibt im Dickenbereich zwischen 1.5 nm und 2.1 nm gesputterter Dicke nahezu konstante Barrierenparameter: eine Barrierenhöhe von 2.2 eV und eine Dicke von 2.5 nm.

Abbildung 5.8 zeigt die mit Abbildung 5.7 korrespondierenden Flächenwiderstände. Bei allen untersuchten Zr-Kompositionen findet mit zunehmender Barrierendicke eine Abnahme des Flächenwiderstandes statt, bevor der für magnetische Tunnелеlemente typische Anstieg erfolgt.

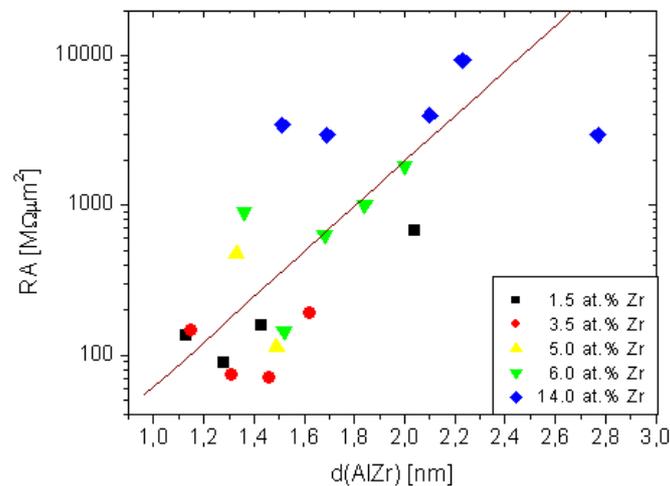


Abbildung 5.8: Flächenwiderstände magnetischer Tunnелеlemente mit Zr-legierter Barriere in Abhängigkeit von der Dicke der Barriere sowie für verschiedene Legierungszusammensetzungen. Die Gerade ist das Ergebnis eines linearen Fits über die Meßpunkte aller Barrierenzusammensetzungen.

Insgesamt ist eine Zunahme des Flächenwiderstandes mit steigendem Zr-Anteil zu beobachten.

Die logarithmische Auftragung wurde gewählt, um eine Übersicht über sämtliche Meßpunkte zu geben, da diese über mehrere Größenordnungen verteilt liegen. Zusätzlich besteht ein exponentieller Zusammenhang zwischen dem Flächenwiderstand und der Dicke der Barriere[30, 110], so dass für ideale Barrieren die logarithmische Darstellung zu einer Gerade führen sollte. Dies ist hier nur andeutungsweise zu erkennen, und ist auch nicht anders zu erwarten, da die hier gezeigten Flächenwiderstände von magnetischen Tunnelementen stammen, bei denen die Schichtdicke bei fester Oxidationszeit verändert wurde, so dass nicht zu erwarten ist, dass über einen Dickenbereich nur optimal oxidierte Barrieren entstanden sind.

Abbildung 5.9 zeigt den Vergleich von XRD-Messungen an dicken Al-Zr Schichten verschiedener Zusammensetzungen.

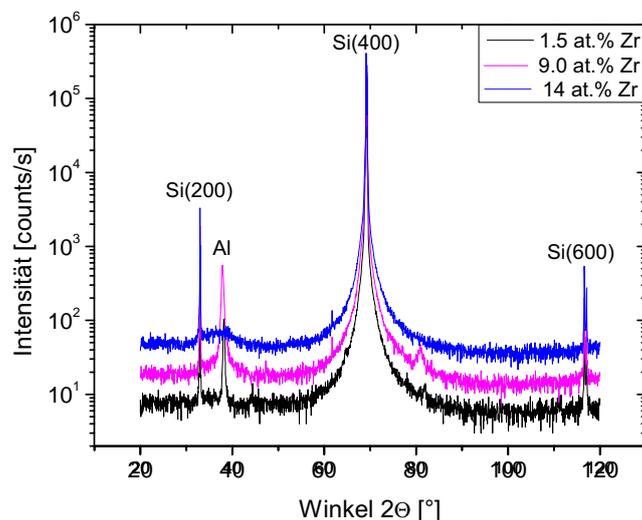


Abbildung 5.9: Vergleich der XRD-Messungen von dicken Al-Zr Schichten verschiedener Zusammensetzungen

Die Peaks bei $2\theta = 32^\circ$, 69° und 116° sind dem Si-Wafer zuzuordnen und entsprechen dem Si(200), Si(400) und Si(600) Peak[53].

Zu sehen ist, wie der bei 1.5 at.% Zr vorhandene Al-peak, der auf eine starke Texturierung hindeutet, mit zunehmendem Zr-Anteil kleiner wird. Bei 14 at.% Zr ist kein peak mehr zu sehen, die Schicht ist amorph. Dies ist in Abbildung 5.10 deutlicher am Ausschnitt aus Bild 5.9 zu beobachten.

Aus der Halbwertsbreite H des Al-Peaks in Abbildung 5.10 lässt sich die Korngröße δ der Kristallite senkrecht zur Oberfläche in den Al-Zr Schichten mit 1.5 at.% Zr und 9 at.% Zr mit Hilfe der Scherrer-Formel berechnen. Für die Al-Zr Legierung mit 1.5 at.% Zr ergibt sich so eine

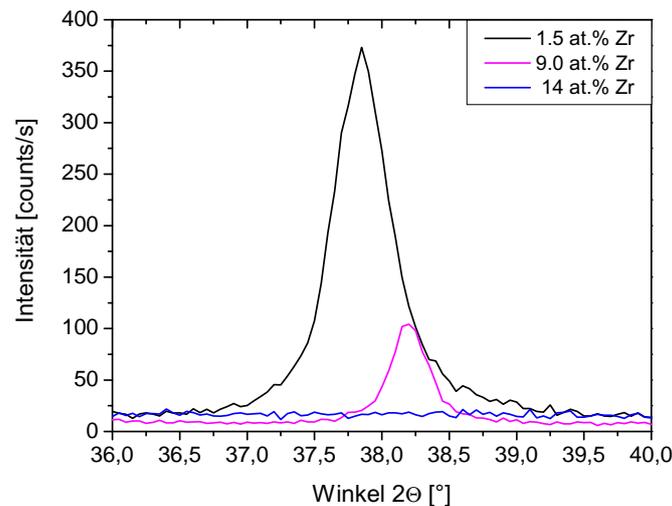


Abbildung 5.10: Ausschnitt aus Bild 5.9: Zu sehen ist, wie der bei 2 at.% Zr vorhandene Al-peak, der auf eine starke Texturierung hindeutet, mit zunehmendem Zr-Anteil kleiner wird. Bei 14 at.% Zr ist kein Peak mehr zu sehen, die Schicht ist amorph.

Korngröße von 16.79 nm, bei 9 at.% Zr ist es eine Korngröße von 28.01 nm. Wendet man die Scherrer-Formel auch auf die amorphe Schicht mit einem Zr-Anteil von 14 at.% an, so erhält man eine Größe zwischen 0.8 nm und 2 nm. Allerdings ist diese Abschätzung mit sehr großer Vorsicht zu betrachten, denn sowohl die Halbwertsbreite, als auch die Peak-Position sind bei dieser Zusammensetzung nur zu erahnen.

5.6 Fazit

In diesem Kapitel wurde gezeigt, wie sich die Zulegierung von Al-Barrieren mit Zr auf den TMR und den Flächenwiderstand auswirkt. Die Untersuchung von magnetischen Tunnelementen mit einem mit 1.5 at.% nur geringen Zr-Anteil und CoFe-Elektroden zeigt kaum einen Unterschied zu magnetischen Tunnelementen mit Al_2O_3 Barriere.

Höhere Zr-Zulegierungen und die Nutzung von CoFeB als Barrierenmaterial führen zu einem mit steigendem Zr-Anteil abnehmenden Effekt, und gleichzeitig um zwei Größenordnungen erhöhtem Flächenwiderstand ausgehend von Al_2O_3 Barrieren zu Barrieren mit einem Zr-Anteil von 14 at.%.

Abbildung 5.11 zeigt die in Tabelle 5.1 aufgeführten maximalen TMR-Effekte in Abhängigkeit von der Barrierenzusammensetzung. Der TMR ist insgesamt hoch mit Werten um 60%, und sinkt nach einem leichten Maximum bei 3.5 at.% Zr mit weiter zunehmendem Zr-Anteil langsam ab. Die eingezeichnete Linie gibt den maximalen Effekt mit einer reinen Al_2O_3 Barriere an, und

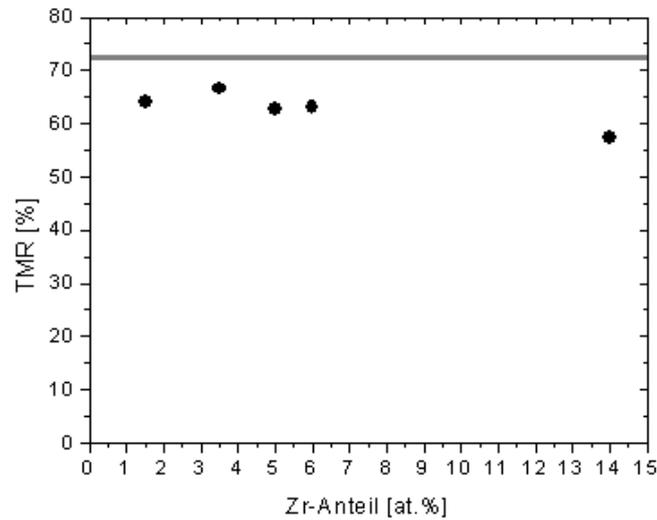


Abbildung 5.11: TMR-Effekt aufgetragen in Abhängigkeit von der Zusammensetzung der Al-Zr Barriere

macht damit deutlich, dass es mit keiner der gewählten Al-Zr Zusammensetzungen möglich war, diesen hohen Effekt zu erreichen. Dabei ist zu beachten, dass die nominell gesputterte Schichtdicke der Barriere für die Tunnelemente, die den maximalen Effekt zeigen, für alle eingezeichneten Elemente verschieden ist.

Der Vergleich mit Al-Zr Barrieren in der Literatur zeigt, dass in Kombination mit den CoFeB-Elektroden weder der mit CoFe-Elektroden beobachtete niedrige Flächenwiderstand[22] gefunden wurde, noch die berichtete Steigerung des TMR[23] durch die Zr-Zulegierung möglich war.

Kapitel 6

Ergebnisse Al-Zr II keilförmige Schichten

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Messungen an magnetischen Tunnelementen mit keilförmiger Al-Zr-O Barriere vorgestellt. Proben mit keilförmiger Barriere wurden angefertigt, um zu verhindern, dass Unterschiede zwischen einzelnen Proben die Vergleichbarkeit der Messungen beeinträchtigen. So ist es möglich, für eine spezielle Zusammensetzung der Al-Zr Legierung die gesamten Messungen verschiedener Barrierendicken auf einer Probe durchzuführen. Dies wurde für vier verschiedene Legierungen durchgeführt: 5 at.%, 12 at.%, 23 at.% und 31 at.%. Die Zusammensetzung der Legierung wurde mittels EDX-Messungen bestimmt, für Untersuchungen zur Struktur der Proben wurden XRD-Messungen durchgeführt. Dies geschah jeweils an 50 nm dicken Al-Zr Schichten.

Zu den im vorherigen Kapitel besprochenen Proben bestehen zwei wesentliche Unterschiede: die Zusammensetzung der $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ Elektrode (die im Vergleich zu $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ eine weitere Steigerung des TMR verspricht) und die Auslagerungstemperatur. Dort waren es 5 Minuten bei 250°C , jetzt sind es 10 Minuten bei 275°C . Diese höhere Auslagerungstemperatur wurde gewählt, weil damit bei magnetischen Tunnelementen mit Al_2O_3 Barriere und Elektroden aus CoFeB mehr TMR erzielt wurde. Ein direkter Vergleich zu den Ergebnissen, die bisher gewonnen wurden, ist somit nur bedingt möglich. Der komplette Schichtaufbau besteht aus 5 nm Ta / 30 nm Cu / 5 nm Ta / 5 nm Cu / 12 nm MnIr / 3.5 nm CoFeB / Al-Zr+Ox / 3.5 nm CoFeB / 3 nm Py / 5 nm Ta / 20 nm Cu / 30 nm Au.

6.1 Referenzproben

Um Referenzproben herstellen zu können, wurde ein Aluminiumtarget zusätzlich zu den Materialien, die für das magnetische Tunnelement benötigt wurden, in die Sputteranlage eingebaut. So war es möglich, Proben mit Al-Zr Barriere und Al_2O_3 Barriere direkt nacheinander herzustellen. Diese Proben sind besser vergleichbar, als wenn zwischendurch ein Öffnen der Anlage stattfinden muss. Allerdings wurden diese Proben nicht auf den höchstmöglichen Effekt opti-

miert, aufgrund einer auf dieser anderen Sputterquelle sehr verschiedenen Sputterrate beträgt die Dicke der unoxidierten Aluminiumschicht bei diesen Proben 1.9 nm Dicke.

Vergleicht man diese Ergebnisse mit der in Abschnitt 5.2 gezeigten Schichtdickenabhängigkeit für magnetische Tunnelemente mit $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ Elektroden, so sieht man, dass 1.9 nm Barrierendicke für eine optimale Oxidation wahrscheinlich deutlich zu dick sind. Trotzdem kann bei den Referenzproben ein Effekt von 30% gemessen werden, dies würde sich gut einpassen, wenn man die Schichtdickenabhängigkeit des TMR mit $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ Elektroden um diese Referenzproben mit $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ erweitert. Die Flächenwiderstände sind mit über $1\text{G}\Omega\mu\text{m}^2$ sehr hoch, gliedern sich aber ebenfalls ein, wenn man dicke Barrieren betrachtet. Da im Folgenden Keilproben untersucht werden, die einen breiten Schichtdickenbereich abdecken, sind die Referenzproben trotzdem nützlich, um Aussagen zu treffen, wie sich die Zulegierung von Zr auf den Effekt auswirkt.

6.2 Schichtdickenabhängigkeit

6.2.1 5 at.% Zr

Begonnen wird mit den Ergebnissen der Transportmessungen an magnetischen Tunnelementen mit einer keilförmigen Al-Zr Barriere mit 5 at.% Zr-Anteil. Abbildung 6.1 zeigt die Abhängigkeit

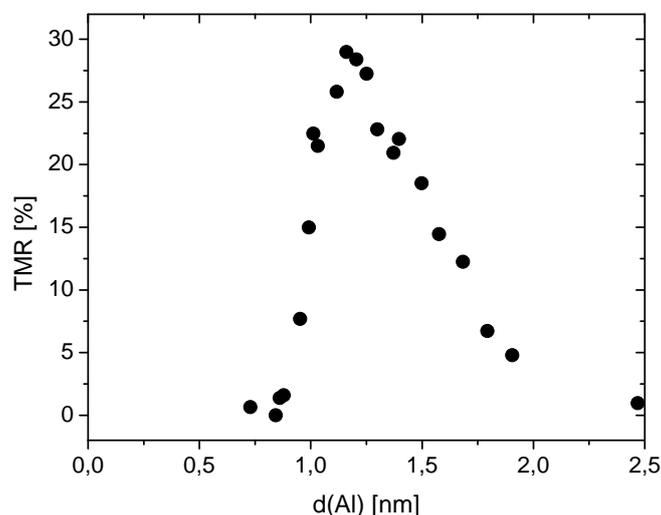


Abbildung 6.1: TMR in Abhängigkeit von der Dicke der Al-Zr Barriere mit einem Zr-Anteil von 5 at.%.

des TMR von der Schichtdicke der Barriere in einem Bereich von 0.6 nm bis 2.5 nm. Beginnend

bei Barrierendicken von 0.75 nm steigt der TMR rapide an, erreicht bei einer Dicke von 1.2 nm ein Maximum mit einem Effekt von 29% und sinkt mit weiter steigender Dicke wieder.

Dieser maximale Effekt beträgt nur etwa die Hälfte des Effektes, der bei ebenen Barrierenschichten mit gleicher Zusammensetzung und $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ Elektroden gemessen werden konnte. Eine Erklärung dieses starken Effektverlustes nur durch die Verwendung einer verschiedenen Zusammensetzung der CoFeB-Elektrode oder die höhere Auslagerungstemperatur erscheint unwahrscheinlich, da der Unterschied zwischen dem TMR bei einer Auslagerungstemperatur von 250°C und dem bei 275°C gemessenen Effekt um weniger als 5% voneinander abweicht (vergleiche Kapitel 5.3) und der Wechsel des Elektrodenmaterials vor dem Hintergrund einer weiteren Verbesserung des Effektes geschah. Möglicherweise gab es Probleme mit dem Elektrodenmaterial, dies wurde vor der Herstellung der Proben mit 5 at.% Zr neu in die Sputteranlage eingebaut, denkbar wäre eine Verschmutzung/Oxidation des Targets, die erst nach längerem Sputtern verschwindet. Ansonsten wäre auch eine durch das Bewegen der Probe beim Sputtern der Barriere bedingte schlechtere Probenqualität denkbar.

Abbildung 6.2 zeigt zwei Majorloops, die bei verschiedenen Schichtdicken auf der Probe gemessen wurden. Ist die Barriere zu dünn, kann das magnetische Tunnelement bis zu einem Magnetfeld von über 2000 Oe nicht gesättigt werden. Sobald die Barriere eine passende Dicke erreicht hat, ist es möglich, das Element in Sättigung zu bringen und der Effekt steigt deutlich. Wird die Barriere zu dick, können nur noch stark verrauschte Majorloops gemessen werden, ab

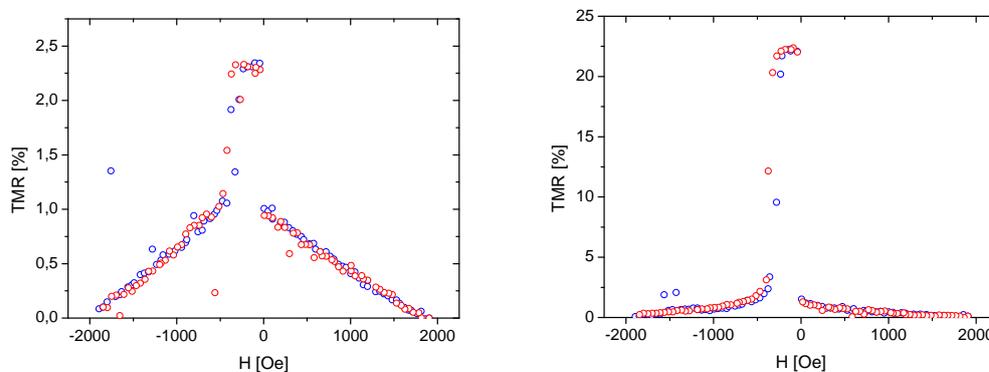


Abbildung 6.2: Majorloops eines magnetischen Tunnelementes mit 5 at.% Zr in der Barriere, gemessen bei (links) 0.84 nm und (rechts) 0.99 nm Barriendicke.

einer Dicke von 2.5 nm sinkt der Effekt unter 1% und verschwindet bei 3.5 nm völlig.

In Tabelle 6.1 sind zusätzlich zum TMR und Flächenwiderstand die per BRINKMAN-Fit ermittelten Barrierenparameter für eine zu dünne (überoxidiert), eine optimal dicke und eine zu dicke (unteroxidiert) Barriere aufgeführt. Nur bei dem Tunnelement mit optimal dicker Barriere ist ein deutlicher Effekt zu messen. Der Flächenwiderstand steigt mit zunehmender Barriendicke

| nominelle Dicke [nm] | TMR [%] | RA [$M\Omega\mu m^2$] | Barrieren- | |
|----------------------|---------|-------------------------|------------------------|-----------|
| | | | Dicke [\AA] | Höhe [eV] |
| 0.73 | 0.65 | 14.26 | 20.34 | 0.91 |
| 1.29 | 22.80 | 50.63 | 17.91 | 0.68 |
| 3.23 | 0.30 | 400 | 21.81 | 0.60 |

Tabelle 6.1: Vergleich des TMR, des Flächenwiderstandes und der aus dem BRINKMAN-Fit erhaltenen Barrierenparameter für eine zu dünne, eine optimal dicke und eine zu dicke Barriere

[30], die aus den Fits erhaltene Barrierenhöhe hingegen sinkt. Die erhaltene Barrierendicke ergibt nur bei der optimal erfolgten Oxidation eine realistische Dicke.

Oxidierter Elektroden

Der ungewöhnlich Verlauf der Majorloops, die gemessen werden, wenn die nominell gesputterte Dicke der Barrierschicht zu gering ist, um das Aufwachsen einer geschlossenen Schicht zu gewährleisten, soll im Folgenden näher besprochen werden. Da dieses Verhalten bei verschiedenen Proben auftritt, und weder auf die keilförmigen, noch auf die ebenen Barrieren beschränkt ist, und auch bei verschiedenen Zusammensetzungen auftritt, kann davon ausgegangen werden, dass es sich nicht um ein zufälliges Ergebnis einer fehlerhaften Auslagerung handelt.

Abbildung 6.3 zeigt den Majorloop eines magnetischen Tunnелеlementes mit 1.17 nm dicker

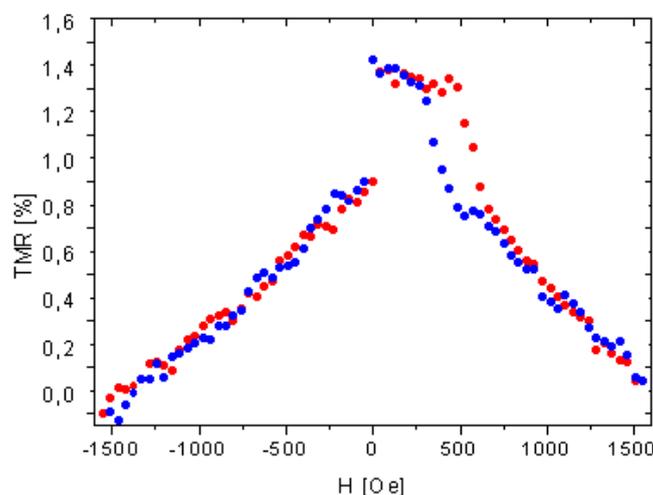


Abbildung 6.3: Majorloop eines magnetischen Tunnелеlementes mit 1.17 nm dicker AlZr Barriere mit einem Zr-Anteil von 5 at.%

ebener AlZr Barriere mit einem Zr-Anteil von 5 at.%. Diese Barriere scheint so dünn zu sein,

dass eine Oxidation der unteren $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ Elektrode stattfindet. Das paramagnetische Oxid einer dieser drei Komponenten muss verantwortlich dafür sein, dass die untere Elektrode sich mit einem angelegten Feld von bis zu 3500 Oe nicht komplett sättigen lässt.

Eine Untersuchung der UI-Kennlinien mittels BRINKMAN-Fit führt zu den Barrierenparametern (Höhe 0.6 eV, Dicke knapp 4 nm), welche bezüglich der gefitteten Dicke mehr als doppelt so groß ist wie die nominell gesputterte. Dieser große Wert der gefitteten Barrierendicke kann ein Hinweis auf eine Doppelbarriere sein[42], die aus oxidiertem AlZr und einem Oxid einer Komponente des Elektrodenmaterials besteht.

Abbildung 6.4 (links) zeigt eine AGM-Messung dieser Probe, im Vergleich (rechts) mit der

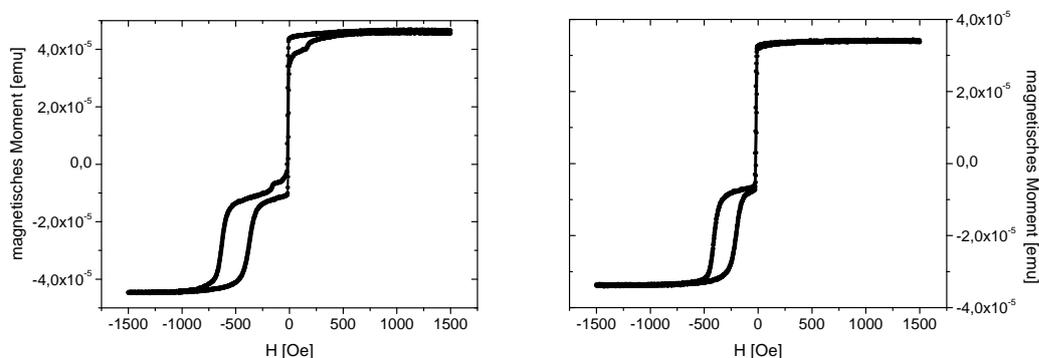


Abbildung 6.4: AGM-Messungen an zwei magnetischen Tunnellelementen mit AlZr Barriere mit 5 at.% Zr, links 1.17 nm und rechts 1.33 nm Barrierendicke

Messung einer etwas dickeren Probe (1.33 nm) gleicher Zusammensetzung, die einen ganz normalen Majorloop durchläuft. Zwei Unterschiede sind bei der Magnetisierungsmessung der Probe mit der dünneren Barriere zu sehen: Das Schaltfeld der gepinnten Elektrode ist zu größeren negativen Schaltfeldern hin verschoben und bei $\pm 160 \text{ Oe}$ findet ein zusätzliches Schalten statt. Der einzige Unterschied dieser zwei Proben besteht in der Dicke der Barriere, und einer damit einhergehenden verschieden starken Überoxidation, die die untere Elektrode mit oxidiert.

In Tabelle 6.2 sind die Bildungsenthalpien, verschiedener Oxide, die bei einer Oxidation der Barriere und der unteren Elektrode denkbar sind, aufgelistet. Dabei handelt es sich um antiferromagnetische und nichtmagnetische Oxide, für die antiferromagnetischen Oxide wurde zusätzlich die Neeltemperatur aufgeführt. Eine Diskrepanz besteht bei Fe_2O_3 , diesem wird laut [111] zwischen 265°C und 950°C schwacher Ferromagnetismus zugeschrieben, während [80] zwischen den einzelnen Modifikationen unterscheidet: $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ist antiferromagnetisch, $\beta\text{-Fe}_2\text{O}_3$ paramagnetisch und $\gamma\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ferromagnetisch. Diese Modifikation wird beim Erhitzen über 300°C in $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ verwandelt, oder beim Erhitzen auf 200°C im Vakuum in Fe_3O_4 umgewandelt. Dieses entsteht bei der Oxidation von Eisen unterhalb von 560°C , während FeO oberhalb dieser Temperatur gebildet wird. CoO wird bei der Oxidation über 1100°C gebildet, Co_3O_4 oberhalb

von 400...500°C. MnO wandelt sich beim Erhitzen auf 250...300°C in Mn_2O_3 um, bei 1000°C in Mn_3O_4 . MnO_2 zersetzt sich über 527°C. Wenn durch einen Auslagerungsprozeß eine gewisse Aktivierungsenergie für die Bildung der Verbindungen gegeben ist[112], kann die Bildungsenthalpie Aufschluss über die Sauerstoffaffinität geben[111]. Dies wird genutzt[96, 113], um herauszufinden, welche Oxide bei einer Überoxidation der Barriere entstehen können.

Bei Experimenten an magnetischen Tunnелеlementen mit CoFe-Elektroden und Al_2O_3 Barriere,

| Oxid | $-\Delta H_f [kJ/mol]$ | $T_N [K]$ |
|-----------|------------------------|-----------|
| Al_2O_3 | 1654 | |
| B_2O_3 | 1274 | |
| CoO | 238 | 292 |
| Co_3O_4 | 892 | |
| FeO | 266 | 198 |
| Fe_2O_3 | 824 | 950 |
| Fe_3O_4 | 1118 | |
| MnO | 385 | 118 |
| MnO_2 | 529 | |
| Mn_2O_3 | 960 | |
| ZrO_2 | 1089 | |

Tabelle 6.2: Bildungsenthalpie und Néeltemperatur verschiedener magnetischer und nichtmagnetischer Oxide, die bei einer zu starken Oxidation der hartmagnetischen Elektrode denkbar wären. (aus [111, 80])

bei denen eine Überoxidation der Barriere auftrat, deutet [113] bei der Verwendung $Co_{50}Fe_{50}$ -Elektroden in TEM-Bildern unter Berücksichtigung der Bildungsenthalpien die Bildung von CoO an. Dieses ist bei Raumtemperatur paramagnetisch[111]. [96] vergleicht Röntgenabsorptionsspektren mit Augertiefenprofilen und XMCD(x-ray magnetic circular dichroism)-Messungen und findet bei der Oxidation von $Co_{70}Fe_{30}$ sowohl FeO_x und MnO_x als auch geringe Mengen CoO_x . Allerdings wird in keiner dieser genannten Arbeiten das Schaltverhalten in vergleichbarer Weise näher untersucht. Eine Erklärung könnte die Bildung von Fe_2O_3 liefern, da dieses in α -Modifikation antiferromagnetisch ist[80] und möglicherweise das verschobene Schalten der gepinnten Elektrode bewirken könnte.

6.2.2 12 at.% Zr

Abhängigkeit von der Barrierendicke

Am Beispiel einer Probe mit 12 at.% Zr in der Al-Zr Barriere wird die Abhängigkeit des TMR von der Schichtdicke der Barriere in einem Bereich von 0 nm bis 2 nm Dicke untersucht. Die Angabe der Dicke der Barriere gibt immer die aus der Sputterzeit berechnete Dicke an, dabei bleibt unberücksichtigt, dass bei geringen Dicken noch kein Lagenwachstum stattfindet, sondern erst Inselwachstum auftritt, und daher keine geschlossene Schicht vorzufinden ist. Die Abhängigkeit

des TMR im Bereich zwischen 0.8 nm Dicke und 2 nm Dicke verläuft sehr ähnlich der im vorigen Abschnitt beschriebenen Schichtdickenabhängigkeit der Probe mit 5 at.% Zr in der Barriere. Der maximale Effekt von 50.1% tritt bei einer Barrierendicke von 1.36 nm auf. Unerwartet ist der Effekt, der bei Dicken zwischen 0.3 nm und 0.5 nm nominell aufgetragener AlZr Schicht auftritt. Diese Majorloops sind nicht komplett gesättigt, und ähneln der auf der linken Seite von Abbildung 6.2 dargestellten Kurvenform. Der Effekt beträgt maximal 4% bei einer nominell gesputterten Schichtdicke von 0.31 nm. Bei geringeren Dicken der Barriere kann kein TMR gemessen werden.

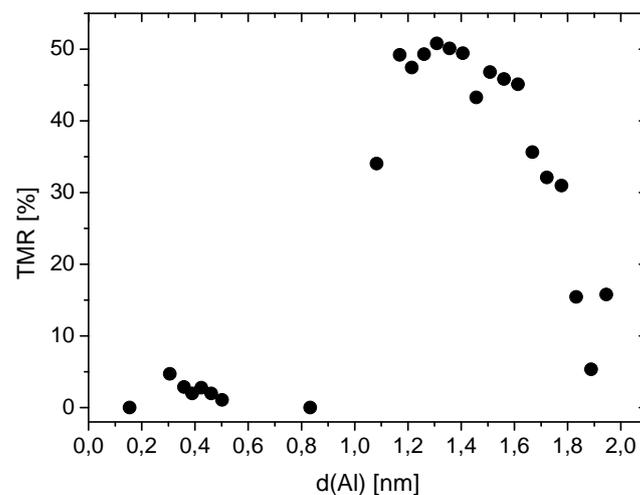


Abbildung 6.5: TMR-Effekt aufgetragen in Abhängigkeit von der Schichtdicke der Al-Zr Barriere, welche einen Zr-Anteil von 12 at.%.

Abhängigkeit von der Auslagerungstemperatur

Da die im vorigen Kapitel beschriebenen Ergebnisse an Proben mit ebener Barriere nach einer Auslagerung von 5 Minuten bei 250°C entstanden sind, und die Proben mit keilförmiger Barriere nach einer Auslagerung von 10 Minuten bei 275°C , soll hier an Proben mit 10 at.% Zr ein Vergleich der Ergebnisse bei verschiedenen Auslagerungstemperaturen stattfinden. In Abbildung 6.6 ist die Abhängigkeit des TMR von der Barrierendicke für zwei verschiedene Auslagerungstemperaturen dargestellt: 250°C und 275°C . Dabei ist deutlich zu sehen, dass die Auslagerungstemperatur keinen Einfluss auf die Höhe des Effektes hat. Der maximale Effekt weicht um weniger als 1% voneinander ab und der Verlauf der Kurven ist nahezu identisch. Die eingezeichneten Linien dienen der Übersichtlichkeit und sind nicht an die Punkte angefügt. Der einzig auffällige Unterschied der Schichtdickenabhängigkeiten besteht in einer Verschiebung der Kurve mit

höherer Auslagerungstemperatur nach rechts zu größeren Schichtdicken. Die bei 275°C ausgelagerten Proben zeigen den Effekt der bei 250°C ausgelagerten Proben bei höheren Schichtdicken.

Dies steht in Einklang zu der in Abschnitt 5.3 beschriebenen Abhängigkeit des TMR von der Auslagerungstemperatur. Dort wurde ein magnetisches Tunnelement von 1.77 nm Barrierendicke untersucht, und ein Anstieg des TMR mit der Auslagerungstemperatur gefunden (Abb. 5.4). Betrachtet man in Abbildung 6.6 nur den Effekt bei Schichtdicken, die oberhalb der Dicken mit maximalem Effekt liegen, so findet sich auch hier eine Steigerung des TMR bei höherer Auslagerungstemperatur.

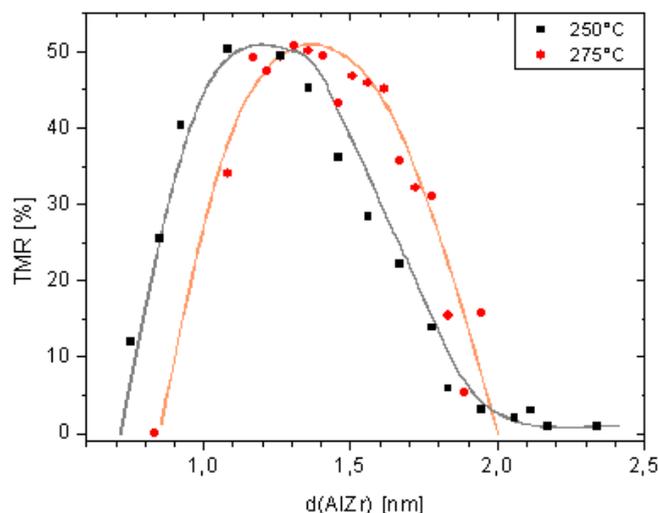


Abbildung 6.6: TMR in Abhängigkeit von der Dicke der Al-Zr Barriere mit einem Zr-Anteil von 12 at.% für zwei Auslagerungstemperaturen.

Der korrespondierende Flächenwiderstand dieser Proben ist auf der linken Seite von Abbildung 6.7 dargestellt. Es zeigt sich für beide Auslagerungstemperaturen ein exponentieller Anstieg des Flächenwiderstandes mit der Schichtdicke. Eine logarithmische Auftragung (rechte Seite von Abb. 6.7) liefert annähernd zwei Geraden gleicher Steigung und ist damit ein Indiz für eine qualitativ gute Tunnelbarriere in beiden Fällen[110]. Die bei 275°C ausgelagerten Proben zeigen einen im Vergleich zu den bei 250°C ausgelagerten Proben gleicher Schichtdicke geringeren Flächenwiderstand. Auch das wurde bei der in Abschnitt 5.3 untersuchten dicken Probe gefunden und steht vielleicht in Zusammenhang mit dem Abfall des Flächenwiderstandes, der bei magnetischen Tunnelementen mit ZrO_2 Barriere oberhalb von 300°C stattfindet.

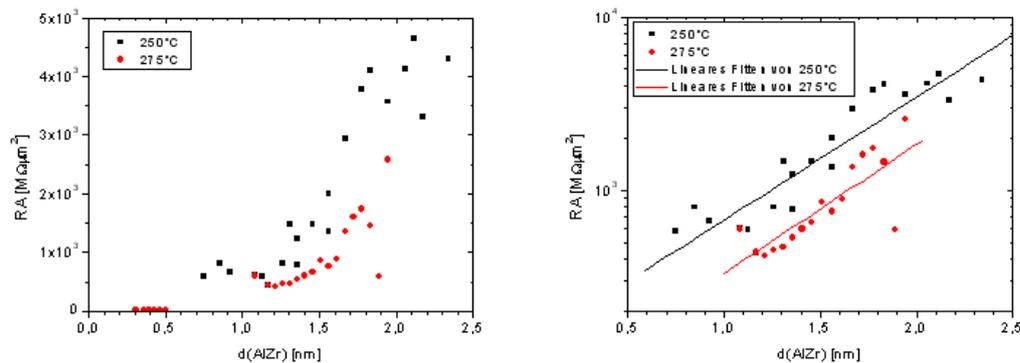


Abbildung 6.7: Flächenwiderstand von magnetischen Tunnелеlementen mit 12 at.% Zr in der Barriere, ausgelagert bei 250°C und 275°C.

6.2.3 31 at.% Zr

Abbildung 6.8 zeigt die Abhängigkeit des TMR von der Dicke der Barriere, diese besitzt einen Zr-Anteil von 31 at.%. Im Bereich bis 0,5 nm Dicke kann nur ein geringer TMR beobachtet werden. Dabei handelt es sich wie bei den anderen Konzentrationen um ungesättigte Majorloops. Mit steigender Barrierendicke ist erst wieder bei 1,8 nm TMR-Effekt zu beobachten, dieser beträgt 2,7%, und nimmt bei weiter steigender Barrierendicke stark ab. Die Flächenwiderstände liegen

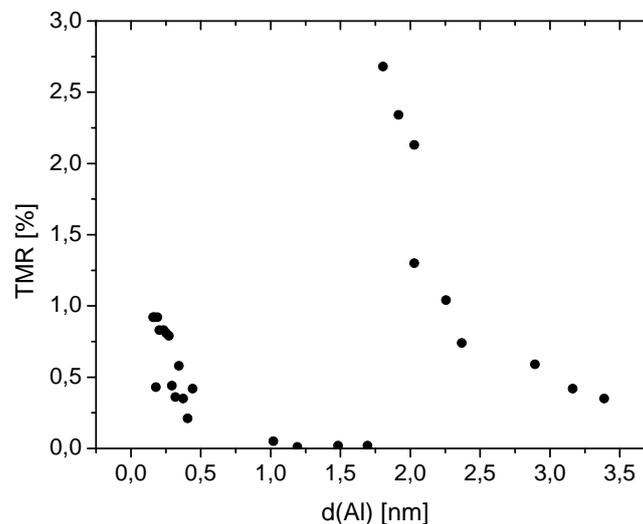


Abbildung 6.8: Abhängigkeit des TMR von der Dicke der Al-Zr Barriere mit einem Zr-Anteil von 31 at.%.

im $G\Omega\mu m^2$ Bereich.

In der Literatur [22] wurde bei einer oxidierten ($2.5 \text{ \AA} \text{Zr} / 4.5 \text{ \AA} \text{Al}$) Barriere und CoFe Elektroden ein Effekt von 15.3% gemessen, wobei der Flächenwiderstand nur $6\Omega\mu m^2$ betrug. XPS Analysen der dabei entstandenen Barriere gaben Auskunft darüber, dass sämtliches Al oxidiert wurde, allerdings noch ein Rest von über zehn Prozent unoxidiertem Zr in der Barrierenregion verblieben war.

Tieftemperaturmessungen

Magnetische Tunnellelemente mit 31 at.% Zr Anteil in der Barriere wurden auch bei tiefen Temperaturen vermessen. Ein Element mit 2.14 nm dicker AlZr Barriere zeigt einen Anstieg des TMR von knapp 3% bei 290 K auf 40% bei 15 K (Abbildung 6.9). Der Flächenwiderstand steigt von $3.3G\Omega\mu m^2$ auf $30G\Omega\mu m^2$.

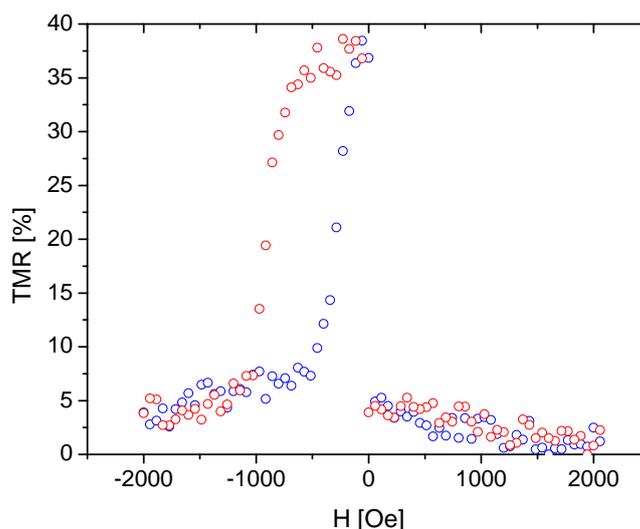


Abbildung 6.9: Bei 15 K gemessener Majorloop eines magnetischen Tunnellelementes mit einer 2.14 nm dicken AlZr Barriere mit einem Zr-Anteil von 31 at.%.

Die starke Abnahme des TMR mit steigender Temperatur auf weniger als ein Zehntel des Wertes, der bei 15 K gemessen wurde, ist möglicherweise ein Hinweis auf starke Magnonenanregungen, die den TMR mit zunehmender Temperatur verringern[113]. Bei Al_2O_3 Barrieren ohne Zr-Zulegierung wird eine deutlich schwächere Temperaturabhängigkeit des TMR gefunden[95]. Der Effekt von magnetischen Tunnellelementen mit $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ Elektroden nimmt zwischen 30 K und 330 K von 110% auf 70% ab, der Flächenwiderstand nimmt mit steigender Temperatur nur schwach ab[107].

6.3 Konzentrationsabhängigkeit

Abbildung 6.10 zeigt die die XRD-Messungen an Al-Zr Schichten mit 12 at.% Zr, 23 at.% Zr und 31 at.% Zr. Diese wurden zur besseren Übersicht leicht auf der y-Achse verschoben. Die Messungen

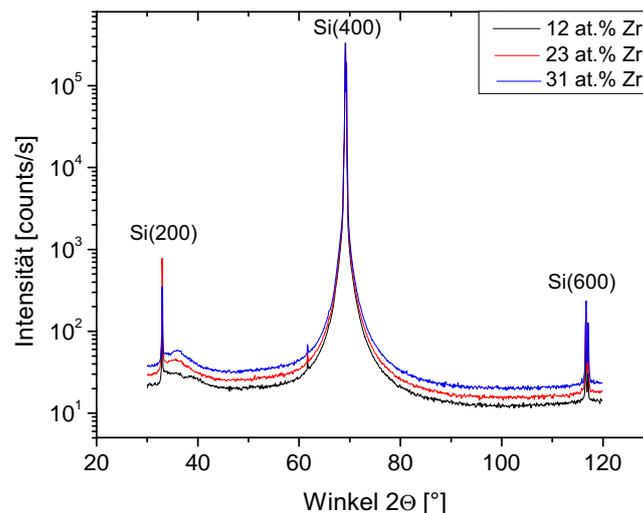


Abbildung 6.10: Vergleich der XRD-Messungen von dicken Al-Zr Schichten verschiedener Zusammensetzungen

weisen außer den schon auf Seite 29 beschriebenen Si-Peaks keine weiteren Peaks auf. Der stark aufgeweitete schulter-ähnliche Bereich mit sehr geringer Intensität um den mit dem Al(111)-Peak[114] korrespondierenden 2θ -Winkel von 38.45° bei allen drei Proben deutet darauf hin, dass es sich bei den untersuchten Al-Zr Legierungen um amorphe Schichten handelt. Kristallines Al_3Zr mit einem tetragonalen Gitter besitzt einen (114)-Peak bei einem Winkel von $2\theta = 37.9^\circ$ [115].

Betrachtet man diesen Teil der Spektren genauer, so lassen sich kleine Unterschiede erkennen. Die Probe mit einem Zr-Anteil von 12 at.% zeigt neben dem großen Si(200) Peak näherungsweise zwei Schultern, die möglicherweise noch den Übergang von polykristallinem Al (Peak bei der Al-Zr Probe mit 9 at.% Zr) zu amorphen Schichten bedeuten können. Vernachlässigt man diesen kleinen Dip in der Schulter, so lässt sich eine leichte Verschiebung der Maxima zu höheren 2θ -Winkeln erkennen. Dies würde nach der Scherrer-Formel auf eine steigende Korngröße hindeuten. Berechnet man diese aus den aufgeweiteten peaks, so ergeben sich senkrecht zur Oberfläche Kristallite von 1-3 nm Größe.

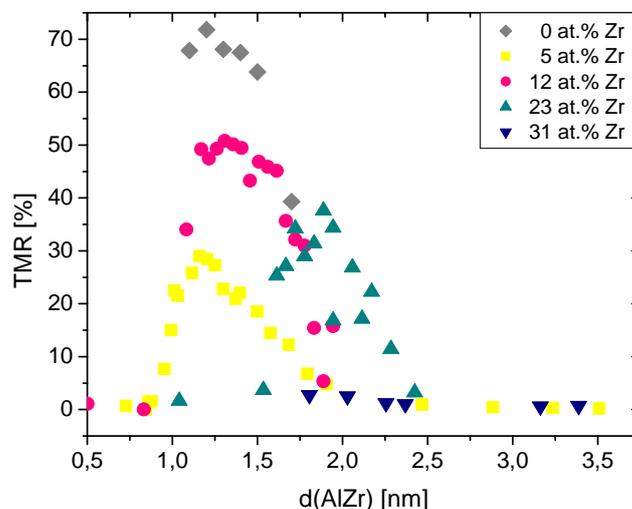


Abbildung 6.11: TMR-Effekt in Abhängigkeit von der Dicke der Al-Zr Barriere für verschiedene Zr-Konzentrationen.

In Abbildung 6.11 sind zum Vergleich die TMR-Effektamplituden für alle vier an Proben mit keilförmiger Barriere untersuchten Al-Zr Zusammensetzungen in Abhängigkeit von der Dicke der Barriere aufgetragen. Zusätzlich sind zum Vergleich die Werte, die an einem Tunnелеlement mit einer einfachen Al_2O_3 Barriere und $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ gemessen wurden, dargestellt. Mit steigendem Zr-Anteil ist eine Verschiebung des maximalen Effektes zu größeren Barrierendicken zu sehen. Abbildung 6.12 zeigt eine logarithmische Auftragung des Flächenwiderstandes von der Dicke der Al-Zr Barriere für die verschiedenen Zusammensetzungen. Bei 12 at.% Zr und 23 at.% Zr findet nach näherungsweise exponentiellem Anstieg des Flächenwiderstandes mit zunehmender Dicke bei den Elementen mit verschwindendem TMR ein Einbruch des Flächenwiderstandes statt. Dies ist auch bei der Probe mit 31 at.% Zr zu sehen, zusätzlich ist dort bei weiter steigender Dicke ein erneuter Anstieg des Flächenwiderstandes zu beobachten. Bei den Proben mit 5 at.% Zr fehlt dieser Abfall, aber der Verlauf des Flächenwiderstandes kann in drei Bereiche eingeteilt werden: einen Anstieg von RA bei Barrierendicken zwischen 0.7 nm und 1 nm Dicke, ein Abfall im Bereich von 1 nm bis 1.4 nm Dicke und daran anschließend ein weiterer Anstieg. Vergleicht man den Flächenwiderstand mit den korrespondierenden TMR-Effektamplituden, so zeigt sich, dass der erste Anstieg in dem Bereich stattfindet, in dem auch der TMR zunimmt, der Abfall korrespondiert mit den maximalen TMR Werten und der erneute Anstieg fällt mit der Abnahme des TMR zusammen.

Eine Systematik zwischen der Höhe des Flächenwiderstandes und dem Zr-Anteil in der Barriere-

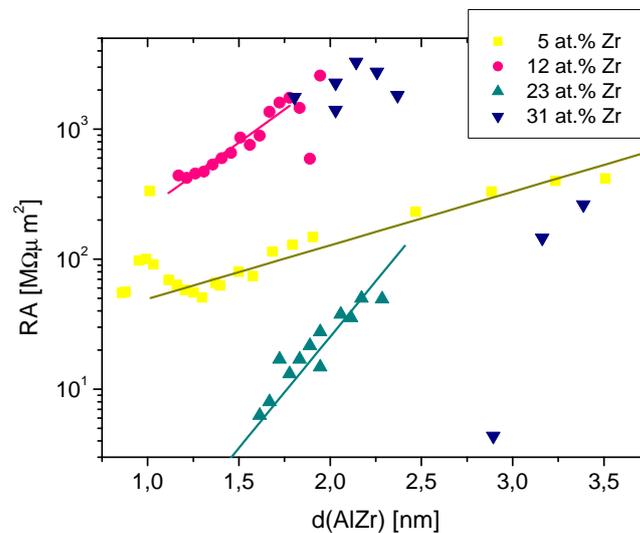


Abbildung 6.12: Logarithmische Auftragung des Flächenwiderstandes in Abhängigkeit von der Dicke der Al-Zr Barriere für verschiedene Zusammensetzungen. Die eingefügten Linien sind Geradenfits der einzelnen Zusammensetzungen.

re fehlt. Vernachlässigt man die Proben mit 31 at. Zr in der Barriere, bei denen kaum TMR zu messen war, ist es bei den anderen Proben möglich in dem Dickenintervall um den maximalen TMR-Effekt einen Geradenfit durchzuführen. Dies kann als Indiz für eine Barriere von guter Qualität gesehen werden[110]. Dabei ergibt sich eine Abnahme der Steigung der Gerade mit zunehmendem Zr-Anteil. Da die Steigung der Gerade von der Höhe der Barriere abhängt[29], deutet diese Abhängigkeit auf eine Abnahme der Barrierenhöhe mit steigendem Zr-Anteil.

Zum Abschluss der Untersuchung der Proben mit keilförmiger Al-Zr Barriere soll Tabelle 6.3 einen Überblick der maximalen TMR-Effekte liefern. Der TMR und der Flächenwiderstand wurde zusätzlich zu der Barrierenschichtdicke, bei der diese maximale Effektamplitude gemessen

| Zr-Anteil | d [nm] | RA [$M\Omega\mu m^2$] | TMR [%] |
|-----------|--------|-------------------------|---------|
| 5 at. % | 1.16 | 63.5 | 29.0 |
| 12 at. % | 1.36 | 533.3 | 50.1 |
| 23 at. % | 1.89 | 21.6 | 37.8 |
| 32 at. % | 1.80 | 1754.4 | 2.7 |

Tabelle 6.3: TMR-Effektamplitude und Flächenwiderstand in Abhängigkeit von der Zr-Konzentration. Zusätzlich eingetragen ist die nominell gsputterte Dicke der Al-Zr Barrierenschicht, bei der der jeweils höchste Effekt gemessen werden konnte.

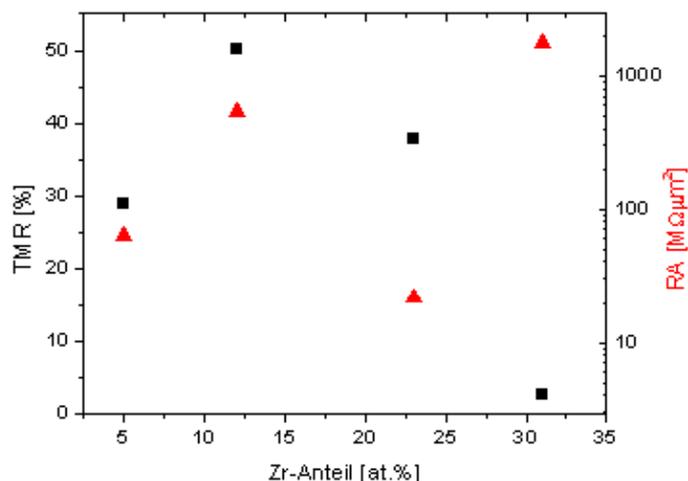


Abbildung 6.13: Höchste TMR-Werte und Flächenwiderstände in Abhängigkeit von der Zr-Konzentration

wurde, für jede der untersuchten Zr-Konzentrationen aufgelistet. Diese Ergebnisse sind zusätzlich in Abbildung 6.13 dargestellt. Der TMR erreicht ein Maximum bei 12 at.% Zr und sinkt danach mit steigendem Zr-Anteil ab. Für das Verhalten des Flächenwiderstandes ist, wie schon bei der Diskussion von Abbildung 6.12 gezeigt, keine Systematik zu erkennen.

6.4 Vergleich von $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ mit $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ als Elektrodenmaterial

Zum Abschluss dieses Kapitels soll ein Vergleich mit den im vorigen Kapitel besprochenen Ergebnissen eine Übersicht über das Verhalten des TMR in Abhängigkeit von dem Anteil des zulegierten Zr gegeben werden. Zusätzlich bietet diese Zusammenfassung der Ergebnisse auch einen Vergleich der unterschiedlichen Elektrodenzusammensetzungen. In Tabelle 6.4 sind für alle untersuchten Zr-Konzentrationen die jeweils maximalen TMR-Werte zusätzlich mit dem Dickenbereich, in dem der Effekt um weniger als zehn Prozent von seinem Maximalwert abweicht, aufgeführt. Bei Proben, bei denen nur eine bestimmte Schichtdicke hergestellt wurde, ist nur diese Dicke angegeben. Für beide Zusammensetzungen der CoFeB Elektrode tritt eine Verschiebung des Dickenbereichs, in dem die höchsten Effekte beobachtet werden können, zu größeren Barrierendicken hin, auf.

Der maximale TMR ist in Abbildung 6.14 dargestellt. Dabei werden die zwei CoFeB Zusammensetzungen unterschieden, dies ist gleichzeitig eine Unterscheidung in Proben mit ebener und keilförmiger Barriere. Zusätzlich aufgetragen sind die Effekte der Proben mit unlegierter Barriere-

| Zr-Anteil [at.%] | Co ₆₂ Fe ₂₆ B ₁₂ | | Co ₄₀ Fe ₄₀ B ₂₀ | |
|---------------------|---|-------------|---|-------------|
| | TMR [%] | Dicken [nm] | TMR [%] | Dicken [nm] |
| 0 | Al ₉₅ Si ₅ | | 50 | 1.5 |
| 0 | 72.7 | 1.1 - 1.4 | 30.4 | 1.9 |
| 1.5 | 64.1 | 1.13 - 1.28 | | |
| 3.5 | 66.6 | 1.46 - 1.62 | | |
| 5.0 | 62.7 | 1.47 - 1.65 | 29.0 | 1.12 - 1.25 |
| 6.0 | 63.0 | 1.36 - 1.68 | | |
| 12.0 | | | 50.1 | 1.21 - 1.61 |
| 14.0 | 57.4 | 1.69 - 2.05 | | |
| 23.0 | | | 37.8 | 1.72 - 1.94 |
| 31.0 | | | 2.7 | 1.8 - 2.03 |

Tabelle 6.4: Abhängigkeit des TMR von der Zr-Konzentration sowie der Zusammensetzung der CoFeB-Elektrode. Zusätzlich eingetragen ist das Dickenintervall, in dem der Effekt um höchstens ein Zehntel seines Maximalwertes gesunken ist.

re, sowie für die $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ Elektroden eine zusätzlich Referenz. Dabei handelt es sich um ein magnetisches Tunnелеlement mit oxidierter $Al_{95}Si_5$ Barriere. Die Barriere hat eine Dicke von 1.5 nm und wurde bei lediglich $175^\circ C$ ausgelagert[116]. Die Zulegierung mit Si sollte keinen Unterschied zu reinen Al_2O_3 Barrieren ausmachen[117].

Abbildung 6.14 zeigt für das magnetische Tunnелеlement mit $Co_{62}Fe_{26}B_{12}$ Elektroden und Al_2O_3 den höchsten Effekt, während der Effekt mit Elektroden aus $Co_{40}Fe_{40}B_{40}$ deutlich geringer ist. Mit zunehmendem Zr-Anteil ist bei den Elektroden aus $Co_{62}Fe_{26}B_{12}$ eine Abnahme der TMR-Effektamplitude zu beobachten, für die Proben mit $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ Elektroden steigt der TMR bis zu einem maximalen Wert bei einer Zr-Zulegierung von 12 at.% an und sinkt danach wieder.

Wenn es einen Unterschied an Effektamplitude zwischen den Proben gäbe, der durch die verschiedene Art der Herstellung der Barriere als ebene Einzelschichten, bzw. keilförmige Schicht hervorgerufen wird, dann müsste die keilförmige Barriere aufgrund der differenzierteren Dicken mehr Effekt zeigen, da es bei diesen Proben unmöglich ist, eine "perfekte Dicke zu verpassen. Dies ist nicht der Fall, also kann die Wahl des Elektrodenmaterials für die Unterschiede in der Höhe des Effektes, insbesondere bei den Proben mit 5 at.% Zr in der Barriere, verantwortlich gemacht werden.

6.5 Fazit

In diesem Kapitel wurde beschrieben, wie sich die Zulegierung verschieden großer Zr-Konzentrationen auf den TMR auswirkt. Dies geschah erst einzeln für verschiedene Zr-Anteile in Abhän-

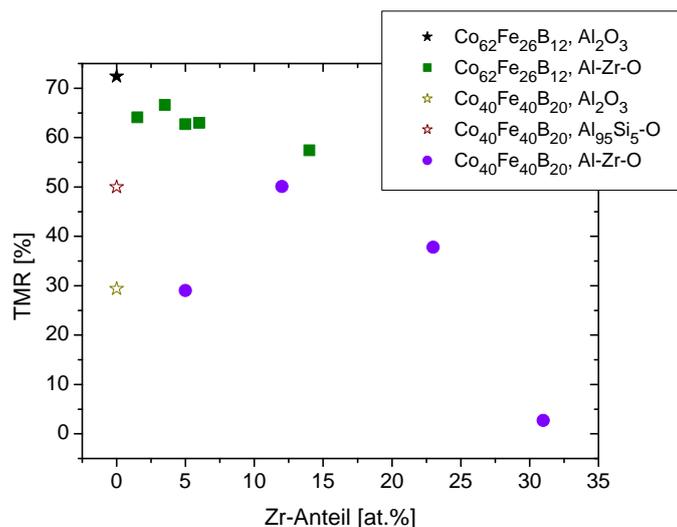


Abbildung 6.14: TMR in Abhängigkeit von der Zr-Konzentration für zwei verschiedene Barrieren sowie unterschiedliche Zusammensetzungen der CoFeB Elektrode.

gigkeit von der Dicke der Barriere, und im Anschluss daran konzentrationsabhängig. Bei der Verwendung von oxidierten Al-Zr Barrieren mit Elektroden aus $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ können bei einem Zr-Anteil von 12 at.% Zr die höchsten Effekte gemessen werden. Diese betragen mit 50% etwa genau soviel wie für Tunnelemente mit $Co_{70}Fe_{30}$ Elektroden und Al_2O_3 Barriere, liegen allerdings weit unter den Maximalwerten, die mit $Co_{62}Fe_{26}B_{12}$ Elektroden erzielt werden.

Auch hier werden im Gegensatz zu den in der Literatur erwähnten geringen Flächenwiderständen[22] bei den untersuchten Al-Zr Zusammensetzungen im Vergleich zu reinen Al_2O_3 Barrieren deutlich erhöhte Flächenwiderstände gemessen, so dass diese Kombination aus Barrieren- und Elektrodenmaterial keine Alternative zu den jetzt verwendeten MgO-Barrieren bietet.

Auch eine Erhöhung des TMR über die Maximalwerte, die mit Al_2O_3 als Barrierenmaterial erreicht werden, konnte durch die Zr-Zulegierung nicht gefunden werden. Insbesondere nicht die für den beim mikrostrukturellen Übergang zur amorphen Al-Zr Schicht zwischen 9 at.% und 11 at.% gefundene deutliche TMR Steigerung auf fast das doppelte des Effektes von Al_2O_3 Barrieren[23], wobei der Effekt von Tunnelementen mit Al_2O_3 Barrieren dort zu dem Zeitpunkt nur 25% betrug, während anderswo schon von 60% TMR berichtet wurde[104]. Allerdings wurde dieses Verhalten auch an nominell gleich dicken Schichten der verschiedenen zusammengesetzten Al-Zr Schicht mit jeweils gleicher Oxidationszeit gefunden. In dieser Veröffentlichung[23] wurde nicht dargestellt, ob für die einzelnen Al-Zr Zusammensetzungen auch die Dicke der Barriere auf die Oxidationszeit optimiert wurde, oder die Dicke den jeweils geänderten Sputterraten angepasst wurde.

Aus den hier durchgeführten Experimenten ergibt sich für eine gewählte feste Dicke der Al-Zr Barriere eine nahezu beliebig einzustellende Abhängigkeit des TMR von der Zr-Konzentration. Dies ist dadurch begründet, dass mit zunehmendem Zr-Anteil die für den maximalen TMR-Effekt benötigte gesputterte Barrierendicke zunimmt.

Zusammenfassung und Ausblick

2003 wurde eine Kompensation des magnetischen Momentes in Py/Gd/Py Dreilagern gefunden[87]. Aufgrund der niedrigen Curie-Temperatur von Gd sind diese Ergebnisse technologisch nicht umsetzbar. Daher wurden diese Experimente im Rahmen der vorliegenden Arbeit mit Co-Gd Legierungen, die für gewisse Zusammensetzungen Curie-Temperaturen weit über Raumtemperatur besitzen, fortgeführt. In Kapitel 4 wurde mit der Untersuchung des Schaltverhaltens von Dreilagern aus Py/Co-Gd/Py begonnen. Dies wurde für verschiedene Schichtdicken und Zusammensetzungen der Co-Gd Schicht gemacht. Hier wurde eine Abhängigkeit des Schaltverhaltens vom gesamten magnetischen Moment des Dreilagers gefunden. Im Anschluß daran wurden diese Dreilager in magnetische Tunnелеlemente integriert und es konnte sowohl schichtdicken-, als auch temperaturabhängig gezeigt werden, dass eine Kompensation des Nettomomentes des Dreilagers stattfindet. Dabei können erhöhte Pinning-Felder der hartmagnetischen Elektrode und eine verringerte Néelkopplung, sowie geringe Koerzitivfelder der weichmagnetischen Elektrode beobachtet werden. Die für die Dreilager ermittelte Kopplungskonstante ist vergleichbar mit der Kopplungskonstante gebräuchlicher künstlicher Ferrimagnete wie z.B. CoFeB/Ru/CoFeB[17].

2004 berichten zwei unabhängige Gruppen von sehr hohen TMR-Effekten bei magnetischen Tunnелеlementen mit Barrieren aus MgO[49, 20]. Seitdem hat MgO Al_2O_3 als das bis dahin meistgenutzte Barrierenmaterial abgelöst. Im Rahmen dieser Arbeit wurden magnetische Tunnелеlemente mit oxidierten Al-Zr Barrieren hergestellt. Diese wurden mit zwei verschiedenen zusammengesetzten CoFeB Elektroden kombiniert.

In Kapitel 5 wird untersucht, wie sich die Zr-Zulegierung einer Al_2O_3 Barriere in Kombination mit Elektroden aus $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ auf den TMR auswirkt. Diese zeigen in Kombination mit Barrieren ohne Zr einen hohen TMR von 72% bei Raumtemperatur. Mit keinem der untersuchten Zr-Anteile in der Barriere kann dieser hohe Effekt erreicht werden. Es zeigt sich eine leichte Abnahme des TMR mit steigendem Zr-Anteil, wenngleich der Effekt mit Werten zwischen 67% und 58% insgesamt recht hoch ist. Die Zusammensetzung und die Schichtdicke der Al-Zr Barriere wurde bei fester Oxidationszeit variiert, so dass für jede Zusammensetzung eine Schichtdicke gefunden wird, bei der eine nahezu optimale Oxidation der Barriere stattfand. Die Schichtdicken, bei denen der maximale Effekt gemessen wurde, weichen voneinander ab, es findet eine Zunahme der optimalen Dicke mit steigendem Zr-Anteil statt. Bei manchen Zusammensetzungen der Barriere wäre es interessant, noch weitere Schichtdicken zu vermessen, zusätzlich könnte auch die Oxidationszeit bei fester Schichtdicke variiert werden. Auch eine Untersuchung weiterer Zusammensetzungen wäre möglich, allerdings deuten die hier gewonnen Ergebnisse nicht darauf

hin, dass so eine Steigerung des TMR über den mit Al_2O_3 Barriere beobachteten Effekt möglich wäre. Auch die in der Literatur berichteten geringen Flächenwiderstände[22] konnten in Kombination mit $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ Elektroden nicht bestätigt werden.

Um sicherzustellen, dass bei einer festen gewählten Oxidationszeit auch wirklich die optimale Schichtdicke oxidiert wird, wurden in Kapitel 6 magnetische Tunnelemente mit keilförmigen Barrieren versehen. Diese bieten den Vorteil, dass verschiedene Schichtdicken der Barriere auf einer Probe vermessen werden können. Zusätzlich wurde hier $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ als Elektrodenmaterial gewählt. Diese versprachen eine zusätzliche Steigerung des TMR gegenüber den im vorigen Kapitel benutzen $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ Elektroden. Tatsächlich ist der gemessene Effekt in Kombination mit Al-Zr Barrieren insgesamt niedriger und beträgt bei einem Zr-Anteil von 5 at.% sogar nur die Hälfte (29%) des TMR, der mit $\text{Co}_{62}\text{Fe}_{26}\text{B}_{12}$ Elektroden (63%) erzielt wurde. Ein Maximum findet sich bei einem Zr-Anteil von 12 at.%, dort beträgt der TMR 50%. Dies ist vergleichbar mit Tunnelementen mit Al_2O_3 Barriere und CoFe Elektroden. Mit weiter steigendem Zr-Anteil nimmt der Effekt stark ab. In Kombination mit diesem Elektrodenmaterial erscheint eine weitere Erhöhung des Zr-Anteils mit dem Ziel einer Steigerung des TMR nicht sinnvoll. Allerdings wären für die genutzten Al-Zr Zusammensetzungen weitere Untersuchungen in Abhängigkeit von der Oxidationszeit möglich.

Literaturverzeichnis

- [1] A. Fert, A. Barthélémy und F. Petroff, *Nanomagnetism: Ultrathin Films, Multilayers and Nanostructures* (Elsevier B.V., 2006).
- [2] G. A. Prinz, *Spin-Polarized Transport*, J. Magn. Magn. Mater. **200**, 57 (1999).
- [3] M. Baibich, J. Broto, A. Fert, F. N. V. Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friedrich und J. Chazelas, *Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices*, Phys. Rev. Lett. **61**, 2472 (1988).
- [4] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach und W. Zinn, *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*, Phys. Rev. B **39**, 4828 (1989).
- [5] W. Butler, *Tunneling magnetoresistance from a spin filtering effect*, Sci. Technol. Adv. Mater. **9**, 014106 (2008).
- [6] W. Clemens, *GMR Sensoren in der industriellen Anwendung* (Magnetische Schichtsysteme, 30. IFF-Ferienkurs, Forschungszentrum Jülich GmbH, 1999).
- [7] J. Moodera, L. Kinder, T. Wong und R. Meservey, *Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film junctions*, Phys. Rev. Lett. **74**, 3273 (1995).
- [8] M. Jullière, *Tunneling between ferromagnetic films*, Phys. Lett. **54A**, 225f (1975).
- [9] P. LeClair, *Fundamental Aspects of Spin Polarized Tunneling*, Dissertation, Technische Universität Eindhoven, Dissertation 2002.
- [10] J. Wecker und J. Bangert, *Nichtflüchtige Datenspeicherung mit magnetischen Tunnelementen: Das Magnetic Random Access Memory (MRAM)* (Magnetische Schichtsysteme, 30. IFF-Ferienkurs, Forschungszentrum Jülich GmbH, 1999).
- [11] R. Richter, *Logic gates realized with spin dependent tunneling elements*, Dissertation, Universität Bielefeld, 2003.
- [12] C. Edwards, *Magnetic memory to move to SoC in three Years*, EE Times UK (2001).
- [13] D. Lammers, *Freescale begins selling 4-Mbit MRAM*, EE Times (10.7.2006).

- [14] J. Lytle, *Magnetic memora ready to knock DRAM off pedestal*, techradar.com (2.6.2008).
- [15] D. Meyners, *Herstellung und Charakterisierung von Logikarrays mit ultrakleinen magnetischen Tunnелеlementen*, Dissertation, Universität Bielefeld, 2006.
- [16] N. Wiese, *Coupling phenomena and scalability of CoFeB/Ru/CoFeB sandwiches*, Dissertation, Universität Bielefeld, 2006.
- [17] N. Wiese, T. Dimopoulos, M. Rührig, J. Wecker, H. Brückl und G. Reiss, *Antiferromagnetically coupled CoFeB/Ru/CoFeB trilayers*, Appl. Phys. Lett. **85**, 2020 (2004).
- [18] H. van den Berg, W. Clemens, G. Gieres, G. Rupp, M. Vieth, J. Wecker und S. Zoll, *GMR angle detector with an artificial antiferromagnetic subsystem (AAF)*, J. Magn. Magn. Mater. **165**, 524 (1997).
- [19] I. Campbell, *Indirect exchange for rare-earths in metals*, J. Phys. F **2**, L47 (1973).
- [20] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki und K. Ando, *Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions*, Nature Materials **3**, 868 (2004).
- [21] E. Tsymbal, O. Myrasov und P. LeClair, *Spin-dependent tunneling in magnetic tunnel junctions*, J. Phys.: Condens. Matter **15**, R109 (2003).
- [22] J. Wang und E. S. P.P. Freitas, *Low-resistance spin-dependent tunnel junctions with ZrAlO_x barriers*, Applied Physics Letters **79**, 4553 (2001).
- [23] S. Lee, C. Choi und Y. Kim, *Effect of Zr concentration on the microstructure of Al and the magnetoresistance properties of the magnetic tunnel junction with a Zr-alloyed Al-oxide barrier*, Appl. Phys. Lett. **83**, 317 (2003).
- [24] D. Wang, C. Nordman, J. Daughton, Z. Qian und J. Fink, *70% TMR at room temperature for SDT sandwich with CoFeB as free and reference layers*, IEEE Trans. Magn. **40**, 2269 (2004).
- [25] M. Carey und A. Berkowitz, *Exchange anisotropy in coupled films of Ni₈₁Fe₁₉ with NiO and Co_xNi_{1-x}O*, Appl. Phys. Lett **60**, 3060 (1992).
- [26] N. Mott, *Electrical conductivity of transition metals*, Proc. Roy. Soc. A **153**, 689 (1936).
- [27] P.M. Tedrow und R. Meservey, *Spin-dependent tunneling into ferromagnetic nickel*, Phys. Rev. Lett **27**, 919 (1971).
- [28] W. Brinkman, R. Dynes und J. Rowell, *Tunneling Conductance of Asymmetrical Barriers*, J. Appl. Phys. **41**, 1915 (1970).
- [29] J. Simmons, *Generalized Formula for the Electric Tunnel Effect between Similar Electrodes Separated by a Thin Insulating Film*, J. Appl. Phys. **34**, 1793 (1963).

- [30] J. Simmons, *Electric Tunnel Effect between Dissimilar Electrodes Separated by a Thin Insulating Film*, J. Appl. Phys. **34**, 2581 (1963).
- [31] Messiah, *Quantenmechanik I* (de Gruyter, 1976).
- [32] A.M.Bratkovsky, *Tunneling of electrons in conventional and half metallic systems: towards very large magnetoresistance*, Phys.Rev.B **56**, 2344 (1997).
- [33] M.Sharma, J. Nickel, T. Anthony und S. Wang, *Spin-dependent tunneling junctions with AlN and AlON barriers*, Appl. Phys. Lett **77**, 2219 (2000).
- [34] J. Moodera und G. Mathon, *Spin polarized tunneling in ferromagnetic junctions*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **200**, 248 (1999).
- [35] R. Meservey und P. Tedrow, *Spin-polarized electron tunneling*, Phys. Rep. **238**, 173 (1994).
- [36] S.Maekawa und U.Gäfvert, *Electron tunneling between ferromagnetic films*, IEEE Trans. Magn. **18**, 797 (1982).
- [37] C.L.Platt, B. Dieny und A. Berkowitz, *Spin-dependent tunneling in HfO₂ tunnel junctions*, Appl. Phys. Lett. **69**, 2291 (1996).
- [38] C.L.Platt, B. Dieny und A. Berkowitz, *Spin polarized tunneling in reaktivly sputtered tunnel junctions*, J. Appl. Phys. **81**, 5523 (1997).
- [39] T. Plaskett, P. Freitas, J. Sun, R. Sousa, F. F. da Silva, T. Galvao, N. Pinho, S. Cardoso, M. da Silva und J. Soares, *Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces* (MRS Proceedings 475, San Francisco, 1997).
- [40] Z. Li, C. de Groot und J. Moodera, *Galliumoxide as an insulating barrier for spin-dependent tunneling junctions*, Appl. Phys. Lett. **77**, 3630 (2000).
- [41] P.Rottländer, M. Hehn, O.Lenoble und A. Schuhl, *Tantalum oxide as an alternative low height tunnel barrier in magnetic junctions*, Appl. Phys. Lett. **78**, 3274 (2001).
- [42] J. Wang, P. P. Freitas, E. Snoeck, P. Wei und J. Soares, *Spin-dependent tunnel junctions with ZrO_x barriers*, Appl. Phys. Lett. **79**, 4387 (2001).
- [43] B. Park und T. Lee, *Reduced temperature and bias-voltage dependence of the magnetoresistance in magnetic tunnel junctions with Hf-inserted Al₂O₃ barrier*, Appl. Phys. Lett. **81**, 2214 (2002).
- [44] J. Pétry, W. Vandervorst und T. Conard, *The band structure of ALCVD AlZr- and AlHf-oxides as measured by XPS*, Materials Science and Engineering B **109**, 56 (2004).
- [45] J. Childress, M. Schwickert, R. Fontana, M. Ho und B. Gurney, *Low-resistance IrMn and PtMn tunnel valves for recording head applications*, J. Appl. Phys. **89**, 7353 (2001).

- [46] S. Tehrani, B. Engel, J. Slaughter, E. Chen, M. DeHerrera, M. Durlam, P. Naji, R. Whig, J. Janesty und J. Calder, *Recent developments in magnetic tunnel junction MRAM*, IEEE Trans. Magn. **36**, 2752 (2000).
- [47] J. Moodera und P. LeClair, *Spin electronics - a quantum leap*, Nature Materials **2**, 707 (2003).
- [48] P. Freitas, S. Cardoso, R. Sousa, K. Wanjun, V. Chu und J. Conde, *Spin dependent tunnel junctions for memory and read-head applications*, IEEE Trans. Magn. **36**, 2796 (2000).
- [49] S. Parkin, C.Kaiser, A.Panchula, P. Rice, B.Hughes, M. Samant und S.-H. Yang, *Giant tunneling magnetoresistance at room temperature with MgO(100) tunnel barriers*, Nat. Mater. **3**, 862 (2004).
- [50] Y. Lee, J. Hayakawa, S. Ikeda, F. Matsukura und H. Ohno, *Effekt of electrode composition on the tunnel magnetoresistance of pseudo-spin-valve tunnel junction with a MgO tunnel barrier*, Appl. Phys. Lett. **90**, 212507 (2007).
- [51] X.-G. Zhang und W. Butler, *Large magnetoresistance in bcc Co/MgO/Co and Fe-Co/MgO/FeCo tunnel junctions*, Phys. Rev. B **70**, 172407 (2004).
- [52] S. Yuasa, A. Fukushima, H. Kubota, Y. Suzuki und K. Ando, *Giant tunneling magnetoresistance up to 410% at room temperature in fully epitaxial Co/MgO/Co magnetic tunnel junctions with bcc Co(001)electrodes*, Appl. Phys. Lett. **89**, 42505 (2006).
- [53] A. Thomas, *Preparation and characterisation of single and double barrier junctions*, Dissertation, Universität Bielefeld, 2003.
- [54] D. Monsma und S. Parkin, *Spin polarisation of tunneling current from ferromagnet/Al₂O₃ interfaces using copper-doped aluminum superconducting films*, Appl. Phys. Lett. **77**, 720 (2000).
- [55] T. H. Kim und J. Moodera, *Large spin polarization in epitaxial and polycrystalline*, Phys. Rev. B **69**, 020403(R) (2004).
- [56] P. Paluskar, J. Kohlhepp, H. Swagten und B. Koopmans, *Co₇₂Fe₂₀B₈: Structure, magnetism, and tunneling spin polarization*, J. Appl. Phys. **99**, 08E503 (2006).
- [57] J. Coey und S. Sanvito, *Magnetic semiconductors and half-metals*, J. Phys. D Appl. Phys. **37**, 988 (2004).
- [58] S. Watts, S. Wirth, S. von Molnár, A. Barry und J. Coey, *Evidence for two-band magnetotransport in half-metallic chromium dioxide*, Phys. Rev. B **61**, 9621 (2000).
- [59] P. Seneor, A. Fert, J.-L. Maurice, F. Montaigne, F. Petroff und A. Vaures, *Large magnetoresistance in tunnel junctions with an iron oxide electrode*, Appl. Phys. Lett. **74**, 4017 (1999).

- [60] J. Coey, M. Viret und s. von Molnár, *Mixed-valence manganites*, Adv. Phys. **48**, 167 (1999).
- [61] N. Tezuka, N. Ikeda, S. Sugimoto und K. Inomata, *Giant Tunnel Magnetoresistance at Room Temperature for Junctions using Full-Heusler $Co_2FeAl_{0.5}Si_{0.5}$ Electrodes*, Journal of Applied Physics **46**, L454 (2007).
- [62] M.A.Ruderman und C.Kittel, *Indirect Exchange Coupling of Nuclear Magnetic Moments by Conduction Electrons*, Phys.Rev. **96**, 99 (1954).
- [63] M. Sato, H. Kikuchi und M. Kobayashi, *US patent*, p. No. 6404672 (11. Juni 2002).
- [64] W. Meiklejohn und C. Bean, *New magnetic anisotropy*, Phys. Rev. **102**, 1413 (1956).
- [65] R. Hemstead, S. Krongelb und D. Thompson, *Unidirectional anisotropy in nickel-iron films by exchange coupling with antiferromagnetic films*, IEEE Trans. Magn. **14**, 521 (1978).
- [66] A. Berkowitz und K. Takano, *Exchange anisotropy - a review*, J. Magn. Magn. Mater. **200**, 552 (2000).
- [67] A. Berkowitz und R. Kodama, *Nanomagnetism: Ultrathin Films, Multilayers and Nanostructures* (Elsevier B.V., 2006).
- [68] L. Néel, *Proprietes Magnetiques Desferrites Ferrimagnetisme Et Antiferromagnetisme*, Seances Acad. Sci. **255**, 1676 (1962).
- [69] H.-J. Elmers, *Magnetismus dünner Filme* (Magnetische Schichtsysteme, 30. IFF-Ferienkurs, Forschungszentrum Jülich GmbH, 1999).
- [70] A. Anguelouch, B. Schrag, G. Xiao, Y. Lu, L. Trouilloud, R. Wanner, W. Gallagher und S. Parkin, *Two-dimensional magnetic switching of micron-size films in magnetic tunnel junctions*, Appl. Phys. Lett. **76**, 622 (2000).
- [71] P. Grünberg, *Zwischenschichtaustauschkopplung: Phänomenologische Beschreibung, Materialabhängigkeit* (Magnetische Schichtsysteme, 30. IFF-Ferienkurs, Forschungszentrum Jülich GmbH, 1999).
- [72] P. Bruno, *Theory of interlayer magnetic coupling*, Phys. Rev. B **52**, 411 (1995).
- [73] M. Stiles, *Nanomagnetism: Ultrathin Films, Multilayers and Nanostructures* (Elsevier B.V., 2006).
- [74] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Young, M. Brodsky und H. Sowers, *Layered magnetic structures: Evidence for antiferromagnetic coupling in Fe layers across Cr interlayers*, Phys. Rev. Lett. **57**, 2442 (1986).

- [75] S. Parkin, N. More und K. P. Roche, *Oscillations in exchange coupling and magnetoresistance in metallic superlattice structures: Co/Ru, Co/Cr, and Fe/Cr*, Phys. Rev. Lett. **64**, 2304 (1990).
- [76] T. Kasuya, *Theory of Metallic Ferro- and Antiferromagnetism on Zeners Model*, Prog. Theor. Phys. **16**, 45 (1956).
- [77] K. Yosida, *Magnetic Properties fo Cu-Mn Alloys*, Phys. Rev. **106**, 893 (1957).
- [78] L. Néel, *Proprietes Magnetique Desferrites Ferrimagnetisme et Antiferromagnetisme*, Ann. de Phys. **3**, 137 (1948).
- [79] P. Hansen, *Handbook of magnetic materials* (Elsevier Science Publishers B.V., 1991).
- [80] A. Hollemann und E. Wiberg, *Lehrbuch der anorganischen Chemie*, 34 Auflage (Walter de Gruyter, 1995).
- [81] E. Tsymbal und D. Pettifor, *Perspectives of Giant Magnetoresistance*, Sol. Stat. Phys. **56** (2001).
- [82] M. Filjand, *Handbook of the Rare Elements* (Boston Technical Publishers, 1970).
- [83] C.Carbone, R.Rochow, L.Braicovich, R.Jungblut, T.Kachel, D.Tillmann und E.Kisker, *Electronic and magnetic coupling between rare-earth adatoms and the Fe(001) surface*, Phys. Rev. B **41**, 3866 (1990).
- [84] E. Nesbitt und J. Wernick, *Rare-earth permanent magnets* (Acad. Press, New York, 1973).
- [85] H. Jouve, J. Rebouillat und R. Meyer, *Magnetic properties of rare earth (Gd, Dy, Ho, Er) -cobalt amorphous films*, AIP Conf. Proc. **29**, 97 (1976).
- [86] I. Campbell, *Indirect exchange for rare earth metals*, J. Phys. F **2**, L47 (1972).
- [87] Y. Fan und H. Brückl, *Magnetic moment compensation in exchange biased trilayers with antiparallel spin alignment*, Appl. Phys. Lett. **83**, 3138 (2003).
- [88] R. Carey, D. Newman und B. Thomas, *Magneto-optic recording*, J. Phys. D **28**, 2207 (1995).
- [89] T. Massalski, *Binary Alloy Phase Diagrams*, 2te Auflage (ASM International, 1990).
- [90] C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik*, 7th Auflage (R. Oldenbourg Verlag, 1999).
- [91] Z. Zhang, P. Freitas, A. Ramos, N. Barradas und J. Soares, *Resistance decrease in spin tunnel junctions by control of natural oxidation conditions*, Appl. Phys. Lett. **79**, 2219 (2001).
- [92] M. D. Sacher, *Präparation und Charakterisation von Mehrfachbarrieren für magnetische Tunnелеlemente*, Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 2002.

- [93] A. Elshabini-Riad und F. D. B. III, *Thin Film Technology Handbook* (McGraw-Hill, 1998).
- [94] J. Noguès und I. Schuller, *Exchange bias*, J. Magn. Magn. Mater. **192**, 203 (1999).
- [95] A. Niemeyer, *Magnetische Tunnelsysteme mit Elektroden aus Eisen-Gold Legierungen*, Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 2003.
- [96] M. Sacher, *Charakterisierung der Barrieren-Grenzflächen magnetischer Tunnelemente mit halbmetallischen Elektroden*, Dissertation, Universität Bielefeld, 2007.
- [97] B. Cullity und S. Stock, *Elements of X-ray diffraction* (Prentice Hall, London, 2001).
- [98] S. Heitmann, *Cobalt / Copper Multilayers: Interplay of Microstructure and GMR and Recrystallization as the Key Towards Temperature Stability*, Dissertation, Universität Bielefeld, 2004.
- [99] H.Brückl, *Dünne Schichten und Nanostrukturen I (WS 01/02)*, Vorlesungsmitschrift.
- [100] D. Sudfeld, *Aufbau eines Meßpaltzes für magnetfeldabhängige Messungen der Magnetisierung und des Magnetowiderstandes dünner Schichten* (Universität Bielefeld, Examensarbeit 2000).
- [101] M. Justus, *Magnetische Tunnelemente mit Pulsplasma-oxidierten Barrieren und Elektroden aus Kobalt-Chrom-Legierungen*, Dissertation, Universität Bielefeld, 2003.
- [102] M.B.Stearns und Y. Cheng, *Determination of para- and ferromagnetic components of magnetization and magnetoresistance of granular Co/Ag films*, J. Appl. Phys. **75**, 6894 (1994).
- [103] R. M. Bozorth, *Ferromagnetism* (IEEE Press, New York, 1978).
- [104] M. Tsunoda, K. Nishikawa, S. Ogata und M. Takahashi, *60% magnetoresistance at room temperature in Co-Fe/Al-O/Co-Fe tunnel junctions with Kr-O₂ plasma*, Applied Physics Letters **80**, 3135 (2002).
- [105] J. M. Schmalhorst, *Magnetische, thermische und dielektrische Stabilität von magnetischen Tunnelementen*, Dissertation, Universität Bielefeld, 2001.
- [106] J. M. D. Coey, *Materials for Spin Electronics* (Springer Berlin/Heidelberg, 2001).
- [107] J. Schmalhorst, A. Thomas, S. Kmmerner, O. Schebaum, D. Ebke, M. Sacher, G. Reiss, A. Htten, A. Turchanin und E. Arenholz, *Transport properties of magnetic tunnel junctions with Co₂MnSi electrodes: The influence of temperature-dependent interface magnetization and electronic band structure*, Phys. Rev. B. **75**, 14403 (2007).
- [108] R. Sousa, J. Sun, V. Soares, P. Freitas, A. Kling, M. da Silva und J. Soares, *Temperature dependence and annealing effects on spin dependent tunnel junctions*, J. Appl. Phys. **85**, 5258 (1999).

- [109] K. Kobayashi und H. Akimoto, *TMR Film and Head Technologies*, FUJITSU Sci. Tech. J. **42**, 139 (2006).
- [110] S. Yuasa, *Magnetic tunnel single-crystal electrodes: a crystal anisotropy of tunnel magnetoresistance*, Europhys. Lett. **52**, 344 (2000).
- [111] P. Cox, *Transition Metal Oxides* (Clarendon Press -Oxford, 1995).
- [112] J. Schmalhorst, H. Brückl, G. Reiss, G. Gieres und J. Wecker, *Magnetotransport and microstructure of annealed magnetic tunnel junctions*, J. Appl. Phys. **91**, 6617 (2002).
- [113] T. Dimopoulos, *Transport Polarisé en Spin dans les jonctions tunnel magnetiques: le rôle des interfaces metal/oxyde dans les processus tunnel*, Dissertation, Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg, 2002, Dissertation.
- [114] H. Swanson und E. Tatge, *Aluminium*, Natl. Bur. Stand. (U.S.) **Circ. 539**, 359 (1953).
- [115] G. Brauer, *Über die Kristallstrukturen von $TiAl_3$, $NbAl_3$, $TaAl_3$, und $ZrAl_3$* , Z. Anorg. Chem. **242**, 15 (1939).
- [116] Z. Kugler, *Magnetische Tunnelemente mit $Co_{40}Fe_{40}B_{20}$ Elektroden und oxidierten $Al_{95}Si_5$ Barrieren wurden nur probeweise hergestellt und nicht optimiert*, persönliche Mitteilung.
- [117] O. Schebaum, *Der TMR magnetischer Tunnelemente mit oxidierten $Al_{95}Si_5$ Barriere entspricht dem von Al_2O_3 Barrieren*, persönliche Mitteilung.

Veröffentlichungen und Konferenzbeiträge

Veröffentlichungen

A. Niemeyer, G. Reiss and H. Brückl: *Magnetic tunnel junctions with compensated magnetic moment by directly exchange-coupled NiFe/CoGd/NiFe trilayers*. Appl. Phys. Lett. **88** 182503 (2006)

H. Brückl, J. Bornemeier, A. Niemeyer, K. Rott: *Device Concepts with Magnetic Tunnel Junctions.*, Materials for Information Technology, Springer Verlag London, (2005)

Konferenzbeiträge

2004 15. Edgar-Lüscher-Seminar *Spin polarisation of FeAu alloys: an approach to DOS engineering in magnetic tunnel junctions* (Poster)

2004 Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft (Regensburg): *Magnetische Tunnелеlemente mit Elektroden aus FeAu Legierungen* (Vortrag)

2005 16. Edgar-Lüscher-Seminar *Improvement of magnetic tunnel junctions by varying electrode materials* (Poster)

2005 Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft (Berlin): *Magnetic moment compensation in NiFe/CoGd/NiFe for magnetic tunnel junctions* (Vortrag)

2005 Abteilungsseminar im Leibniz-Institut für Festkörper- und Werkstoffforschung (Dresden) *Improvement of magnetic tunnel junctions* (Vortrag)

2005 European Conference on Advanced Materials and Processes (Prag, Tschechische Republik) *Improvement of magnetic tunnel junctions* (Vortrag)

2006 Symposium ChemoChips (Weimar) *Physical aspects of on-chip structures for chemical and biological experiments* (Vortrag)

2007 Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft (Regensburg): *Al-Zr tunnel barriers in magnetic tunnel junctions* (Poster)

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei all denen bedanken, deren Unterstützung die Erstellung dieser Arbeit möglich gemacht haben.

Mein besonderer Dank geht an Prof. Günter Reiss für die hervorragende Betreuung und die Möglichkeit in seiner Arbeitsgruppe tätig zu sein. Desweiteren danke ich Dr. Jan Schmalhorst und Prof. Andreas Hütten, die mir bei Fragen jederzeit mit Ideen und Ratschlägen zur Seite standen. Und ganz besonders danke ich Dr. Andy Thomas für die intensive Betreuung in den letzten Monaten. Mein weiterer Dank geht an Univ. Doz. Dr. Hubert Brückl, der mein Interesse an diesem Thema geweckt hat, aber leider nicht bis zum Ende dabei war.

Außerdem möchte ich mich bei allen ehemaligen und aktuellen Mitgliedern der Etage D2 für das angenehme Arbeitsklima und viele hilfreiche Diskussionen bedanken, insbesondere gilt mein Dank meinen letzten beiden Bürokolleginnen Dr. Inga Ennen und Anna Regtmeier für die Durchführung bzw. Hilfe bei den AGM-Messungen, sowie für anregende Gespräche bei köstlichem Tee im angenehmer (Mädchen-)Büroatmosphäre; auch Dirk Brinkmann gilt mein Dank für die gemeinsame Zeit im (Zwergen-)Büro. Ich danke Markus Meinert für die Röntgenuntersuchungen und teilweise übernommene EDX-Messungen, Felix Keseberg danke ich für die vorrübergehende übernahme gefährlicher Tätigkeiten, wie z.B. Lithographie und ätzen, außerdem für die AFM-Messungen. Auch Dirk Meyners gilt mein Dank, er hat AFM-Messungen durchgeführt und mir eine Einführung darin gegeben. Weiterer Dank geht an Dr. Karsten Rott, der für alles einen Rat weiß und bei Problemen mit dem EDX jederzeit erreichbar war. Yang-Hsiung Fan danke dafür, dass ich das Thema seiner Diplomarbeit weiterführen konnte, und Oliver Schebaum danke ich für die ersten erfolgreichen Messungen mit CoFeB. Dr. Marc Sacher danke ich für die Bereitschaft, bei Problemen mit der Sputteranlage sofortige Hilfe zu leisten. Außerdem danke ich Marlene Hahn, Anette Panhorst, Karin Wisotzky und Aggi Windmann für ihre Unterstützung bei bürokratischen Dingen, ebenso Gerd Ahlers, der bei Computerproblemen immer eine Lösung wußte. Dr. Wiebke Hachmann danke ich für die TEM-Probe, und der Mechanikwerkstatt für das gleichmäßige Zerschneiden meines Kobalts.

Mein Dank gilt außerdem meinen Eltern, die mir dieses Studium überhaupt ermöglicht, und mich jederzeit unterstützt haben. Mein größter Dank jedoch geht an Ion für die immerwährende Unterstützung, und an meine Tochter Elisabeth, die mich allein durch ihre Anwesenheit jederzeit wieder in eine Realität fernab von magnetischen Tunnelementen holen kann.