

DIPLOMARBEIT IN PHYSIK

Magnetische Tunnелеlemente mit ferromagnetischen Heusler-Elektroden

vorgelegt von
Daniel Ebke

Universität Bielefeld
Fakultät für Physik

2007

Erklärung

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

Bielefeld, den 7. März 2007

(Daniel Ebke)

Gutachter:

Prof. Dr. Andreas Hütten

Prof. Dr. Armin Gölhäuser

Einleitung

Durch die Entwicklung der XMR-Technologien (*Tunneling Magneto Resistance*: TMR durch JULLIERE [1] 1975 und die experimentelle Realisierung durch MOODERA [2] und MIYAZAKI [3] 1995, *Giant Magneto Resistance*: GMR durch GRÜNBERG [4] 1986) in den vergangenen Jahren wurde die Grundlage für ein breites Feld neuartiger Anwendungen geschaffen. Bei der sogenannten *Spinelektronik* oder auch *spintronic* werden neben der Ladung der Elektronen auch deren Spineinstellungen genutzt.

Die Basis für eine Vielzahl von Anwendungen, wie Sensoren oder Speicherbausteinen, die den TMR-Effekt verwenden, ist ein magnetisches Tunnelement (*Magnetic Tunnel Junction*: MTJ). Dieses besteht im Wesentlichen aus zwei ferromagnetischen Elektroden, die durch eine dünne isolierende Schicht voneinander getrennt sind (siehe Abbildung 1(a)). Der Widerstand eines solchen Bauteils hängt von der relativen Magnetisierungsrichtung der Ferromagneten ab. Durch den Zusammenschluss einer Vielzahl von MTJs können so beispielsweise Datenspeicher realisiert werden (vergleiche Abbildung 1(b)). Der Vorteil gegenüber herkömmlichen Speicherbausteinen liegt in der nicht flüchtigen Speicherung der Daten, da die Informationen hier nicht durch die Ladung, sondern durch die Magnetisierungsrichtung der benachbarten Elek-

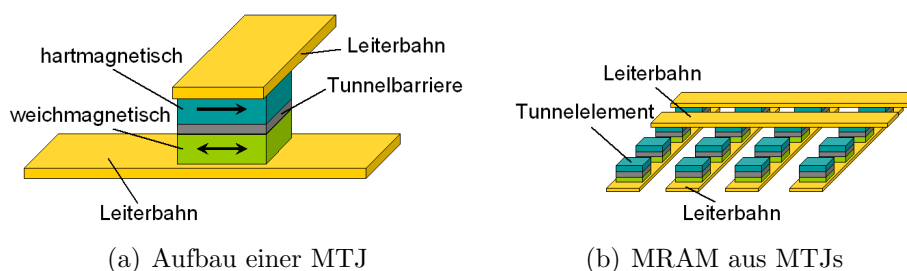


Abbildung 1: a) Schematischer Aufbau eines magnetischen Tunnelements b) Zusammenschluss vieler MTJs zu einem Speicherbaustein, dem MRAM (*Magnetic Random Access Memory*).

troden repräsentiert werden.

Für den Erfolg der unterschiedlichen Anwendungen auf Basis des TMR ist eine hohe Widerstandsänderung für parallel bzw. antiparallel ausgerichtet Elektroden notwendig. Realisiert werden kann dieses durch die Verwendung von halbmetallischen Materialien, d. h. mit Materialien, die eine 100% Spinpolarisation an der Fermikante aufweisen. Neben einigen Oxiden [5] und Zinkblende-Verbindungen [6] wurde das auch für einige Heusler-Legierungen vorhergesagt [7]. Durch die zusätzlich hohe Curie Temperatur der Heusler-Legierungen Co_2MnSi und Co_2FeSi gelten diese Legierungen als vielversprechendes Elektrodenmaterial. Da die hohe Spinpolarisation jedoch an die geordnete $L2_1$ -Kristallstruktur der Heusler-Legierungen geknüpft ist, war ein experimenteller Nachweis der halbmetallischen Eigenschaften bislang nicht möglich.

In dieser Arbeit werden daher unterschiedliche Strategien zur Erhöhung der Spinpolarisation der bisher in Bielefeld verwendeten Heusler-Legierungen [8][9] vorgestellt und diskutiert. Hierbei wird untersucht, in wie weit sich die atomare Ordnungsstruktur durch die Kombination von Heusler-Legierungen beeinflussen lässt.

Ebenfalls wird untersucht, ob sich auch durch die Wahl eines kristallinen Barrierenmaterials gegenüber bisher verwendeter amorpher Barrieren durch den Übergang zu kohärenten Tunneleffekten, höhere TMR-Effekte realisieren lassen.

Auch ist der Ursprung der beobachtbaren starken Abhängigkeit der TMR-Effektamplituden von der Umgebungstemperatur bislang noch unklar. Ein Erklärungsversuch sieht dies in den Eigenschaften der jeweiligen Bandstruktur begründet. Daher stellt die qualitative Überprüfung dieser These einen weiteren Aspekt dieser Arbeit dar.

Veröffentlichungen

- **D. Ebke**, J. Schmalhorst, N.-N. Liu, A. Thomas, G. Reiss and A. Hütten: *Large tunnel magnetoresistance in tunnel junctions with Co_2MnSi / Co_2FeSi multilayer electrode*, Appl. Phys. Lett., **89**, 162506 (2006)
- J. Schmalhorst, **D. Ebke**, M.D. Sacher, N.-N. Liu, A. Thomas, G. Reiss, A. Hütten, and E. Arenholz, *Chemical and interface properties of tunnel junctions with Co_2MnSi / Co_2FeSi multilayer electrode showing large tunnel magnetoresistance*, IEEE Trans. Magn., *accepted*
- A. Thomas, D. Meyners, **D. Ebke**, N.-N. Liu, M.D. Sacher, J. Schmalhorst, G. Reiss, H. Ebert and A. Hütten: *Inverted spin polarization of Heusler alloys for spintronic devices*, Appl. Phys. Lett., **89**, 012502 (2006)
- J. Schmalhorst, A. Thomas, S. Kämmerer, O. Schebaum, **D. Ebke**, M.D. Sacher, G. Reiss, A. Hütten, A. Turchanin, A. Götzhäuser and E. Arenholz: *Transport properties of magnetic tunnel junctions with Co_2MnSi electrodes: The influence of temperature-dependent interface magnetization and electronic band structure*, Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics), **75**, 014403 (2007)
- A. Hütten, J. Schmalhorst, A. Thomas, S. Kämmerer, M. Sacher, **D. Ebke**, N.-N. Liu, X. Kou and G. Reiss: *Spin-electronic devices with half-metallic Heusler alloys*, Journal of Alloys and Compounds, **423**, 148 (2006)
- A. Castrup, S. Dasgupta, T. Scherer, H. Rösner, J. Ellrich, R. Kruk, M. Ghafari, H. Hahn, A. Hütten, **D. Ebke**, N.-N. Liu, I. Ennen, A. Thomas, J. Schmalhorst and G. Reiss: *Half-metallic Co_2MnSi/Co_2FeSi multilayered Heusler electrodes in magnetic tunnel junctions*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, *Article in Press*

Tagungen

- Vortrag auf der DPG Frühjahrstagung 2006 in Dresden: *Co₂FeSi - an alternative for the Co₂MnSi Heusler electrode integrated in magnetic tunnel junctions*
- Poster bei der SNI-Tagung 2006 in Hamburg: *Transport properties of magnetic tunnel junctions with Co₂MnSi electrode: influence of temperature-dependent interface magnetization and electronic band structure*
- Vortrag auf der DPG Frühjahrstagung 2007 in Regensburg: *Transport properties of magnetic tunnel junctions with the quaternary Heusler alloy Co₂Mn_{0.5}Fe_{0.5}Si*

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	iii
Veröffentlichungen und Tagungen	v
1 Grundlagen	1
1.1 Magnetic Tunnel Junctions (MTJs)	1
1.2 Heusler-Legierungen	2
1.2.1 Kristallstruktur	3
1.2.2 Ferromagnetismus der Heusler-Legierungen	4
1.2.3 Bandstruktur der Heusler-Legierungen	6
2 Methoden	9
2.1 Strukturuntersuchungen	9
2.2 Magnetische Messmethoden	11
2.2.1 Alternating Gradient Magnetometer (AGM)	11
2.2.2 XMCD	12
2.3 Transportmessungen	13
2.3.1 Tieftemperaturmessungen und Messung der Tempera- turabhängigkeit	14
3 Probenpräparation	15
3.1 Schichtherstellung (<i>sputtering</i>)	15
3.2 Auslagerung und <i>pinning</i>	17
3.3 Strukturierung	18
3.4 Aufbau eines typischen MTJs	19
3.5 Verwendung einer Keilmasken	21
4 Motivation	23
5 Charakterisierung des Heusler-Bilayers	27

6	Heusler-Multilagensysteme	33
6.1	Charakterisierung der Multilagen	33
6.2	Variation der Heuslerschichtdicken	39
6.3	Variation der Stöchiometrie	40
6.4	Einfluss der Reihenfolge	45
6.5	Zusammenfassung	48
7	Alternative Tunnelbarriere MgO	49
7.1	Integration von MgO als Barrierenmaterial	50
7.2	Einfluss der Mg-Schichtdicke	52
7.3	Zusammenfassung	52
8	Co₂Mn_{0.5}Fe_{0.5}Si	55
8.1	Herstellung	56
8.2	Magnetische Eigenschaften	57
8.3	Strukturanalyse mittels XRD	60
8.4	Transportmessungen	61
8.5	Multilagensystem	63
8.6	Temperaturabhängigkeit	65
8.7	Zusammenfassung	65
9	Zusammenfassung	67
10	Ausblick	71
A	Bandstrukturen	73
A.1	SPR-KKR	73
A.2	LDA+U	74
A.3	Raumrichtungen	75
	Danksagung	83

Kapitel 1

Grundlagen

In diesem Kapitel werden die physikalischen Grundlagen der für diese Arbeit relevanten Themen kurz erläutert. Hierbei stehen insbesondere die grundlegenden Eigenschaften der betrachteten Heusler-Legierungen im Vordergrund.

1.1 Magnetic Tunnel Junctions (MTJs)

Magnetic Tunnel Junctions (kurz: MTJs) bestehen im wesentlichen aus zwei ferromagnetischen Schichten mit unterschiedlichem Schaltverhalten, die von einem dünnen Isolator getrennt sind. Bei Anlegen einer Spannung tritt in Abhängigkeit eines äußeren Magnetfeldes ein unterschiedlich hoher Widerstand auf. Diesen magnetischen Tunnelwiderstand bezeichnet man kurz als TMR (engl.: Tunneling Magneto Resistance). Die Widerstandsänderung bezüglich der parallel ausgerichteten ferromagnetischen Schichten wird als TMR-Effektamplitude definiert. Mit den Widerständen $R_{\uparrow\uparrow}$ für den parallelen und $R_{\uparrow\downarrow}$ für den antiparallelen Zustand der Schichten definiert man daher [1]¹:

$$TMR \equiv \frac{\Delta R}{R_{\uparrow\uparrow}} = \frac{R_{\uparrow\downarrow} - R_{\uparrow\uparrow}}{R_{\uparrow\uparrow}} \quad (1.1)$$

Hervorgerufen wird dieser Effekt durch die spinpolarisierten Leitungselektronen der Ferromagneten. Da der Spinzustand dieser Elektronen beim Tunnelprozess beibehalten wird [10][11], können die Elektronen jeweils nur in Zustände gleicher Orientierung tunneln. Für kleine Spannungen steht der Widerstand also in direktem Zusammenhang mit der spinaufgelösten Zustandsdichte der Elektronen in der Nähe der Fermie-Energie ϵ_F . Nimmt man

¹Diese Definition wird auch als *optimistischer* TMR bezeichnet und hat sich gegenüber der ursprünglichen *pessimistischen* Definition von JULLIERE $TMR = \Delta R/R_{\uparrow\downarrow}$ durchgesetzt

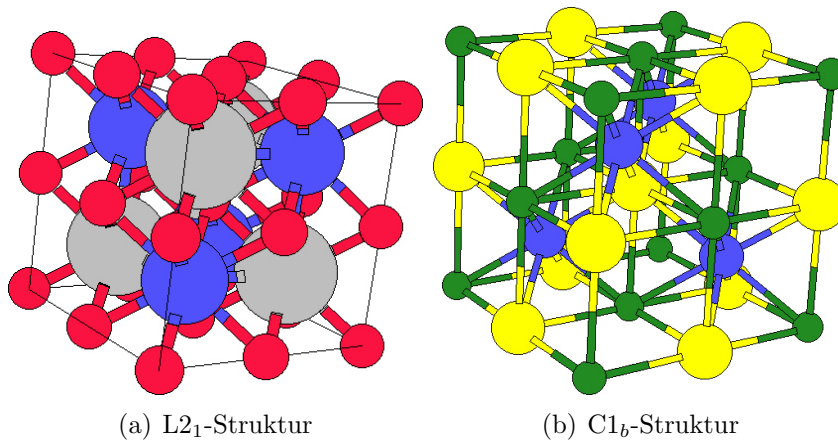


Abbildung 1.2: Kristallstrukturen der vollen a) und halben b) Heusler-Legierungen im Vergleich. Die roten Elemente der L₂₁-Struktur entsprechen der zweiwertigen Komponente der vollen Legierung, im Falle von Co_2MnSi beispielsweise dem Co [17].

um einen Ferromagneten handelt, obwohl die einzelnen Bestandteile alle samt nicht magnetisch sind [14]. Sie wurden daher zum einen für die Überprüfung theoretischer Modelle des Magnetismus herangezogen, zum anderen dienten sie als Grundlage für die Entwicklung neuer magnetischer Systeme. 1983 berichtete DE GROOT zum ersten Mal von dem halbmetallischen Charakter der Heuslerlegierung NiMnSb, der sich aus Bandstrukturberechnungen ergibt. Hierbei handelt es sich um die Eigenschaft des Vorhandenseins metallischer Majoritätselektronen zum einen und halbleitender Minoritätselektronen zum anderen [15]. Diese Eigenschaft wurde später auch für eine Vielzahl anderer Heusler-Legierungen prognostiziert [16][7]. Die wesentlichen Grundlagen dieser Legierungen werden in den folgenden Abschnitten eingeführt.

1.2.1 Kristallstruktur

Generell unterscheidet man zwischen halben und vollen Heusler-Legierungen. Die vollen Heusler-Legierungen haben eine Zusammensetzung X_2YZ , wobei jeder Buchstabe einem Legierungselement entspricht. X und Y sind hierbei Elemente der Übergangsmetalle, Z ein Element der III.-V. Hauptgruppe. Diese Legierungselemente bilden eine Ordnungsphase in der Weise, dass die Kristallstruktur aus vier ineinander verschachtelten fcc (engl.: face center cubic = kubisch-flächenzentrierten) Teilgittern besteht, die jeweils um eine viertel Gitterkonstante gegeneinander verschoben sind [15]. Kristallographen

bezeichnen diese Form als $L2_1$ -Struktur (siehe Abbildung 1.2(a)). Die halben Heusler-Legierungen hingegen haben typischerweise eine Zusammensetzung XYZ. Bei diesem Typ ist gegenüber den vollen Heusler-Legierungen das fcc-Gitter des X_2 -Legierungselements unbesetzt. Man bezeichnet dieses als $C1_b$ -Struktur (Abbildung 1.2(b)).

1.2.2 Ferromagnetismus der Heusler-Legierungen

Der Ursprung der ferromagnetischen Eigenschaften der Heusler-Legierung ist auf die quantenmechanische Wechselwirkung der einzelnen Atome zurückzuführen.

Das magnetische Moment eines einzelnen Atoms wird durch die Elektronenkonfiguration in der Atomhülle bestimmt. Nach der Hund'schen Regel werden Atome mit größer werdender Ordnungszahl in der äußeren Schale zunächst mit Elektronen aufgefüllt, die eine parallele Spinausrichtung besitzen. Erst wenn die Schale zur Hälfte gefüllt ist, folgen Elektronen, deren Spin antiparallel ausgerichtet ist.

Im Falle von Legierungen müssen zusätzlich jedoch auch Wechselwirkungen zwischen den Atomen berücksichtigt werden. Hierbei unterscheidet man zwischen direkten und indirekten Wechselwirkungen [18][19][20].

Direkter Austausch: Die direkte Wechselwirkung wird durch den Überlapp der Elektronenhüllen hervorgerufen. Nach dem Pauli-Prinzip muss die Eigenfunktion des gesamten Teilchensystems antisymmetrisch in Bezug auf Vertauschung zweier Elektronen sein. Hieraus ergeben sich unterschiedliche Gesamtenergien für unterschiedliche Spinorientierungen. Die Austauschenergie H zweier Atome beträgt nach dem Heisenberg-Modell $H = -2J\vec{S}_1\vec{S}_2$, mit J der Kopplungskonstante und $\vec{S}_{1,2}$ den Spinvektoren. Für kleine Abstände ergibt sich hieraus eine antiferromagnetische Kopplung, für größere eine ferromagnetische.

Indirekter Austausch: Liegt kein Überlapp der Elektronenhüllen vor, kann es trotzdem zu einer Spinwechselwirkung der Atome kommen. Bei MnO beispielsweise koppeln 3d-Elektronen der halbgefüllten Schale der Mn^{2+} -Ionen an die Elektronen der vollständig gefüllten Schalen der O^{2-} -Ionen. Durch die Wechselwirkung der Elektronen im Sauerstoff entsteht somit auch eine indirekte Kopplung der Mn-Momente. In diesem Fall spricht man von *Superaustausch*. Eine weitere indirekte Austauschwechselwirkung ist die *RKKY-Wechselwirkung* (benannt nach ihren Entdeckern RUDERMAN, KITTEL, KASUYA und YOSHIDA). Hierbei richten zum Beispiel die magnetischen Momente der 4f-Elektronen des Gd oder Tb die Spins benachbarter Leitungselektronen aus [21]. Auf Grund des

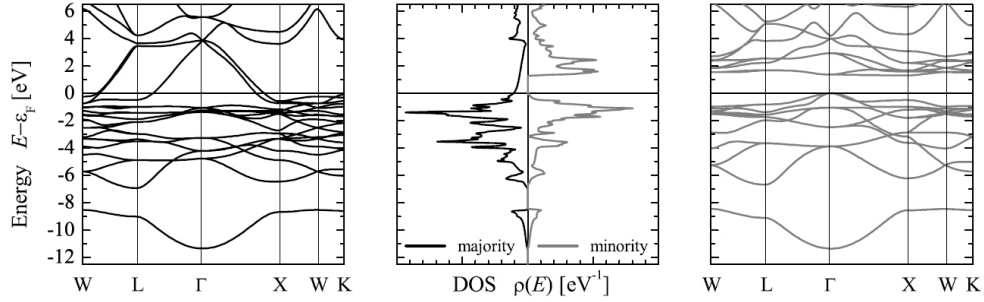


Abbildung 1.4: Zusammenhang der Darstellungsmethoden am Beispiel Co_2MnSi . Links: Energie der Majoritätselektronen in verschiedene Richtungen von \vec{k} , rechts: entsprechend für die Minoritätselektronen. In der Mitte: Zustandsdichte (DOS) der jeweiligen Elektronen bei entsprechenden Energien [23].

$$M_t = Z_t - 24 \quad (1.6)$$

Hiernach ergibt sich für die in dieser Arbeit verwendeten Heusler-Legierungen ein Spinnmoment von $5\mu_B$ für Co_2MnSi , $6\mu_B$ für Co_2FeSi und $5,5\mu_B$ für $\text{Co}_2\text{Mn}_{0,5}\text{Fe}_{0,5}\text{Si}$.

1.2.3 Bandstruktur der Heusler-Legierungen

Generell beschreibt die Bandstruktur die Zustände der Elektronen eines Festkörpers im Impulsraum und damit die Beschaffenheit dessen elektronischer Struktur. Die Bandstruktur ergibt sich aus der Dispersionsrelation der Elektronen unter dem Einfluss des Gitterpotentials. Im einfachsten Fall beschreibt die Dispersionsrelation zunächst den Zusammenhang zwischen Impuls \vec{k} und kinetischer Energie E eines sich frei bewegenden Elektrons der Masse m .

$$E(\vec{k}) = \frac{\hbar^2 \vec{k}^2}{2m} \quad (1.7)$$

Unter dem Einfluss des Gitterpotentials können die Elektronen des Festkörpers nicht mehr als frei angesehen werden, was durch Einführung einer geeigneten effektiven Masse m^* gelöst wird. Die Bandstruktur kann graphisch durch Auftragen der kinetischen Energie über den Impuls des Elektrons $\hbar\vec{k}$ dargestellt werden. Oftmals findet man auch eine weitaus komplexere Darstellung, wie sie in Abbildung 1.4 links bzw. rechts dargestellt ist, bei der zusätzlich noch unterschiedliche Richtungen² des Impulses \vec{k} berücksichtigt

²Die Zuordnung der Raumrichtungen können der Abbildung A.3 im Anhang entnommen werden.

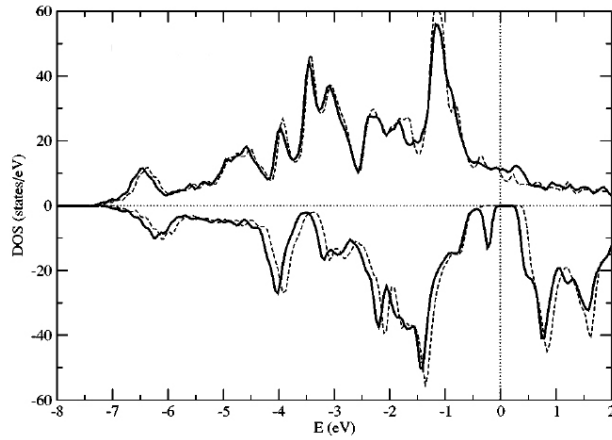


Abbildung 1.5: Zustandsdichte der Heuslerlegierung Co_2MnSi berechnet für ein optimal geordnetes Gitter (gestrichelte Linie) und unter Einbeziehung einer Co-Mn Vertauschung (durchgezogene Linie). Durch den Defekt ergeben sich weitere Zustände für die Minoritätselektronen in der Nähe der Fermienergie, wodurch eine Reduzierung der Spinpolarisation möglich ist [24].

werden. In der direkten Umgebung des Symmetriepunktes Γ ist die ursprüngliche Parabelform aus Gleichung 1.7 noch zu erkennen. Eine weitaus geläufigere Art der Darstellung ist jedoch die Auftragung der Zustandsdichte (engl.: density of states, kurz: DOS) der Elektronen über der Energie E , wie sie exemplarisch für Co_2MnSi in Abbildung 1.4 dargestellt ist³ [23]. In beiden Fällen deutlich zu erkennen ist die Bandlücke der Minoritätselektronen bei der Fermi-Energie E_F . Da für die Majoritätselektronen (Spin \uparrow) in der Nähe der Fermi-Energie Zustände vorhanden sind, ist ein metallisches Verhalten gegeben. Die Bandlücke der Minoritätselektronen (Spin \downarrow) hingegen hat eine halbleitende Eigenschaft zur Folge. Bisher war es jedoch noch nicht möglich die vorhergesagte 100% Spinpolarisation der Heusler-Legierung experimentell zu bestätigen. Ein Grund hierfür ist die Notwendigkeit einer optimalen Gitteranordnung der einzelnen Atome. Dieses wird durch die in Abbildung 1.5 dargestellten Bandstrukturechnungen⁴ von PICOZZI *et al.* [24], am Beispiel von Co_2MnSi verdeutlicht. Für ein ideales Gitter ist der halbmetallische Charakter der Legierung mit einer Bandlücke von 0,34eV gegeben. Bei einer Vertauschung (*swap*) von Co- und Mn-Atomen im Kristallgitter beiseitsweise ergeben sich weitere Zustände für die Minoritätselektronen in der Nähe der

³Die gezeigte Bandstruktur wurde mit der LDA+U Methode errechnet.

⁴Bei den hier dargestellten Bandstrukturen von Picozzi handelt es sich um FLAPW-Berechnungen

Fermieenergie. Durch thermische Anregungen, die bei Raumtemperatur in der Größenordnung von 25meV ($k_B T$) liegen, kann dies zu einer Reduzierung der Spinpolarität führen. Eine unmittelbare Zerstörung der halbmetallischen Eigenschaften erfolgt durch die Ersetzung von Mn- oder Si-Atomen durch Co-Atome (*Co antisite defect*), während es bei einem Mn *antisite defect* lediglich zu einer Reduzierung des magnetischen Moments kommt. Die konkrete Berechnung der Bandstruktur stellt eine überaus komplexe Anforderung an die Dichtefunktionaltheorie (DFT) dar. In der Vergangenheit haben sich daher unterschiedliche Modelle entwickelt, die verschiedene Annahmen zur Vereinfachung des Systems voraussetzen. Im wesentlichen sind hier folgende grundlegende Modelle zu nennen:

L(S)DA: (*Local (Spin) Density Approximation*) beschreibt eine einfache Näherung der Austausch-Korrelations-Energie eines Materials mit (schwach) variierender Ladungsdichte durch die Ersetzung eines Elektronengases mit derselben Ladungsdichte [22][25]

GGA: (*Generalized Gradient Approximation*) versucht die lokalen Dichteschwankungen, die in der LDA unberücksichtigt bleiben, auszugleichen, wodurch jedoch der Rechenaufwand gesteigert wird [25]

LDA+U: ist eine Weiterentwicklung der LDA, die zusätzlich eine Elektron-Elektron-Wechselwirkung berücksichtigt [26]

Hieraus hervorgegangen sind verschiedene Programmpakete zur Berechnung der Bandstruktur. Die wohl verbreitesten sind das WIEN2K-Paket [27], welches auf der *Full-potential Linearized Augmented Plane Wave* (FLAPW)-Methode basiert, und das *Spin-Polarized Relativistic Korringa-Kohn-Rostoker* (SPR-KKR)-Programmpaket [28], welches sich als erfolgreiche Greensche Funktionsmethode im Rahmen der DFT erwiesen hat. Letztere ist die in Bielefeld zur Berechnung der Bandstrukturen verwendete Methode.

Die Darstellung der verwendeten Annahmen im einzelnen sollen hier nicht weiter diskutiert werden, können aber den entsprechenden Verweisen entnommen werden. Welches Modell im Einzelfall die Realität am ehesten widerspiegelt, wird zur Zeit noch stark diskutiert.

Kapitel 2

Messmethoden und Charakterisierungsverfahren

In diesem Kapitel werden die für diese Arbeit relevanten Methoden zur Charakterisierung der hergestellten Proben beschrieben. Da es sich bei vielen Methoden um standardisierte Verfahren handelt, soll hier nur kurz auf deren Funktionsweise und die für diese Arbeit relevanten Eigenschaften eingegangen werden.

2.1 Strukturuntersuchungen

Die Röntgenbeugung (engl.: *X-Ray Diffraction*, kurz: XRD) ist die Standardmethode in der Strukturanalyse. Grundlage dieses Verfahrens ist die BRAGG-Gleichung, die die Bedingung für konstruktive Interferenz an einem Gitter beschreibt:

$$n\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta \quad (2.1)$$

Der sich ergebende Gangunterschied zweier einfallender (Röntgen-)Strahlen, die an aufeinander folgenden Gitterebenen mit Abstand d_{hkl} unter einem Winkel θ reflektiert werden, ergibt im Falle der konstruktiven Interferenz gerade ein ganzzahliges Vielfaches der Wellenlänge λ . Setzt man das Bekanntsein der Wellenlänge der einfallenden Röntgenstrahlen voraus¹, kann der Abstand d_{hkl} der Gitterebenen durch detektieren der Winkel, unter denen konstruktive Interferenz auftritt, berechnet werden:

$$d_{hkl} = \frac{n\lambda}{2 \sin \theta} \quad (2.2)$$

¹Das in Bielefeld verwendete Diffraktometer benutzt zur Erzeugung der Röntgenstrahlung eine Kupfer-Anode, die eine Wellenlänge von $\lambda = 1,54184\text{\AA}$ liefert.

Hierbei sind hkl die so genannten Miller-Indizes, die die Lage einer Ebenenschar im reziproken Gitter angeben. Ist des weiteren die Kristallstruktur der untersuchten Probe bekannt, lassen sich so für kubische Gitter durch die XRD-Messung experimentell die Gitterkonstanten a der verwendeten Materialien bestimmen.

$$a = \sqrt{h^2 + k^2 + l^2} \cdot d_{hkl} \quad (2.3)$$

Zusätzlich zur Bestimmung der Gitterkonstanten kann aus der gemessenen Intensität der unter einem bestimmten Winkel reflektierten Strahlung der Grad der Texturierung abgeleitet werden. Zwar können die zu erwartenden Intensitäten einer polykristallinen Probe genau berechnet werden, für die Auswertung dünner Schichten kann auf Grund des geringen Volumens und des durch die Präparation bedingten Schichtwachstums die Intensität nur als Abschätzung für den Grad der Texturierung angesehen werden.

Zusätzlich kann es auch zur destruktiven Interferenz durch lokale atomare Unordnung kommen, wodurch sich eine andersartige Intensitätsverteilung ergibt. Um dieses zu berücksichtigen, wird der sogenannte Strukturfaktor F_{hkl} eingeführt, der die innere Struktur der Einheitszelle beinhaltet. Er stellt die Gesamtergebnisse aller in hkl -Richtung gebeugten Reflexe dar und ist mit der Intensität I_{hkl} durch

$$I_{hkl} \propto |F_{hkl}|^2 \quad (2.4)$$

verknüpft. Diese Proportionalität verdeutlicht den starken Einfluss lokaler Ordnung auf die Intensität und ermöglicht es, auch kleine Abweichungen von einem perfekt geordneten System durch die aufgenommenen Intensitäten zu detektieren. Die konkrete Berechnung des Strukturfaktors erfolgt durch:

$$F_{hkl} = \sum_{k=1}^N f_k \exp(2\pi i(hu_k + kv_k + lw_k)) \quad (2.5)$$

Hierbei sind u_k, v_k und w_k die Koordinaten des jeweiligen einzelnen Atoms in der Einheitszelle, f_k der atomare Streufaktor und N die Anzahl der Atome der Einheitszelle. Liegen mehrere Atomsorten vor, müssen die entsprechenden unterschiedlichen Streufaktoren der jeweiligen Elemente berücksichtigt werden. Diese Tatsache ermöglicht die elementspezifische Untersuchung der Ordnung durch Röntgenbeugung.

Da sich für eine einkristalline Probe theoretisch ein Deltafunktion ergibt, sich in der Praxis aber eine Verbreiterung durch Körner endlicher Ausdehnung zeigt, lässt sich aus der gemessenen Peakbreite auch die Korngröße der untersuchten Probe durch Anwenden der SCHERRER-Formel bestimmen:

$$\delta = \frac{K\lambda}{FWHM \cos \theta} \quad (2.6)$$

Mit $K = 0,9$ für kubische Kristalle, λ der benutzten Wellenlänge, dem Bragg-Winkel θ und der Halbwertsbreite FWHM (engl: *Full Width at Half Maximum*) kann somit die mittlere Korngröße in Normalrichtung benannt werden.

Die in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse der Röntgenbeugung wurden, wenn nicht anders angegeben, mit einem Diffraktometer der Firma PHILIPPS (Typ: X'pert PRO MPD) erstellt. Neben der strukturellen Charakterisierung der verwendeten Heusler-Legierungen wurden hiermit auch sämtliche Wachstumsraten der beim Sputterprozess verwendeten Materialien bestimmt.

2.2 Magnetische Messmethoden

Im Folgenden sollen die Methoden zur Charakterisierung der magnetischen Eigenschaften der hergestellten Proben beschrieben werden. Zur Untersuchung der quantitativen Gesamtmagnetisierung der Proben wurde ein *Alternating Gradient Magnetometer* (AGM) verwendet. Eine elementspezifische Analyse der Oberflächemagnetisierung hingegen konnte durch Messungen des magnetischen Röntgen-Zirkular-Dichroismus (XMCD) realisiert werden.

2.2.1 Alternating Gradient Magnetometer (AGM)

Die Bestimmung der Magnetisierung und der Vergleich mit theoretisch vorhergesagten Werten lassen erste Rückschlüsse auf die Ordnung der Heusler-Legierung zu. Mit Hilfe des AGM kann so beispielsweise schnell die optimale Temperatur für den nötigen Auslagerungsprozess der Heusler-Legierungen gefunden werden. Alle hier diskutierten Messungen wurden mit dem AGM *MicroMagTM 2900* der Firma *Princeton Measurements Corporation* durchgeführt. Ein AGM bietet die Möglichkeit der Charakterisierung magnetischer Eigenschaften eines kompletten Schichtsystems. Es besteht im Wesentlichen aus zwei Spulenpaaren, die ein homogenes, statisches Magnetfeld zum einen und ein zeitlich variierendes Gradientenfeld zum anderen erzeugen. Die zu untersuchende Probe (maximale Größe etwa 2mm x 2mm) wird hierbei auf einen Probenhalter geklebt, der fest mit einem Piezo verbunden ist. Wird der so präparierte Probenhalter in das homogene Feld der Spulen gebracht, verhält sich die Probe wie ein Dipol. Durch das oszillierende Gradientenfeld beginnt die Probe zu schwingen. Die an dem Piezo abfallende Spannung wird mit einem LockIn-Verstärker ausgelesen. Durch die Änderung des homogenen Feldes ändert sich der magnetische Zustand der Probe, und somit auch die auf den Piezo wirkende Kraft des Gradientenfeldes. Aus der vor jeder Messung bestimmten Resonanzfrequenz des Probenhalters mit Probe, lässt sich der

sogenannte Q-Wert² bestimmen [29]. Wird das Gerät durch eine Probe mit bekanntem magnetischem Moment im Vorfeld der Messungen kalibriert, kann auch das absolute magnetische Moment der eigenen Probe bestimmt werden. Aus dem Zusammenhang $M = \frac{m}{V}$, mit m , dem gemessenem magnetischen Moment, und V , dem Volumen des untersuchten magnetischen Materials, kann die Magnetisierung der Probe errechnet werden. Da die Schichtdicken aus dem Sputterprozess als präzise bekannt vorausgesetzt werden, muss die Probenfläche zur Bestimmung des Volumens ermittelt werden. Da das Substrat wesentlich dicker gegenüber der aufgetragenen Schichten ist ($500\mu\text{m}$ gegenüber etwa 200nm), lässt sich die Größe der Oberfläche näherungsweise durch Wiegen der Probe mit einer Feinwaage und anschließender Division der Dichte des Substrates bestimmen. Auf Grund nicht immer senkrecht zur Oberfläche verlaufender Bruchkanten muss jedoch von einem leicht fehlerbehafteten Ergebnis ausgegangen werden. Zur Abschätzung des Fehlers werden daher stets drei Proben gemessen und deren Ergebnisse gemittelt.

2.2.2 XMCD

Unter Dichroismus wird im allgemeinen die Eigenschaft des unterschiedlichen Absorptionsverhaltens in Abhängigkeit der Polarisation von einfallenden elektromagnetischen Wellen verstanden [30]. Bei der Messung des magnetischen Röntgen-Zirkular-Dichroismus (engl.: X-ray magnetic circular dichroism (XMCD)) durchläuft zirkular polarisierte Röntgenstrahlung eine magnetisierte Probe. Aus der Differenz zweier Röntgen-Absorptionsspektren (engl.: X-ray absorption spectroscopy (XAS)), für links- und recht-zirkularpolarisierte Strahlen, ergibt sich das XMCD-Spektrum, aus dem atomare magnetische Eigenschaften, wie Spin- und Bahnmoment, errechnet werden können. Für Materialien, wie Co und Fe beispielsweise, ergibt sich das XMCD-Spektrum typischerweise aus dem Absorptionsspektrum an der L-Kante. Dieses entspricht der Anregung von 2p Elektronen in unbesetzte 3d-Zustände. Da die magnetischen Eigenschaften durch die 3d-Elektronen bestimmt werden, geben die so aufgenommenen Spektren Aufschluss über die elementspezifischen magnetischen Eigenschaften. Die jeweiligen magnetischen Momente können durch Anwendung der Summenregeln [31] wie folgt berechnet werden:

$$m_{orb} = -\frac{4q(10 - n_{3d})}{3rP \cos \varphi} \quad (2.7)$$

²Der Q-Wert wird definiert durch den Unterschied der Amplitude bei Resonanzfrequenz und einer viel kleineren Frequenz, bei der die Amplitude ausschließlich von dem magnetischen Moment der Probe abhängt.

$$m_{spin} = -\frac{(6p - 4q)(10 - n_{3d})}{rP \cos \varphi} \quad (2.8)$$

Hierbei bezeichnet n_{3d} die Anzahl der besetzten 3d-Elektronen, P die Polarisierung und φ den Einfallswinkel der verwendeten Röntgenstrahlung relativ zur Probenoberfläche. Für die in dieser Arbeit gezeigten Ergebnisse der an der *Advanced Light Source* (ALS), Berkeley, USA durchgeführten Messungen beträgt der Einfallswinkel $\varphi = 30^\circ$ und die Polarisierung $P = 75\%$. Des Weiteren ergeben sich:

$$r = \int_{L_3+L_2} (I^+ + I^- - f) dE \quad (2.9)$$

$$p = \int_{L_3} (I^+ - I^-) dE \quad (2.10)$$

$$q = \int_{L_3+L_2} (I^+ - I^-) dE \quad (2.11)$$

Die Funktion f stellt hierbei eine zweistufige Treppenfunktion dar, deren Grenzwerte auf die Positionen der L_3 - und L_2 -Kanten gelegt werden. Die relative Stufenhöhe beträgt $2/3$ beziehungsweise $1/3$ [31].

2.3 Transportmessungen

Die Bestimmung des Tunnelmagnetowiderstands (engl.: tunneling magneto resistance (TMR)) der hergestellten MTJs wird durch eine Zweipunkt-Messungen realisiert³. Der Kontakt zu den Elementen wird über Goldspitzen hergestellt. Eine der Spitzen wird so hart auf die Probe aufgesetzt, dass sie sämtliche Schichten durchdringt und ein Kontakt zur unteren Elektrode hergestellt wird. Die zweite Goldspitze hingegen wird lediglich leicht auf die Oberfläche des Tunnelements aufgesetzt. Die Positionierung beider Spitzen erfolgt über Mikrometerschrauben. Mit Hilfe eines Spulenpaares kann ein Magnetfeld von bis zu ± 3500 Oe erzeugt werden. Durch Anlegen einer konstanten Spannung (typischerweise 10mV) kann über einen Computer die Stromänderung und damit auch die Widerstandsänderung in Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld aufgenommen werden. Die TMR-Effektamplitude kann nunmehr aus Gleichung 1.5 berechnet werden. Für die Vergleichbarkeit der Widerstände unterschiedlicher Elemente definiert man den mittlere Widerstand als $R = \frac{R_{\uparrow\downarrow} + R_{\uparrow\uparrow}}{2}$, sowie den Flächenwiderstand $R_A = R \cdot A$ mit A der strukturierten Elementfläche.

³Da die Widerstände der zu untersuchenden Proben groß gegenüber den Zuleitungswiderständen sind, können *current crowding*-Effekte ausgeschlossen werden [32].

Neben einer Magnetowiderstandsmessung lassen sich auch UI-Kennlinien aufnehmen. Bei konstantem externen Magnetfeld wird nunmehr der Strom in Abhängigkeit der Spannung gemessen. Für eine intakte Barriere ergibt die Ableitung dieser Kennlinie eine nach oben geöffnete Parabel, aus der durch Anwenden des sogenannten Brinkmann-Fits [33] auf die Barrierendicke, die Barrierenhöhe und ihre Asymmetrie geschlossen werden kann. Nimmt man des Weiteren eine UI-Kennlinie bei parallel ($\uparrow\uparrow$) und antiparallel ($\uparrow\downarrow$) ausgerichteten ferromagnetischen Schichten auf, lässt sich die TMR-Effektamplitude als Funktion der angelegten Spannung durch

$$TMR(U) = \frac{I_{\uparrow\uparrow}(U) - I_{\uparrow\downarrow}(U)}{I_{\uparrow\downarrow}(U)} \quad (2.12)$$

angeben.

2.3.1 Tieftemperaturmessungen und Messung der Temperaturabhängigkeit

Zur Unterdrückung von thermischen Anregungen in den Elektroden, die eine Reduzierung der TMR-Effektamplitude bewirken, können zusätzlich zu den Messungen bei Raumtemperatur an einem zweiten Messstand auch Untersuchungen bei tieferen Temperaturen bis etwa 12K vorgenommen werden. Dazu müssen die Proben auf einen IC-Sockel geklebt und durch *bonden*⁴ mit diesem elektrisch verbunden werden. Das Abkühlen der Probe erfolgt in einem *Cryodrive* Kryostaten der Firma *Oxford*. Die Durchführung der Magnetowiderstandsmessungen, sowie die Bestimmung der UI-Kennlinie erfolgt ebenfalls computergestützt, ebenso wie die Ansteuerung unterschiedlicher Temperaturen, wodurch auch eine automatisierte Aufnahme der Temperaturabhängigkeit möglich ist. Auf Grund des Messaufbaus ist hier jedoch lediglich ein externes Magnetfeld von maximal ± 20000 Oe verfügbar.

⁴Durch einen Ultraschallimpuls wird ein Golddraht mit einer Stärke von $50\mu m$ zuerst mit der Oberfläche der Elemente verbunden und anschließend mit den Kontakten des IC-Sockels.

Kapitel 3

Probenpräparation

In diesem Kapitel werden die für die Herstellung der Proben verwendeten Geräte und Herstellungstechniken vorgestellt.

3.1 Schichtherstellung (*sputtering*)

Alle hier beschriebenen Proben wurden mit einer DC/RF-Magnetron Sputtermaschine der Firma LYBOLD SYSTEMS DRESDEN hergestellt. Die Anlage besteht aus drei Prozesskammern, einem *load lock* System und einem *handler*, der die Kammern miteinander verbindet.

In der eigentlichen Prozesskammer, in der die Schichtsysteme für die MTJs hergestellt wurden, stehen sechs 4" und eine 2" Sputterquelle zur Verfügung. Eine der 4"-Quellen ist an einen RF-Generator der Firma HÜTTINGER angeschlossen, wodurch das Anlegen eines hochfrequenten Wechselfeldes ermöglicht wird. Neben leitenden Materialien können so auch Isolatoren, wie beispielsweise MgO, verarbeitet werden. Zwei weitere der verbauten 4"-Quellen sind mit stärkeren Permanentmagneten als die anderen Quellen ausgerüstet und werden vorzugsweise für die Herstellung von ferromagnetischen Schichten eingesetzt. Durch die Verwendung von μ -Metall-Bleichen unter den *targets*¹ kann die Geometrie der magnetischen Felder so verändert werden, dass sie auch für nicht-ferromagnetische Materialien einsetzbar sind. Die 2"-Sputterquelle diente zunächst vorwiegend dem Auftragen von Gold als finale Abdeckschicht der Schichtsysteme und war deshalb nur bedingt in die Anlagensteuerung integriert. Die Verwendung dieser Quelle mit sämtlichen Einstellungsmöglichkeiten der Prozessparameter war daher nicht möglich. Für die Verwendbarkeit weiterer 2"-Sputtertargets in aktuellen Pro-

¹Als *targets* werden die austauschbaren Materialscheiben bezeichnet, die durch den Sputterprozess langsam abgetragen werden.

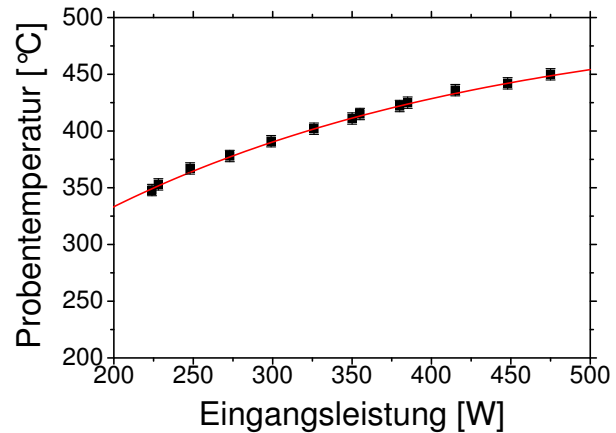


Abbildung 3.1: Kennlinie des Ofens für die *in situ* ausgelagerten Proben. Durch anbringen eines Hitzeschildes ist nun eine maximale Temperatur von 450°C möglich.

jekten unter Verwendung aller einstellbaren Prozessparameter wurde diese Quelle im Rahmen dieser Arbeit entsprechend in die Anlagensteuerung integriert.

Zur Herstellung von Legierungen kommen gemäß der gewünschten Zusammensetzung gemischte *targets* zum Einsatz. Für die Herstellung von dünnen Schichten Co_2MnSi beispielsweise wird ein *target* mit 50% Cobalt, 25% Mangan und 25% Silizium² verwendet. Der Basisdruck in dieser Kammer beträgt $< 3 \cdot 10^{-7} \text{mbar}$. Durch den Einlass von Argongas mit einem standardmäßigen Gasfluss von 20sccm und einer *throttle position*³ von 21%, ergibt sich ein Sputterdruck von etwa $1 \cdot 10^{-3} \text{mbar}$. Durch Variation dieses Drucks lässt sich das Wachstum der jeweiligen Schichten hinsichtlich ihrer Wachstumsrate und Schichtrauigkeit beeinflussen. Ebenso kann auch durch die Wahl der Sputterleistung Einfluss auf die Schichteigenschaften der einzelnen Materialien genommen werden. Typische Leistungswerte liegen zwischen $1,2 \text{W/cm}^2$ und $1,8 \text{W/cm}^2$. Die Ermittlung der einzelnen Wachstumsraten erfolgt für die jeweils verwendeten Sputterparameter zu Beginn jeder Herstellungsphase durch die Schichtdickenbestimmung von Referenzschichten mittels XRD-Messungen.

In einer weiteren Prozesskammer besteht die Möglichkeit, die Probe zu oxidieren. Bei der in dieser Arbeit verwendeten *Electron Cyclotron Resonance (ECR)*-Plasmaoxidation betrug der Sauerstofffluss 13sccm, die angelegte Mikrowellenleistung zur Erzeugung des Plasmas 275W und die an der Probe anliegende Spannung -10V. Der Basisdruck in dieser Kammer beträgt $1 \cdot 10^{-7} \text{mbar}$. Zusätzlich können die Proben in dieser Kammer auch geheizt

²Die Angaben beziehen sich auf Zusammensetzung in Atomprozent.

³Als *throttle position* wird die Stellung eines zur Gasdruckregulierung verwendeten Schiebers bezeichnet. Dieser befindet sich zwischen der Turbopumpe und der Prozesskammer. Eine *throttle position* von 100% entspricht einer kompletten Öffnung des Schiebers.

werden. Hierfür befindet sich oberhalb der Probe ein Heizdrahtspirale, die eine maximale Probentemperatur von zunächst 380°C erzeugen konnte. Durch den Einbau eines Molybdän-Blechtes um die Heizfläche herum, konnte die Strahlungswärme auf die Probe konzentriert werden, wodurch sich nunmehr Temperaturen von mehr als 450°C realisieren lassen. Da die Temperatur des Heizers lediglich über einen *thermocouple*-Sensor mehrere Zentimeter von der Probe entfernt ermittelt wird, wurde zur besseren Kontrolle eine Temperatur-Kennlinie des Heizers in Abhängigkeit der angelegten Leistung aufgenommen (Abbildung 3.1). Eine weitere Erhöhung der Leistung ist zwar prinzipiell möglich, die gewonnene Steigerung der Temperatur geht jedoch ab einer Leistung von 600W sehr stark zu Lasten der Haltbarkeit des Heizdrahtes. Für den Dauerbetrieb ist daher eine maximale Leistung von 500W zu empfehlen.

Die dritte Prozesskammer steht für alternative Experimente zur Verfügung und wurde in der Vergangenheit eher selten genutzt. Durch den Erwerb einer weiteren $2''$ -Sputterquelle konnte diese Kammer so umgebaut werden, dass nunmehr insgesamt acht Quellen zur Verfügung stehen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde auch die Ansteuerung dieser Quelle und der gesamten Kammerperipherie vollständig in die Anlagesteuerung integriert.

3.2 Auslagerung und *pinning*

Für die Auslagerung der *halben* MTJs⁴ und für die Aktivierung des Exchange Bias der *vollen*⁵ MTJs steht neben dem integrierten Ofen der C-LAB ein weiterer externer Ofen zur Verfügung. Die Proben können hier bei einem Basisdruck von $1 \cdot 10^{-7}\text{mbar}$ auf eine maximale Temperatur von 550°C erhitzt werden. Die Temperatur wird hierbei über einen PID-Regler der Firma EUROTHERM geregelt, wodurch eine im Vergleich zum Ofen der C-LAB bessere Temperaturregelung vorgenommen werden kann. Zur Aktivierung des Exchange Bias in den kompletten Schichtsystemen werden die Proben über die Néeltemperatur des Antiferromagneten (hier: MnIr) erhitzt und anschließend in einem Magnetfeld abgekühlt. Als Standardparameter für die in dieser Arbeit untersuchten Proben wurde eine Heizzeit von einer Stunde bei einer Temperatur von 275°C verwendet. Das Abkühlen geschieht im Feld eines Permanentmagneten, der ein Feld von 100mT erzeugt.

⁴Mit halben MTJs werden Schichtsysteme bezeichnet die lediglich aus einer Elektrode bestehen und mit der Barriere abschließen.

⁵Als volle MTJs werden die Schichtsysteme bezeichnet, die aus zwei Elektroden und der Barriere bestehen.

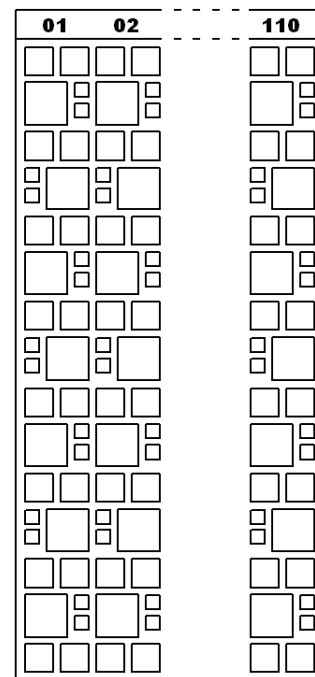


Abbildung 3.2: Maskenform zur Strukturierung der Elemente einer Keilprobe. Insgesamt finden sich auf einer Länge von 55mm 110 Spalten mit Elementen der Größen $100 \times 100 \mu\text{m}^2$, $200 \times 200 \mu\text{m}^2$ und $300 \times 300 \mu\text{m}^2$.

3.3 Strukturierung

Zur endgültigen Herstellung der Tunnelemente müssen die flächig gesputterten Schichten entsprechend strukturiert werden. Hierzu wird auf die Proben zunächst ein Positiv-Photolack (Typ AR-P5350) aufgebracht. In einer Zentrifuge wird die Probe für 30 Sekunden mit 4000U/min gedreht, um eine gleichmäßige Lackschicht von etwa 1000nm zu erhalten. Für die Aushärtung des Lacks wird die Probe für 30 Minuten bei einer Temperatur von 80-90°C auf eine Heizplatte platziert. Unter der UV-Lampe eines Parallelbelichters werden mit Hilfe einer Schattenmaske (vergleiche Abbildung 3.2) Teile der Probe belichtet und anschließend entwickelt. Die eigentliche Strukturierung der Probe erfolgt durch Argon-Ionen Beschuss in einem Ätzer der Firma ROTH & RAUE. Hierbei werden die Zwischenräume der vorher belackten Stellen sukzessive abgetragen, wodurch die türmchenartige Struktur der MTJs gebildet wird. Die Ätzzeit, die für das Abtragen der oberen Elektrode einschließlich der Barriere nötig ist, wurde mittels *Auger-Electron-Spectroscopy* ermittelt. Da der Schichtaufbau der oberen Elektrode für die in dieser Arbeit diskutierten Proben nicht verändert wurde und ein Durchätzen der Probe auf Grund der verhältnismäßig dicken Heuslerschicht unwahrscheinlich ist, wurde stets eine Ätzzeit von 2100 Sekunden verwendet.

Der überschüssige Lack wird abschließend in einem Ultraschallbad bei Raumtemperatur mit dem Remover AR300-70 wieder entfernt.

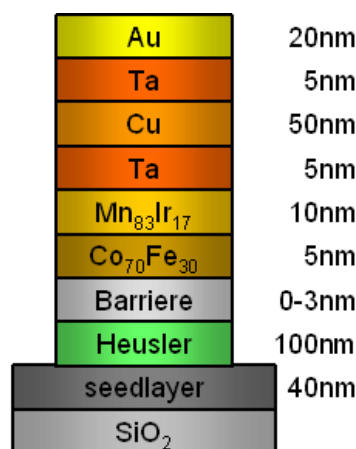


Abbildung 3.3: Typischer Schichtaufbau eines MTJs mit integrierter Heusler-Legierung. Unten zunächst SiO₂, anschließend der *seedlayer* und die Heusler Schicht als untere Elektrode. Darauf folgt die Tunnelbarriere und die obere Elektrode bestehen aus Co-Fe, Mn-Ir, Ta, Cu, Ta und Au.

3.4 Aufbau eines typischen MTJs

Abschließend soll der typische Aufbau eines kompletten MTJs beschrieben werden, so wie er in dieser Arbeit verwendet wird. Die Grundlage für das Layout der verwendeten Schichtsysteme liefern die im Rahmen der Promotionsarbeit von KÄMMERER [8] optimierten MTJs mit der Heuslerlegierung Co₂MnSi. Als Substrat kommen thermisch oxidierte SiO₂ wafer mit einer Oxidschichtdicke von 50nm zum Einsatz. Hierauf wird zunächst zur Einstellung der Textur der Heusler-Legierung eine Wachstumsschicht, der sogenannte *seedlayer*⁶ aufgebracht. Eine typische Schichtdicke hierfür beträgt etwa 40nm. Hieran schließt sich eine Schicht der Heusler-Legierung von etwa 100nm an, gefolgt von dem Barrierenmaterial. Für die Herstellung einer AlO_x Tunnelbarriere wird zunächst metallisches Al gesputtert, welches anschließend für 150 Sekunden in der zweiten Prozesskammer plasmaoxidiert wird, in der sich auch der für die Ordnung der Heusler-Legierung nötige Heizprozess anschließt. Die Probe wird dabei für eine Stunde auf eine Temperatur von 380°C-450°C erhitzt. Durch die Materialausdehnung des Probenhalters, verklemmt sich dieser, wodurch ein Transport der Probe verhindert wird. Es erfolgt daher eine Wartezeit von etwa zweieinhalb Stunden, um eine ausreichende Abkühlphase zu gewährleisten. Um die Oberfläche von Verunreinigungen, die sich in dieser Zeit auf der Oberfläche abgelagert haben, möglichst zu befreien, schließt sich eine erneute Oxidation von 50 Sekunden an. Die obere Elektrode aller in dieser Arbeit verwendeten Proben besteht aus einer 5nm dicken Co₇₀Fe₃₀-Schicht, die von einer 10nm dicken Mn₈₃Ir₁₇-Schicht *gepinnt*

⁶Der *seedlayer* ermöglicht das Aufwachsen der Heusler-Legierung in einer definierten Textur. Beispielsweise führt die Verwendung von Vanadium (V), zu einer (110)-Texturierung der Heusler-Legierung, die Verwendung von MgO hingegen begünstigt eine Texturierung in (100)-Richtung.

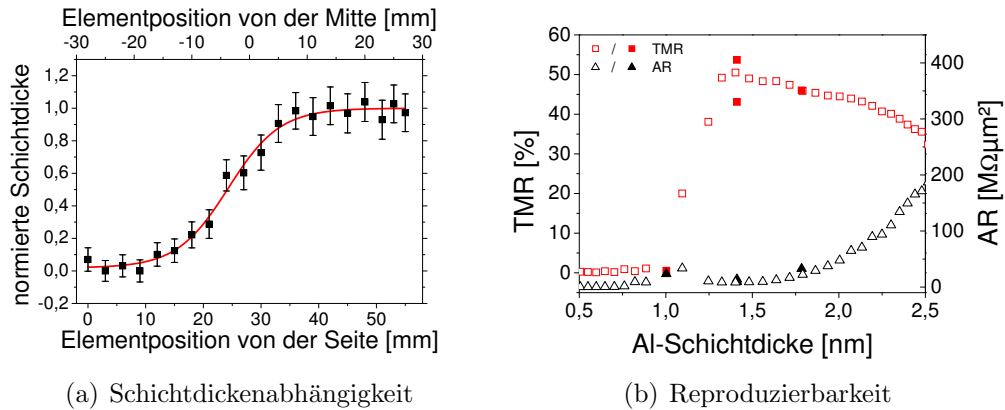


Abbildung 3.4: a) Mit EDX ermittelte normierte Schichtdickenabhängigkeit die sich bei Verwendung der Keilmaske in Abhängigkeit der Elementposition auf der Probe ergibt. b) Reproduzierbarkeit der Keilmaskentechnik. Die TMR-Amplitude und der Widerstand der flächig hergestellten Referenzelemente (volle Symbole) stimmen mit den entsprechenden Werten der Keilprobe (offene Symbole) überein.

wird. Anschließend folgen 5nm Ta, 50nm Cu und nochmals 5nm Ta. Um das gesamte Schichtsystem zum einen gegen Oxidation an der Umgebungsluft zu schützen, und um zum anderen eine gut zu kontaktierende Oberfläche zu erhalten, wird die Probe mit einer 20nm dicken Au-Schicht abgedeckt.

Bei den Charakterisierungen der Proben mittels AGM beziehungsweise XMCD liegt das Hauptaugenmerk auf der Untersuchung der Heuslerschicht beziehungsweise der Grenzfläche zur Tunnelbarriere. Schichten, die sich oberhalb der Tunnelbarriere befinden, sind für diese Charakterisierungsmethoden nicht nötig oder sogar unerwünscht. Deshalb wurden zusätzlich zu den herkömmlichen MTJs auch die sogenannten *halben* MTJs hergestellt, die mit dem Barrierenmaterial abschließen. Da es sich bei der Barriere um eine Oxidschicht handelt, ist die Probe bereits ausreichend vor Einflüssen der Umgebungsluft geschützt und benötigt daher keine zusätzliche Schutzschicht. Der zur Ordnung der Heuslerlegierung notwendige Heizprozess kann für die halben MTJs daher in dem externen Ofen durchgeführt werden. Neben einer schnelleren Abkühlphase ist hier auch eine genauere Temperaturregelung möglich.

3.5 Verwendung einer Keilmask

Da die richtige Schichtdicke gerade bei der Tunnelbarriere ein wichtige Rolle spielt, wurde ein Verfahren entwickelt, welches die kontinuierliche Änderung einer Schichtdicke innerhalb eines Schichtstapels zulässt [34][35]. Realisiert wurde dieses durch Anbringen einer speziellen Schattenmaske, die oberhalb des *targets* unmittelbar unter dem *shutter* angebracht wird. Während des Sputterprozesses wird dann die Probe mit der *wobble*-Funktion über der Maske hin- und herbewegt. Der Winkel zwischen den beiden Endpositionen wurde mit einer Geschwindigkeit von 5 Umdrehungen pro Minute durchgeführt und betrug 35° . Durch dieses Verfahren wird anstelle einer flächigen Schicht ein Keil aufgetragen. Bei der Herstellung muss beachtet werden, dass die Sputterzeit der Schicht, die als Keil hergestellt werden soll, ein ganzzahliges Vielfaches der Zeit einer *wobble*-Periode ist. Anhand einer Eichprobe ergibt sich für den Verlauf des Keils ein Zusammenhang zwischen Position auf der Probe und Schichtdicke, wie er in Abbildung 3.4(a) dargestellt ist. Durch die eindeutig definierte Position auf den hergestellten Proben kann aus der angefitzten Funktion, sowohl für die Position relativ zur Mitte des Keils, als auch relativ zum Rand, die jeweilige Schichtdicke berechnet werden. Um auftretende Inhomogenitäten, die durch den Sputterprozess am Rand der Probe auftreten, zu berücksichtigen, wurden jeweils nur die inneren 30mm der Keilprobe für die Messungen verwendet [36]. Die Reproduzierbarkeit dieser Technik konnte durch TMR-Messungen an Standard Tunnelementen (Co-Fe/ AlO_x /Ni-Fe) mit einer AlO-Keil-Barriere nachvollzogen werden [37]. Die in Abbildung 3.4(b) dargestellten Ergebnisse zeigen die gute Übereinstimmung der hergestellten Probe mit Barrieren-Keil und der als Referenz hergestellten flächigen Tunnelbarrieren mit unterschiedlichen Schichtdicken. Sowohl der Anstieg der TMR-Amplitude als auch der Verlauf des gemessenen Flächenwiderstands stimmen überein.

Kapitel 4

Motivation zur Herstellung von Mehrschichtsystemen mit Heuslerlegierungen

Auf Grund ihrer vorhergesagten 100% Spinpolarisation an der Fermikante gelten einige Heusler-Legierungen als sehr vielversprechende Materialien bei der Herstellung neuartiger Speicherformen oder Sensortypen. Speziell die Heusler-Legierung Co_2MnSi stellt auf Grund der hohen Curie Temperatur T_C , die für spätere Anwendungen eine wichtige Rolle spielt, einen vielversprechenden Kandidaten für die Integration in die technisch relevanten MTJs dar. Bisher war es jedoch nicht, möglich die vorhergesagten halbmetallischen Eigenschaften experimentell zu bestätigen. HÜTTEN *et al.* zeigten unlängst [38], dass die Limitierung der Spinpolarität und damit auch der maximalen TMR-Amplitude bei der Verwendung von Co_2MnSi als eine ferromagnetische Schicht in einem MTJ durch die Segregation von Mn an der AlO_x -Tunnelbarriere beschränkt ist. XMCD und XAS Messungen, die von SCHMALHORST *et al.* [39] an solchen Schichtsystemen durchgeführt wurden, zeigen, dass durch die hohe Formationsenthalpie der Mn-Oxide an der AlO_x -Barriere eine weitere Barriere aus MnO entsteht. Durch die Oxidation von Mn fehlt dieses zur Legierungsbildung, wodurch ein Überschuss von Co im Grenzflächenbereich vorhanden ist, der nach PICOZZI *et al.* [24] zu einer Reduzierung der Spinpolarisation führt.

Eine Alternative zu dieser Legierung stellt die ebenfalls zu den vollen Heusler-Legierungen gehörende Verbindung Co_2FeSi dar. Diese verspricht, ebenfalls durch ihre halbmetallische Bandstruktur, eine hohe Spinpolarität und hat nach dem Slater-Pauling Verhalten (siehe Gleichung 1.6) sogar ein höheres Spinmoment von $6\mu_B$ statt den $5\mu_B$ bei Co_2MnSi [16][40]. Zusätzlich erhofft man sich durch die gewählte Zusammensetzung einen ähnlichen

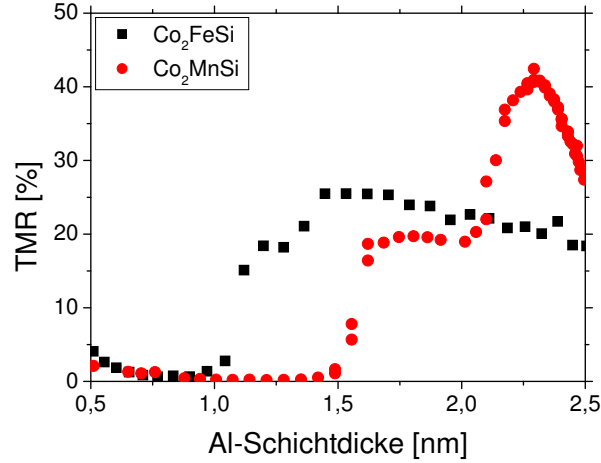


Abbildung 4.1: Vergleich der gemessenen TMR-Amplituden als Funktion der Al-Schichtdicke für MTJs mit den Heuslerlegierungen Co_2MnSi und Co_2FeSi . Deutlich zu erkennen die die starke Abhängigkeit der Barrierendicke im Falle von Co_2MnSi .

Segregationseffekt wie beim Mn zu unterbinden. Die ebenfalls hohe Curie Temperatur dieser Legierung ermöglicht auch die Integration in realen Anwendungen.

Bei der Realisierung von MTJs mit Co_2FeSi und gleichen Prozessparametern, wie sie sich für die Herstellung der Co_2MnSi Proben als optimal erwiesen haben [8], konnte jedoch nur eine maximale TMR Amplitude von 25% bei Raumtemperatur und 52% bei 16K erreicht werden. Nach JULIERE [1] entspricht dies einer Spinpolarisation von lediglich 42%¹. Der Vergleich zu den vorher hergestellten Proben mit Co_2MnSi zeigte jedoch eine geringere Schichtdickenabhängigkeit der Barriere bei den gemessenen TMR Amplituden (siehe Abbildung 4.1). Das magnetische Moment der Proben betrug im ungeheizten (*as prepared*) Zustand $543 \pm 42 \text{ kA/m}$ und erreichte nach einstündigem Auslagern bei 400°C einen Maximalwert von $901 \pm 114 \text{ kA/m}$, was nur etwa 75% des theoretisch zu erwartenden Wertes von 1241 kA/m [40] entspricht. Dies deutet auf ein schlechter geordnetes System hin, wodurch die geringe Spinpolarisation und damit auch die geringere TMR-Amplitude erklärt werden kann.

Um trotz des weniger gut geordneten Systems die Vorteile der Co_2FeSi -

¹Bei der Berechnung der Spinpolarität wurde für die CoFe-Gegenelektrode oberhalb der Barriere eine Spinpolarisation von 49% angenommen [41].

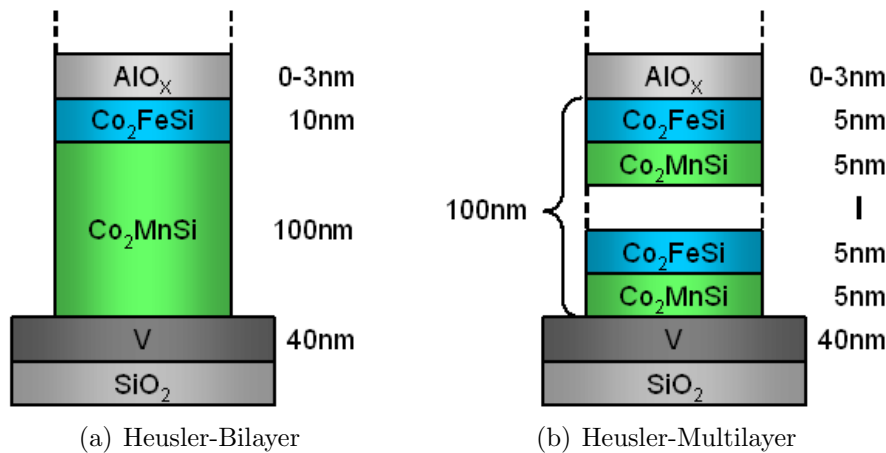


Abbildung 4.2: Schematischer Aufbau der beiden Heusler Mehrschichtsysteme im Vergleich.

Legierung nutzen zu können, liegt es nahe, die beiden bisher betrachteten Heusler-Legierungen zu kombinieren. Dabei soll die gute Ordnung der Co_2MnSi -Legierung auf die Co_2FeSi -Legierung übertragen werden, das Mn jedoch von der Grenzfläche zur Barriere ferngehalten werden. Unter Berücksichtigung der bisherigen Ergebnisse konnten folgende Schichtsysteme zur Erhöhung der Spinpolarisation entwickelt werden:

Heusler-Bilayer: Auf eine, wie im Standardschichtaufbau verwendete, 100nm dicke Schicht Co_2MnSi wird zusätzlich eine dünnere Schicht (10nm) des Co_2FeSi aufgetragen.

Heusler-Multilayer: Ein Multilagensystem aus den zwei Heusler-Legierungen wird erstellt, wobei die erste Lage aus Co_2MnSi und die letzte Lage an der Grenzfläche zur Barriere aus Co_2FeSi bestehen soll. Um ebenfalls eine etwa 100nm dicke Schicht der Heusler-Legierungen zu erhalten, werden abwechselnd 10x5nm der jeweiligen Legierung deponiert (siehe auch [42][43]).

Würde es zu einer Durchmischung der beiden Legierungen durch die Auslagerungsprozesse kommen, könnten sich neue Grenzflächeneffekte ergeben. Nach den Bandstrukturrechnungen² von BALKE *et al.* [23], ist die Fermi-Energie in beiden Heusler-Legierungen nicht mittig in der Bandlücke zu finden. Im Fall des Co_2MnSi ist diese zur Valenzbandkante hin verschoben, bei

²Die Bandstrukturrechnungen erfolgten nach der LDA+U-Methode

Co_2FeSi liegt sie nahe der Leitungsbandkante. Demnach könnte eine Kombination der beiden Legierungen eine Verschiebung der Fermi-Energie E_F in die Mitte der Bandlücke bewirken, wodurch eine größere Stabilität des halbmetallischen Charakters erreicht werden könnte. Weitere Ausführungen hierzu finden sich in Kapitel 8.

Die Ergebnisse der Charakterisierung des Heusler Zweilagenschichtsystems werden im nächsten Kapitel diskutiert, die entsprechende Auswertung des Multilagenschichtsystems in Kapitel 6.

Kapitel 5

Charakterisierung des Heusler-Bilayers

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse des Heusler-Bilayers dargestellt und diskutiert. Der verwendete Schichtaufbau entspricht im Wesentlichen dem Standardschichtaufbau aus Kapitel 3.4 und kann der Abbildung 4.2 entnommen werden. Um eine größtmögliche Vergleichbarkeit zu erhalten, wurden die gleichen Prozessparameter verwendet, wie sie bei der Herstellung der einfachen Heusler-MTJs verwendet wurden. Die Temperatur für den *in situ* Auslagerungsprozess betrug 380°C. Bei der Messung der Transporteigenschaften dieser Probe ergibt sich in Abhängigkeit der Barrierenschichtdicke ein Verlauf wie er in Abbildung 5.1 dargestellt ist. Bei Raumtemperatur ergibt sich eine maximale TMR-Amplitude von 25% für eine Aluminium Schichtdicke von 1,2nm. Der mittlere Flächenwiderstand für Elemente entsprechender Barrierendicke beträgt etwa $500\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$ und ist damit vergleichbar mit den Flächenwiderständen der einfachen Co_2FeSi MTJs, jedoch um mehr als eine Größenordnung kleiner gegenüber den Schichtsystemen mit Co_2MnSi ¹.

Der Vergleich dieser Schichtdickenabhängigkeit weist ebenfalls eine große Ähnlichkeit zur Abhängigkeit der einfachen Co_2FeSi -Schicht auf (Abbildung 4.1). Auch hier ist nur eine langsame Abnahme der TMR-Amplituden mit zunehmender Barrierendicke beobachtbar. Lediglich eine kleine Verschiebung hin zu dünneren Barrieren unterscheidet die beiden Schichtsysteme. Eine Erhöhung der Spinpolarisation konnte durch diesen Schichtaufbau jedoch nicht erreicht werden.

Ein interessanter Aspekt ist die beobachtbare Umkehrung der TMR-Effektamplitude für sehr hohe negative Spannungen, d. h. für tunnelnde

¹Die Flächenwiderstände der Systeme mit Co_2FeSi lagen bei optimaler Barrierendicke bei $600\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$, die für die Co_2MnSi Systeme bei mehr als $10\text{G}\Omega\mu\text{m}^2$.

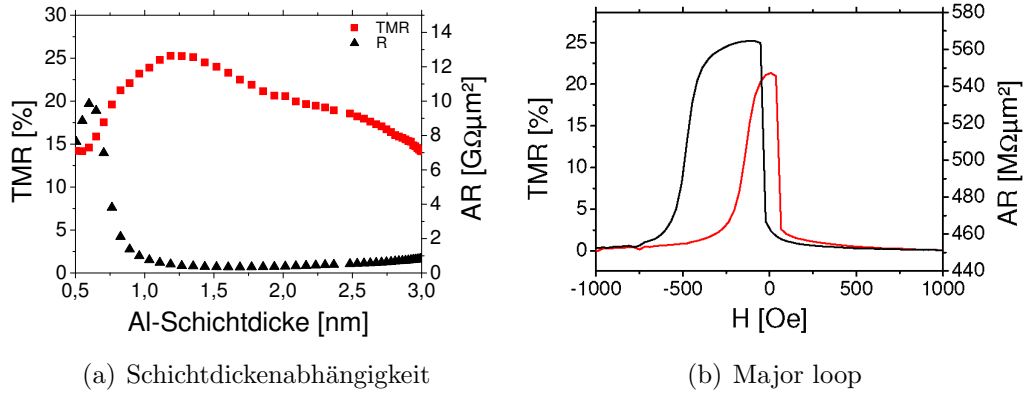


Abbildung 5.1: Transportmessungen des Bilayer-Systems (V(40nm)/-Co₂MnSi(100nm)/Co₂FeSi(10nm)/Al(0-3nm)+*obere Elektrode*) a) Abhängigkeit der TMR-Effektamplitude und des mittleren Flächenwiderstandes AR von der Al-Schichtdicke. b) Typischer Verlauf einer Magnetowiderstandsmessung für eine optimale Al-Schichtdicke (1,2nm).

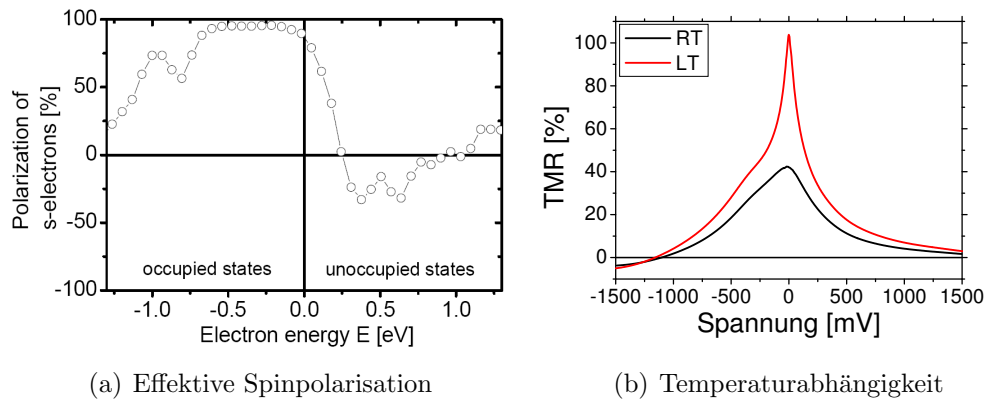


Abbildung 5.2: a) Effektive Spinpolarisation der s-Elektronen in einer perfekt geordneten Co₂MnSi -Legierung. b) TMR-Abhängigkeit von der Spannung bei Raumtemperatur (RT) und tiefer Temperatur (LT) für das Schichtsystem mit einfacher Co₂MnSi-Elektrode (V(40nm)/Co₂MnSi(100nm)/Al(2,3nm)+*obere Elektrode*). In beiden Fällen ist eine ausgeprägte Schulter bei etwa -300mV zu beobachten. Der Umkehrpunkt der Effektamplitude liegt für RT bei -1110mV und für LT bei -1160mV.

Elektronen aus der Co-Fe-Elektrode in die Heusler-Elektrode. Eine solche Umkehrung konnte bereits an MTJs mit anderen Heusler-Legierungen, wie $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{AlO}_x/\text{CoFe}$ [44][45] und $\text{Co}_2\text{MnGe}/\text{MgO}/\text{CoFe}$ [46] beobachtet werden. Auch die nicht Heusler-Systeme $\text{Co}/\text{SrTiO}_3/\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_3$ von DE TERESA *et al.* [47], $\text{Fe}/\text{MgO}/\text{Fe}$ von TIUSAN *et al.* [48], $\text{Co}/\text{AlO}/\text{Co}$ von MONTAIGNE *et al.* [49] und $\text{NiFe}/\text{TaO}/\text{AlO}/\text{NiFe}$ von SHARMA *et al.* [50] zeigten eine Invertierung der TMR-Amplitude.

Für das hier betrachtete System ergibt sich eine Spannungsabhängigkeit, die zwischen denen der einfachen Heusler-Legierungen liegt (Abbildung 5.3). Im Vergleich der Umkehrpunkte der TMR-Effektamplituden zeigt sich eine relative Positionierung in der Mitte zwischen diesen Systemen (siehe auch Tabelle 5.1).

Aus der Gleichung von JULIERE (Gleichung 1.5) wird deutlich, dass die TMR-Amplitude gerade dann verschwindet, wenn eine der Spinpolarisationen der verwendeten Elektroden Null ist, sich die Zustandsdichte der Minoritäts- und Majoritätselektronen also gerade aufhebt. Die Abbildung 5.2(a) zeigt die sich aus Bandstrukturechnungen² ergebende effektive Spinpolarisation der s-Elektronen³ in der Heusler-Legierung Co_2MnSi . Zum einen zeigt sich eine fast vollständige Spinpolarisation bei und unterhalb der Fermi-Energie E_F . Zum anderen reduziert sich für größer werdende Energien die effektive Polarisation und ist ab 250mV invertiert [44]. Die entsprechende TMR(U)-Abhängigkeit dieses Systems ist in Abbildung 5.2(b) für Raumtemperatur (RT) und tiefe Temperatur (LT) dargestellt. Dass die Umkehrung der Effektamplitude nicht direkt mit der effektiven Spinpolarisation einhergeht, kann auf den nicht scharf begrenzten Energiebereich der am Tunnelprozess beteiligten Elektronen zurückgeführt werden. Vielmehr ist von einer Mittelung der Spinpolarisation innerhalb eines Energiebereiches in Abhängigkeit der Spannung auszugehen. Die vorhandene Schulter bei etwa -300mV beider Messungen spiegelt jedoch die Umkehrung der Spinpolarisation gut wider.

Neben der Bandstruktur der Elektrode hängt die effektive Spinpolarität der tunnelnden Elektronen nach DE TERESA *et al.* [47] auch von dem verwendeten Barrierenmaterial ab. Auch die Struktur der verwendeten Barriere kann nach THOMAS *et al.* [51] Einfluss auf die Invertierung der Spinpolarisation haben. Des Weiteren zeigen auch die Berechnungen von MONTAIGNE *et al.* [49], dass sich auch für den einfachen Fall des freien Elektronenmodells eine komplexe TMR(U)-Charakteristik ergibt, die für spezielle Formen und Dicken der Barriere eine Umkehrung der Spinpolarisation zulässt.

²Diesem Ergebnis liegt eine Bandstrukturechnung mit dem SPR-KKR Programm zu Grunde [28].

³Diese dominieren den Tunnelprozess bei AlO_x basierten MTJs.

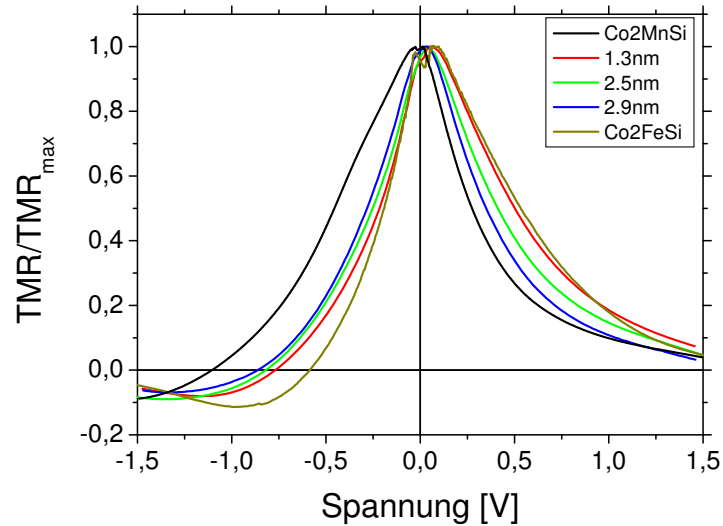


Abbildung 5.3: Bei Raumtemperatur gemessenen TMR(U)-Abhängigkeiten verschiedener Systeme im Vergleich. Deutlich erkennbar ist der eher geringe Einfluss der Barrierendicke (im Falle des Heusler-Bilayers) gegenüber der Änderung der Legierungszusammensetzung.

Probe	U(TMR=0)[mV]	Al-Schichtdicke[nm]
Co ₂ FeSi	-590	1.5
Bilayer	-770	1.3
Bilayer	-820	2.5
Bilayer	-870	2.9
Co ₂ MnSi	-1110	2.3

Tabelle 5.1: Umkehrung der TMR-Effektamplitude in Abhängigkeit der angelegten Spannung. Die Bestimmung dieser Punkte erfolgte für die vorher festgestellte optimale Barrierendicke.

Trotz der Komplexität dieses Effektes ist der Einfluss der Bandstruktur für die hier dargestellten Systeme mit amorpher AlO_x -Tunnelbarriere vordergründig. Wie SCHMALHORST *et al.* [44] unlängst für das System mit einfacher Co_2MnSi -Elektrode gezeigt haben, stellt sich eine Invertierung der TMR-Amplitude erst für die atomar geordnete Heusler-Legierung ein. Im Falle einer entsprechend vollständig ungeordneten *as prepared* Probe, deren Bandstruktur sich daher unterscheidet, konnte keine Umkehrung gemessen werden, obwohl die Tunnelcharakteristik und auch die Barrierenform nahezu identisch waren.

Dass die Barrierendicke bzw. die Barrierenform für das hier vorliegende Zweischichtsystem eine untergeordnete Rolle spielt, kann durch die durchgeführten Messungen belegt werden. Wie in Abbildung 5.3 dargestellt, ergeben sich für deutlich unterschiedliche Barrierendicken (1,3nm, 2,5nm und 2,9nm) lediglich leicht variierende Werte (siehe auch Tabelle 5.1) für die Inversion der TMR-Amplitude. Der Einfluss der verwendeten Heusler-Legierung, respektive der Bandstruktur, führt im Vergleich zu den einfachen Heusler-Systemen Co_2MnSi und Co_2FeSi , zu einer deutlich stärkeren Änderung. Für das System mit einfacher Co_2MnSi -Elektrode konnte ebenfalls eine von der Barrierendicke nahezu unabhängige Inversion der Effektamplitude beobachtet werden, die selbst für stark unter- bzw. überoxidierte Proben vorhanden ist [34]. Auch ein Effekt der Barrierenform kann zumindest für die Seite der Co-Fe-Gegenelektrode ausgeschlossen werden.

Des weiteren hängt die Spinpolarisation, wie SHANG *et al.* [52] zeigten auch von der Temperatur ab. Dass dieser Einfluss ebenso gering ist, belegen die Messungen bei unterschiedlichen Temperaturen (20K bis 300K). Wie auch aus der Abbildung 5.2(b) hervorgeht, liegt der Umkehrpunkt eines einfachen Co_2MnSi -Systems für tiefe Temperaturen bei -1160mV und für Raumtemperatur bei -1110mV. Im Falle der Heusler-Legierung Co_2FeSi ergibt sich für tiefe Temperaturen ein Wert von -610mV und für Raumtemperatur -590mV, wodurch hier die Abweichung in dem zu erwartenden Rahmen von $k_B T = 25\text{mV}$ liegt.

Abzuschätzen ist zuletzt noch der Einfluss des magnetischen Feldes während der Messungen auf die Bandstruktur. Wie in Kapitel 2.3 beschrieben, ergibt sich die TMR(U)-Abhängigkeit aus der Messung der UI-Kennlinie für die parallel und antiparallel ausgerichteten Elektroden. Die unterschiedlich starken Magnetfelder der jeweiligen Messungen führen zu einer relativen Verschiebung der Bänder einer Elektrode. Dieser Effekt kann hier jedoch vollständig vernachlässigt werden, da die Verschiebung für die benutzten Felder von etwa 2000Oe lediglich eine Verschiebung von der Größenordnung 10^{-2}meV in der Bandstruktur bewirken.

Durch Anlegen einer Spannung werden die Bänder der einen Elektrode re-

lativ zu den Bändern der anderen verschoben, wodurch bei Vernachlässigung des Barriereneinflusses und der Temperatur qualitativ auf die Position der Fermi-Energie in der Bandstruktur geschlossen werden kann. Da die unterschiedlichen Methoden zur Berechnung der Bandstruktur (siehe auch Kapitel 1.2.3) hierfür leicht andere Ergebnisse liefern, kann somit zumindest eine qualitative Überprüfung vollzogen werden. Nach Berechnungen von BALKE zeigt sich eine Lage der Fermi-Energie an der Valenzbandkante für Co_2MnSi und an der Leitungsbandkante für Co_2FeSi . Die in Bielefeld durchgeführten Rechnungen hingegen zeigen, dass die Fermi-Energie der Co_2MnSi -Legierung an der Leitungsbandkante liegt und sie im Falle von Co_2FeSi weiter zu positiven Energien verschoben ist. Trotz der unterschiedlichen Ergebnisse kann der Trend der sich aus den Messungen ergebenden Lage der Fermi-Energie für die Berechnungen nachvollzogen werden.

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass sich hinsichtlich der TMR-Effektamplitude keine Verbesserung durch die Verwendung des Zweilagensystems ergeben hat. Trotz eines offenbar nicht optimal geordneten Systems ist in diesem Schichtsystem jedoch auch eine Umkehrung des TMR-Effekts durch Anlegen hoher negativer Spannungen feststellbar, wie bei MTJs mit einfachen Heusler-Elektroden. Der Vergleich mit den bisher betrachteten Systemen aus Co_2MnSi und Co_2FeSi zeigt, dass sich die Lage des Umkehrpunktes durch die Wahl des Elektrodenmaterials und damit dessen Bandstruktur stärker beeinflussen lässt als sie durch die Änderung der Barrierendicke oder Temperatur auftreten. Trotz sich ähnlich ergebender TMR-Effektamplituden in Abhängigkeit der Barrierendicke im Vergleich zu dem System mit einfacher Co_2FeSi -Elektrode, konnte, wie aus den Ergebnissen der Spannungsabhängigkeit hervorgeht, Einfluss auf die Bandstruktur genommen werden.

Nachdem in diesem Kapitel verdeutlicht wurde, dass eine Erhöhung der Spinpolarisation mit dem System eines Heusler-Bilayers nicht realisiert werden konnte, werden im nächsten Kapitel die Ergebnisse des Multilagensystems vorgestellt.

Kapitel 6

Heusler-Legierungen im Multilagensystem

Die Ergebnisse der hergestellten Heusler-Multilagen sind Inhalt dieses Kapitels. Zunächst wird das in Kapitel 4 vorgestellte Schichtsystem charakterisiert. Des Weiteren folgt ein Überblick über den Einfluss der verwendeten Schichtdicken und der relativen Zusammensetzung der beiden Heusler-Legierungen. Abschließend soll der Einfluss der Reihenfolge der verwendeten Legierungen diskutiert werden.

6.1 Charakterisierung des Heusler-Multilagenschichtsystems

Die Herstellung des hier untersuchten Schichtsystems fand im selben Zeitraum der im vorherigen Kapitel beschriebenen Probe statt. Es liegen daher absolut identische Prozessparameter vor, wodurch die optimale Vergleichbarkeit der Ergebnisse gewährleistet ist. Die einzelnen Prozessschritte entsprechen denen aus Kapitel 3.

Für das so präparierte Multilagensystem der beiden Heuslerlegierungen ergibt sich bei Raumtemperatur ein Verlauf der TMR-Amplitude in Abhängigkeit der Barrierenschichtdicke (siehe Abbildung 6.1(a)). Bis zu einer Barrierendicke von 0.8nm gesputtertem Aluminium ist kein TMR messbar. Mit zunehmender Barrierendicke kann ein rascher Anstieg der Effektamplituden festgestellt werden bis zu einem Maximum von 42% (entsprechend 114% bei 17K) bei einer Schichtdicke von 1.6nm (Abbildung 6.1(b)). Durch Anwendung von JULLIERES-Formel (Gleichung 1.5) ergibt dies eine Spinpolarisation von

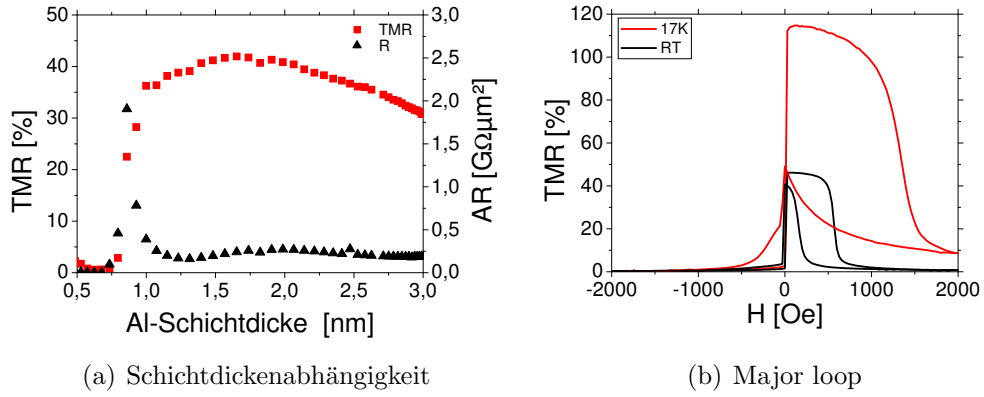


Abbildung 6.1: a) TMR und AR in Abhängigkeit der Al-Schichtdicke. b) Typische Magnetowiderstandsmessung bei optimaler Barrierendicke für Raumtemperatur und 17K.

74%¹. Für dickere Barrierenschichten sind, wie auch schon bei den einfachen Co_2FeSi basierten MTJs und dem Bilayersystem aus Kapitel 5, über einen weiten Bereich noch hohe TMR-Effektamplituden messbar. Der mittlere Flächenwiderstand für die optimale Barrierendicke konnte im Vergleich zu dem vorher betrachteten System auf $250M\Omega\mu m^2$ reduziert werden. Auch im Falle der Multilagen-Struktur kann eine Umkehrung der TMR-Effektamplitude für hohe negative Spannungen beobachtet werden (siehe Abbildung 6.2(a)). Im Vergleich zu den bisher diskutierten Proben ist die benötigte Spannung für eine Inversion der Spinpolarität am höchsten (vergleiche Tabelle 6.1). Während die notwendige Spannung im Falle des Bilayers zwischen der der einfachen Schichtsysteme aus Co_2MnSi und Co_2FeSi liegt, ist nunmehr eine

¹Für die CoFe Gegenelektrode wird wieder eine Spinpolarisation von 49% angenommen [41].

Probe	U(TMR=0)[mV]	Al-Schichtdicke[nm]
Multilage	-1250	1.6
Co_2MnSi	-1110	2.3
Bilayer	-770	1.3
Co_2FeSi	-590	1.5

Tabelle 6.1: Umkehrung der TMR Effektamplitude in Abhängigkeit der Spannung.

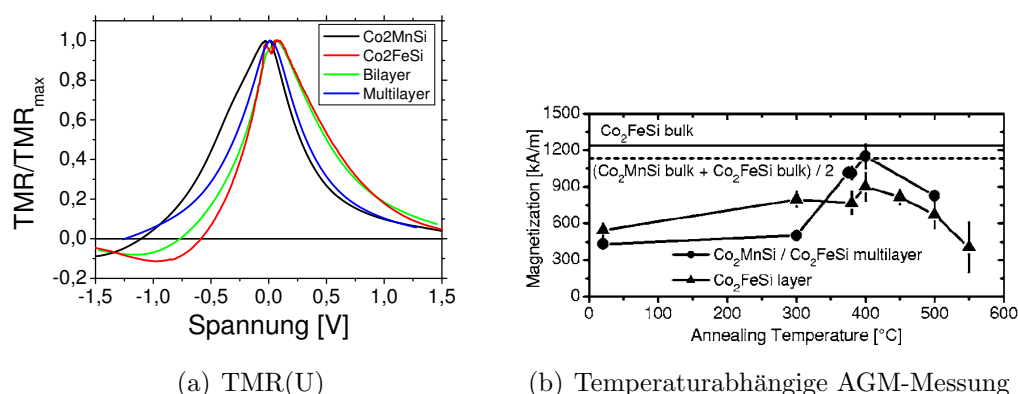


Abbildung 6.2: a) TMR(U)-Abhängigkeit der bisher betrachteten Systeme mit einfachen Co₂MnSi bzw. Co₂FeSi Elektroden, dem Bilayer aus Kapitel 5 und dem Multilagenschichtsystem im Vergleich b) AGM-Messung des Multilagenschichtsystems für verschiedene Auslagerungstemperaturen.

Spannung von -1250mV nötig.

Die Bestimmung der Magnetisierung mittels AGM ergibt für die *as prepared* Proben einen Wert von $449 \pm 9 \text{ kA/m}$ und für die optimal geheizte Probe (eine Stunde bei 400°C) einen Wert von $1225 \pm 142 \text{ kA/m}$. Dies entspricht, im Rahmen des angegebenen Fehlers, dem theoretisch zu erwarteten Wert² von 1134 kA/m und weist daher auf ein atomar geordnetes System hin. Im Vergleich mit dem einfachen Co₂FeSi-Schichtsystem zeigt sich eine deutliche Ordnungssteigerung. Wie der Abbildung 6.2(b) zu entnehmen ist, nimmt die Magnetisierung bei höheren Temperaturen wieder ab.

Die durchgeführten XRD-Messungen an dieser Probe (siehe Abbildung 6.3(a)) zeigen eine (110)-Texturierung des Mehrschichtsystems. Der Vergleich der *as prepared* Probe mit der optimal geheizten Probe zeigt einen deutlichen Intensitätsanstieg des Heusler-Peaks in (220)-Richtung ($2\theta \approx 45^\circ$) durch den Auslagerungsprozess. Hiernach ergibt sich für die kombinierten Heusler-Legierungen im Multilagenschichtsystem eine Gitterkonstante a von $5,64 \text{ \AA}$, die nahezu identisch zu der experimentell bestimmten Gitterkonstanten der einzelnen Legierungen ist ($a_{\text{Co}_2\text{MnSi}} = 5,65 \text{ \AA}$ [8] und $a_{\text{Co}_2\text{FeSi}} = 5,65 \text{ \AA}$ [42]) und damit der von WURMEHL *et al.* [40] berichteten Gitterkonstante für Co₂FeSi entspricht.

Dass es sich bei diesem Multilagenschichtsystem auch nach dem Auslagerungsprozess noch um ein Mehrschichtsystem handelt, belegen die TEM-Auf-

²Dieses ergibt sich als Mittelwert aus den vorhergesagten Werten für Co₂MnSi und Co₂FeSi [40].

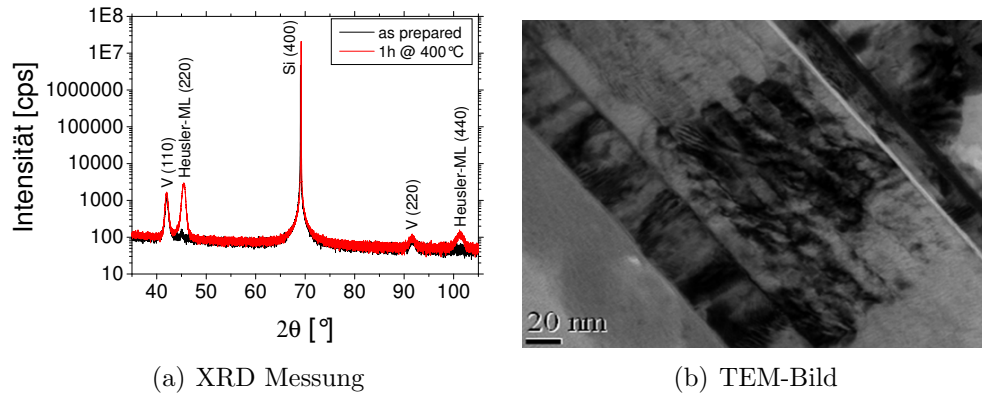


Abbildung 6.3: a) XRD Messungen des Multilagensystems. Nach dem Auslagern für 1h bei 400°C ist ein deutlicher Anstieg des Heuslerpeaks bei etwa 45° zu beobachten. b) Die TEM-Aufnahme zeigt, dass auch nach dem Auslagerungsprozess die Multilagenstruktur erhalten bleibt.

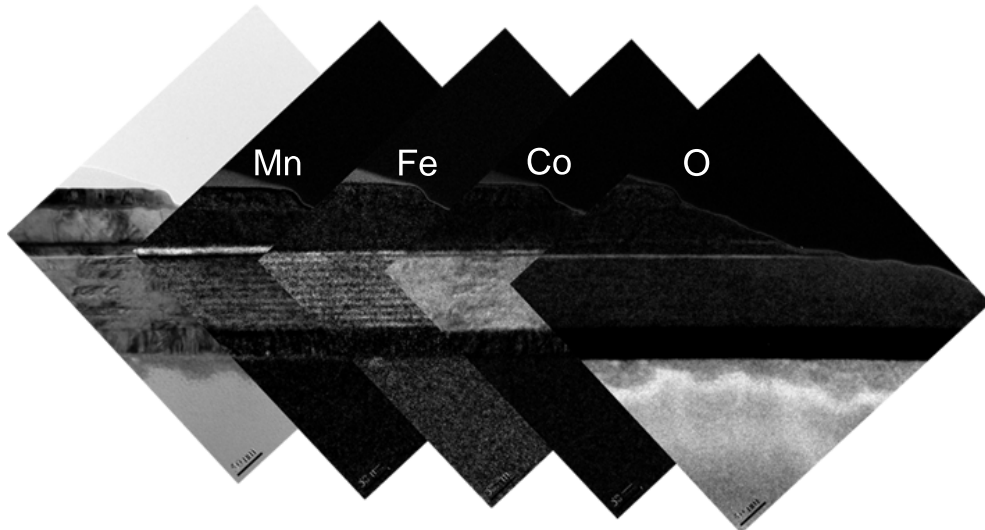


Abbildung 6.4: Elementspezifische Darstellung des Multilagensystems mit dem TEM unter Verwendung der EELS. Deutlich zu erkennen ist die Multilagenstruktur durch den Nachweis einzelner Schichten Fe und Mn im unteren Teil des Bildes. Ebenfalls gut durch den Nachweis von O zu erkennen ist die AlO_x -Tunnelbarriere.

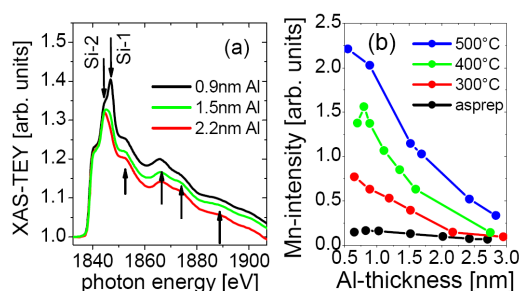


Abbildung 6.5: a) Zeigt das XAS-Spektrum der Si-K Kante des geheizten Multilagenschichtsystems für unterschiedliche Barrierendicke b) Vergleich der maximalen XAS-Intensität an der Mn-L₃-Kante für variierende Al-Schichtdicken in Abhängigkeit der Temperatur.

nahmen (Abbildung 6.3(b)), die am Forschungszentrum in Karlsruhe entstanden sind. Im unteren Teil des Bildes wird eine deutliche Trennung der einzelnen Heuslerschichten sichtbar. Explizit kann dieses durch die ebenfalls dargestellten *EELS* (*Electron Energy Loss Spectroscopy*)-Bilder (Abbildung 6.4) belegt werden. Hier können alternierende Schichten mit Mn, respektive Co₂MnSi und entsprechend Fe für Co₂FeSi ausgemacht werden. Auch die im oberen Teil des Bildes dargestellten Schichten CoFe und MnIr werden deutlich. Der Nachweis von O zeigt die Lage der AlO_x-Barriere an.

Zusammenfassend kann bisher also festgehalten werden, dass durch das Konzept des Multilagensystems eine Steigerung der atomaren Ordnung der Co₂FeSi-Legierung erreicht werden kann. Die maximale TMR-Effektamplitude der einfachen Co₂MnSi-MTJs konnte eingestellt werden und ist dabei weniger stark von der verwendeten Barrierendicke abhängig. Gegenüber bisherigen Ergebnissen konnte die nach JULLIERE berechnete Spinpolarität der Heusler-Elektrode auf nun 74% gesteigert werden.

Das nicht Erreichen der vollen 100% Spinpolarisation kann durch atomare Fehlstellungen an der Grenzfläche zur Barriere erklärt werden. Eine AUGER-Tiefenprofilanalyse hat gezeigt, dass bereits ab einer Temperatur von 300°C Mn-Diffusion zur Barrierengrenzfläche auftritt, die mit zunehmender Temperatur verstärkt wird.

Auch die von SCHMALHORST *et al.* [43] durchgeführten XAS-Messungen am ALS in Berkeley, USA, belegen die Diffusion von Mn an die untere Barrierengrenzfläche bei höheren Temperaturen, wo es bei dünneren Al-Schichten

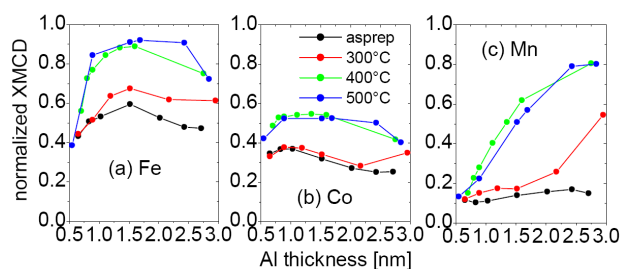


Abbildung 6.6: Relative XMCD Asymmetrien für a) Fe, b) Co und c) Mn in Abhängigkeit von Temperatur und Barrierenschichtdicke.

oxidiert (siehe Abbildung 6.5). Dargestellt sind ebenfalls XAS-Messungen an der Si-K Kante der ausgelagerten Probe. Zum einen belegen diese auch das Vorhandensein von SiO_2 (Si-1-Peak) an der Barrierengrenzfläche und repräsentieren zum anderen einen Peak unbesetzter p-Zustände in der Zustandsdichte der Heusler-Legierung (Si-2-Peak). Auf Grund des paramagnetischen Verhaltens von MnO bei Raumtemperatur nimmt das magnetische Moment mit zunehmender Konzentration von MnO ab (siehe Abbildung 6.6). Die entsprechenden Co- und Fe-XAS Messungen hingegen weisen ab einer Al-Dicke von 1nm ein metallisches Spektrum auf. Unterhalb dieser Schichtdicke kommt es zur Bildung von FeO_x , wodurch das magnetische Moment von Co und Fe an der Grenzfläche reduziert wird. Im Vergleich mit den schichtdickenabhängigen TMR-Messungen (Abbildung 6.1(a)) lässt sich verdeutlichen, dass die höchsten Effekte dort auftreten, wo das magnetische Moment von Co und Fe maximal ist. Durch Anwendung der Summenregeln [31] (siehe auch Kapitel 2.2.2) ergeben sich für die elementspezifischen Momente (pro 3d-Loch) an der Grenzfläche bei einer Temperatur von 10K folgende Werte:

$$\begin{aligned} m_{Co} &= 0,69\mu_B/n_d \\ m_{Fe} &= 1,05\mu_B/n_d \\ m_{Mn} &= 0,82\mu_B/n_d \end{aligned}$$

Mit der aus Bandstrukturrechnungen hervorgehenden Anzahl der 3d-Löcher für Co_2MnSi [53] ($n_d(\text{Co}) = 2,24\mu_B$, $n_d(\text{Mn}) = 4,52\mu_B$) und Co_2FeSi [43] ($n_d(\text{Co}) = 2,28\mu_B$, $n_d(\text{Mn}) = 3,48\mu_B$) ergibt sich für das Verhältnisse des magnetischen Moments $m_{Mn}/m_{Co} = 2,4$ was gegenüber dem theoretisch zu erwartenden Wert für Co_2MnSi von 2,9 deutlich reduziert ist. Dies kann durch die Bildung von MnO an der Grenzfläche zur Barriere erklärt werden. Das Verhältnis von $m_{Fe}/m_{Co} = 2,3$ hingegen liegt nahe des berechneten Wertes für Co_2FeSi von 2,1 [43]. Ebenfalls durchgeführte Messungen bei Raumtemperatur ergeben eine starke Temperaturabhängigkeit des jeweiligen magnetischen Moments. Erhält man für m_{Fe} eine Abnahme von lediglich 3% gegenüber dem Moment bei 10K, beträgt diese für m_{Co} bereits 7% und für m_{Mn} mehr als 15%. Eine vergleichbare Temperaturabhängigkeit konnte ebenfalls für die entsprechenden Momente der einfachen Heusler-Elektrode Co_2MnSi beobachtet werden. Hier ergab sich für m_{Co} bei Raumtemperatur eine Abnahme von 6% gegenüber einer Temperatur von 15K und für m_{Mn} eine Reduzierung von 10% [44].

In wie weit sich auch das magnetische Moment des Mn an der Grenzfläche zur Barriere bzw. die Spinpolarisation durch Variation der Heuslerschichtdicken beeinflussen lässt, ist Gegenstand des nächsten Abschnitts.

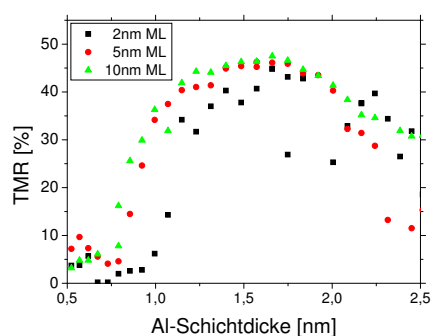


Abbildung 6.7: TMR und AR in Abhängigkeit der Al-Schichtdicke für Multilagensysteme mit 2nm, 5nm und 10nm Einzelschichtdicken im Vergleich.

6.2 Variation der Heuslerschichtdicken

Im nächsten Schritt wurden Proben hergestellt, die es ermöglichen, den Einfluss der verwendeten Schichtdicken der einzelnen Legierungsschichten zu untersuchen. Die Gesamt-Heuslerschicht sollte, bei verwendeten Einzelschichtdicken von 2nm, 5nm und 10nm, ebenfalls 100nm betragen. Hieraus ergeben sich im Falle der 2nm dicken Schichten 25 Wiederholungen, bei 5nm, wie bisher 10, und bei 10nm nur noch 5 Wiederholungen. Wie die Abbildung 6.7 mit den Ergebnissen der Magnetowiderstandsmessungen in Abhängigkeit der Barrierendicke zeigt, fällt der Schichtdikeneinfluss der einzelnen Heuslerlagen gering aus. Bezüglich der maximalen TMR-Effektamplitude lässt sich lediglich ein geringer Unterschied ausmachen. Für alle drei Schichtsysteme findet sich das Maximum bei einer gesputterten Al-Schichtdicke von etwa 1,7nm und beträgt zwischen 44,8% (für je 2nm Schichtdicken) und 47,5% (für je 10nm Schichtdicken). Betrachtet man hingegen die minimale Barrierendicken ab der ein Effekt zu messen ist, lässt sich ein Trend ausmachen. Für zunehmende Einzelschichtdicken gibt es eine Verschiebung von 1,0nm hin zu kleineren Barrierendicken (0,8nm), wobei jedoch das Maximum von diesem Trend weitgehend unbeeinflusst bleibt. Auffällig ist die starke Streuung der gemessenen Werte für die Probe mit den 2nm dicken Einzelschichten. Trotz identischer Herstellung mit gleichen Prozessparametern, stellte sich das Kontaktieren der Elemente dieser Probe schwieriger dar. Durch die hohe Anzahl der Einzelschichten ergeben sich entsprechend mehr Grenzflächen. Durch herstellungsbedingte Pausen von bis zu 90 Sekunden³ zwischen den einzelnen Schichten ist eine stärkere Verunreinigung und höhere Oberflächenrauigkeit zu vermuten. Die gemessenen Transporteigenschaften hängen daher stark von der Qualität des individuell gemessenen Elements ab. Die Einzelschichtdicken

³Die Pause ergibt sich durch den Transport der Probe innerhalb der Prozesskammer. Durch Optimierungen der Steuerung konnte diese Zeit auf inzwischen 30 Sekunden deutlich reduziert werden.

an sich haben jedoch eher einen geringen Einfluss.

Die im Vergleich zu der Probe des vorangegangenen Kapitels leichte Erhöhung der maximalen TMR-Amplitude kann auf eine Optimierung des Ofens, der für die *in situ* Auslagerung verwendet wird, zurückgeführt werden. Durch den Einbau eines Hitzeschildes kann für diese Proben von einer leicht höheren Temperatur (etwa 400°C) ausgegangen werden⁴. Die durchgeführten Magnetowiderstandsmessungen haben jedoch keine eindeutige Auswirkung der Heusler-Schichtdicken auf die Spinpolarisation ergeben.

6.3 Variation der Stöchiometrie

Bisher wurden lediglich Systeme betrachtet, die aus gleichen Teilen Co_2MnSi und Co_2FeSi bestehen. In diesem Kapitel soll nun der Einfluss der Zusammensetzung dieses Multilagen-Systems diskutiert werden. Hierfür wurde die Schichtdicke des Co_2MnSi in den MTJs konstant bei 5nm gehalten und die Dicke von Co_2FeSi mit der Keil-Technik über eine laterale Ausdehnung von 5cm von 0nm bis 10nm variiert. Auch in diesem Schichtsystem beginnt die Multilage zunächst mit der Co_2MnSi -Legierung und schließt mit Co_2FeSi zur Barrierengrenzfläche ab, um eine Segregation des Mn zu unterdrücken. Für die Barriere der hier diskutierten Probe wurde eine Dicke von 1,6nm gesputtertem Aluminium verwendet, welches anschließend durch ECR Plasma Oxidation für 150 Sekunden oxidiert wurde. Die Ergebnisse der Magnetowiderstandsmessungen sind in Abbildung 6.8(a) zusammengefasst. Es ist ein deutlicher Anstieg der TMR-Effektamplitude hin zu kleineren Co_2FeSi -Schichtdicken zu erkennen. Mit zunehmender Co_2FeSi -Schichtdicke an der Grenzfläche zur Barriere verringert sich die TMR-Effektamplitude von 47% (Abbildung 6.8(b)) bei 1nm zu 30% bei 9nm. Auch für dieses System zeigt sich für große negative Spannung eine Inversion der TMR-Effektamplitude. Des Weiteren kann ein eindeutiger Trend des Inversionspunktes in Abhängigkeit der Co_2FeSi -Schichtdicke ausgemacht werden (vergleiche Abbildung 6.9). Mit zunehmender Schichtdicke kann die Spannung, die für eine Umkehrung der TMR-Effektamplitude notwendig ist, von -1340mV auf -980mV über die Zusammensetzung variiert werden. Da hier überall die gleiche AlO_x -Schichtdicke vorliegt, kann diese Abhängigkeit der unterschiedlichen Nulldurchgänge auf eine sich verändernde Bandstruktur zurück geführt werden.

Die erhaltenen Werte (siehe Tabelle 6.2) fügen sich gut in die bisherigen

⁴Die Einstellung der Temperatur erfolgt über die Leistungseinstellung des verwendeten Netzteils. Diese wird dann während des gesamten Heizprozesses konstant gehalten. Die Temperatur ergibt sich aus einer im Vorfeld aufgenommen Kennlinie (siehe Abbildung 3.1).

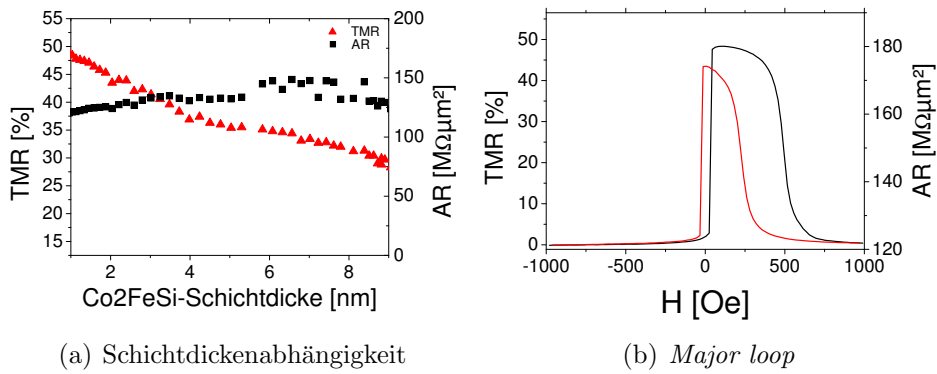


Abbildung 6.8: a) Einfluss der Co₂FeSi-Schichtdicke im Multilagensystem auf die TMR-Effektamplitude. Mit zunehmender Schichtdicke nimmt der Effekt ab. b) Typischer *major loop* an der Stelle mit 1nm Co₂FeSi

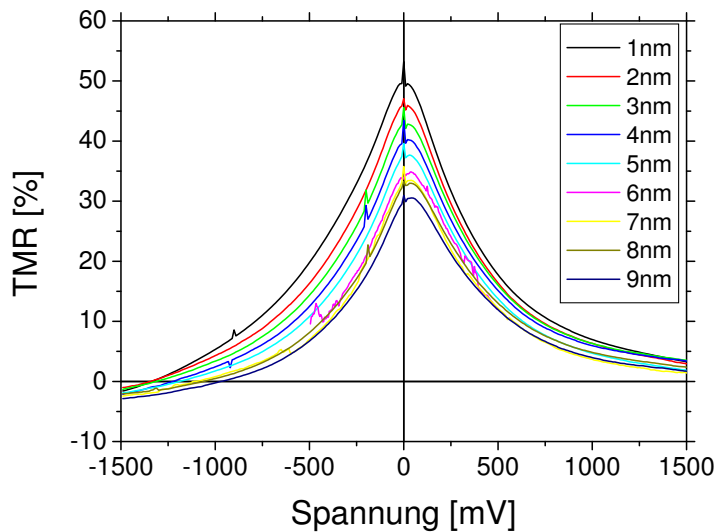


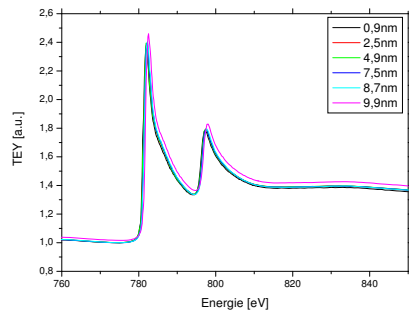
Abbildung 6.9: Spannungsabhängigkeit des TMR. Mit zunehmender Co₂FeSi-Schichtdicke verringert sich die für die Inversion des TMR benötigte Spannung.

Probe/Schichtdicke	U(TMR=0)	Al-Schichtdicke[nm]
Co ₂ MnSi	-1110	2.3
1nm	-1340	1.6
2nm	-1340	1.6
3nm	-1310	1.6
4nm	-1230	1.6
5nm	-1190	1.6
6nm	-1170	1.6
7nm	-1120	1.6
8nm	-1060	1.6
9nm	-980	1.6
Bilayer	-770	1.3
Co ₂ FeSi	-590	1.5

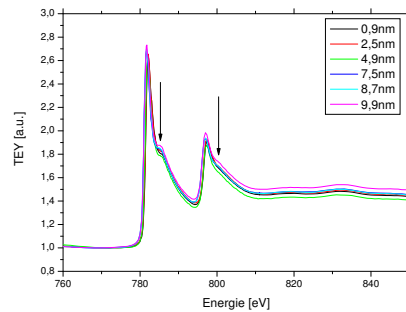
Tabelle 6.2: Umkehrung der TMR-Effektamplitude in Abhängigkeit von der angelegten Spannung

Ergebnisse ein. Das leicht abweichende Ergebnis im Falle der 5nm dicken Co₂FeSi-Schicht im Vergleich zu dem vorher diskutierten Multilagenschichtsystem aus Kapitel 6.1 muss auf die durch die Modifikation des Ofens leicht veränderten Prozessparameter zurückgeführt werden. Die hier verwendete höhere Auslagerungstemperatur von 425°C führt offensichtlich wieder zu einer Reduzierung der TMR-Amplitude. Der sich aus den Messungen ergebende Trend ist qualitativ jedoch konsistent. Aus den bisherigen Messungen kann weiter festgehalten werden, dass hohe TMR-Effektamplituden dann auftreten, wenn für die Inversion des TMR-Effekts auch höhere negative Spannungen nötig sind.

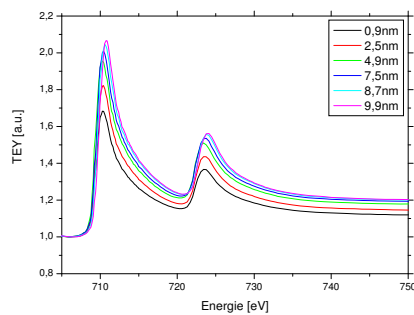
Wie schon zu Beginn des Kapitels gezeigt, lassen sich durch XAS- und XMCD-Messungen zusätzliche Informationen über die Qualität der Grenzfläche zur Barriere sammeln. Die hierfür bereitgestellten Proben wurden mit identischen Prozessparametern hergestellt, lediglich die zweite Elektrode oberhalb der Barriere wurde ausgelassen und der Auslagerungsprozess fand in einem externen Ofen statt. Die Messungen wurden von SCHMALHORST und SACHER ebenfalls am ALS in Berkeley, USA, durchgeführt. Die entsprechenden Spektren von Co, Fe und Mn der durchgeführten XAS-Messungen an den jeweiligen L_{2,3}-Kanten können der Abbildung 6.10 entnommen werden. Die XAS Intensität wurde hier definiert als $(I^+ + I^-)/2$, der XMCD-Effekt ergibt sich aus der Differenz $(I^+ - I^-)$. In Übereinstimmung zu früheren Untersuchungen von SCHMALHORST *et al.* [53] an Co₂MnSi-MTJs, findet sich auch hier für das Co-Spektrum aller Schichtdicken der ausgelagerten Proben



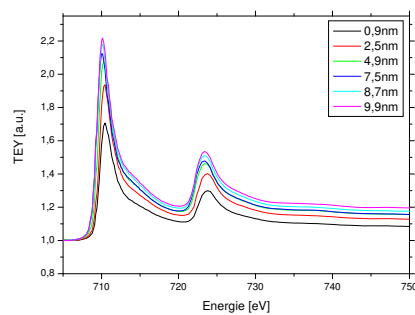
(a) XAS Co asprep



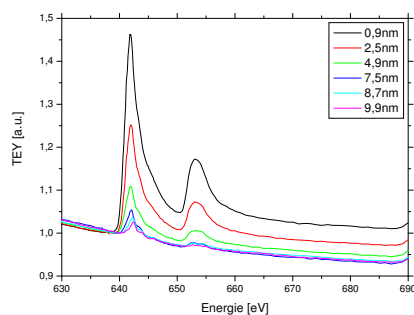
(b) XAS Co 425°C



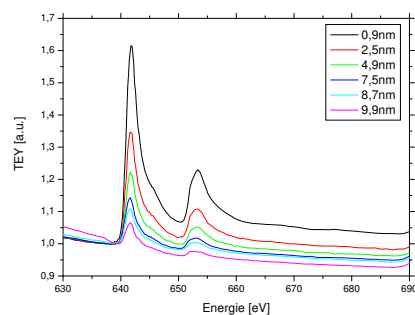
(c) XAS Fe asprep



(d) XAS Fe 425°C



(e) XAS Mn asprep



(f) XAS Mn 425°C

Abbildung 6.10: Elementspezifische XAS Spektren für verschieden Co_2FeSi -Schichtdicken im Überblick für *as prepared* und bei 425°C ausgelagerten Proben. Auffällig ist die Bildung von MnO bei dickeren Co_2FeSi -Schichten.

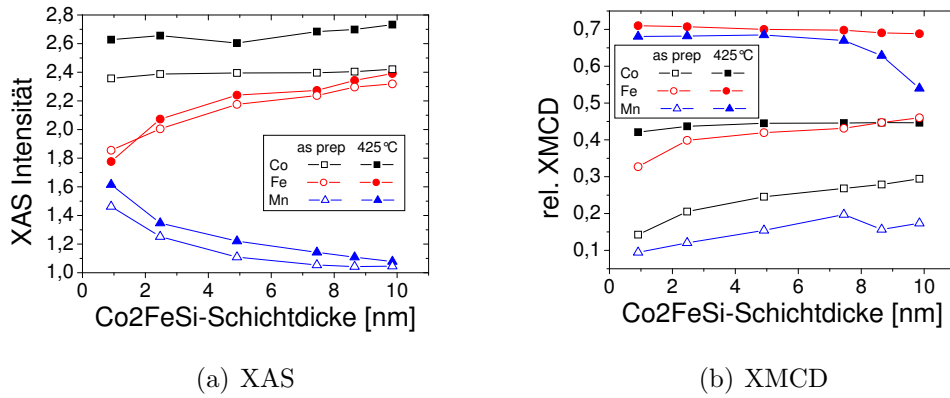


Abbildung 6.11: Darstellung der XAS Intensitäten in Abhängigkeit der Co₂FeSi-Schichtdicke im Vergleich mit den relativen XMCD Signalen, die sich aus der auf die Intensität normierten gemessenen Asymmetrie ergeben.

eine Schulter (siehe Pfeil) einige eV oberhalb der L₃-Kante, die der hohen atomaren und magnetischen Ordnung des Co gleichgestellt werden kann. Im Falle des Mn erhält man für dünne Schichten Co₂FeSi ein metallisches Spektrum, welches für dickere Schichten, sowohl für die *as prepared* als auch die geheizte Probe, Spuren von MnO aufweist [54]. Hierzu im Vergleich zeigen die Fe XAS-Messungen ein typisch metallisches Fe Spektrum.

Die Abbildung 6.11(a) zeigt die elementspezifischen Intensitäten, die sich an den jeweiligen L₃-Kanten ergeben. Deutlich erkennbar ist auch hier der Verlauf des Keils. Mit zunehmender Co₂FeSi-Schichtdicke steigt die Intensität von Fe, während die Mn-Intensität wie zu erwarten abklingt. Zu beachten ist hier jedoch die durch den Auslagerungsprozess bedingte leichte Segregation von Mn, die bei einer Schichtdicke von 1 nm Co₂FeSi auftritt und zu einer Reduzierung von Fe im Vergleich zu der *as prepared*-Probe führt. Für Co ist, wie zu erwarten, ein nahezu konstantes Niveau in beiden Proben zu beobachten. Neben der Ausbildung einer Schulter im Co-Spektrum oberhalb der L₃-Kante für die ausgelagerte Probe, ist gleichzeitig auch eine Schmälerung des Peaks und eine entsprechende Erhöhung der Intensität zu beobachten.

Betrachtet man analog die elementspezifischen, relativen XMCD-Effekte, kann sowohl für Co, als auch für Fe und Mn ein eher gleichbleibendes magnetisches Moment über den Verlauf des Keils ausgemacht werden, welches für die ausgelagerten Proben jedoch eine deutliche Steigerung gegenüber den *as prepared* Proben erfährt. Der Anstieg des relativen Co XMCD-Signals für die *as prepared* Probe ist auf den kleineren Beitrag von m_{Co} in der

Co₂MnSi-Legierung gegenüber der unausgelagerten Co₂FeSi-Legierung zurück zu führen. Die Abnahme des magnetischen Moments von Mn für dicke Co₂FeSi-Schichten in der ausgelagerten Probe könnte durch das immer schwächer werdende Signal des metallischen Mn aus den tieferen Schichten gegenüber einer immer vorhanden geringen Konzentration von MnO unmittelbar an der Grenzfläche zur Barriere begründet werden. Auch das Vorhandensein von MnO innerhalb der Korngrenzen, die das metallische Spektrum des tiefer liegenden Mn überlagern, ist vorstellbar. Für den *as prepared*-Zustand ist auch das Vorhandensein von metallischem Mn in den Korngrenzen denkbar, welches ferromagnetisch an das Co₂FeSi gekoppelt ist. Mit zunehmender Co₂FeSi-Schichtdicke stellt sich dann eine relative Steigerung des Moments von Mn ein.

Berechnet man durch Anwendung der Summenregeln (Kapitel 2.2.2) das elementspezifische Moment an der Stelle der gemessenen höchsten TMR-Amplituden, so ergeben sich bei Raumtemperatur und einer Co₂FeSi-Schichtdicke von 1nm folgende Werte:

$$\begin{aligned} m_{Co} &= 0,54\mu_B/nd \\ m_{Fe} &= 0,68\mu_B/nd \\ m_{Mn} &= 0,49\mu_B/nd \end{aligned}$$

Unter Berücksichtigung der in Kapitel 6.1 diskutierten unterschiedlichen Temperaturabhängigkeiten des jeweiligen magnetischen Moments ergeben sich hier die Verhältnisse von $m_{Mn}/m_{Co} = 1,9$ und $m_{Fe}/m_{Co} = 1,9^5$. In Relation zu den aus Bandstrukturrechnungen erhaltenen Werten von 2,9 für Co₂MnSi und 2,1 für Co₂FeSi, sowie in Bezug zu den in Kapitel 6.1 dargestellten Werten ($m_{Mn}/m_{Co} = 2,4$, $m_{Fe}/m_{Co} = 2,3$, ist hier eine weitere Abnahme feststellbar. Wie auch bei dem Vergleich der TMR-Amplituden diskutiert, liegt dies in der höheren Auslagerungstemperatur von 425°C begründet. Eine entsprechende Untersuchung der Bulk magnetisierung ist auf Grund der keilförmigen Co₂FeSi-Schichten für diese Probe leider nicht möglich.

6.4 Einfluss der Reihenfolge

Abschließend soll nun noch der Einfluss der Schichtreihenfolge untersucht werden. Dazu wurde ein zu denen im vorherigen Abschnitt analoges Schichtsystem hergestellt, bei dem allerdings die Reihenfolge der Heuslerschichten getauscht wurde. Nach dem Vanadium *seedlayer* wurde also zunächst

⁵Für die Anzahl der 3d-Löcher wurden wieder folgende Werte benutzt: $n_d(Co) = 2,24\mu_B$, $n_d(Mn) = 4,52\mu_B$ und $n_d(Co) = 2,28\mu_B$, $n_d(Mn) = 3,48\mu_B$.

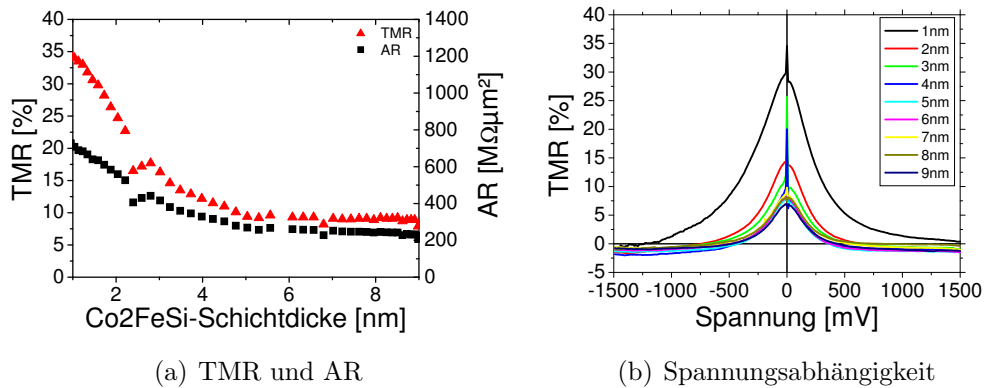


Abbildung 6.12: a) Abhängigkeit der Effektamplitude und des mittleren Widerstandes von der Co₂FeSi-Schichtdicke. Für verschwindendes Co₂FeSi stellen sich höhere Effekte bei höheren Flächenwiderständen ein. Für Co₂FeSi-Schichtdicken oberhalb von 5nm ist keine Änderung mehr feststellbar. b) Verlauf der Spannungsabhängigkeiten für unterschiedliche Schichtdicken Co₂FeSi. Mit abnehmender Schichtdicke reduziert sich auch die Spannung zur Umkehrung der TMR-Effektamplitude. Auch für positive Spannung ist hier eine Umkehrung zu beobachten.

Co₂FeSi deponiert und danach Co₂MnSi. Aus den Erfahrungen der einfachen Co₂FeSi-Schichtsysteme ist hier erneut eine schlechtere Rekristallisation der Heusler-Legierung bei der direkten Aufbringung auf den *V seedlayer* zu erwarten. Unklar ist jedoch, ob diese durch die Multilagenstruktur ausgeglichen werden kann.

Wie erwartet fällt das Maximum deutlich geringer aus als es für Multilagensysteme mit Co₂FeSi an der Grenzfläche zur Barriere der Fall ist (siehe Abbildung 6.12(a)). Das Maximum der TMR-Amplitude ist auch hier bei den geringsten Co₂FeSi-Schichtdicken zu finden. Bei einer Dicke von 1nm ergibt sich ein Wert von 34% der mit weiter zunehmender Schichtdicke deutlich reduziert wird. Ab einer Schichtdicke von etwa 5nm ist keine Änderung zu beobachten. Der mittlere Flächenwiderstand verläuft ebenso wie die TMR-Effektamplitude und liegt mit $200M\Omega\mu m^2$ für dicke Schichten leicht über dem des vorherigen Systems. Mit abnehmender Co₂FeSi-Schichtdicke wächst dieser jedoch auf bis zu $700M\Omega\mu m^2$ an. Der Vergleich der TMR-Effektamplitude der dünnsten Co₂FeSi-Schichten mit denen der einfachen Co₂MnSi-MTJs ist durchaus stimmig und lässt ähnliche Werte für verschwindendes Co₂FeSi sowohl für TMR als auch für mittleren Flächenwiderstand vermuten.

Bei der Abhängigkeit der TMR-Amplitude von der Spannung lässt sich

Schichtdicke	U-(TMR=0)	U+(TMR=0)
Co ₂ MnSi	-1110	-
1nm	-1240	-
2nm	-750	630
3nm	-700	580
4nm	-440	410
5nm	-430	360
6nm	-500	370
7nm	-600	550
8nm	-650	820
9nm	-480	450
Co ₂ FeSi	-590	-

Tabelle 6.3: Umkehrung der TMR Effektamplitude für hohe Spannungen in Abhängigkeit der verwendeten Co₂FeSi-Schichtdicke

ebenfalls eine Inversion der Effektamplitude ausmachen. Der Verlauf für die unterschiedlichen Schichtdicken ist in Abbildung 6.12(b) dargestellt. Erhält man für 1nm dicke Schichten Co₂FeSi noch einen ähnlichen Verlauf, wie er schon für den Fall der einfachen Co₂MnSi-Schichten zu beobachten war (vergleiche Abbildung 5.3 bzw. 6.2), kann nunmehr mit zunehmender Co₂FeSi-Schichtdicken eine drastische Änderung des Inversionspunktes hin zu kleineren Spannungen erreicht werden.

Bereits ab einer Schichtdicke von 2nm Co₂FeSi fällt die Spannung, bei der ein invertierter TMR-Effekt messbar ist, deutlich ab und gibt den Verlauf der maximalen TMR-Amplitude (Abbildung 6.12(a)) wieder. Des weiteren ist nunmehr auch für positive Spannungen⁶ eine Umkehrung zu beobachten, welche ein Hinweis auf eine Inversion der effektiven Spinpolarisation auch unterhalb der Fermi-Energie sein könnte. Da die Art der Unordnung für das hier betrachtete System jedoch unklar ist, kann dies nicht durch Bandstrukturrechnungen nachvollzogen werden. Weitere Untersuchungen, die hierüber Aufschluss geben können stehen jedoch noch aus. Die jeweiligen Spannungen für die gemessenen Inversionspunkte können der Tabelle 6.3 entnommen werden.

⁶Positive Spannung bedeutet ein Tunneln der Elektronen aus der Heusler-Elektrode in die Co-Fe-Elektrode. Eine tatsächliche Umkehrung der Effektamplitude konnte durch Messung eines *major loops* bei +1200mV und -1200mV bestätigt werden.

6.5 Zusammenfassung

Es konnte gezeigt werden, dass durch die erfolgreiche Integration von Heusler-Mehrschichtsystemen in MTJs eine Steigerung der TMR-Effektamplitude erzielt werden kann. Die bisher besten Ergebnisse wurden durch eine dünne Co_2FeSi -Schicht in eben jenen Multilagen erreicht. Im Vergleich zu den einfachen Heusler-Elektroden konnte eine Steigerung der TMR-Effektamplitude von bisher 42% (108% bei 20K) auf nunmehr 47% erreicht werden, was einer Erhöhung der Spinpolarisation auf 74% entspricht. Die bisher beobachteten höchsten TMR-Effekte mit einer amorphen AlO_x -Barriere einer einzelnen Co_2MnSi -Elektrode wurden von OOGANE *et al.* berichtet. Sie erzielten eine TMR-Amplitude von 159% bei 2K, mit einer sich nach JULLIERE ergebenden Spinpolarisation von 89% für die Heusler-Legierung [55]. Durch die weitere Ersetzung der Gegenelektrode durch ebenfalls Co_2MnSi wurden sogar Amplituden von 570% bei 2K erzielt [56]. Bei Raumtemperatur hingegen ergab sich hier lediglich ein Wert von 67%. Erwähnenswert ist dabei, dass sich die berichteten Amplituden bei einer Spannung von 1mV gemessen wurden. Die in dieser Arbeit vorgestellten Werte wurden im Gegensatz dazu bei einer Spannung von 10mV erreicht. Auch muss darauf hingewiesen werden, dass die Systeme von OOGANE und SAKURABE eine Texturierung der Heusler-Legierung in (100)-Richtung aufweisen. Ob und in wie weit dies Einfluss auf den Tunnelprozess hat, ist derzeit noch unklar. Denkbar ist zumindest, dass sich eine Oberfläche mit (100)-Orientierung gegenüber einer (110) ausgerichteten Oberfläche als unempfindlicher gegenüber Unordnung erweisen könnte. Zusätzlich ist die im Vergleich geringere Spinpolarisation sicherlich auch durch die Präparationsbedingungen limitiert. Die langen Pausen durch den Heizprozess zwischen dem Auftragen der Barriere und der Co-Fe-Gegenelektrode führen zu starken Verunreinigungen, die sich negativ auf die Polarisation auswirken können.

Da es im vorliegenden Fall zu keiner Durchmischung der beiden Heusler-Legierungen kommt, bildet das Co_2FeSi eine Art Bufferlayer an der Barriere und reduziert dadurch die Segregation des Mn an die Grenzfläche. Wie die Untersuchungen an den Proben mit variierenden Co_2FeSi -Schichten zeigen, reduziert sich der TMR-Effekt jedoch gleichzeitig mit zunehmender Schichtdicke auf Grund der schlechteren Ordnungseigenschaften des Co_2FeSi .

Eine weitere Alternative zur Unterdrückung der Mn-Diffusion könnte durch den Austausch des Barrierenmaterials erreicht werden, wenn dieses über eine stärkere Sauerstoffbindung im Vergleich zu AlO_x verfügt. Diese Variante soll im nächsten Kapitel 7 im Ansatz kurz diskutiert werden.

Kapitel 7

Alternative Tunnelbarriere MgO

Bisherige Änderungen der MTJs bezogen sich lediglich auf die Änderung und Optimierung der Heusler-Elektrode. Da für den Tunnelprozess der Elektronen jedoch das vollständige System aus Ferromagnet/Isolator/Ferromagnet betrachtet werden muss, soll in diesem Kapitel die Änderung des Barrierenmaterials im Mittelpunkt stehen. Neben dem bislang üblichen amorphen AlO_x als Barriere, ist die Integration von kristallinem MgO in das Interesse aktueller Forschung gerückt. DJAYAPRAWIRA beschrieb einen deutlichen Sprung der TMR-Effektamplitude auf mehreren 100% bei Raumtemperatur für Elemente mit MgO und CoFeB-Elektroden [57].

Auch im Fall der bisher betrachteten Heusler-Legierungen ist MgO ein vielversprechender Kandidat als Barrierenmaterial. Die Gründe hierfür im Überblick:

- MgO liefert zur hier verwendeten Heusler-Legierung eine extrem gute Gitterübereinstimmung mit weniger als 5% Fehlanpassung bei Rotation des Gitters um 45° ($a_{\text{MgO}} = 4.21\text{\AA}$). Durch optimales Aufwachsen der Heuslerelektrode und der Barriere ist auf Grund der guten Gitterübereinstimmung von Co_2MnSi und MgO auch eine weitere Heuslerschicht als zweite Elektrode denkbar. Dadurch könnte ein Übergang zum kohärenten Tunneln möglich sein, wodurch deutlich höhere TMR-Amplituden zu erwarten sind.
- Das zur Verfügung stehende MgO liegt bereits als *target* vor und kann so direkt gesputtert werden¹. Dadurch entfällt der zusätzliche Oxidati-

¹Zwar gibt es auch Al_2O_3 -*targets* zu erwerben, in der Vergangenheit wurden jedoch auf Grund der porösen Materialeigenschaft des Oxids auf metallische Al-*targets* zurückgegriffen.

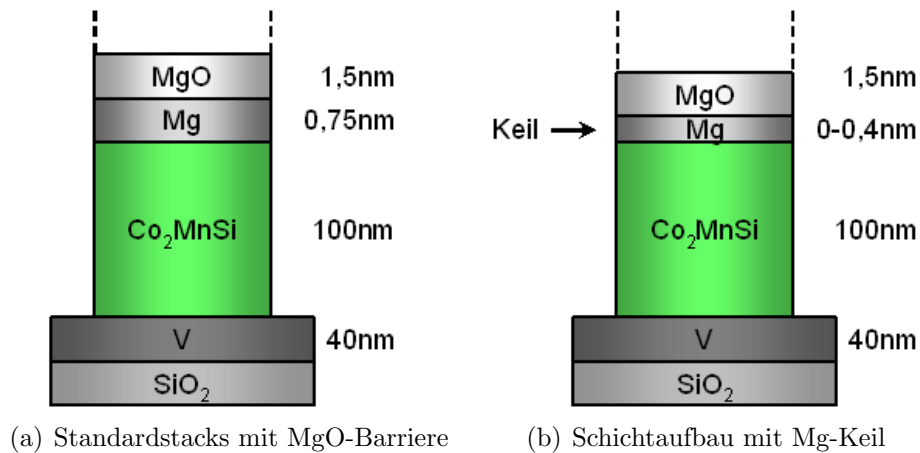


Abbildung 7.1: Schichtaufbauten der Tunnellelemente mit MgO-Barrieren. Die obere Elektrode bleibt hierbei unverändert und entspricht der aus Kapitel 3.4

onsschritt, wodurch Grenzflächenverunreinigungen reduziert würden.

- Die niedrigere Barrierenhöhe im Vergleich zu AlO_x -Barrieren führt zu einer Reduzierung des Widerstands, wodurch die Implementierung in späteren Anwendungen attraktiver wird.

7.1 Integration von MgO als Barrierenmaterial

Für die Integration von MgO in MTJs mit Heusler-Elektroden wurde zunächst auf die bisherigen Erfahrungen zurückgegriffen, die aus ersten Erfolgen in unserer Arbeitsgruppe hervorgegangen sind. Erste Ergebnisse haben gezeigt, dass eine dünne Schicht Mg unterhalb des MgO zu einer Erhöhung der TMR-Amplitude beiträgt. Daher wurden die folgende Schichtsysteme zur Erhöhung des TMR-Effekts hergestellt (siehe auch Abbildung 7.1).

1. Auf die einfache Heusler-Elektrode Co_2MnSi wird flächig 0,75nm Mg aufgetragen, gefolgt von 1,5nm MgO^2 . Diese Werte resultieren aus den

²1,5nm waren zum Zeitpunkt der Herstellung die obere Grenze für MgO-Barrieren. Diese resultierte aus einer maximal zulässigen Sputterzeit von 99.99 Sekunden pro Schicht. Zwar kann ein zweite Schicht MgO dieser hinzugefügt werden, die relativ lange Pause zwischen den einzelnen Schichten führte jedoch auf Grund der Verunreinigungen zu schlechteren Ergebnissen. Im Rahmen dieser Diplomarbeit konnte die Anlagensteuerung durch

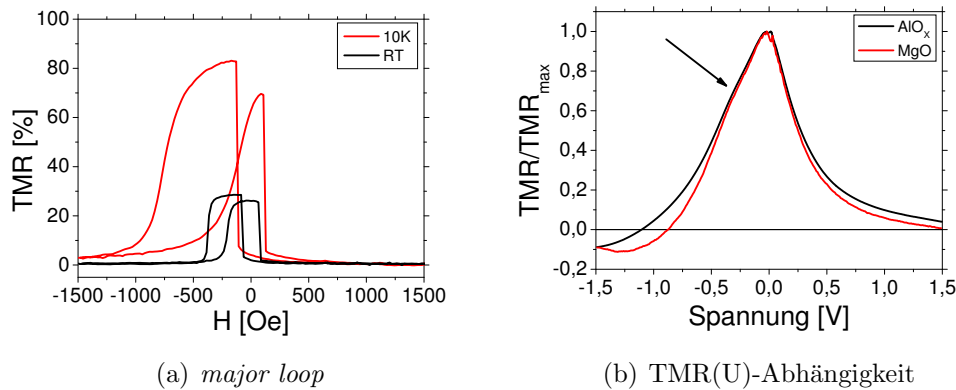


Abbildung 7.2: a) Verlauf eines typischen *major loops* für MTJs mit Heusler-Legierung Co_2MnSi und MgO für Raumtemperatur und 10K. b) Spannungsabhängigkeit des TMR-Effekts, mit Umkehrung der Effektamplitude ab -880mV.

zum Zeitpunkt der Herstellung besten Elementen mit CoFe-Elektroden [58].

2. Zur Überprüfung des Einflusses der Mg-Zwischenschicht wurde diese in einer zweiten Probe als Keil bis zu einer maximalen Schichtdicke von 0,4nm eingebracht.

Die Probenpräparation blieb, bis auf die für die Integration von Mg und MgO erforderlichen Änderungen, identisch zu den bislang diskutierten Proben, d. h. auch hier folgte nach der Deposition der Barriere zunächst der *in situ*-Auslagerungsprozess.

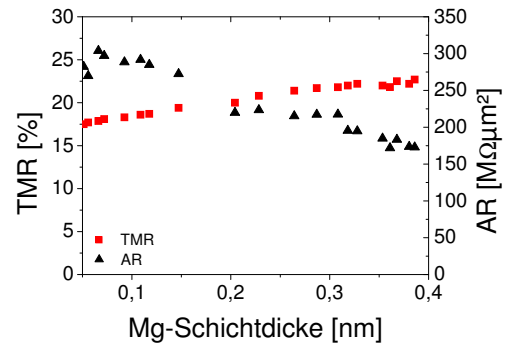
Das Ergebnis eines typischen *major loops* der ersten Probe kann der Abbildung 7.2(a) entnommen werden. Hierbei ergibt sich eine maximale Effektamplitude von 28% bei Raumtemperatur und entsprechend 83% bei 10K. Vergleicht man diese Werte mit den bisherigen Ergebnissen für AlO_x -Barrieren ist eine ähnlich verlaufende Temperaturabhängigkeit zu beobachten (siehe auch Abbildung 8.10). Für die mittleren Flächenwiderstände ergibt sich die zu erwartende Reduzierung gegenüber den bisherigen Systemen auf $120\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$ bei 10K und lediglich $65\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$ bei Raumtemperatur.

Bei Messung der TMR(U)-Abhängigkeit zeigt sich auch im Falle der MgO-Barriere eine Umkehrung der Effektamplitude für hohe negative Spannungen³ (siehe Abbildung 7.2(b)). Der Umkehrpunkt liegt hier bei -880mV. Der

die Unterstützung von THOMAS so umprogrammiert werden, dass die Pausen zwischen den Schichten auf weniger als die Hälfte reduziert werden konnten und nunmehr Sputterzeiten von bis zu 999,9 Sekunden je Schicht möglich sind.

³die Elektronen tunneln in die Heusler-Legierung

Abbildung 7.3: Steigerung der TMR-Amplitude für dickere Mg-Zwischenschichten bei abnehmenden mittleren Flächenwiderständen.



Vergleich mit den bisher betrachteten Spannungsabhängigkeiten für AlO_X -Barrieren und besonders der einfachen Co_2MnSi -Elektrode, zeigt auch in diesem Fall die charakteristische Schulter bei etwa -300mV , die den Vorzeichenwechsel der effektiven Spinpolarisation in der Bandstruktur wieder gibt.

Die Bestimmung der Magnetisierung mittels AGM ergab für dieses System $866 \pm 57 \text{kA/m}$, was etwa 85% des theoretisch vorhergesagten Wertes der Bulk magnetisierung für Co_2MnSi entspricht [40]. Im Vergleich zu früheren Systemen mit AlO_X -Barriere kann dies als typischer Wert ausgemacht werden.

7.2 Einfluss der Mg-Schichtdicke

Zur Überprüfung des Einflusses der unter der Barriere befindlichen Mg-Zwischenschicht, wurde diese als Keil in das Schichtsystem eingefügt. Es wurde untersucht, ob die zu erwartende Bildung von Mn-Oxiden reduziert werden kann und somit eine Steigerung der Spinpolarität möglich ist.

Die Ergebnisse der durchgeführten Transportmessungen in Abhängigkeit der Mg-Schichtdicke sind der Abbildung 7.3 zu entnehmen. Die gemessene TMR-Amplitude steigt mit zunehmender Mg-Schichtdicke von 17% auf 23% an. Des Weiteren ist eine deutliche Verringerung des mittleren Flächenwiderstands AR von $300 \text{M}\Omega\mu\text{m}^2$ auf $170 \text{M}\Omega\mu\text{m}^2$ zu beobachten.

Eine Verbesserung der Situation ist daher vermutlich erst durch deutlich dickere Mg-Schichten bei zusätzlicher Optimierung der Prozessparameter möglich.

7.3 Zusammenfassung

Ohne weitere Optimierungsverfahren konnte auch MgO als Barrierenmaterial in ein MTJ mit ferromagnetischer Heusler-Elektrode integriert werden.

Hierbei konnte eine maximale TMR-Effektamplitude von 28% bei Raumtemperatur (83% bei 10K) erreicht werden.

Verglichen mit den Ergebnissen anderer Arbeitsgruppen, die die Kombination von Heusler-Legierung und MgO-Tunnelbarriere erforschen, ist dies bereits ein akzeptables Ergebnis. MARUKAME *et al.* [46] erzielten mit der Legierung Co_2MnGe eine TMR-Effektamplitude von 14% bei Raumtemperatur, respektive 70% bei 7K. Durch weitere Optimierungsschritte und die Verwendung von Co_2MnSi konnten kürzlich von ISHIKAWA *et al.* [59] sogar Amplituden von 90% (192% bei 4,2K) erreicht werden. Hierbei ist jedoch zu erwähnen, dass dies hauptsächlich auf eine hohe Spinpolarisation der Gegenelektrode zurückzuführen ist. Für die Heusler-Legierung Co_2MnSi wurde eine Polarisation von 75% angegeben, was nahezu der Polarisation des verwendeten Multilayers im vorherigen Kapitel entspricht. Zudem ist es auch wahrscheinlich, dass die hohe Effektamplitude auf kohärentes Tunneln zurück zu führen ist, da bei ISHIKAWA *et al.* eine (100)-Texturierung vorlag. Die in diesem Kapitel dargestellten Schichtsysteme hingegen weisen eine (110)-Textur der Elektrode auf, die Orientierung der MgO-Barriere ist jedoch unklar. Auch die Unterbrechung des Sputterprozesses zur Auslagerung der Probe verhindert kohärentes Tunneln.

Dass eine Optimierung der MgO-Barriere sehr vielversprechend ist, belegen die neusten Ergebnisse in unserer Arbeitsgruppe. Durch die Änderung der Heusler-Texturierung in (100)-Orientierung und durch Sputtern der Barriere bei hohem Druck sind an MTJs mit $\text{Co}_2\text{FeSi}/\text{MgO}/\text{CoFe}$ TMR-Amplituden von 80% bei Raumtemperatur realisiert worden [60].

Kapitel 8

Die vierkomponentige Heusler-Legierung

$\text{Co}_2\text{Mn}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Si}$

Wie bereits mit dem Konzept des Multilagensystems gezeigt, können bei der Integration von Heusler-Legierungen in MTJs hohe TMR-Effektamplituden für niedrige Temperaturen erzielt werden [55][56], für die Realisierung in Anwendungen besteht jedoch die Herausforderung, diese auch bei Raumtemperatur zu erreichen. Hierbei zeigt sich die vierkomponentige Heusler-Legierung $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Si}$ als vielversprechende Variante. Diese Legierung gehört ebenfalls zu den vollen Heuslerlegierungen und liegt im kristallinen Zustand in der $L2_1$ -Struktur vor. Anstelle der reinen Mn oder Fe fcc-Gitter in den Legierungen Co_2MnSi oder Co_2FeSi , liegt nunmehr ein gemischtes fcc Untergitter FeMn vor.

Wie schon in Kapitel 4 erwähnt, liegt nach den von BALKE *et al.* [23] an den beiden Legierungen Co_2MnSi und Co_2FeSi durchgeführten Bandstrukturrechnungen¹ die Fermi-Energie E_F im Falle von Co_2MnSi an der Leitungsbandkante und ist für die Legierung Co_2FeSi hin zur Valenzbandkante verschoben. Durch thermische Effekte kann der halbmetallische Charakter dieser Legierungen daher leichter aufgehoben werden.

Mit der Variation der Konzentration x von Fe in der vierkomponentigen Heusler-Legierung $\text{Co}_2\text{Mn}_{1-x}\text{Fe}_x\text{Si}$ kann Einfluss auf die Position von E_F genommen werden. Wie der Abbildung 8.1 zu entnehmen ist, ergäbe sich aus Bandstrukturrechnungen von BALKE *et al.* für $x = 0.5$ eine Position von E_F direkt in der Mitte der berechneten Bandlücke[61]. Dadurch wird eine geringere Temperaturabhängigkeit der Spinpolarisation erwartbar, so dass höhere

¹Die hier durchgeführten Bandstrukturrechnungen basieren auf der LDA+U Methode.

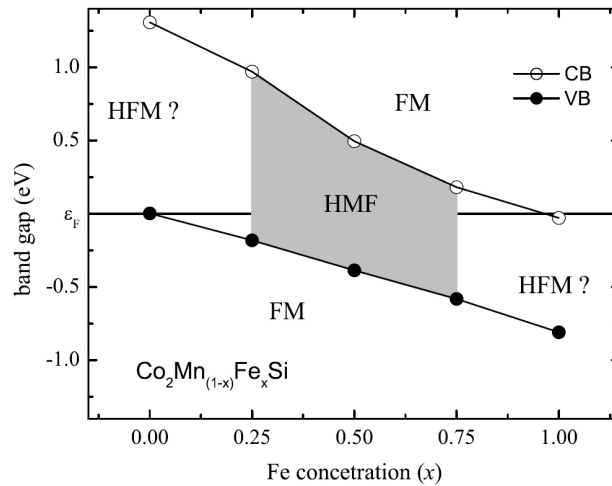


Abbildung 8.1: Lage der Fermi-Energie E_F im Minoritätsband relativ zum Leitungs- bzw. Valenzband in Abhängigkeit der Fe Konzentration x [23]. Für $x = 0,5$ liegt E_F hiernach mittig in der Bandlücke.

TMR-Amplituden bei erfolgreicher Integration in MTJs auch für Raumtemperatur zu erwarten sind.

8.1 Herstellung

Die Herstellung von der MTJs mit $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Si}$ geschah analog zu den beschriebenen Verfahren aus Kapitel 3. Als Sputtertarget diente ein von der Arbeitsgruppe um FELSER hergestelltes 2''-target² mit einer Zusammensetzung von 50% Co, 12,5% Mn, 12,5% Fe und 25% Si. Als Substrat wurden ebenfalls thermisch oxidierte SiO_2 wafer verwendet auf die zunächst 40nm Vanadium als *seedlayer* aufgetragen wurden. Zusätzlich stand zum Zeitpunkt der Präparation auch ein Chrom *target* zur Verfügung. Aufgrund der zu erwartenden geringeren Gitterfehlanspassung wurden ebenfalls einzelne Proben mit einem 40nm dicken Chrom-*seedlayer* als Referenzelemente hergestellt. Die genutzten Prozessparameter, sowie weitere Präparationsschritte sind mit den bisher beschriebenen identisch.

²Um qualitativ hochwertige Schichten mit einer möglichst geringen Verunreinigung der Grenzflächen bei der Benutzung der 2''-Quelle zu gewährleisten, war zunächst eine vollständige Implementierung dieser Quelle in die SPS-Steuerung der Sputteranlage nötig, die mit Unterstützung von THOMAS realisiert wurde.

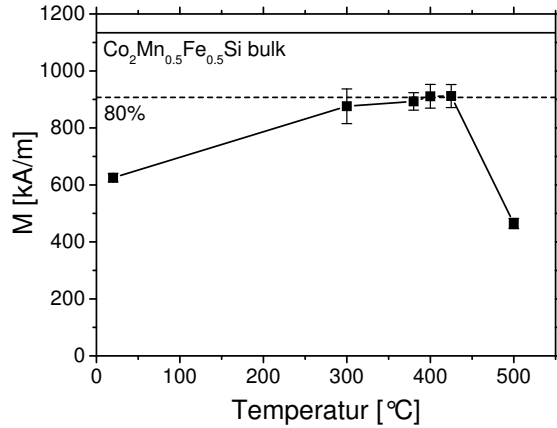
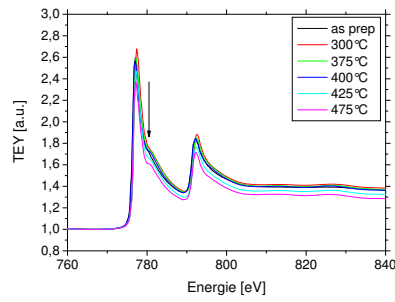


Abbildung 8.2:
Magnetisierungsmessung
in Abhängigkeit der Aus-
lagerungstemperatur bei
einem Schichtsystem mit *V*
seedlayer.

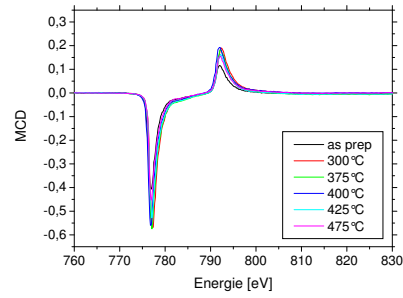
8.2 Magnetische Eigenschaften

Da eine hohe Magnetisierung in direktem Zusammenhang mit der Ordnung der Probe gebracht werden kann, wurden zunächst Proben mit *V seedlayer* bei unterschiedlicher Temperatur in einem Vakuumofen ausgelagert und anschließend mit dem AGM vermessen (vergleiche Abbildung 8.2). Hieraus geht hervor, dass sich ein magnetisches Moment von $625 \pm 15 \text{ kA/m}$ im ungeheizten Zustand und ein maximales magnetisches Moment von $911 \pm 41 \text{ kA/m}$ ($4,4 \mu_B$) bei einer Auslagerungstemperatur von 400°C einstellt. Dies entspricht etwa 80% des von BALKE vorhergesagten Wertes von $5,5 \mu_B$ [23]. Auf Grund dieses Ergebnisses wurde für die Herstellung der kompletten Tunnelelemente diese Temperatur für den *in situ*-Auslagerungsprozess verwandt.

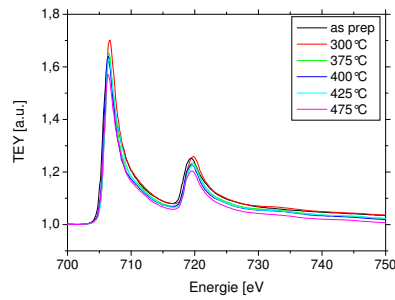
Für die Charakterisierung der elementspezifischen Eigenschaften der Heusler-Legierung an der Barrierengrenzfläche wurden außerdem *halbe*-MTJs (bis einschließlich der Barriere) hergestellt. Die Ergebnisse der von SCHMALHORST durchgeführten XAS-Messungen sind ebenso wie die sich daraus ergebenden XM-CD Asymmetrien in den Abbildungen 8.3(a) bis 8.3(f) dargestellt. Im Falle des Co XAS-Spektrums findet sich, wie schon die Untersuchungen der Multischichtsysteme gezeigt haben, eine deutlich ausgeprägte Schulter wenige eV oberhalb der L_3 -Kante, die sich für höhere Temperaturen zunehmend ausbildet und der atomaren Ordnung der Legierung zugesprochen werden kann. Das aufgenommene Fe-Spektrum zeigt ein typisch metallisches Verhalten, während sich im Spektrum von Mn deutlich ausgeprägte Peaks von MnO schon für niedrige Temperaturen zeigen. Die aufgetragenen XAS-Intensitäten an den jeweiligen L_3 -Kanten (vergleiche Abbildung 8.4(a)) zeigen die Diffusion von Mn ab einer Auslagerungstemperatur oberhalb von 400°C . Co und Fe hingegen sind mit zunehmender Temperatur im Grenzflächenbereich zur



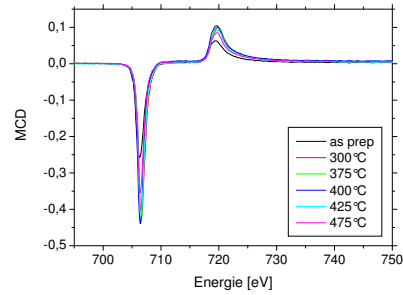
(a) XAS Co



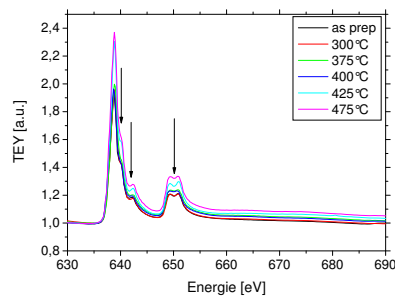
(b) XMCD Co



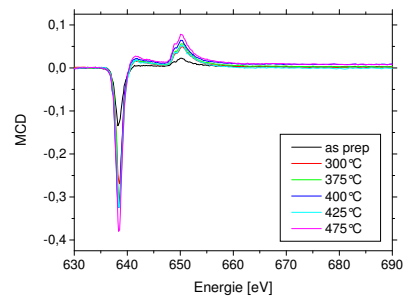
(c) XAS Fe



(d) XMCD Fe



(e) XAS Mn



(f) XMCD Mn

Abbildung 8.3: Elementspezifische XAS Spektren bei einer Al-Schichtdicke von 1,8nm für verschiedene Temperaturen im Überblick. Trotz des Nachweises von MnO bei allen Temperaturen, stellt sich jeweils ein hohes magnetisches Moment an der Barrierengrenzfläche ein.

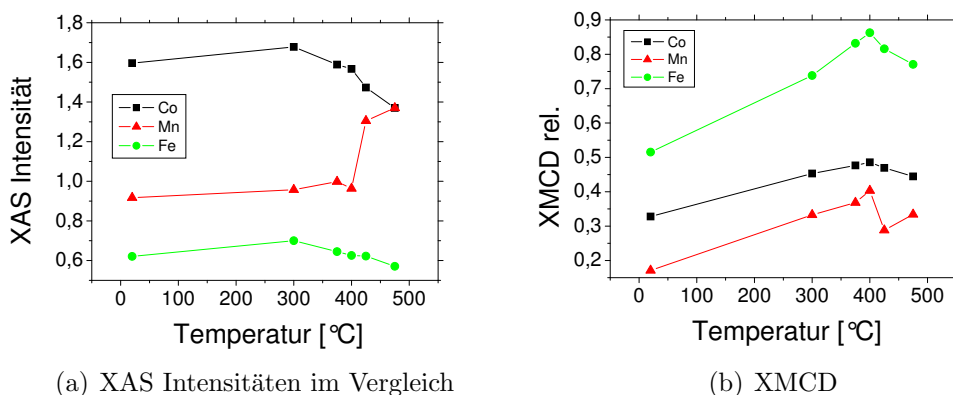


Abbildung 8.4: a) XAS Intensitäten in Abhängigkeit der Temperatur im Vergleich mit den relativen XMCD Signalen b). Ab einer Temperatur von 400°C ist eine Diffusion von Mn zur Grenzfläche und die Bildung von MnO zu beobachten, wodurch das magnetische Moment reduziert wird.

Barriere weniger präsent.

Die Entwicklung der relativen XMCD Asymmetrie (siehe Abbildung 8.4(b)), die qualitativ dem jeweiligen magnetischen Moment entspricht, zeigt, dass sich durch den Auslagerungsprozess bis zu einer Temperatur von 400°C eine deutliche Steigerung des Moments erzielen lässt. Die Reduzierung oberhalb dieser Temperatur kann mit der Diffusion von Mn und der Ausbildung von paramagnetischem MnO an der Barrierengrenzfläche begründet werden.

Durch die Anwendung der Summenregeln [31] (wie in Kapitel 2.2.2 beschrieben) ergeben sich für das elementspezifische Moment (pro 3d-Loch) an der Grenzfläche bei Raumtemperatur folgende Werte:

$$\begin{aligned} m_{Co} &= 0,51\mu_B/n_d \\ m_{Fe} &= 0,91\mu_B/n_d \\ m_{Mn} &= 0,54\mu_B/n_d \end{aligned}$$

Geht man hier von einer ähnlichen Temperaturabhängigkeit des jeweiligen magnetischen Moments wie in Kapitel 6.1 und 6.3 aus, erhält man mit $n_d(Co) = 2,33$, $n_d(Fe) = 3,39$ und $n_d(Mn) = 4,44$ für die jeweilige Anzahl der 3d-Löcher [62] die Verhältnisse $m_{Mn}/m_{Co} = 2,2$ und $m_{Fe}/m_{Co} = 2,5$. Auch hier kann die Reduzierung des magnetischen Moments von Mn durch die nachgewiesene Bildung von MnO an der Grenzfläche erklärt werden.

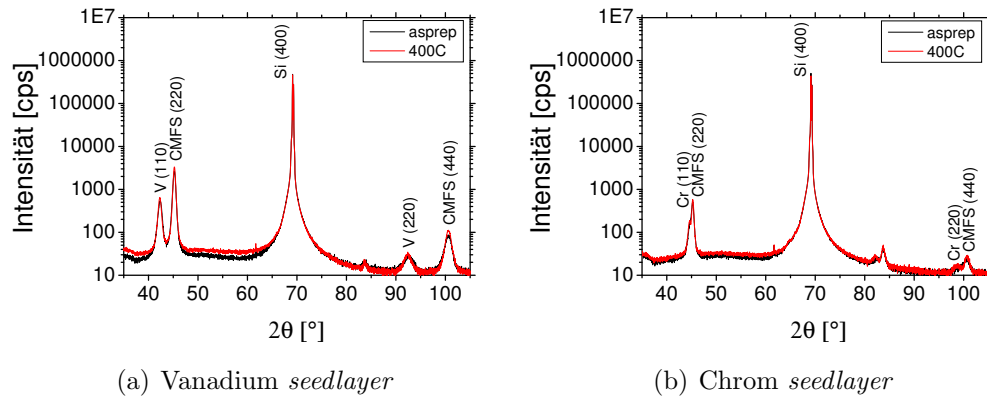


Abbildung 8.5: XRD-Messungen mit Vanadium *seedlayer* a) und Chrom *seedlayer* b). Deutlich die (220)-Textur der Heuslerlegierung bei etwa 45° . Vanadium bewirkt eine leicht höhere Texturierung. Durch Auslagerung der Proben für 1h bei 400°C kann in beiden Fällen keine deutliche Erhöhung der Texturierung festgestellt werden.

8.3 Strukturanalyse mittels XRD

Die durchgeführten XRD-Messungen zur experimentellen Bestimmung der Gitterkonstanten der hergestellten Proben mit der vierkomponentigen Heusler-Legierung $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Si}$ ergaben in guter Übereinstimmung zu den gemachten Untersuchungen von KALLMAYER *et al.* [63] ($a = 5.67\text{\AA}$) einen Wert von $5,66\text{\AA}$. Für die verwendeten *seedlayer* ergaben sich Gitterkonstanten für den *as prepared* Zustand (bzw. eine Stunde bei 400°C ausgelagert) von $3,01\text{\AA}$ ($3,02\text{\AA}$) für Vanadium und von $2,86\text{\AA}$ ($2,87\text{\AA}$) für Chrom. Beide *seedlayer* rufen, wie die Abbildungen 8.5(a) und 8.5(b) zeigen, eine (110)-Texturierung der Heusler-Legierung hervor.

Auf Grund der sehr geringen Gitterfehlpassung von unter 3% für Chrom gegenüber den mehr als 6% für Vanadium, sollte Chrom den geeigneteren *seedlayer* darstellen. Ein Vergleich der Intensitäten für die (220)-Richtung der Heusler-Legierung hingegen liefert eine höhere Texturierung durch die Verwendung von Vanadium. In beiden Fällen kann eine (220)-Texturierung schon für den *as prepared* Zustand der Probe festgestellt werden, die sich durch einen Auslagerungsprozess nur unwesentlich erhöhen lässt.

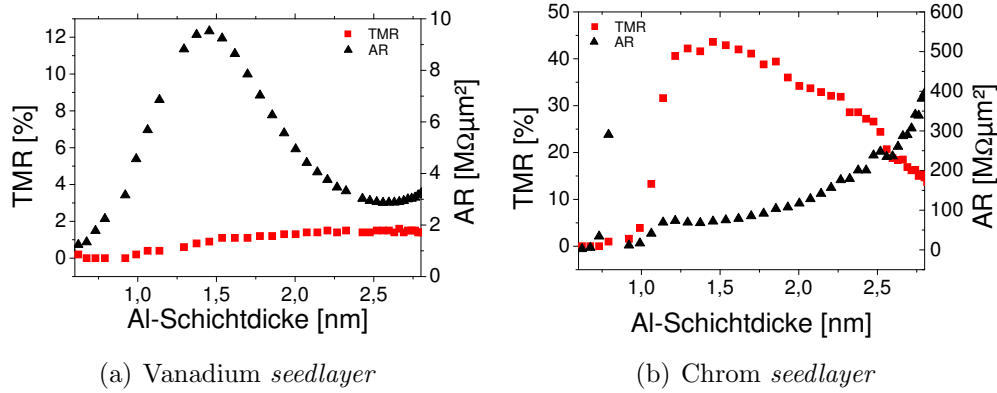
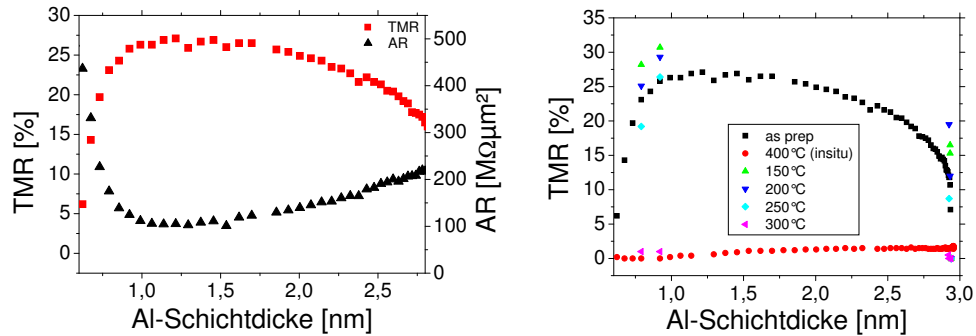


Abbildung 8.6: Abhängigkeit der Effektamplitude von der gesputterten Al-Schichtdicke für a) Vanadium *seedlayer* und b) Chrom *seedlayer*. Mit gleichen Prozessparametern sind nach der *in situ* Auslagerung für den Schichtaufbau mit Vanadium nur kleine TMR-Amplituden messbar.

8.4 Transportmessungen

Bei der Herstellung der vollen MTJs wurde zunächst an die Erfahrungen angeknüpft, die bei der Integration anderer Heusler-Legierungen in MTJs gesammelt wurden. Mit Ausnahme der Heusler-Legierung an sich, wurde ein identischer Schichtaufbau, wie er auch schon für Co_2MnSi , Co_2FeSi oder dem Multilagenschichtsystem benutzt wurde, gewählt. Als alternativen *seedlayer* zu Vanadium konnte nun auch erstmals Chrom eingesetzt werden. Aus den Ergebnissen der AGM-Messungen ergab sich eine optimale Auslagerungstemperatur von 400°C . Um ein Über- bzw. Unteroxidieren der Al-Barriere zu verhindern kam erneut die Keil-Technik zur Herstellung der Tunnelbarriere zum Einsatz.

Die jeweils gemessenen TMR-Amplituden in Abhängigkeit der Barrierendicke sind in der Abbildung 8.6 dargestellt. Hiernach ergeben sich die für diese Legierung höchsten TMR-Effektamplituden von 43% bei Raumtemperatur (100% bei 10K) für den Schichtaufbau mit verwendetem Chrom-*seedlayer* bei einer Barrierendicke von 1.5nm gesputtertem Al. Der Verlauf der Kurve ähnelt hierbei stark dem des Multilagenschichtsystems. Bis zu einer Al-Schichtdicke von etwa 1nm ist ein TMR-Effekt kaum feststellbar. Die gemessenen Amplituden werden mit zunehmender Schichtdicke rasch größer und fallen nach dem Maximum bei 1.5nm nur langsam wieder ab. Die gemessenen Elemente an der Stelle des Maximums haben einen mittleren Flächenwiderstand von etwa $100\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$ und sind damit fast identisch mit



(a) Vanadium *seedlayer* (as prep) (b) Änderung als Funktion der Temperatur

Abbildung 8.7: a) Für die ungeheizte Probe stellt sich eine vergleichbare Schichtdickenabhängigkeit dar, wie sie für den Chrom *seedlayer* zu beobachten war. b) Ab einer Temperatur von 250°C verringert sich die Effektamplitude der ausgewählten Elemente deutlich.

den gemessenen Widerständen der besten Elemente der Multilagenschichtsysteme aus Kapitel 6.3.

Die Probe mit dem Vanadium-*seedlayer* hingegen zeigt eine maximale TMR Amplitude von lediglich 1,5%. Auch die gemessenen Flächenwiderstände sind um mindestens eine Größenordnung kleiner, verglichen mit denen des Chrom-*seedlayers*. Hier scheint es wahrscheinlich, dass es durch den Auslagerungsvorgang zu Diffusionsprozessen gekommen ist. Im Falle der einfachen Co_2FeSi -Elektrode konnte die Diffusion von V ab einer Auslagerungstemperatur von 450°C beobachtet werden [42].

Zum besseren Verständnis wurde eine identisch hergestellte Probe untersucht, die jedoch keinerlei Heizprozessen unterzogen wurde. Das *pinning* der oberen Elektrode wurde in diesem Fall durch die Deposition in einem Magnetfeld realisiert. Die anschließend herkömmlich strukturierte Probe wurde dann in Schritten von 50°C in einem Vakuumofen ausgelagert und jeweils vermessen. Für die dem Ursprungszustand entsprechende Probe ergibt sich für die TMR-Amplitude in Abhängigkeit der Barrierendicke ein ganz ähnliches Verhalten, wie es sich auch schon für die mit Chrom hergestellten Proben (vergleiche Abbildung 8.7(a)) darstellt. Nach einem raschen Anstieg der Effektamplitude bei etwa 0,7nm ergibt sich ein Maximum von 26% bei einer Barrierenschichtdicke von 1,2nm mit einem mittleren Flächenwiderstand von ebenfalls $100M\Omega\mu\text{m}^2$, wie im Falle des Chrom-*seedlayers*.

Die schrittweise Erhöhung der Auslagerungstemperatur führt zunächst, wie in Abbildung 8.7(b) gezeigt, zu einer leichten Verbesserung der TMR

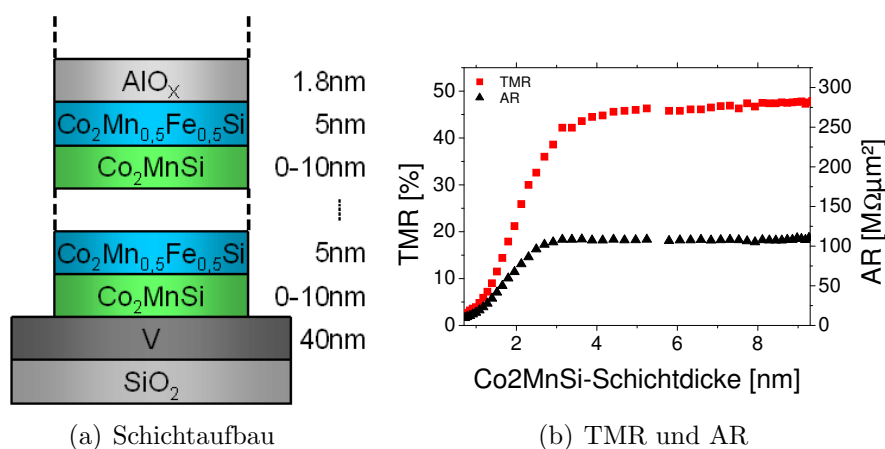


Abbildung 8.8: a) Schematischer Schichtaufbau des Multilagensystems. b) Darstellung der TMR-Effektamplitude und des Widerstandes im Multilagensystem als Funktion der Co_2MnSi -Schichtdicke. Für Schichtdicken größer 4nm stellen sich nahezu gleichbleibende Werte ein.

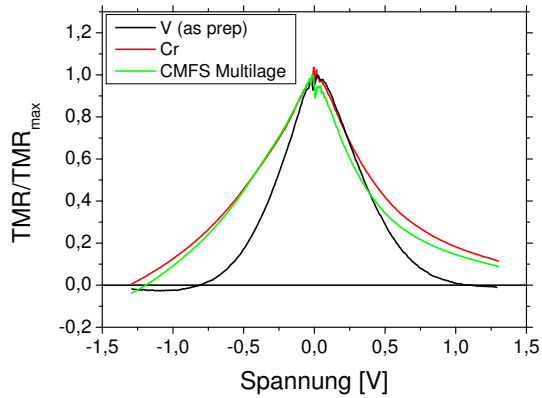
Amplitude mit maximal 30%. Ab einer Auslagerungstemperatur von 300°C ist jedoch eine deutliche Verringerung des TMR Effekts zu beobachten.

Ob es sich hierbei tatsächlich um einen vermuteten Diffusionsprozess des Vanadiums handelt, muss jedoch noch beispielsweise durch eine AUGER-Tiefenprofilanalyse geprüft werden. Wie die XAS-Messungen gezeigt haben, kann eine Diffusion des Mn bis zu einer Temperatur von 400°C ausgeschlossen werden. Auch ergibt sich bis zu dieser Temperatur keine Reduzierung der magnetischen Momente an der Grenzfläche zur Barriere aus der Auswertung der XMCD-Messung.

8.5 Integration in ein Multilagensystem mit der Heuslerlegierung Co_2MnSi

Zusätzlich zu den bisher hergestellten Systemen mit Vanadium bzw. Chrom als *seedlayer*, wurde auf Grund der in Kapitel 6 dargestellten Erfahrungen, insbesondere der potentiellen Ordnungssteigerung durch die Verwendung des Multilagensystems, ein ebenfalls kombiniertes Schichtsystem der Heusler-Legierungen Co_2MnSi und $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Si}$ erstellt (siehe Abbildung 8.8(a)). Um den Einfluss der Schichtdicke der zugefügten Heuslerlegierung zu verifizieren, wurde diese, analog zu der Vorgehensweise in Kapitel 6.3, als Keil mit Schichtdicken von 0-10nm eingefügt. Als *seedlayer* wurde in diesem Fall

Abbildung 8.9: Vergleich der TMR(U)-Abhängigkeit der hier betrachteten Schichtsysteme mit der vierkomponentigen Heusler-Legierung $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Si}$. Die *as prepared* Probe, die im Vergleich die kleinste TMR-Amplitude zeigte, hat einen deutlich geringeren Inversionspunkt.



auf Vanadium zurückgegriffen, da die durchaus positiven Ergebnisse der mit Chrom hergestellten Proben zum Zeitpunkt der Präparation noch nicht bekannt waren. Die Barriere bildet in diesem Schichtaufbau eine 1,8nm dicke Al-Schicht, die für 100 Sekunden plasmaoxidiert wurde.

Die Ergebnisse der Transportmessungen sind in Abbildung 8.8(b) dargestellt. Man erkennt einen deutlichen Anstieg der TMR-Amplitude mit zunehmender Co_2MnSi -Schichtdicke. Ab einer Dicke von etwa 4nm stagniert der Anstieg und geht über in ein Plateau, welches sich über alle gemessenen Schichtdicken ab 4nm erstreckt. Ein ähnlicher Effekt ist bei der Änderung des Flächenwiderstandes zu beobachten. Auch dieser geht ab einer Co_2MnSi -Schichtdicke von etwa 3nm in ein Plateau über. Die höchste resultierende TMR-Effektamplitude beträgt bei Raumtemperatur 47%, bei einem Flächenwiderstand von $110\text{M}\Omega\mu\text{m}^2$.

Ähnlich wie das Co_2FeSi im Multilagensystem aus Kapitel 6, das die Diffusion von Mn unterdrückt, fungiert das Co_2MnSi in diesem Fall scheinbar als Diffusionssperre des Vanadiums. Wie schon erwähnt muss dieses jedoch noch durch eine AUGER-Tiefenprofilanalyse bestätigt werden.

Messungen des TMR-Effekts in Abhängigkeit der Spannung zeigen abschließend auch für die vierkomponentige Heusler-Legierung, sowohl für Vanadium- (im *as prepared* Zustand) als auch für Chrom-*seedlayer*, eine Umkehrung der Spinpolarität für hohe negative Spannungen (Elektronen tunneln von der oberen CoFe-Elektrode in die Heusler-Legierung), wie sie auch schon bei den anderen Heusler-Legierungen beobachtet wurden (siehe Abbildung 8.9). Die jeweiligen Spannungen bei denen sich eine Inversion einstellt, können der Tabelle 8.1 entnommen werden. Auch hier spiegelt sich der Trend wider, dass sich hohe TMR-Amplituden ergeben, wenn die Umkehrung des TMR-Effekts erst bei hohen negativen Spannung beobachtbar ist.

Probe	U-(TMR=0)	U+(TMR=0)	Al-Schichtdicke
V (as prep)	-810	+1100	1.1nm
Cr*	-1300	-	1,5nm
Multilage	-1195	-	1.8nm

Tabelle 8.1: Umkehrung der TMR Effektamplitude in Abhängigkeit der Spannung. Bei der Messung der Spannungsabhängigkeit sind unterhalb von -1300mV keine Messungen für den Cr-*seedlayer* möglich. Der TMR-Effekt beträgt hier 0,2%.

8.6 Temperaturabhängigkeit

Zur Überprüfung, ob sich mittels Integration der vierkomponentigen Heuslerlegierung $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Si}$ in MTJs eine geringere Temperaturabhängigkeit der TMR-Amplitude verwirklichen lässt, wurden ebenfalls Transportmessungen bei tiefen Temperaturen bis 10K durchgeführt. Gemessen wurden zunächst lediglich die vielversprechendsten Elemente, also diejenigen mit einem Chrom-*seedlayer*.

Bei der Messung der TMR-Effektamplitude in Abhängigkeit der Umgebungstemperatur ergibt sich ein ähnlicher Verlauf wie bei der einfachen Heusler-Legierungen Co_2MnSi und dem Multilagensystem aus Kapitel 6, welcher sich von dem System ohne Heusler-Legierung (CoFeB) unterscheidet (siehe Abbildung 8.10). Wie die normierten Verläufe zeigen, konnte der gewünschte Effekt, die hohe Spinpolarität bei tiefen Temperaturen durch Verlagerung der Fermie-Energie E_F in die Mitte der Bandlücke des Minoritätbands auch für höhere Temperaturen zu erzielen, damit nicht erreicht werden, obwohl ansonsten hohe Effektamplituden feststellbar waren. Die Tatsache, dass trotz einer Verschiebung von E_F durch die Kombination verschiedener Legierungen keine Änderung der Temperaturabhängigkeit der Effektamplituden zu beobachten ist, zusammen mit der beobachteten starken Temperaturabhängigkeit der Grenzflächenmomente in den Systemen mit Co_2MnSi und $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Co}_2\text{FeSi}$, deutet auf starke Magnonenanregung bei höheren Temperaturen hin.

8.7 Zusammenfassung

Auch im Falle der vierkomponentigen Heusler-Legierung $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Si}$ war eine erfolgreiche Integration in MTJs möglich. Die höchsten TMR-Amplituden bei Raumtemperatur lieferten die Schichtsysteme mit dem Chrom-*seedlayer* ebenso, wie die aus dem Multilagensystem bestehenden Proben mit Co_2MnSi .

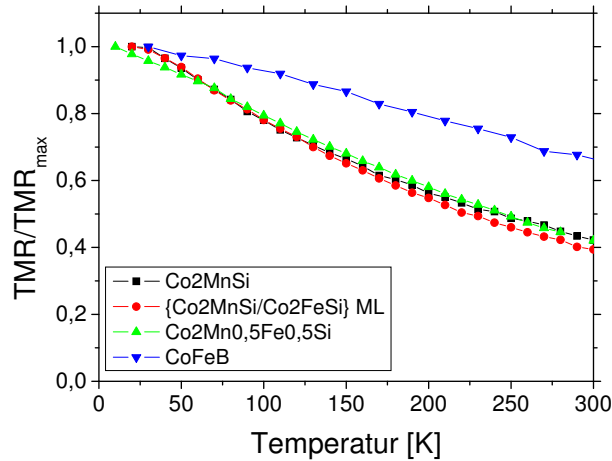


Abbildung 8.10: Temperaturabhängigkeit der TMR-Amplitude für die Heusler-Legierungen Co_2MnSi (auf V) und $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Si}$ (auf Cr), sowie dem Multilagensystem $\text{Co}_2\text{MnSi}/\text{Co}_2\text{FeSi}_{10}$ (auf V). Zum Vergleich die Temperaturabhängigkeit einer Standard-MTJ mit $\text{CoFeB}/\text{AlO}/\text{CoFeB}$.

Bei der Verwendung von Vanadium als *seedlayer* hingegen scheint es zu Diffusionsprozessen ab einer Temperatur von 300°C zu kommen. Die Grenzflächenmomente sind im Vergleich mit dem Multilagensystem aus Kapitel 6.1 reduziert. Da gegenüber Systemen mit bisher betrachteten Heusler-Legierungen keine andere Temperaturabhängigkeit der TMR-Amplituden zu beobachten ist, wie sie aus den Bandstrukturrechnungen von BALKE hervorgehen sollte, kann die Temperaturabhängigkeit daher nicht durch die Bandstruktur begründet werden.

Kapitel 9

Zusammenfassung

In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass durch die Integration von Heusler-Multilagensystemen in MTJs eine Erhöhung der TMR-Effektamplitude gegenüber den einfachen Heuslersystemen Co_2MnSi und Co_2FeSi erzielt werden kann. Begründet werden kann dieses durch die Induzierung der guten atomaren Ordnung von Co_2MnSi in die im Vergleich zum einfachen MTJ schlechter ordnende Co_2FeSi -Legierung. Gleichzeitig konnte hierdurch die starke Barrierenschichtdickenabhängigkeit der Co_2MnSi -Legierung, die auf die Ausbildung von MnO zurück zu führen ist, unterdrückt werden.

Zu Beginn konnte dargestellt werden, dass das Konzept der Multilagen gegenüber dem eines Zweischichtsystems zu bevorzugen ist. AGM- und XMCD-Messungen haben gezeigt, dass im Falle der Multilagen die theoretisch vorhergesagten Werte der Magnetisierung sowohl im Bulk als auch an der Grenzfläche zur Barriere erreicht wurden. Durch die sukzessive Optimierung des Schichtsystems konnte somit eine Steigerung der TMR-Amplitude von 25% für einfaches Co_2FeSi bzw. 42% für Co_2MnSi auf etwas unter 50% bei Raumtemperatur realisiert werden. Die sich hieraus ergebene Spinpolarisation beträgt 74%.

Ein weiterer wichtiger Aspekt dieser Arbeit ist die Beobachtung einer inversen TMR-Effektamplitude aller hier betrachteten Systeme, die durch Anlegen hoher Spannungen erzeugt werden kann. Zu diesem Zeitpunkt liegt die Vermutung nahe, dass es sich hierbei um einen Bandstruktureffekt der Heusler-Legierung handelt. Es konnte gezeigt werden, dass es zwar einen Einfluss der Barrierendicke gibt, dieser jedoch klein ausfällt gegenüber der sich ergebenden Änderung durch Variation der Legierungsanteile Co_2MnSi und Co_2FeSi im Multilagensystem. Wie in der Abbildung 9.1 dargestellt, ergibt sich aus der Auftragung der gemessenen maximalen TMR-Amplituden gegenüber der Spannung, bei der die Spinpolarisation der einen Elektrode verschwindet, ein deutlicher Trend: Je höher die benötigte negative Span-

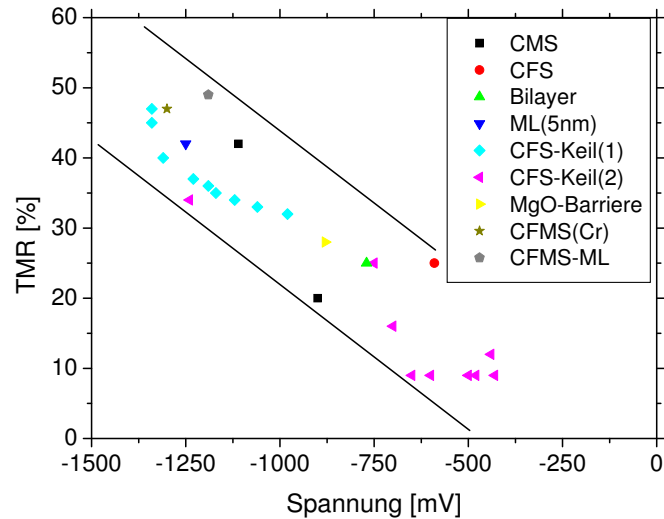


Abbildung 9.1: TMR-Effektamplituden aller in dieser Arbeit diskutierter Proben in Abhängigkeit der Spannung bei der sich eine Inversion des TMR einstellt. Der konkrete Schichtaufbau kann der Tabelle 9.1 entnommen werden.

nung zur Umkehrung des Effektes ist, desto höher fallen auch die gemessenen TMR-Amplituden aus. Auch die durch die Verwendung einer MgO-Barriere erhaltenen Werte fügen sich stimmig in dieses Bild ein.

Es konnte gezeigt werden, dass die starke Temperaturabhängigkeit der Effektamplitude nicht auf die sich aus LDA+U Bandstrukturrechnungen ergebene Lage der Fermie-Energie zurückzuführen ist. Bei der Integration der vierkomponentigen Heusler-Legierung $\text{Co}_2\text{Mn}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{Si}$ in MTJs, in der die Fermie-Energie nach eben diesen Berechnungen in der Mitte des *gaps* der Minoritätselektronen läge, konnte trotz Erreichen hoher TMR-Effektamplituden, keine andere Temperaturabhängigkeit im Vergleich zu den einfachen Systemen Co_2MnSi und Co_2FeSi beobachtet werden. Die Ergebnisse der SPR-KKR Bandstrukturrechnungen hingegen stehen in guter Übereinstimmung zu den experimentellen Daten und spiegeln die Lage der Fermi-Energie durch Bestimmung des Inversionspunktes der TMR-Amplitude aus der Spannungsabhängigkeit gut wider.

Abschließend sollten die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Umbaumaßnahmen an der Sputteranlage nicht unerwähnt bleiben. Durch die vollständige Integration der siebten Quelle (2'') in die Anlagensteuerung und die Erweiterung mit einer zusätzlichen achten Quelle (ebenfalls 2'') ist eine

Probenbezeichnung	konkreter Schichtaufbau der unteren Elektrode
CMS	V(40)/Co ₂ MnSi(100)/Al(0-3)
CFS	V(40)/Co ₂ FeSi(100)/Al(0-3)
Bilayer	V(40)/Co ₂ MnSi(100)/Co ₂ FeSi(10)/Al(0-3)
ML(5nm)	V(40)/{Co ₂ MnSi(5)/Co ₂ FeSi(5)} ₁₀ /Al(0-3)
CFS-Keil(1)	V(40)/{Co ₂ MnSi(5)/Co ₂ FeSi(0-10)} ₁₀ /Al(0-3)
CFS-Keil(2)	V(40)/{Co ₂ FeSi(0-10)/Co ₂ MnSi(5)} ₁₀ /Al(0-3)
MgO-Barriere	V(40)/Co ₂ MnSi(100)/Mg(0,75)/Mg(1,5)
CFMS(Cr)	Cr(40)/Co ₂ Mn _{0,5} Fe _{0,5} Si(100)/Al(0-3)
CFMS-ML	V(40)/{Co ₂ MnSi(0-10)/Co ₂ Mn _{0,5} Fe _{0,5} Si(5)} ₁₀ /Al(0-3)

Tabelle 9.1: Schichtaufbauten der in Abbildung 9.1 dargestellten Proben im Überblick. Die Werte in den Klammern entsprechen den jeweiligen Schichtdicken in nm. Allen hier aufgeführten Schichten folgt die zweite Elektrode mit CoFe(5)/MnIr(10)/Ta(5)/Cu(50)/Ta(5)/Au(20) (siehe auch Abbildung 3.3).

größere Variationsvielfalt bei der Schichtherstellung für zukünftige Projekte gewährleistet. Durch die sukzessive Zeitverkürzung zwischen den einzelnen Schichten und die neu geschaffene Möglichkeit, längere Zeiten bei der Depositionierung zu nutzen, ist insbesondere der Entwicklung von MgO-Barrieren eine bisherige Limitierung genommen worden.

Kapitel 10

Ausblick

In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass die entwickelten Systeme hinsichtlich der erzielbaren TMR-Amplituden durch das Multilagensystem optimiert wurden. Eine weitere Verbesserung könnte nun durch die Integration einer zweiten Heusler-Elektrode erfolgen. Ein optimales System könnte somit mit den in Bielefeld erreichten Spinpolarisationen eine TMR-Amplitude von 240% bei tiefen Temperaturen erreichen. Die Texturierung der zweiten Elektrode und deren *pinning* stellt dabei eine Herausforderung dar.

Realisiert werden könnte dies zum einen, durch die in Kapitel 7 dargestellte Verwendung einer MgO-Barriere, wodurch eine Übertragung der Textur auf die zweite Elektrode möglich sein sollte. Dies könnte auch den Übergang zu kohärenten Tunnelprozessen ermöglichen, wenn es bei der Herstellung der Proben gelingt, ohne Unterbrechung nach der Barriere direkt die zweite Elektrode aufzubringen.

Zum anderen sind erste Versuche, die weichmagnetische Heusler-Legierung an eine antiferromagnetische Schicht MnIr zu koppeln bisher nicht erfolgreich verlaufen. Hier könnte die Realisierung des *pinning*s durch die Verwendung eines künstlichen Antiferromagneten gelingen.

Als ebenfalls sehr vielversprechendes Barrierenmaterial in Kombination mit Heusler-Legierungen gilt Barium-Oxid (BaO). Mit einer Gitterkonstanten von $a = 5.523\text{\AA}$ ergibt sich eine gegenüber dem MgO nochmals reduzierte Gitterfehlانpassung von weniger als 3%, so dass auch hier die Möglichkeit besteht, mit einer zweiten Heusler-Elektrode kohärentes Tunneln zu realisieren. Erste MTJs mit diesem noch eher ungebräuchlichem Barrierenmaterial konnten bereits nach ähnlichem Vorgehen wie in Kapitel 7 beschrieben hergestellt werden. Ohne spezielle Optimierungsschritte sind bereits TMR-Effektamplituden von 22% bei Raumtemperatur messbar. Weitere Untersuchungen hierzu stehen jedoch noch aus.

Ein weiterer Aspekt ist die Zusammensetzung der gesputterten Heusler-

Legierung. Zwar liegen die benutzten *targets* in den entsprechend korrekten Legierungsanteilen vor, der Sputterprozess führt jedoch zu einer andersartigen Zusammensetzung der Probe. EDX-Messungen der präparierten TEM-Proben am Forschungsinstitut in Karlsruhe haben gezeigt, dass ein Überschuss von Co vorhanden ist [64]. Stöchiometrisch optimierte *targets*, wie sie von anderen Forschungsgruppen [65][55] verwendet werden, könnten zu einer Verbesserung der Heuslerstruktur führen. OOGANE *et al.* erreichten mit einem vergleichbaren Schichtaufbau dadurch eine Spinpolarisation von 89% für die einfache Co_2MnSi Heusler-Elektrode mit AlO_x -Barriere¹.

Eine weitaus flexiblere und zukunftssichere Alternative stellt das *co-sputtering* dar. Hierbei wird bei gleichzeitigem *sputtern* der Einzelelemente die Zusammensetzung auf der Probe durch Variation der einzelnen Sputterparameter abgestimmt. Die Realisierung einer solchen Methode in Bielefeld könnte auch für eine Anzahl anderer Projekte neue Möglichkeiten bieten.

Neben der Optimierung der Stöchiometrie schient auch die Richtung der Texturierung eine wichtige Rolle zu spielen. Letzten Berichten zu Folge gelang die Erzielung hoher TMR-Amplituden bei der Verwendung von Heusler-Elektroden stets mit Systemen die eine (100)-Texturierung aufwiesen [55][56]. Untersuchungen an vergleichbaren Schichtaufbauten mit unterschiedliche Texturen der Heusler-Legierung könnten hier weiteren Aufschluss über den Tunnelprozess liefern.

¹Neben einer besseren Zusammensetzung lag bei dem verwendeten Schichtaufbau auch eine (100)-Texturierung der Heusler-Elektrode vor

Anhang A

Bandstrukturen

A.1 SPR-KKR

Dargestellt sind hier die Ergebnisse die aus Bandstrukturrechnungen mit dem SPR-KKR-Programmpaket hervorgehen. Im Unterschied zu den Ergebnissen der LDA+U-Rechnungen ist sowohl für Co_2MnSi als auch für Co_2FeSi die Fermi-Energie in dem Leitungsband zu finden. Auch eine 100% Spinpolarisation für Co_2FeSi kann durch diese Berechnung nicht bestätigt werden.

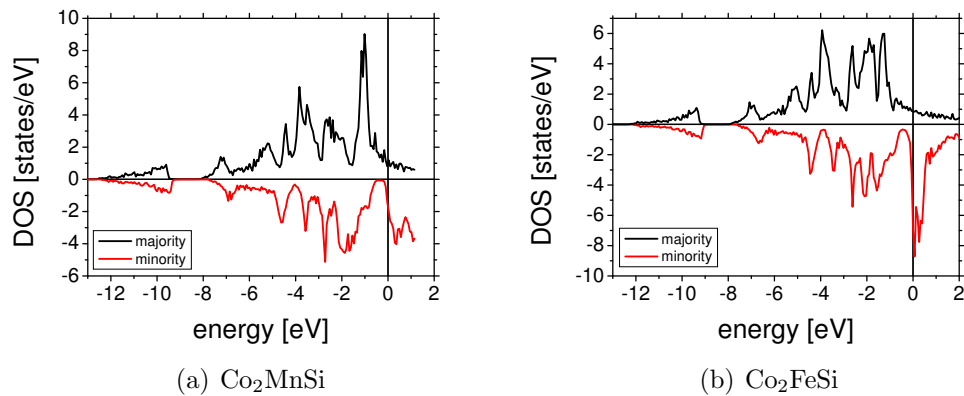


Abbildung A.1: Zustandsdichten der beiden Heusler-Legierungen Co_2MnSi und Co_2FeSi nach Bandstrukturrechnungen mit dem SPR-KKR-Programmpaket [28].

A.2 LDA+U

Ergebnisse aus den Bandstrukturechnungen mit der LDA+U-Methode nach BALKE[23]. Hervorzuheben ist die Lage der Fermie-Energie E_F hier im Vergleich zu der Lage nach Bandstrukturechnungen mit dem SPR-KKR-Programm. Für Co_2MnSi befindet sich E_F nahe der Valenzbandkante, für Co_2FeSi nahe der Leitungsbandkante.

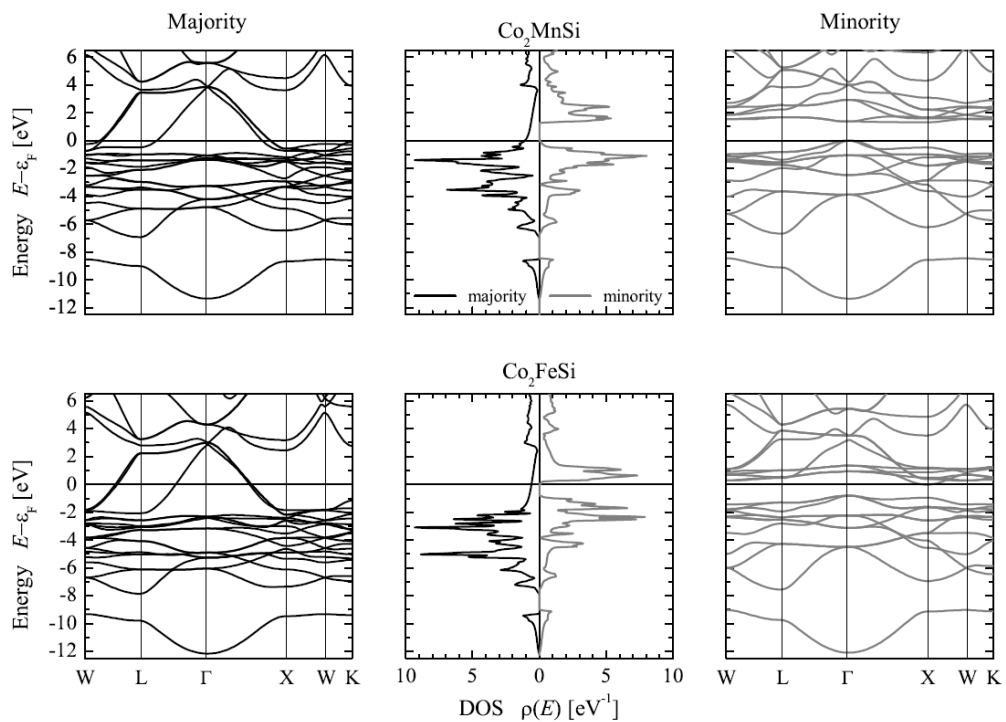


Abbildung A.2: Zustandsdichten der beiden Heusler-Legierungen Co_2MnSi und Co_2FeSi nach der LDA+U-Methode.

A.3 Raumrichtungen

Die Definition der unterschiedlichen Raumrichtungen der \vec{k} -Vektoren für ein fcc-Gitter können der Abbildung A.3 entnommen werden. Herauszustellen sind hier die Punkte X und K , die vom Ursprung Γ aus betrachtet den Raumrichtungen (100) und (110) entsprechen.

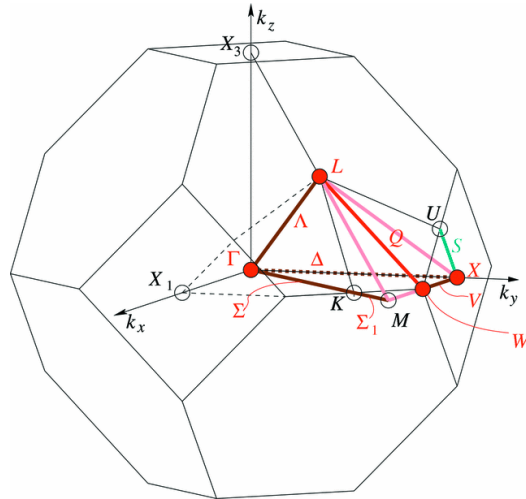


Abbildung A.3: Bezeichnung der Raumrichtungen im Falle eines fcc-Gitters mit Γ als Ursprung, X der Raumrichtung (100), K entsprechend (110) und L der Richtung (111).

Literaturverzeichnis

- [1] Julliere, M. *Physics Letters A* **54**(3), 225–226 September (1975).
- [2] Moodera, J. S., Kinder, L. R., Wong, T. M., and Meservey, R. *Phys. Rev. Lett.* **74**(16), 3273– April (1995).
- [3] Miyazaki, T. and Tezuka, N. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **139**(3), L231–L234 January (1995).
- [4] Grünberg, P., Schreiber, R., Pang, Y., Brodsky, M. B., and Sowers, H. *Phys. Rev. Lett.* **57**(19), 2442– November (1986).
- [5] Coey, J. M. D. and Venkatesan, M. *Journal of Applied Physics* **91**(10), 8345–8350 (2002).
- [6] Akinaga, H., Manago, T., and Shirai, M. *Jpn. J. Appl. Phys.* **39**, L1118–L1120 (2000).
- [7] Ishida, S., Masaki, T., Fujii, S., and Asano, S. *Physica B: Condensed Matter* **245**(1), 1–8 January (1998).
- [8] Kämmerer, S. *The Heusler alloy Co_2MnSi in thin films*. PhD thesis, Bielefeld University, Thin Films and Nanostructures, (2004).
- [9] Hütten, A., Kämmerer, S., Schmalhorst, J., and Reiss, G. *Half-metallic Alloys*, chapter Heusler Alloyed Electrodes Integrated in Magnetic Tunnel-Junctions, 241–265. Springer (2005).
- [10] Tedrow, P. M. and Meservey, R. *Phys. Rev. Lett.* **26**(4), 192– January (1971).
- [11] Tedrow, P. M. and Meservey, R. *Phys. Rev. B* **7**(1), 318– January (1973).
- [12] Schelten, J. *30. Ferienkurs des Instituts für Festkörperforschung 1999, Magnetische Schichtsysteme*, chapter D7 Tunnelmagnetowiderstand. Forschungszentrum Jülich (1999).

- [13] Webster, P. and Ziebeck, K. *Landolt-Börnstein New Series Group III, Vol. 19c*, chapter Heusler Alloys, 75. Springer (1988).
- [14] Heusler, F. *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft* **5**, 219 (1903).
- [15] de Groot, R. A., Mueller, F. M., Engen, P. G. v., and Buschow, K. H. J. *Phys. Rev. Lett.* **50**(25), 2024– June (1983).
- [16] Galanakis, I., Dederichs, P. H., and Papanikolaou, N. *Phys. Rev. B* **66**(17), 174429– November (2002).
- [17] <http://cst-www.nrl.navy.mil/lattice/>.
- [18] Kopitzki, K. and Herzog, P. *Einführung in die Festkörperphysik*. Teubner Verlag, (2004).
- [19] Schroeder, K. *30. Ferienkurs des Instituts für Festkörperforschung 1999, Magnetische Schichtsysteme*, chapter A1 Atomarer Magnetismus und Austauschwechselwirkung. Forschungszentrum Jülich (1999).
- [20] Kittel, C. *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg Verlag München Wien, (2006).
- [21] Schmalhorst, J. Lecture at Bielefeld University, (2003/2004).
- [22] Stöhr, J. and Siegmann, H. *Magnetism - From Fundamentals to Nanoscale Dynamics*. Springer, (2006).
- [23] Balke, B., Fecher, G. H., Kandpal, H. C., Felser, C., Kobayashi, K., Ikenaga, E., Kim, J.-J., and Ueda, S. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **74**(10), 104405 (2006).
- [24] Picozzi, S., Continenza, A., and Freeman, A. J. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **69**(9), 094423 (2004).
- [25] Zeller, R. *30. Ferienkurs des Instituts für Festkörperforschung 1999, Magnetische Schichtsysteme*, chapter A3 Bandmagnetismus. Forschungszentrum Jülich (1999).
- [26] Anisimov, V. I., Poteryaev, A. I., Korotin, M. A., Anokhin, A. O., and Kotliar, G. *Journal of Physics: Condensed Matter* **9**(35), 7359–7367 (1997).
- [27] <http://www.wien2k.at/lapw/index.html>.

- [28] <http://olymp.cup.uni-muenchen.de/ak/ebert/SPRKKR/>.
- [29] Princeton Measurements Corporation, New Jersey. *MicroMagTM 2900, Instructions Manual*, (2004).
- [30] Eisebitt, S. *30. Ferienkurs des Instituts für Festkörperforschung 1999, Magnetische Schichtsysteme*, chapter C6 Zirkulardichroismus in der RumpfabSORPTION. Forschungszentrum Jülich (1999).
- [31] Chen, C. T., Idzerda, Y. U., Lin, H.-J., Smith, N. V., Meigs, G., Chaban, E., Ho, G. H., Pellegrin, E., and Sette, F. *Phys. Rev. Lett.* **75**(1), 152–July (1995).
- [32] Pedersen, R. J. and F. L. Vernon, J. *Applied Physics Letters* **10**(1), 29–31 (1967).
- [33] Brinkman, W. F., Dynes, R. C., and Rowell, J. M. *Journal of Applied Physics* **41**(5), 1915–1921 (1970).
- [34] Sacher, M. Bielefeld University. private communication.
- [35] Kämmerer, S. Bielefeld University. private communication.
- [36] Sacher, M. D. Master’s thesis, Universität Bielefeld, (2002).
- [37] Liu, N.-N. Bielefeld University. private communication.
- [38] Hütten, A., Schmalhorst, J., Thomas, A., Kämmerer, S., Sacher, M., Ebke, D., Liu, N.-N., Kou, X., and Reiss, G. *Journal of Alloys and Compounds* **423**(1-2), 148–152 October (2006).
- [39] Schmalhorst, J., Sacher, M., Thomas, A., Bruckl, H., Reiss, G., and Starke, K. *Journal of Applied Physics* **97**(12), 123711 (2005).
- [40] Wurmehl, S., Fecher, G. H., Kandpal, H. C., Ksenofontov, V., Felser, C., Lin, H.-J., and Morais, J. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **72**(18), 184434 (2005).
- [41] Thomas, A. *Preparation and characterisation of magnetic single and double barrier junctions*. PhD thesis, Bielefeld University, Thin Films and Nanostructures, (2003).
- [42] Ebke, D., Schmalhorst, J., Liu, N.-N., Thomas, A., Reiss, G., and Hutten, A. *Appl. Phys. Lett.* **89**(16), 162506 (2006).

- [43] Schmalhorst, J., Ebke, D., Sacher, M. D., Liu, N.-N., Thomas, A., Reiss, G., Hütten, A., and Arenholz, E. *IEEE Trans. Magn.*, accepted (2007).
- [44] Schmalhorst, J., Thomas, A., Kämmerer, S., Schebaum, O., Ebke, D., Sacher, M. D., Reiss, G., Hütten, A., Turchanin, A., Götzhäuser, A., and Arenholz, E. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **75**(1), 014403 (2007).
- [45] Thomas, A., Meyners, D., Ebke, D., Liu, N.-N., Sacher, M. D., Schmalhorst, J., Reiss, G., Ebert, H., and Hutten, A. *Appl. Phys. Lett.* **89**(1), 012502 (2006).
- [46] Marukame, T., Ishikawa, T., ichi Matsuda, K., Uemura, T., and Yamamoto, M. volume 99, 08A904. AIP, (2006).
- [47] De Teresa, J. M., Barthélémy, A., Fert, A., Contour, J. P., Lyonnet, R., Montaigne, F., Seneor, P., and Vaurès, A. *Phys. Rev. Lett.* **82**(21), 4288–May (1999).
- [48] Tiusan, C., Faure-Vincent, J., Bellouard, C., Hehn, M., Jouguelet, E., and Schuhl, A. *Physical Review Letters* **93**(10), 106602 (2004).
- [49] Montaigne, F., Hehn, M., and Schuhl, A. *Phys. Rev. B* **64**(14), 144402–August (2001).
- [50] Sharma, M., Wang, S. X., and Nickel, J. H. *Phys. Rev. Lett.* **82**(3), 616–January (1999).
- [51] Thomas, A., Moodera, J. S., and Satpati, B. volume 97, 10C908. AIP, (2005).
- [52] Shang, C. H., Nowak, J., Jansen, R., and Moodera, J. S. *Phys. Rev. B* **58**(6), R2917– August (1998).
- [53] Schmalhorst, J., Kämmerer, S., Sacher, M., Reiss, G., Hütten, A., and Scholl, A. *Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics)* **70**(2), 024426 (2004).
- [54] Regan, T. J., Ohldag, H., Stamm, C., Nolting, F., Lüning, J., Stöhr, J., and White, R. L. *Phys. Rev. B* **64**(21), 214422– November (2001).
- [55] Oogane, M., Sakuraba, Y., Nakata, J., Kubota, H., Ando, Y., Sakuma, A., and Miyazaki, T. *Journal of Physics D: Applied Physics* **39**(5), 834–841 (2006).

- [56] Sakuraba, Y., Hattori, M., Oogane, M., Ando, Y., Kato, H., Sakuma, A., Miyazaki, T., and Kubota, H. *Applied Physics Letters* **88**(19), 192508 (2006).
- [57] Djayaprawira, D. D., Tsunekawa, K., Nagai, M., Maehara, H., Yamagata, S., Watanabe, N., Yuasa, S., Suzuki, Y., and Ando, K. *Applied Physics Letters* **86**(9), 092502 (2005).
- [58] Kou, X. Bielefeld University. private communication.
- [59] Ishikawa, T., Marukame, T., Kijima, H., Matsuda, K.-I., Uemura, T., Arita, M., and Yamamoto, M. *Applied Physics Letters* **89**(19), 192505 (2006).
- [60] Okamura, S. Bielefeld University. private communication.
- [61] Balke, B., Kandpal, H. C., Fecher, G. H., and Felser, C. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Article in Press (2006).
- [62] Fecher, G. Johannes Gutenberg University, Mainz. private communication.
- [63] Kallmayer, M., Elmers, H. J., Balke, B., Wurmehl, S., Emmerling, F., Fecher, G. H., and Felser, C. *Journal of Physics D: Applied Physics* **39**(5), 786–792 (2006).
- [64] Hütten, A. Research Center Karlsruhe, now Bielefeld University. private communication.
- [65] Singh, L. J., Barber, Z. H., Miyoshi, Y., Bugoslavsky, Y., Branford, W. R., and Cohen, L. F. *Applied Physics Letters* **84**(13), 2367–2369 (2004).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen, die mich bei der Erstellung dieser Diplomarbeit unterstützt haben, meinen Dank aussprechen.

Insbesondere gilt mein Dank meinen Betreuern PROF. DR. ANDREAS HÜTTEN und DR. JAN SCHMALHORST, sowie PROF. DR. GÜNTER REISS und DR. ANDY THOMAS, die mit zahlreichen Ideen und motivierenden Worten zu dieser Arbeit beigetragen haben.

MARC D. SACHER sei an dieser Stelle für die geduldige Einweisung in die Funktionen der Sputtermaschine und in deren Programmierung zu danken, ebenso, wie für seine ständige Diskussionsbereitschaft. Auch einige der hier gezeigten Ergebnisse von XMCD- und XAS Messungen stammen von Marc, wofür ich ihm danken möchte.

Gedankt werden soll auch DR. SVEN KÄMMERER, der mir während meiner Einarbeitungszeit zahlreiche Tricks und Kniffe, die es bei der Herstellung der Heusler-Legierungen zu beachten gilt, beigebracht hat.

Ein weiterer großer Dank gilt meinen Kollegen SASCHA WALKENHORST und DR. NING-NING LIU für die angenehme Büroatmosphäre und ihre stetige Diskussionsbereitschaft. Letzterer gebührt ein besonderer Dank für die tatkräftige Unterstützung, bei einigen Probenpräparationen und Messungen.

Des weiteren gilt mein Dank ANNA CASTRUP, vom Forschungszentrum in Karlsruhe (FZK), und MARKUS MEINERT für die Durchführung der XRD-Messungen, sowie DR. HARALD RÖSNER und DR. TORSTEN SCHERER, ebenfalls vom FZK, für die Erstellung der TEM-Bilder.

Ein besonderer Dank gebührt OLIVER SCHEBAUM, der mich während meines gesamten Studiums unterstützend begleitet hat und ohne den ich das Studium wahrscheinlich irgendwann aufgeben hätte.

Bedanken möchte ich mich auch bei DR. KARSTEN ROTT für seine über alle Maßen hilfreiche Unterstützung bei technischen Problemen, ALEXANDER WEDDEMANN für den theoretischen Beistand, sowie VOLKER DREWELLO und MARKUS SCHÄFERS für die Entdeckung der *Arbeitssenken*.

Auch den namentlich hier nicht aufgeführten Mitgliedern der Arbeitsgruppe von D2 gebührt ein Dankeschön für die außerordentlich angenehme Atmo-

sphäre während und nach der Arbeit.

Abschließend gilt meinen Eltern, Stiefeltern und Schwiegereltern in spe mein besonderer Dank, für die außerordentlich liebevolle und geduldige Unterstützung, ebenso wie meiner Lebensgefährtin WIEBKE FIEDLER, für ihren bedingungslosen Rückhalt, der mich stets neu motiviert hat.

Vielen Dank auch der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) für die finanzielle Unterstützung und der *Advanced Light Source* (ALS) für die Nutzung der *beamline*.