

# Herstellung und Charakterisierung vollständig epitaktischer magnetischer Tunnelelemente mit Halbleiterbarriere



Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)  
der Fakultät Physik  
der Universität Regensburg

vorgelegt von

Martin Dumm

aus Obersüßbach

Mai 2005

Das Promotionsgesuch wurde eingereicht am 09.05.2005

Tag der mündlichen Prüfung: 21.07.2005

Die Arbeit wurde angeleitet von Prof. Dr. G. Bayreuther

**Prüfungsausschuss:**

Vorsitzender: Prof. Dr. J. Fabian

1. Gutachter: Prof. Dr. G. Bayreuther

2. Gutachter: Prof. Dr. C. Schüller

weiterer Prüfer: Prof. Dr. D. Göritz

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Herstellung des Schichtsystems</b>	<b>4</b>
2.1	MBE-Systeme . . . . .	5
2.2	Charakterisierungsmethoden . . . . .	7
2.2.1	RHEED . . . . .	7
2.2.2	STM . . . . .	7
2.2.3	Tiefenprofilanalyse mit Auger-Elektronen-Spektroskopie . . . . .	8
2.2.4	HRTEM und Elektronenholografie an Querschnittspräparaten . . . . .	8
2.3	Substratvorbehandlung . . . . .	10
2.4	Wachstum der unteren Fe-Schicht . . . . .	12
2.5	Wachstum von ZnSe auf Fe . . . . .	14
2.5.1	Getrenntes Verdampfen von Zn und Se . . . . .	14
2.5.2	Verdampfen von ZnSe aus einem Tiegel . . . . .	19
2.6	Wachstum der oberen Fe-Schicht . . . . .	22
<b>3</b>	<b>Strukturierung</b>	<b>24</b>
3.1	Prinzipieller Prozess . . . . .	24
3.2	Strukturierungsprobleme und Lösungsansätze . . . . .	28
3.3	Strukturierung von Proben mit zusätzlicher Permalloy-Schicht . . . . .	29
<b>4</b>	<b>Magnetisches Verhalten</b>	<b>31</b>
4.1	Magnetische Messmethoden . . . . .	32
4.2	Magnetisches Verhalten bei Zimmertemperatur . . . . .	32
4.3	Temperaturabhängiges Umschaltverhalten . . . . .	36
4.4	Ummagnetisierung mit zusätzlicher Permalloy-Schicht . . . . .	38
4.5	Domänenabbildung mittels Kerr-Mikroskopie . . . . .	39
4.6	Magnetische Kopplung über ZnSe-Barrieren . . . . .	41
<b>5</b>	<b>Transportmessungen</b>	<b>44</b>
5.1	Magnetowiderstand . . . . .	44
5.1.1	Positiver Magnetowiderstand . . . . .	44
5.1.2	Negativer Magnetowiderstand . . . . .	45
5.1.3	Anisotroper Magnetowiderstand . . . . .	46
5.1.4	Domänenwand-Magnetowiderstand . . . . .	47

5.1.5	Riesenmagnetowiderstand . . . . .	48
5.1.6	Tunnelmagnetowiderstand . . . . .	49
5.2	Messmethoden . . . . .	51
5.3	Elektrische Transporteigenschaften . . . . .	51
5.4	Magnetowiderstandsmessungen . . . . .	55
5.4.1	Magnetowiderstandsmessungen ohne Permalloy-Schicht . . . . .	55
5.4.2	Magnetowiderstandsmessungen mit zusätzlicher Permalloy-Schicht	56
5.4.3	Magnetowiderstand bei hohen Magnetfeldern . . . . .	58
5.5	Diskussion der Magnetowiderstandsmessungen . . . . .	59
5.5.1	Ohmsches Widerstandsverhalten . . . . .	60
5.5.2	TMR-Effekt oder andere Effekte . . . . .	61
5.5.3	Vergleichsmessung ohne ZnSe-Barriere . . . . .	65
5.5.4	Ergebnis der Diskussion . . . . .	66
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>67</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Seit der Entdeckung des Riesenmagnetowiderstandes (Giant Magneto-Resistance) durch P. Grünberg [Bin89] und A. Fert [Bai88] im Jahre 1988 sind nur 10 Jahre vergangen bis dieser Effekt in Festplattenleseköpfen zum Einsatz kam. Kurze Zeit später hielt der GMR-Effekt in Form von Winkelsensoren und Drehzahlmessern auch in der Automobilindustrie Einzug [Men99]. Wegen dieses raschen Erfolges gab es einen rasanten Aufschwung in der Erforschung von sogenannten Magnetowiderstandseffekten, zu denen neben dem GMR- auch der TMR- (Tunneling Magneto-Resistance) Effekt zählt. Insbesondere dem TMR wird ein großes Potential hinsichtlich zukünftiger kommerzieller Anwendungen vorausgesagt. So basieren die einzelnen Speicherelemente eines MRAM (Magnetic Random Access Memory)-Speichers auf TMR-Elementen und auch die GMR-Leseköpfe sollen zukünftig durch TMR-Elemente ersetzt werden.

Die genannten Magnetowiderstandseffekte findet man in Schichtsystemen, die aus zwei ferromagnetischen Schichten bestehen, die durch eine dünne nichtmagnetische Schicht getrennt sind. Diese besteht in GMR-Systemen aus einem Metall und in TMR-Systemen aus einem Isolator. Je nach dem, ob die Magnetisierungen der beiden Ferromagneten parallel oder antiparallel ausgerichtet sind, ändert sich der elektrische Widerstand des Schichtsystems. In TMR-Elementen mit  $Al_2O_3$  als Isolatorbarriere werden dabei Widerstandseffekte von bis zu 76% [Nis02],[Sma03] erreicht, bei  $MgO$  als Isolatorbarriere werden sogar TMR-Werte von bis zu 230% bei Zimmertemperatur berichtet [Dja05], [Par04]. Um einen GMR-Effekt dieser Größe zu erzielen, benötigt man Viellagensysteme, die einen höheren Aufwand in der Herstellung bedeuten. Ein weiterer Vorteil der TMR-Elemente ist der hohe Widerstand im Vergleich zu den vollmetallischen GMR-Systemen. Bei der Verwendung als Speicherbaustein für einen MRAM, bei dem es auch auf eine hohe Speicherdichte ankommt, fließen also nur geringe Ströme, was zu einer geringen Wärmeentwicklung und einem niedrigen Energieverbrauch führt.

Bei den konventionellen TMR-Systemen wurde vor allem  $Al_2O_3$  als Tunnelbarriere verwendet. Dies ist ein hochisolierendes Material, das aber sehr dünn sein muss, um noch genügend große Ströme durchzulassen. Denn nur bei hinreichend großem Signal/Rausch-Verhältnis kann der Widerstand des Tunnelelements mit vertretbarem Aufwand gemessen werden. So sind die dünnsten  $Al_2O_3$ -Barrieren nur mehr 1nm dick. Dies ist zwar im Labor machbar, kann aber nicht problemlos auf die Massenproduktion übertragen werden. Ein weiteres Problem im Zusammenhang mit TMR-Elementen ist

die zunehmende Empfindlichkeit gegenüber Überspannungen mit abnehmender Größe, da auch die elektrische Kapazität immer weiter abnimmt. Dabei reichen bereits geringe Aufladungen aus, um Überschlüsse in den TMR-Schichten zu erzeugen, die zur Zerstörung führen.

Um höhere Tunnelströme bei dickeren Barrieren zu erhalten, muss man auf Materialien ausweichen, die für die tunnelnden Elektronen eine niedrigere Potentialbarriere darstellen. Aus diesem Grund soll in dieser Arbeit untersucht werden, ob man Halbleiter als Tunnelbarrieren verwenden kann. Die maximale Barrierenhöhe eines Halbleiters wäre die Höhe der Bandlücke. Aufgrund des Fermi-level-pinnings, das dafür sorgt, dass sich das Fermi-Niveau der metallischen Leitungselektronen in der Mitte der Bandlücke befindet, ergibt sich eine Barrierenhöhe, die der halben Bandlücke entspricht. Da man aber davon ausgehen muss, dass man definierte Halbleitereigenschaften nur in einkristallinen Materialien vorfindet, wird in dieser Arbeit versucht, epitaktische Halbleiterschichten als Tunnelbarriere herzustellen.

Für einkristalline TMR-Elemente mit Halbleiterbarriere gibt es auch eine Reihe von theoretischen Berechnungen ([Mac99], [Mav00]) die sehr hohe Tunnelmagnetowiderstandswerte für diese Systeme voraussagen und die sich mit steigender Barrierendicke sogar noch weiter erhöhen (bis zu 300%, [Geb00]). Die kristalline Struktur ist dabei ein zentraler Aspekt, da es nur für solche Elemente theoretische Berechnungen gibt. Um diese theoretischen Aussagen zu überprüfen, ist es also notwendig experimentell einkristalline magnetische Tunnelkontakte herzustellen.

Durch unterschiedliche Abfolgen von Halbleiterschichten in den Barrieren könnten zukünftig Halbleiter-Heterostrukturen hergestellt werden, die ein resonantes Tunneln der Elektronen durch die Barriere ermöglichen. Dadurch erhält man die Möglichkeit, über den Potentialbarrierenverlauf und die Bias-Spannung den Magnetowiderstandseffekt zu beeinflussen [Bru98]. Neben den theoretischen Vorhersagen gibt es bereits auch experimentelle Arbeiten, die belegen, dass mit einkristallinen TMR-Elementen sehr hohe Tunnelmagnetowiderstandswerte erreicht werden können. So wurden in dem epitaktischen Schichtsystem  $Fe / MgO / Fe$  maximale Magnetowiderstandsänderungen von bis zu 100% nachgewiesen [Bow01],[Fau03],[Yua04], was auch theoretisch berechnet worden ist. Auch bei einkristallinen Halbleiterbarrieren konnten bereits Tunnelmagnetowiderstandseffekte nachgewiesen werden. So zeigte das System  $Fe / ZnSe / Fe$  einen maximalen Wert von 16% [Gus01] und das System  $Fe / GaAs / Fe$  einen Wert von 1,7% [Zen04], wobei im letzteren Fall nur die  $GaAs$ -Barriere eine einkristalline Struktur hat.

In der vorliegenden Arbeit soll gezeigt werden, dass vollständig einkristalline TMR-Elemente mit Halbleiterbarriere realisiert werden können, wobei sämtliche Schichten durch epitaktische Abscheidung aufgebracht werden. Die große Herausforderung besteht nun darin, Halbleiterepitaxie auf Metallen zu ermöglichen und gleichzeitig die Randbedingung von möglichst scharfen Grenzflächen zwischen dem Halbleiter und dem Ferromagneten zu erfüllen. Außerdem muss ein getrenntes magnetisches Umschalten der beiden ferromagnetischen Schichten gewährleistet sein. Der wichtigste Punkt dabei ist die Herstellung des  $GaAs / Fe / ZnSe / Fe$ -Schichtsystems, die im ersten Kapitel beschrieben wird. Insbesondere wird auf das Wachstum von  $ZnSe$  auf  $Fe$  genauer eingegangen. Kapitel 2 liefert eine Beschreibung der lateralen Strukturierung

des Systems, die für zur Schichtebene senkrechte Transportmessungen notwendig ist, und der Probleme die dabei auftreten. Das vierte Kapitel befasst sich mit den magnetischen Eigenschaften der beiden ferromagnetischen Schichten, wobei vor allem das Ummagnetisierungsverhalten von Bedeutung ist, um gezielt eine parallele und eine antiparallele Konfiguration einstellen zu können. Zuletzt werden in Kapitel 5 elektrische Transport- und Magnetotransport-Messungen bei verschiedenen Temperaturen und Barrierendicken vorgestellt. Dabei wird ausführlich diskutiert, welche Effekte dem spin-polarisierten Tunneln zuzuordnen sind und welche durch andere magnetische Effekte verursacht werden.

## Kapitel 2

# Herstellung des Schichtsystems

Für die Herstellung von einkristallinen Tunnelmagnetowiderstandselementen mit Halbleiterbarrieren gibt es nur eine beschränkte Anzahl von Halbleitern und Ferromagneten, die aufgrund ihrer Gitterstruktur kombiniert werden können. Auf Seiten der Ferromagneten bietet sich vor allem *bcc-Fe* an, da die Gitterkonstante mit  $2,87\text{\AA}$  in etwa halb so groß ist wie die von *GaAs* ( $5,65\text{\AA}$ ), *ZnSe* ( $5,67\text{\AA}$ ), *Ge* ( $5,65\text{\AA}$ ) und *Si* ( $5,43\text{\AA}$ ). Die genannten Halbleiter haben zwar keine *bcc*-Struktur, jedoch passen vier *bcc*-Eisen-Einheitswürfel auf einen Halbleiter-Einheitswürfel mit Diamant- bzw. Zinkblendestruktur, wodurch einkristalline Heterostrukturen prinzipiell möglich sein sollten.

*Si* und *Ge* haben dabei den Vorteil gegenüber den binären Halbleitern, dass sie nur aus einer Atomsorte bestehen und somit beim Wachstum nicht auf die Stöchiometrie geachtet werden muss. Jedoch ist bekannt, dass es beim Wachstum von *Fe* auf *Si* auch bei Zimmertemperatur an der Grenzfläche zur Durchmischung kommt [Zav00],[Gal92]. Zonen, in denen es zur Durchmischung von Halbleitern und Ferromagneten kommt stellen magnetisch „tote“ Lagen dar [Zöl97]. Dieser Bereich ist zwar metallisch leitfähig, besitzt aber ein reduziertes magnetisches Moment. Der Tunnelmagnetowiderstand wird dadurch stark verringert oder verschwindet ganz. Aber auch eine geringe Diffusion von *Fe*-Atomen in den Halbleiter kann eine erhöhte Spinstreuung bedeuten, die den Magnetowiderstandseffekt erniedrigt.

Eine Durchmischung an der Grenzfläche gibt es beim Wachstum von *Fe* auf *Ge* nicht [Tar02]. Jedoch werden hier Probleme beim Wachstum von *Ge* auf *Fe* erwartet, da die übliche Wachstumstemperatur für *Ge* auf *GaAs* bei etwa  $500^\circ\text{C}$  liegt [Ina01]. Bei solchen Temperaturen während des Wachstums ist eine Durchmischung an der Grenzfläche ebenfalls sehr wahrscheinlich. Die gleiche Problematik ergibt sich auch bei *GaAs* als Halbleiterbarriere, da auch hier gutes epitaktisches Wachstum nur bei Temperaturen über  $500^\circ\text{C}$  möglich ist.

Da vor allem das Wachstum des Halbleiters auf Metall zu größeren Schwierigkeiten bei den benötigten Substrattemperaturen führt, ist es notwendig einen Halbleiter zu wählen, der bei möglichst tiefen Temperaturen gutes epitaktisches Wachstum aufweist. Aus diesem Grund wurde in dieser Arbeit *ZnSe* als Barrierenmaterial verwendet, welches schon bei Temperaturen ab  $250^\circ\text{C}$  epitaktisch auf *GaAs* abgeschieden werden kann [Oht99].

In diesem Kapitel wird im Weiteren das zentrale Thema der Schichtherstellung behan-



delt. Nach der Vorstellung der experimentellen Methoden wird näher auf die Substratvorbehandlung und das Wachstum der unteren *Fe*-Schicht eingegangen. Anschließend wird das Wachstum von *ZnSe* auf *Fe* beschrieben, was der entscheidende Schritt im Herstellungsprozess ist. Das Thema des letzten Abschnitts ist dann die Abscheidung der oberen *Fe*-Schicht und der *Au*-Abdeckung (siehe Schichtaufbau in Abbildung 2.1).

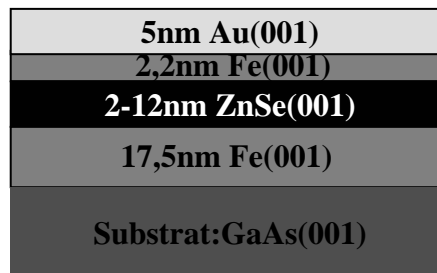


Abbildung 2.1: Schematischer Aufbau des Schichtsystems

## 2.1 MBE-Systeme

Für die Herstellung von epitaktischen *Fe*- und *ZnSe*-Schichten benötigt man Molekularstrahl-Epitaxie-Anlagen, die in einem möglichst niedrigen Restgasdruckbereich arbeiten. Zur Abscheidung von *Fe*-Schichten auf einkristallinen Halbleitersubstraten kann auf eine Metall-Epitaxie-Anlage zurückgegriffen werden, die von M. Brockmann aufgebaut wurde [Bro00]. Der Restgasdruck kann dabei auch während des Wachstumsprozesses unterhalb von  $5 \times 10^{-10}$  mbar gehalten werden. Dies ermöglicht ein sehr langsames und damit auch kontrolliertes Wachstum der *Fe*-Schicht von einer Monolage pro Minute, das schon in mehreren Arbeiten beschrieben wurde [Bro00], [Ben01] und [Moo03]. In der Metall-MBE-Anlage darf jedoch kein *ZnSe* verdampft werden. Reines *Zn* und *Se* haben eine sehr niedrige Dampftemperatur von 300°C und 200°C. Das bedeutet, Material, das sich an den Kammerwänden ablagert, kann sehr leicht wieder sublimieren. Dies würde in der Vakuumkammer zu einem erhöhten *Se*- und *Zn*-Hintergrunddruck führen, der verunreinigte Metallschichten zur Folge hätte. Aus dem gleichen Grund können auch in einer *ZnSe*-MBE-Anlage keine hochwertigen *Fe*-Schichten bei Raumtemperatur hergestellt werden, da besonders an der Oberfläche *Fe* – *Se* Verbindungen entstehen würden, die magnetisch tote Lagen bilden. Deshalb wird die *ZnSe*-Barriere in einer zweiten MBE-Anlage (Basisdruck:  $5 \times 10^{-9}$  mbar) am Lehrstuhl Wegscheider hergestellt, die nur für die Abscheidung von II-VI-Halbleitern konzipiert ist. Eine detaillierte Beschreibung dieser Anlage ist in [Pre00] zu finden.

Da die *Fe*- und *Au*-Filme in der Metall-MBE und die *ZnSe*-Barriere in der Halbleiter-MBE hergestellt werden, müssen die Proben von der einen zur anderen Aufdampfkammer transportiert werden. Doch besonders der Transport nach dem Abscheiden der unteren *Fe*-Schicht ist heikel, da Eisen an Luft sofort oxidiert, was auch durch Schutzgasatmosphäre nicht verhindert werden kann. Eine Lösung wäre eine Abdeckschicht

aus Edelmetall, die in der Halbleiter-MBE-Anlage nach dem Transport wieder entfernt wird. Der Einbau einer Ionen-Ätz-Kanone ist jedoch nicht machbar, ohne andere Arbeiten zu beschränken, die auch an dieser Anlage durchgeführt werden. Aus diesem Grund wurde bereits in einer früheren Diplomarbeit [Wil99] eine Transportkammer entwickelt, die es erlaubt, Proben von der Metall-MBE zur Halbleiter-MBE im UHV zu transportieren. Der Rezipient wird dabei durch eine Ionengetterpumpe gepumpt, die durch Autobatterien mit Strom versorgt wird. Dadurch kann in der Transportkammer auch während längerer Transportzeiten (bis zu 10h) ein Druck von unter  $7 \times 10^{-10}$  mbar aufrecht erhalten werden.

Die Transportkammer wird zur Übergabe der Probe an der jeweiligen Schleuse der MBE-Kammer angedockt. Während dieses Prozesses, der ungefähr 5min dauert, wird der Druck im System durch den jeweiligen Schleusendruck von ca.  $2 \times 10^{-7}$  mbar begrenzt. Nach wenigen Modifikationen an den Probenhaltern für die MBE-Anlagen wurden sämtliche 46 Proben mit diesem System hergestellt, wobei die Transportkammer auch zum Rücktransport der Proben nach der Abscheidung der *ZnSe*-Schicht eingesetzt wurde, um eine Oxidation der Halbleiterbarriere zu vermeiden. Insgesamt dauert die Herstellung einer Probe 4 Tage: An den ersten beiden wird das Substrat vorbehandelt, die untere *Fe*-Schicht aufgedampft und die Probe in die Transportkammer transferiert, welche dann an der Schleusenkammer der *ZnSe*-Anlage angedockt wird. Über Nacht wird die Schleuse abgepumpt. Am nächsten Tag wird die Probe in die Halbleiter-MBE geschleust und das *ZnSe* aufgedampft. Danach wird die Probe wieder in der Transportkammer geparkt, welche wiederum an der Metall-MBE angeschraubt wird. Nachdem die Metall-MBE-Schleuse über Nacht abgepumpt wurde kann die Probe wieder in die Metall-MBE transferiert werden, wo die obere *Fe*-Schicht und die *Au*-Abdeckschicht aufgebracht werden. Der gesamte Herstellungsprozess ist in Diagramm 2.2 zusammengefasst. Weitere technische Details zur Transportkammer sind in [Wil99] zu finden.

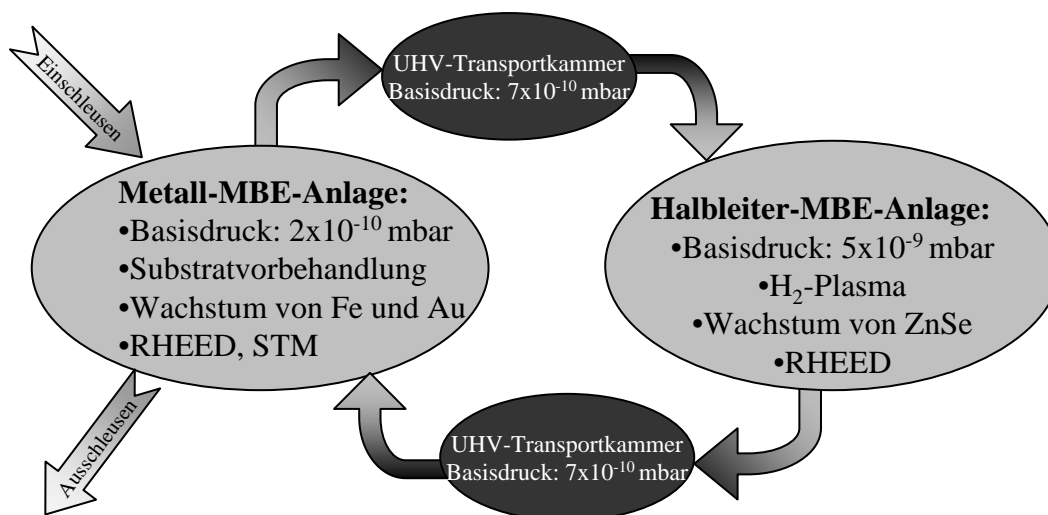


Abbildung 2.2: Ablauf des Herstellungsprozesses

## 2.2 Charakterisierungsmethoden

Um die gewünschten epitaktischen Metall-Halbleiter-Heterostrukturen herstellen zu können, müssen die Schichtsysteme auch hinreichend charakterisiert werden. Dazu benötigt man Methoden, mit denen die Grenzflächen, die Kristallinität und die Reinheit der Schichten untersucht werden können. Die eingesetzten Charakterisierungsmethoden werden im Folgenden kurz beschrieben.

### 2.2.1 RHEED

In beiden Epitaxie-Anlagen ist ein RHEED- (Reflection of High Energy Electron Diffraction) System installiert, mit dem die Oberfläche auch während des Wachstums untersucht werden kann. Dabei werden Elektronen mit einer Energie von 10keV unter einem flachen Winkel ( $1^\circ$ - $5^\circ$ ) auf die Probe geschossen, wodurch sich eine große Oberflächensensitivität der Methode ergibt. Die durchgehenden und an der Oberfläche gebeugten Elektronen treffen auf einen fluoreszierenden Schirm und regen diesen zum Leuchten an. Aus dem Beugungsmuster erhält man Rückschlüsse auf die Kristallinität und Oberflächenbeschaffenheit der Schicht. RHEED ist eine intergrale Methode der Oberflächenabbildung, da die Elektronen auf einer Fläche von ca.  $1\text{mm}^2$  auf der Probe auftreffen. Im Beugungsbild sieht man also eine Mittelung über die  $1\text{mm}^2$  große Auftrefffläche. Mikroskopische Unregelmäßigkeiten, wie Löcher, haben deshalb keinen Einfluss auf das Beugungsbild. So erwartet man bei sehr glatten einkristallinen Oberflächen punktförmige Beugungsreflexe, die auf einem Laue-Kreis sitzen. Bei rauen einkristallinen Oberflächen erwartet man ein Beugungsmuster, das dem reziproken Gitter des Schichtmaterials entspricht, da der Elektronenstrahl die Inseln durchstrahlt. Bei polykristallinen Oberflächen erwartet man Ringe im Beugungsbild und bei amorphen, oxidierten oder verschmutzten Oberflächen ein diffuses Beugungsbild ohne Strukturen. Eine genauere Beschreibung wie es zu den einzelnen Beugungsbildern kommt ist in [Ben01] zu finden.

### 2.2.2 STM

Das STM (Scanning Tunneling Microscope) ist eine andere Methode Oberflächen abzubilden. Dabei wird eine feine Spitze in einem kleinen Abstand über die Probe gerastert und ein Tunnelstrom zwischen Probe und Spitze gemessen. Der Abstand der Spitze wird dabei so geregelt, dass der Tunnelstrom konstant bleibt. Auf diese Weise wird die Probe abgerastert und man erhält ein topografisches Bild der Oberfläche, indem die x-,y- und z-Werte der Spitze mitgeschrieben werden.

Im Gegensatz zu RHEED erhält man mit dem STM keine Abbildung der Oberfläche im reziproken sondern im realen Raum. Mit dem STM können keine beliebig großen Oberflächenausschnitte abgebildet werden, sondern nur Bereiche, die kleiner  $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$  sind, dafür aber mit einer sehr großen Auflösung. Mit einer sehr guten Spitze sind sogar atomar aufgelöste Aufnahmen möglich. Außerdem können mit dem Rastertunnelmikroskop auch mikroskopische Unregelmäßigkeiten wie Löcher sichtbar gemacht werden. Da sich das STM in einer UHV-Kammer befindet die über ein Plat-

tenventil mit der Metall-MBE-Anlage verbunden ist, können die STM-Aufnahmen *in-situ* gemacht werden, was es ermöglicht, auch die oxidationsanfälligen *Fe*-Oberflächen abzubilden. Zusammen mit RHEED erhält man also umfassende Informationen zur Oberflächentopografie.

### 2.2.3 Tiefenprofilanalyse mit Auger-Elektronen-Spektroskopie

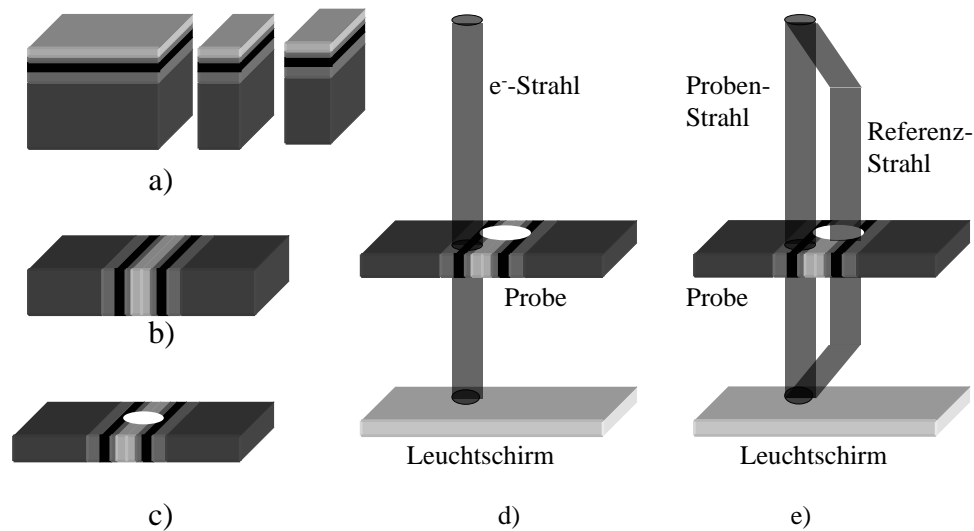
Mit den vorher beschriebenen *in-situ* Methoden wird die Oberfläche der einzelnen Schichten charakterisiert. Um jedoch eine vollständige Aussage über die Grenzflächenbeschaffenheit machen zu können, benötigt man noch Informationen über die chemische Zusammensetzung der Schichten und Grenzflächen. Diese können aus Tiefenprofilanalysen mit Auger-Elektronen-Spektroskopie (AES) gewonnen werden [Bri83], die am Lehrstuhl mit einem *PHI660 Auger System* der Firma *Perkin Elmer* durchgeführt werden können [Böh97].

Bei dieser Methode wird der Elektronenstrahl eines Rasterelektronenmikroskops benutzt um in der Oberfläche der Probe Auger-Elektronen zu erzeugen. Die Energie dieser Elektronen wird mit einem Spektrometer gemessen. Auf diese Weise erhält man Energiespektren, die eindeutig einem chemischen Element zugewiesen werden können [Har68]. Da nur diejenigen Elektronen die charakteristische Energie haben, die sehr nahe an der Oberfläche aus der Probe austreten, ist die AES-Analyse nur auf die oberen 1-3nm empfindlich und somit zur Oberflächenanalyse geeignet. Zudem kann der Elektronenstrahl stark fokussiert werden, wodurch mit dem Auger-Mikroskop Abbildungen der chemischen Oberflächenzusammensetzung mit einer lateralen Auflösung von ca  $1\mu\text{m}^2$  möglich sind. Mit Hilfe einer *Ar*-Ionen-Kanone können die Schichten der Probe langsam abgetragen und gleichzeitig die chemische Zusammensetzung der Oberfläche gemessen werden [Pal72]. Daraus ergibt sich ein Tiefenprofil, in dem sich die Schichtabfolge widerspiegelt. Des Weiteren kann man daraus auch erkennen, ob es zu stärkeren Durchmischungen der einzelnen Schichten kommt. Jedoch gibt es für unterschiedliche Elemente unterschiedliche Auger-Elektronen-Ausbeuten, wodurch aus den Tiefenprofilen keine absoluten Werte für die Schichtzusammensetzung gewonnen werden können. In den Tiefenprofilen kann nur der relative Verlauf der einzelnen Elemente dargestellt werden (Bsp. siehe Abbildung 2.9).

### 2.2.4 HRTEM und Elektronenholografie an Querschnittspräparaten

Die wichtigste Methode zur Untersuchung der Kristallinität des Schichtsystems ist die hochauflösende Transmissions-Elektronenmikroskopie (HRTEM: High Resolution Transmission Electron Microscopy) an Querschnittspräparaten, die in der Arbeitsgruppe Zweck betrieben wird. In dieser Arbeit kamen dabei ein *Philips CM30* Elektronenmikroskop mit einer maximalen Auflösung von 0,23nm und ein *Tecnai F30* der Firma *FEI* mit einer maximalen Auflösung von 0,19nm zum Einsatz. Mit diesem Auflösungsvermögen ist es möglich, Gitternetzebenen abzubilden und somit die Kristallinität der Proben zu überprüfen.

Um jedoch mit dem Elektronenmikroskop Aufnahmen machen zu können, müssen die



**Abbildung 2.3:** a) Sägen der Proben; b) Aufeinanderkleben der beiden Proben; c) Abdünnen der Probe bis in der Mitte ein Loch entsteht; d) Transmissionselektronenmikroskopie; e) Elektronenholografie an Querschnittspräparaten

Proben dafür speziell präpariert werden (siehe Abbildung 2.3): Zuerst werden aus den flächigen Proben zwei 2mm breite Streifen herausgesägt (2.3a)), die dann mit der Schichtseite aufeinander geklebt werden (2.3b)). Anschließend wird dieses „Sandwich“ abgedünnt, in der Mitte eine Mulde eingeschliffen und anschließend mittels Ionen-Ätzen soweit abgeätzt, bis in der Mitte ein kleines Loch entsteht (2.3c)). Entscheidend ist dabei, dass am Rand dieses Lochs ein genügend großes Probenstück des Schichtsystems vorhanden ist, das eine Dicke von weniger als 50nm aufweist, da nur Proben in diesem Dickenbereich für die hochauflösende Elektronenmikroskopie brauchbar sind. Eine detaillierte Beschreibung der Querschnittspräparation und der Transmissionselektronenmikroskopie ist in [Bin02], [Rei97] und [Wil96] zu finden.

Neben der seit längerem etablierten herkömmlichen Transmissionselektronenmikroskopie bietet sich im Zusammenhang mit der Untersuchung von Tunnelstrukturen auch die Elektronenholografie an Querschnittspräparaten an, die bereits an  $Al_2O_3$  basierten Tunnelstrukturen durchgeführt wurde [Xu02]. Die Elektronenholografie wurde am *Tecnai F30* zur Untersuchung von magnetischen Domänen eingeführt [Heu05] und kann auch für Querschnittspräparate angewendet werden. Dabei kann auf die bereits für HRTEM-Aufnahmen präparierten Proben zurückgegriffen werden.

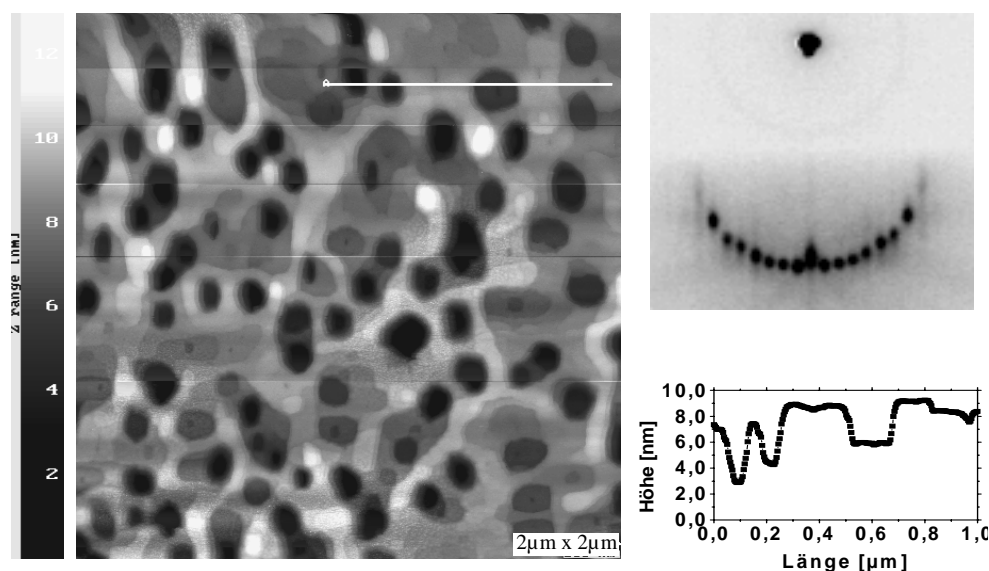
Bei der Elektronenholografie wird der Elektronenstrahl im Mikroskop in zwei Strahlen aufgeteilt, wobei der eine Strahl die Probe durchquert, der Referenzstrahl aber nicht. Unterhalb der Probe werden beide Strahlen wieder überlagert (Abbildung 2.3e), was zu einem Interferenzmuster führt, in dem die komplette Information (Amplitude und Phase) über die das Objekt durchlaufende Welle gespeichert ist. Je nachdem durch welches Material die Elektronenwelle propagiert, ergibt sich eine unterschiedliche Phasendifferenz zwischen Mess- und Referenzstrahl, da sich das elektrostatische Potential

der Materialien auf die Phasendifferenz auswirkt. Im Phasenbild sollte man also einen deutlichen Unterschied zwischen den  $Fe$ - und  $ZnSe$ -Schichten erkennen, vorausgesetzt die beiden Materialien haben die gleiche Probendicke, was aber an den Grenzflächen der Fall ist.

Der Vorteil der Holografie besteht nun darin, dass man mit einer lateralen Auflösung von wenigen 0,1nm auf unterschiedliche Probenmaterialien sensitiv ist. Liegen also scharfe Grenzflächen ohne Durchmischung vor, so sollte auch im Phasenbild ein scharfer Übergang zwischen den Schichten sichtbar sein. Bei starker Durchmischung müsste im Phasenbild ein Grenzflächenbereich vorhanden sein, in dem sich die Phase langsam ändert. Man muss jedoch beachten, dass es sich hierbei um keine oberflächensensitive Methode handelt, sondern man erhält ein über die Probendicke gemitteltes Bild der Phasendifferenz, welches mit dem elektrostatischen Potential korreliert ist. Aus diesem Grund ist der in einem Linienprofil dargestellte Verlauf (siehe Abbildung 2.18) immer der schlimmste Fall, da eine leicht verkippte Probe oder eine größere Grenzflächenrauigkeit eine Durchmischung vortäuschen, die in Wirklichkeit nicht vorhanden ist.

## 2.3 Substratvorbehandlung

Eine wichtige Voraussetzung für die Herstellung einer einkristallinen  $Fe / ZnSe / Fe$  - Dreilagenschicht ist ein Substrat mit möglichst glatter Oberfläche und einer Gitterstruktur, die ein gutes epitaktisches Wachstum der unteren  $Fe$ -Schicht zulässt. Da  $Fe$ -Whisker aus Kostengründen nicht in Frage kommen, sind  $GaAs(001)$ -Wafer die

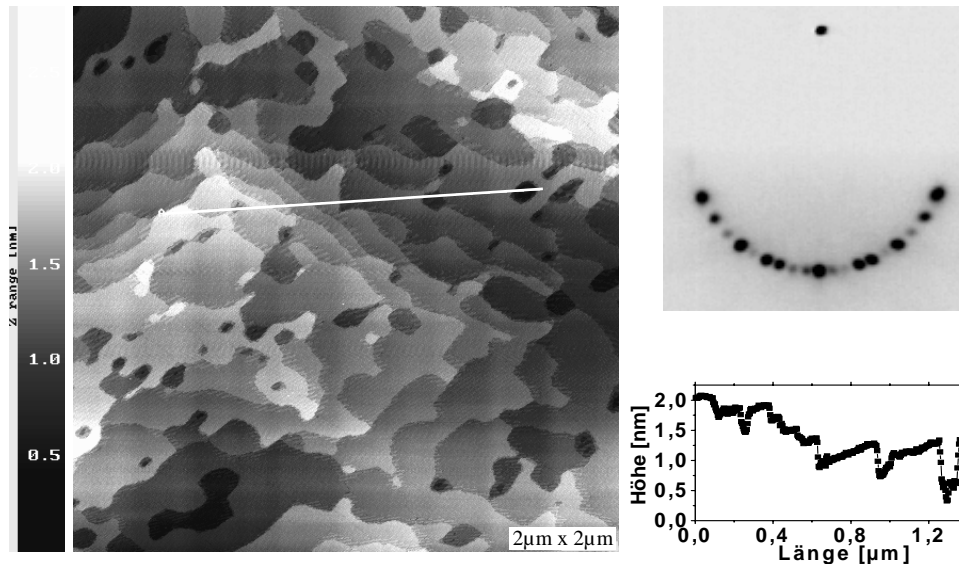


**Abbildung 2.4:** Links:  $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$  großes STM-Bild einer herkömmlich vorbehandelten  $GaAs(001)$ -Oberfläche; Rechts oben: das zugehörige RHEED-Bild; Rechts unten: Entlang der im STM-Bild eingezeichneten Linie erstelltes Profil.

erste Wahl. Es ist bekannt, dass  $Fe$  aufgrund des geringen Gitterfehlpasses von nur 1,4% in sehr guter kristalliner Qualität auf  $GaAs(001)$  abgeschieden werden kann. Außerdem kann bei dem Wachstum von  $Fe$  auf  $GaAs$  in der Metall-MBE-Anlage auf der jahrelangen Erfahrung in der Arbeitsgruppe Bayreuther aufgebaut werden.

Bei dem in der Arbeitsgruppe entwickelten Rezept zur Vorbehandlung von  $GaAs(001)$ -Substraten wird die Probe zuerst auf 580°C aufgeheizt. Anschließend setzt für 30min ein  $Ar$ -Ionen-Ätz-Schritt (Energie: 1keV,  $Ar$ -Ionen-Strom:  $1\mu A$ ,  $Ar$ -Druck:  $6,6 \times 10^{-6}$  mbar) bei 580°C-600°C ein. Am Ende dieses Prozesses wird für 5min die Temperatur auf 450°C bzw. 580°C und die  $Ar$ -Ionen-Energie auf 0,5keV erniedrigt. Damit lassen sich atomar glatte Halbleiter-Oberflächen herstellen (siehe Abbildung 2.4), deren Oberflächen-Rekonstruktion über die Temperatur am Schluss des  $Ar$ -Ionen-Ätzens eingestellt werden kann [Moo02].

In dem  $2\mu m \times 2\mu m$  großen Ausschnitt 2.4 sind neben den atomar glatten Bereichen auch bis zu 6nm tiefe Löcher zu sehen, die sehr steile Flanken haben. Für die magnetische Anisotropie, die bisher vorrangig an diesen Schichten gemessen wurde [Bro00],[Ben01] und [Moo03], hat dies keinen Einfluss, da die Anzahl der ferromagnetischen Atome, die sich neben einer Stufe befinden viel geringer ist als die Zahl der Atome, die auf einer atomar glatten Terrasse positioniert sind. Für elektrische Transportmessungen an Tunnелеlementen können diese steilen Vertiefungen aber große Auswirkungen haben, da es an den Flanken der Löcher zu direkten leitenden Verbindungen zwischen der oberen und unteren  $Fe$ -Schicht kommen kann, wenn die Barrierendicke kleiner als 6nm ist. Liegt ein elektrischer Kurzschluss innerhalb der Tunnelfläche vor, so fließt nahezu der gesamte Strom über diese Defektstelle und das Tunnелеlement ist unbrauchbar.

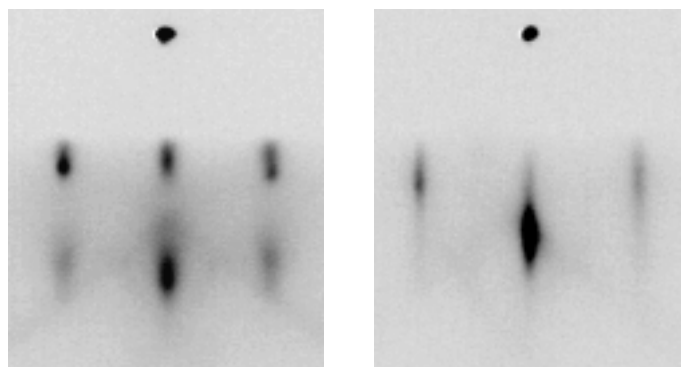


**Abbildung 2.5:** Links:  $2\mu m \times 2\mu m$  großes STM-Bild einer mit verbessertem Rezept vorbehandelten  $GaAs(001)$ -Oberfläche; Rechts oben: das zugehörige RHEED-Bild; Rechts unten: Entlang der im STM-Bild eingezeichneten Linie erstelltes Profil.

Um die tiefen Löcher nach der Substratvorbehandlung zu vermeiden, wurde das herkömmliche Rezept abgewandelt. Durch längeres Ar-Ionen-Ätzen (60min) bei höherer Temperatur (620°C) erreicht man eine noch glattere  $GaAs(001)$ -Oberfläche mit Terrassengrößen bis zu 300nm, die auch keine Löcher mehr vorweist. Man muss nur darauf achten, dass die Substrattemperatur nicht über 650°C steigt, da sich sonst  $Ga$ -Tröpfchen auf der Oberfläche bilden, die auch durch das Ar-Ionen-Ätzen nicht mehr entfernt werden können und die kein epitaktisches  $Fe$ -Wachstum mehr zulassen. In Abbildung 2.5 sieht man einen  $2\mu m \times 2\mu m$  großen Ausschnitt einer  $GaAs$ -Oberfläche, die mit dem verbesserten Rezept vorbehandelt wurde. Dabei ergibt sich ein maximaler Höhenunterschied in diesem Bereich von nur mehr 2nm. Der Unterschied zur herkömmlichen Vorbehandlung ist in den RHEED-Aufnahmen nicht zu erkennen und kann nur mit Hilfe des STM sichtbar gemacht werden. Viel wichtiger ist jedoch, dass keine Stufen von mehr als 1,5nm Höhe vorhanden sind. Auf diese  $Ga$ -reichen Oberflächen wird als nächstes die untere  $Fe$ -Schicht aufgedampft.

## 2.4 Wachstum der unteren Fe-Schicht

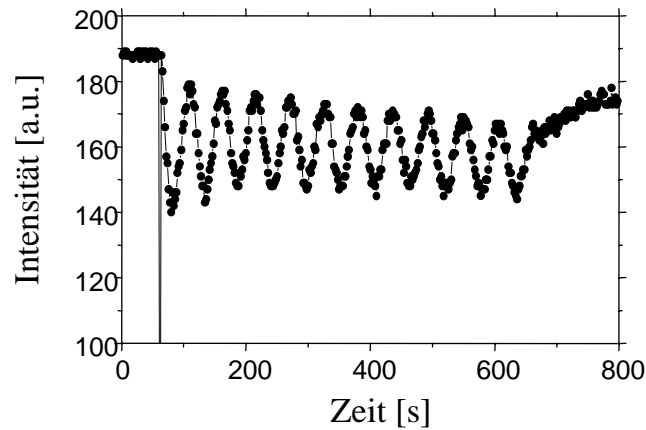
Zuerst werden bei Zimmertemperatur 14nm  $Fe$  aufgedampft. Es ist bekannt, dass  $Fe$  zunächst in dreidimensionalen Inseln auf  $GaAs(001)$  wächst [Moo03]. Bei einer Schichtdicke von 2,5-3 Monolagen wachsen die Inseln zusammen und es bildet sich eine einkristalline Schicht. Ab dieser Dicke ist die Curie-Temperatur auch größer als 300K und die Schicht zeigt ferromagnetisches Verhalten bei Zimmertemperatur [Be01]. Dampft man mehr Eisen auf, so bleibt die dreidimensionale Oberflächenstruktur mit Inseln von 3nm Durchmesser und einer Höhe von 0,3nm bestehen. Dies zeigt auch das linke RHEED-Bild in Abbildung 2.6, welches typisch ist für einkristallines bcc-Eisen mit einer rauen Oberfläche.



**Abbildung 2.6:** Links: RHEED-Bild einer 14nm dicken  $Fe$ -Schicht bei Zimmertemperatur aufgedampft; Rechts: RHEED-Bild der gleichen Oberfläche nach dem Temper- und Ätzprozess

Diese Oberfläche bietet jedoch aufgrund der Rauigkeit keine optimalen Bedingungen für das Wachstum von  $ZnSe$ . Deshalb wird durch einen längeren Temperprozess (12 Stunden) bei einer Temperatur von 240°C die Oberfläche geglättet. Aus der Literatur

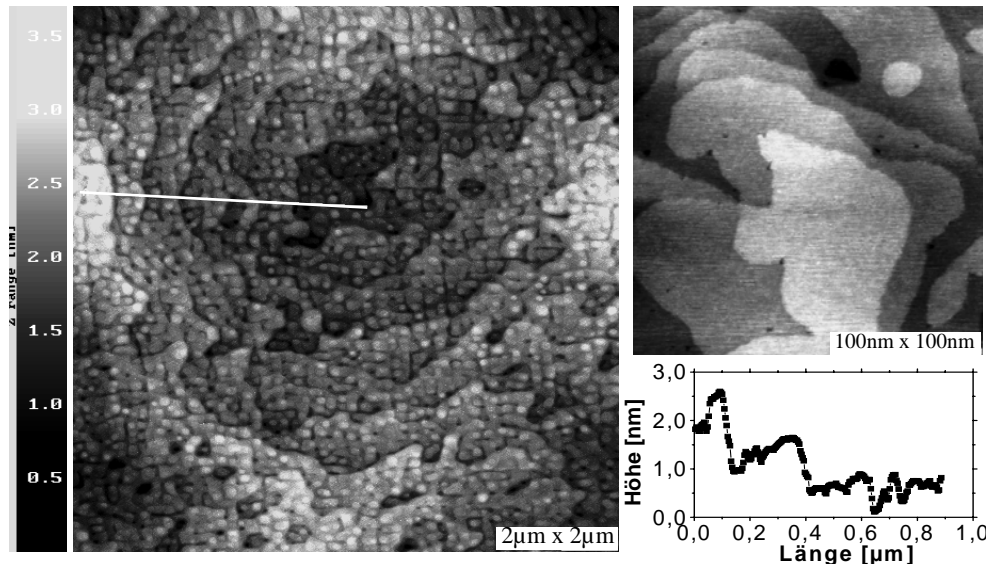




**Abbildung 2.7:** *RHEED-Oszillationen bei der Homoepitaxie von Fe bei 240°C Substrattemperatur*

ist bekannt, dass beim Wachstum von *Fe* auf *GaAs*(001) *As* und bei höheren Temperaturen auch *Ga* an die Oberfläche segregiert [San91]. Dieser Prozess wird durch das Tempern sicherlich verstärkt. Die kontaminierte *Fe*-Oberfläche kann jedoch durch einen weiteren *Ar*-Ionen-Ätz-Prozess wieder gesäubert werden. Das rechte RHEED-Bild in Abbildung 2.6, das nach dem Temper- und Ätz-Prozess aufgenommen wurde, deutet auf eine wesentlich glattere Oberfläche hin, da nur mehr drei Reflexe zu sehen sind, die auf einem Laue-Kreis liegen.

Als letztes werden bei einer gleichbleibenden Substrattemperatur von 240°C noch ein-



**Abbildung 2.8:** *Links: 2µm × 2µm großes STM-Bild der geglätteten 17,5nm dicken Fe(001)-Schicht; Rechts oben: 100nm × 100nm großer STM-Ausschnitt mit atomar glatten Terrassen; Rechts unten: Entlang der im linken STM-Bild eingezeichneten Linie erstelltes Profil.*

mal 3,5nm *Fe* aufgedampft. Das Eisenwachstum erfolgt dann lagenweise, wie aus den RHEED-Oszillationen in Abbildung 2.7 geschlossen werden kann. Dabei trägt man die Intensität des zentral reflektierten Strahl gegen die Zeit auf. Jedesmal wenn eine Monolage vollständig geschlossen ist, hat der reflektierte Strahl die maximale Intensität. Bei einer halb geschlossenen Monolage liegt ein Intensitätsminimum vor, da die Oberfläche rauer ist und mehr Elektronen diffus gestreut werden, die somit nicht mehr zum Beugungsbild beitragen (vgl. [Str93], [Ben01]).

Die atomar glatten Terrassen der *Fe*-Oberfläche mit einer Ausdehnung von bis zu 40nm können aber auch direkt mit dem STM beobachtet werden (siehe Abbildung 2.8). In dem  $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$  Ausschnitt ist neben den kleineren *Fe*-Plateaus auch deutlich zu erkennen, dass sich die Metallschicht der Oberflächenstruktur des *GaAs*-Substrats anpasst, da diese nach dem Wachstum von 17,5nm *Fe* immer noch zu erkennen ist. Der maximale Höhenunterschied in dem  $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$  großen STM-Ausschnitt der *Fe*-Oberfläche hat sich also im Vergleich zur *GaAs*-Oberfläche nicht vergrößert. Auf diese geglättete Oberfläche kann nun mit der Abscheidung von *ZnSe* begonnen werden.

## 2.5 Wachstum von *ZnSe* auf *Fe*

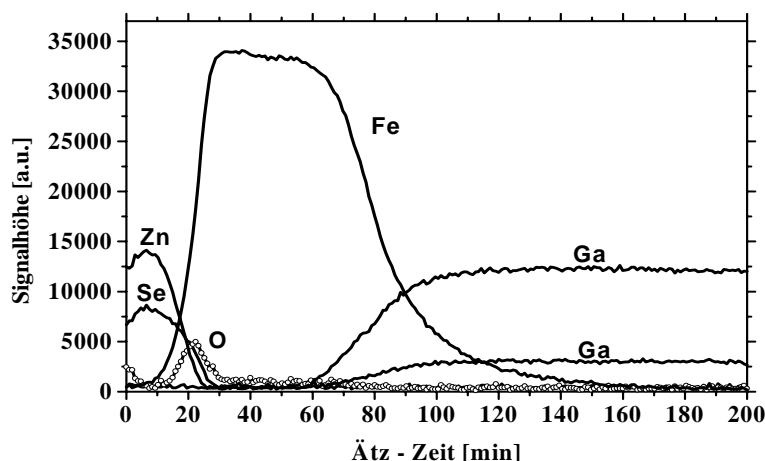
Die entscheidende Hürde, die es bei der Herstellung einkristalliner Tunnelemente mit Halbleiterbarrieren zu überwinden gilt, ist Wachstumsparameter für *ZnSe* zu finden, die eine epitaktische Halbleiterschicht auf *Fe* ermöglichen. Im Weiteren wird untersucht mit welchem Wachstumsmodus die besten Ergebnisse hinsichtlich der Kristallinität und Reinheit der *ZnSe*-Schicht erreicht werden.

### 2.5.1 Getrenntes Verdampfen von *Zn* und *Se*

In der vorhandenen *ZnSe*-Epitaxie-Anlage sind zwei verschiedene Tiegel für *Zn* und *Se* vorgesehen. Zum Verdampfen von *Zn* ist dabei eine Temperatur von 290°C bis 310°C nötig bzw. 190°C bis 210°C für *Se*. Die Ofentemperatur wird dabei so geregelt, dass sich eine Aufdampftrate von 2nm/min für *Zn* und 4nm/min für *Se* ergibt. Man bietet dem System also doppelt soviel *Se* wie *Zn* an. Dies führt zu einem sehr glatten und versetzungsfreien Wachstum von *ZnSe*, insofern die Substrattemperatur deutlich über der Verdampfungstemperatur des Selen liegt. Denn nur in diesem Fall wird das überschüssige *Se* auf der Oberfläche wieder desorbiert, und es entsteht eine *ZnSe*-Schicht im richtigen stöchiometrischen Verhältnis. Die Epitaxie von *ZnSe* auf *GaAs*(001) erfolgt dabei bei einer Substrattemperatur von ca. 300°C [Pre00]. Für das Wachstum auf *Fe* ist diese Temperatur jedoch zu hoch, da man eine Durchmischung erwartet. Deshalb wurden verschiedene Proben hergestellt, bei denen die Substrattemperatur beim Wachstum von *ZnSe* auf *Fe* von 200°C bis 270°C variiert wurde. Es muss jedoch beachtet werden, dass durch den modifizierten Probenhalter in der *ZnSe*-MBE-Anlage die tatsächlichen Temperatur auf der Probenoberfläche geringer sein kann als die angegebene Temperatur.

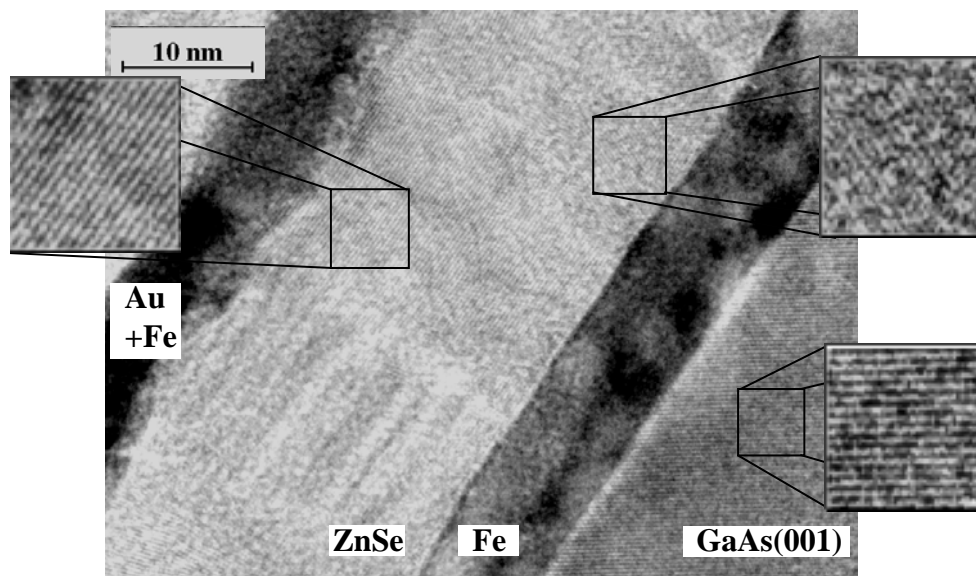
Mittels RHEED, TEM-Aufnahmen von Querschnittspräparaten und Tiefenprofilanalysen wurde die Kristallinität und die Durchmischung des Schichtsystems untersucht. Um

bei der Tiefenprofilanalyse kein verfälschtes Bild zu erhalten, wurde für diese Untersuchung ein Teil der Probe verwendet, bei dem die obere *Fe*-Schicht und auch die *Au*-Abdeckung weggelassen wurde. Dadurch kann man sicher sein, dass ein *Fe*-Vorkommen in der *ZnSe*-Schicht ein Resultat der Durchmischung an der unteren Grenzfläche ist und nicht durch *Fe*-Reste aus der oberen *Fe*-Schicht verursacht wird.



**Abbildung 2.9:** Tiefenprofilanalyse mit AES, an einer *GaAs*(001)/*Fe*/*ZnSe*/*Au*-Schicht; Die Substrattemperatur betrug  $200^{\circ}\text{C}$  beim Abscheiden von *ZnSe*.

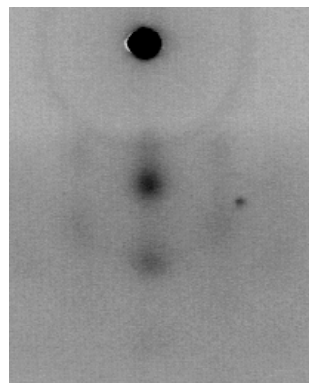
Als erstes werden die Untersuchungen an einer Probe gezeigt, bei der der Halbleiter bei  $200^{\circ}\text{C}$  Substrattemperatur aufgedampft wurde. Im Tiefenprofil (Abbildung 2.9) sieht man einen steilen Abfall des *Zn*- und *Se*-Signals und einen steilen Anstieg des *Fe*-Signals an der Grenzfläche. Da das *Fe*-Signal in der *ZnSe*-Schicht verschwindet und umgekehrt kein *Zn* und *Se* in der *Fe*-Schicht zu sehen ist, kann man davon ausgehen, dass man eine scharfe Grenzfläche ohne stärkere Durchmischung vorliegen hat. Die Empfindlichkeit der Methode reicht leider nicht aus, um auch eine geringe Durchmischung bzw. Dotierung des *ZnSe* mit *Fe* auszuschließen. Der Übergang zwischen *Fe* und *GaAs* verläuft dagegen eher fließend. Dies kann zwei Gründe haben: So nimmt mit zunehmender Ätzzeit die Tiefenauflösung der Methode ab, da die Probe nicht absolut homogen abgetragen wird. Oder aber die Grenzfläche ist wirklich durchmischelt, was durch den langen Temperprozess zur Glättung der *Fe*-Schicht durchaus plausibel ist. Für die Transportmessungen ist diese Grenzfläche jedoch nicht weiter von Belang. Auffällig ist dagegen der Sauerstoff-Peak an der Grenzfläche zwischen *Fe* und *ZnSe*. Die Oxid-Schicht entsteht während des Transfers der nicht abgedeckten *Fe*-Schicht, da in der Schleusenkammer nur ein Druck von  $2 \times 10^{-7}\text{mbar}$  vorherrscht und die *Fe*-Oberfläche sehr schnell unter schlechten Vakuumverhältnissen oxidiert. Diese Oxidschicht kann durch einen  $\text{H}_2$ -Plasmaprozess in der Halbleiter-MBE-Anlage entfernt werden (siehe Abbildung 2.17). Jedoch hat dies keinen Einfluss auf die Struktur der *ZnSe*-Schicht, da auch nach dem Entfernen der Oxidschicht das Wachstum bei der vorliegenden Substrattemperatur von  $200^{\circ}\text{C}$  polykristallin erfolgt. Beim Rücktransport der Probe gibt es dieses Oxidations-Problem nicht, da die *ZnSe*-Oberfläche nicht so



**Abbildung 2.10:** TEM-Aufnahme eines Querschnittspräparats einer ZnSe-Schicht die bei 200° C aufgedampft wurde, aufgenommen mit dem CM30. Dabei sind nur Gitternetzebenen des GaAs und ZnSe zu erkennen, die der Fe-Schicht können nicht aufgelöst werden. Au-Deckschicht und obere Fe-Schicht können nicht unterschieden werden.

reaktiv wie die Fe-Oberfläche ist.

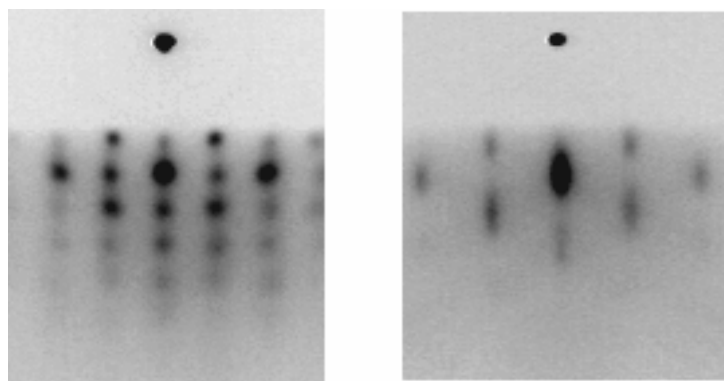
In Abbildung 2.10 sieht man eine TEM-Aufnahme eines Querschnittspräparats in dem das gesamte Schichtsystem zu sehen ist. Es ist zu erkennen, dass zwischen der unteren Fe-Schicht und der ZnSe-Barriere eine sehr glatte Grenzfläche vorliegt, wie auch aus den STM-Bildern 2.8 hervorgeht. Dagegen ist die obere Grenzfläche der Barriere deutlich rauer, was sich auch auf die obere Fe- und Au-Schicht auswirkt. Betrachtet man die herausvergrößerten Bereiche in Abbildung 2.10, so ist zu erkennen, dass die Gitternetzebenen in der ZnSe-Barriere verschiedene Ausrichtungen haben, die nicht mit der im GaAs-Substrat übereinstimmen. Die ZnSe-Schicht besteht also, zumindest in



**Abbildung 2.11:** RHEED-Bild der ZnSe-Oberfläche bei einer Wachstumstemperatur von 200° C

der gezeigten HRTEM-Aufnahme, aus bis zu 20nm großen Kristalliten. Dass dies nicht nur zufällig in einem kleinen Bereich der Probe sondern in der ganzen Schicht der Fall ist, zeigt das RHEED-Bild in Abbildung 2.11: In dem sehr diffusen Beugungsbild sind keine scharfen Reflexe zu sehen, wie bei der *GaAs*- oder *Fe*-Oberfläche (Abbildungen 2.5 und 2.6), sondern nur schwer erkennbare „Flecken“, die kreisförmig angeordnet sind. Bei rein polykristallinen Proben würde man Ringe im Beugungsbild erwarten. Durch eine Textur in einer polykristallinen Schicht - das heißt, es gibt bevorzugte Ausrichtungen der Kristallite - kommt es auf dem Beugungsring zu Intensitätsunterschieden, die wie „Flecken“ aussehen können.

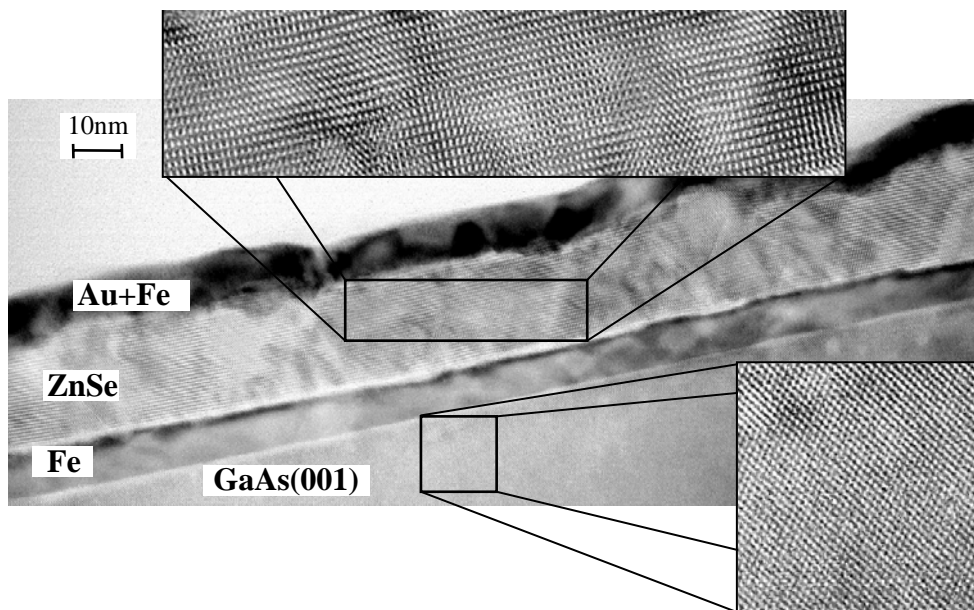
Es kann also zusammengefasst werden, dass bei einer Substrattemperatur von 200°C für die Abscheidung von *ZnSe* auf *Fe* keine starke Durchmischung an der Grenzfläche vorliegt, das Wachstum des Halbleiters aber polykristallin erfolgt.



**Abbildung 2.12:** Links: RHEED-Bild der *ZnSe*-Oberfläche bei einer Wachstums-Temperatur von 270°C; Rechts: Zum Vergleich ein RHEED-Bild einer rauen *GaAs*-Oberfläche nach der Desorption der Oxidschicht.

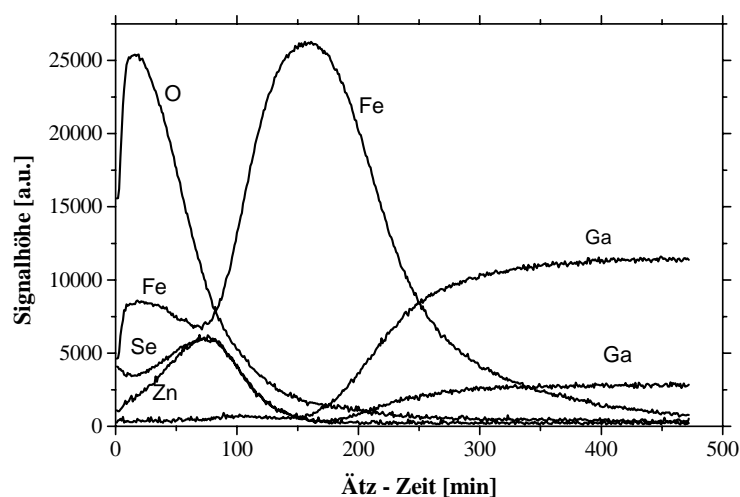
In weiteren Versuchen wurde die Temperatur schrittweise erhöht, ohne dass sich an der Kristallinität und Durchmischung an der Grenzfläche etwas änderte. Erst bei einer Substrattemperatur von 270°C erscheinen im RHEED-Bild punktförmige Reflexe die gitterförmig angeordnet sind (Abbildung: 2.12 links). Dieses Beugungsbild deutet einerseits auf eine raue aber einkristalline Oberfläche hin. Andererseits stimmt das Beugungsbild nicht mit dem einer rauen, einkristallinen *GaAs*-Schicht überein (Abbildung: 2.12 rechts), die aber die gleiche Gitterstruktur wie *ZnSe* haben sollte. Auch die HRTEM-Aufnahme eines Querschnittspräparats dieser Probe zeigt eindeutig eine andere Gitterstruktur in der *ZnSe*-Schicht als im *GaAs*-Substrat (Abbildung: 2.13). Es liegt also keine fcc-Struktur vor, wie man sie von einkristallinem *ZnSe* erwartet, sondern die Barriere hat kubische Symmetrie.

Die Ursache für diese untypische Struktur ist eine massive Durchmischung der *ZnSe*-Schicht mit *Fe*, die aus dem Tiefenprofil in Abbildung 2.14 abgelesen werden kann. Die Substrattemperatur von 270°C ist so hoch, dass verstärkt Platzwechselvorgänge zwischen *Fe*- und *Zn*- bzw. *Se*- Atomen stattfinden und somit verstärkt *Fe* in das Halbleitergitter eingebaut wird bzw. an der Oberfläche aufschwimmt. Dadurch kommt *Fe* mit Luft in Verbindung und oxidiert, was zu dem stark ausgeprägten Sauerstoff-Peak an der Oberfläche der Probe in Abbildung 2.14 führt.



**Abbildung 2.13:** TEM-Aufnahme eines Querschnittspräparats einer ZnSe-Schicht die bei 270° C aufgedampft wurde, aufgenommen mit dem Tecnai F30. Man sieht in den vergrößerten Bereichen unterschiedliche Gitterstrukturen der GaAs- und ZnSe-Schicht (aus [Bin02])

Man kann also zusammenfassen, dass mit dem hier angewendeten Verfahren keine epitaktische fcc-ZnSe-Schicht auf Fe(001), wie in [Aba95], hergestellt werden kann. Bei tiefen Substrat-Temperaturen hat man zwar keine Durchmischung an der Grenzfläche, aber auch keine einkristalline Halbleiterschicht. Erhöht man die Temperatur, sodass sich eine epitaktische ZnSe-Schicht ergibt, so hat diese nicht die gewünschte fcc-

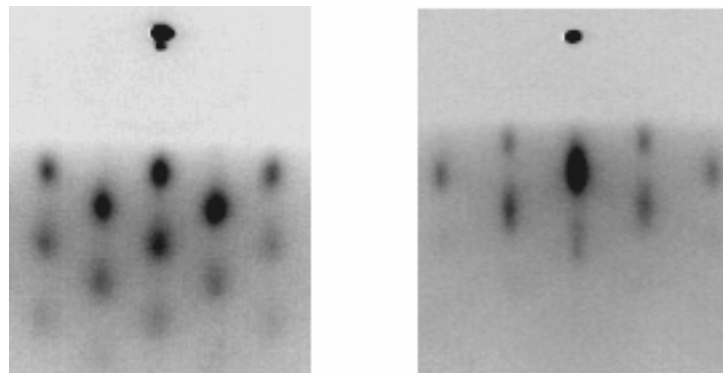


**Abbildung 2.14:** Tiefenprofilanalyse mit AES, an einer GaAs(001)/Fe/ZnSe-Schicht; Die Substrattemperatur betrug 270° C beim Abscheiden von ZnSe.

Struktur und ist zudem massiv mit  $Fe$  durchmischt. Um also die gewünschte Barriere herstellen zu können, benötigt man folglich ein anderes Verfahren. Aus der Literatur ist bekannt, dass bei ALE- (atomic-layer epitaxy) Wachstum von  $ZnSe$  auf  $GaAs$  zu geringeren Substrattemperaturen ( $250^{\circ}C$ ) übergegangen werden kann ([Oht99], [Bau93]). Aus diesem Grund wurde dieses Verfahren, bei dem der Substratoberfläche abwechselnd  $Zn$  und  $Se$  angeboten wird, auch bei dem Wachstum auf  $Fe$  angewendet. Damit konnte jedoch auch keine Verbesserung gegenüber dem herkömmlichen Wachstums-Modus festgestellt werden.

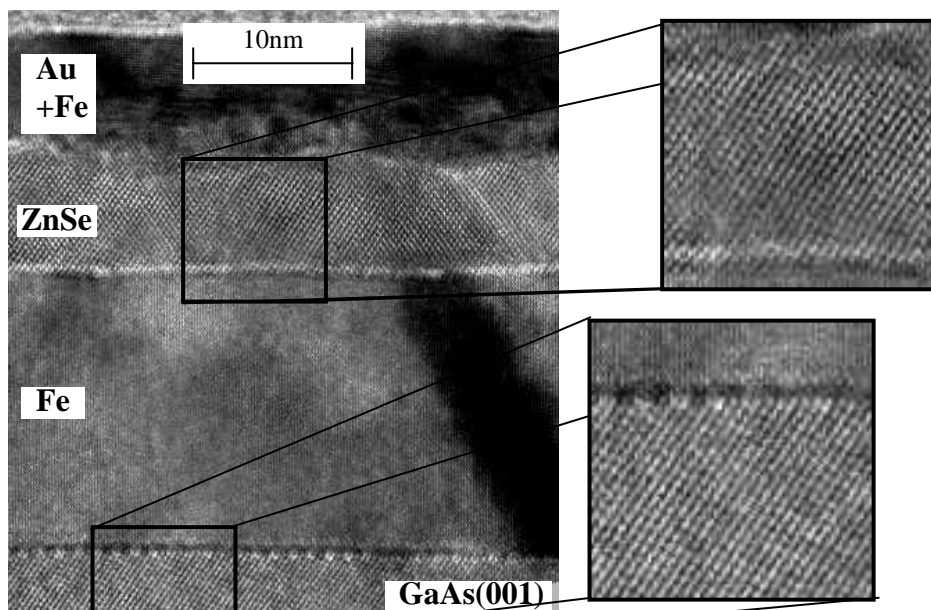
### 2.5.2 Verdampfen von ZnSe aus einem Tiegel

Eine Möglichkeit, die es erlaubt  $ZnSe$  bei Substrattemperaturen von  $50-150^{\circ}C$  auf  $GaAs$  abzuscheiden, ist das Verdampfen des Halbleiters aus einem einzigen Tiegel [Ohk96]. Der Grund für die erfolgreiche Epitaxie bei diesen niedrigen Temperaturen liegt in der Molekülgröße des verdampften Selen. Wird elementares Selen verdampft, so entstehen hauptsächlich  $Se_6$  und  $Se_5$ -Moleküle. Bei der Sublimation von  $ZnSe$ , die bei ca.  $700^{\circ}C$  beginnt, bilden sich dagegen nur  $Se_2$ -Moleküle. Um z.B. ein  $Se_6$ -Molekül in das Halbleitergitter einzubinden, müssen 5 Bindungen aufgebrochen werden. Beim Einbau von 3  $Se_2$ -Molekülen müssen bei der gleichen Anzahl von Atomen nur 3 Bindungen aufgebrochen werden, man benötigt also weniger Energie, wodurch die Substrattemperatur abgesenkt werden kann.



**Abbildung 2.15:** Links: RHEED-Bild der  $ZnSe$ -Oberfläche bei einer Wachstums-Temperatur von  $200^{\circ}C$ ; Rechts: Zum Vergleich ein RHEED-Bild einer rauen  $GaAs$ -Oberfläche nach der Desorption der Oxidschicht.

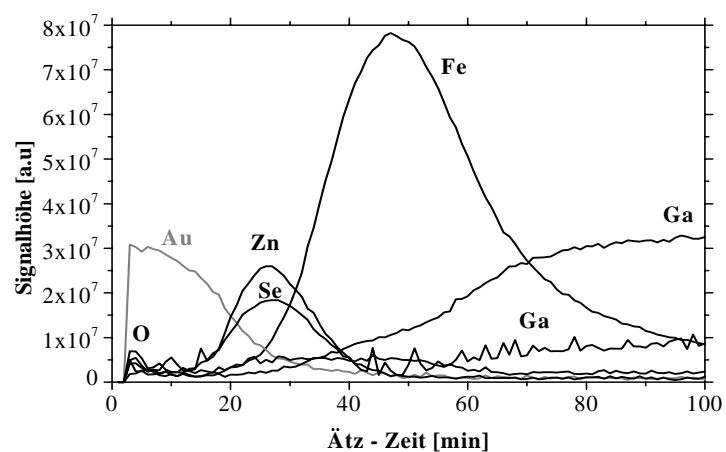
Bei der Abscheidung von  $ZnSe$  auf  $Fe(001)$ -Oberflächen bei Substrattemperaturen von  $160-190^{\circ}C$  ergibt sich jedoch das gleiche Bild wie in Abbildung 2.10: Die Schichten zeigen zwar keine Durchmischung, aber der Halbleiter ist polykristallin. Erst bei einer Temperatur von  $200^{\circ}C$  ist in der RHEED-Aufnahme (Abbildung 2.15 links) ein Beugungsbild zu erkennen, das dem einer rauen  $GaAs(001)$  Oberfläche (Abbildung 2.15 rechts) gleicht. Neben dem RHEED-Bild zeigt auch das Querschnittspräparat in Abbildung 2.16 eindeutig, dass es sich bei der Barriere um eine einkristalline  $ZnSe$ -Schicht mit einer fcc-Struktur handelt, die nur durch einzelne Versetzungen unterbrochen wird. Zwar setzt hier die Epitaxie von  $ZnSe$  auf  $Fe$  bei einer scheinbar höheren Substrat-



**Abbildung 2.16:** TEM-Aufnahme eines Querschnittspräparats einer ZnSe-Schicht die bei 200°C aufgedampft wurde, aufgenommen mit dem Tecnai F30. Man sieht in den vergrößerten Bereichen die identische Gitterstruktur der GaAs- und ZnSe-Schicht

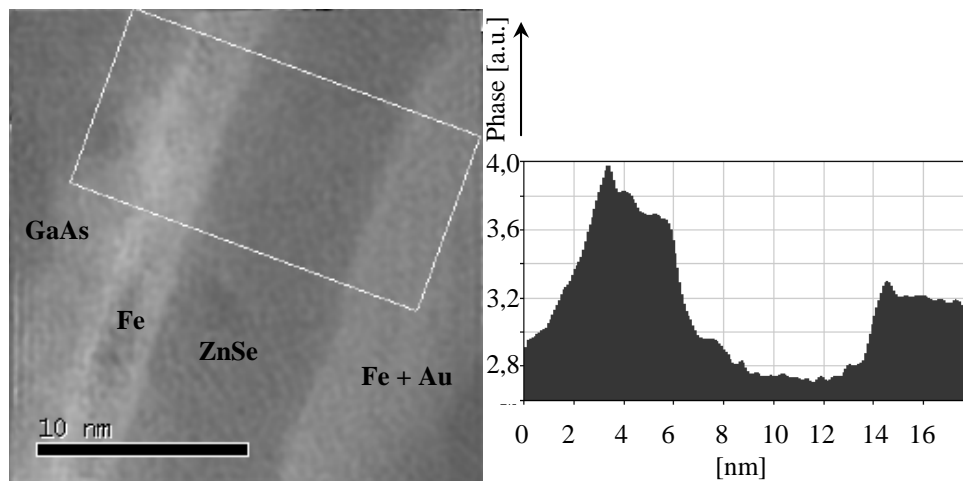
temperatur ein als in [Aba95] beschrieben (175°C), berücksichtigt man jedoch, dass die Temperatur auf der Probe wegen des modifizierten Probenhalters bestimmt geringer ist als die angegeben 200°C, so stimmen beide Ergebnisse überein.

Um zu prüfen, ob es bei diesem Verdampfungsmodus und einer Substrattemperatur von 200°C, zu einer Durchmischung der ZnSe-Barriere mit Fe kommt, wurde wie schon



**Abbildung 2.17:** Tiefenprofilanalyse mit AES, an einer GaAs(001)/Fe/ZnSe/Au-Schicht; Die Substrattemperatur betrug 200°C beim Abscheiden von ZnSe.



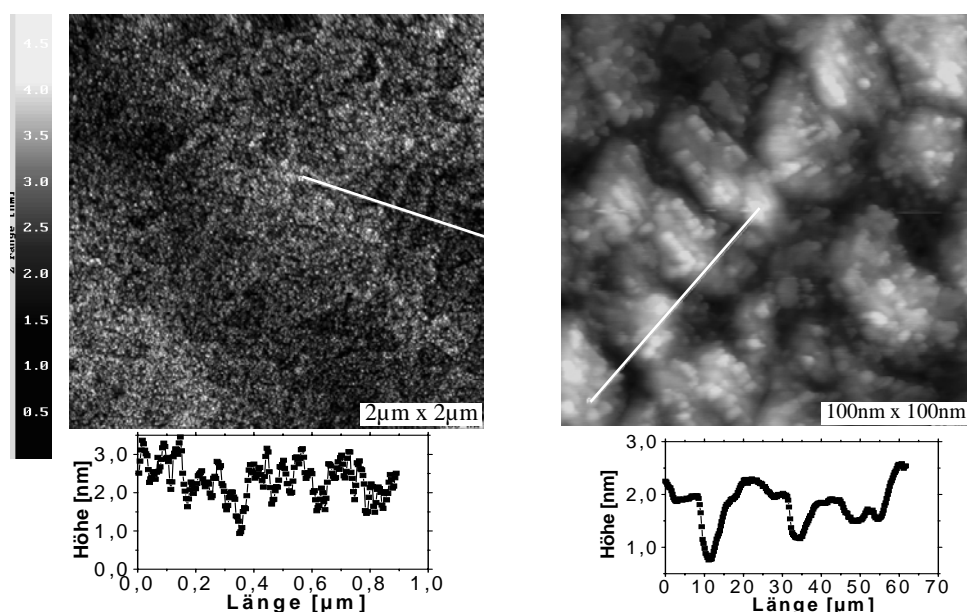


**Abbildung 2.18:** Links: Phasenbild eines Querschnittspräparats; Rechts: Über das im Phasenbild eingezeichnete Rechteck gemittelte Linienprofil;

in 2.5.1 ein Tiefenprofil erstellt (siehe Abbildung 2.17). Im Vergleich zu 2.9 ist an der Grenzfläche keine Oxidschicht mehr zu erkennen. Diese konnte durch eine  $H_2$ -Plasma-Behandlung der Eisenoberfläche nach dem Einschleusen in die Halbeiter-MBE-Anlage entfernt werden.

Das  $Fe$ -Signal fällt innerhalb der  $ZnSe$ -Dicke auf null ab. Somit liegt keine durchgängige Durchmischung wie in Abbildung 2.14 vor. Aus dem Verlauf des  $Fe$  und  $Zn$  bzw.  $Se$  Signals in Abbildung 2.17 könnte man schließen, dass es an der Grenzfläche einen fließenden Übergang zwischen den Materialien gibt, was gleichbedeutend mit einer Grenzflächendurchmischung wäre. Man muss jedoch beachten, dass durch das große  $Fe$ -Signal der Grenzflächenverlauf etwas verzerrt wird.

Ob in diesen Proben eine scharfe Grenzfläche ohne Durchmischung vorliegt, oder ob es eine Durchmischungszone gibt, in der der  $ZnSe$ -Anteil langsam zunimmt, soll mit Hilfe der Elektronenholografie an Querschnittspräparaten ermittelt werden. In Abbildung 2.18 links ist ein Phasenbild eines Querschnittspräparats zu sehen, in dem die Metall- und Halbleiterschichten deutlich voneinander zu unterscheiden sind. Um Aussagen über die Durchmischung an der Grenzfläche machen zu können, wird ein Linienprofil des Schichtaufbaus erstellt. Je nach dem an welchem Ort die Linie platziert wird, führen statistische Unregelmäßigkeiten wie Verschmutzungen auf dem Querschnittspräparat zu unterschiedlichen Profilen. Um dies zu vermeiden wurde in Abbildung 2.18 rechts die Phasendifferenz gemittelt über das eingezeichnete Rechteck aufgetragen, was einer Mittelung über viele einzelne Linienprofile entspricht. Dadurch kommt es zwar zu einer leichten „Verschmierung“ an den Grenzflächen, aber man kann eine gesicherte Aussage über die maximale Ausdehnung eines möglichen Durchmischungsbereichs machen. Es kann also höchstens in einem Bereich von 1nm an der Grenzfläche zur Interdiffusion zwischen  $Fe$  und  $ZnSe$  kommen. Vergleicht man die beiden Grenzflächen zwischen  $ZnSe$  und  $Fe$  so kann ein ähnlicher Verlauf festgestellt werden. Da man aber weiß, dass es beim Wachstum von  $Fe$  auf  $ZnSe$  bei Zimmertemperatur zu keiner Durchmischung kommt (siehe [Rei00]), sollte auch in der anderen Grenzfläche keine Durchmischung



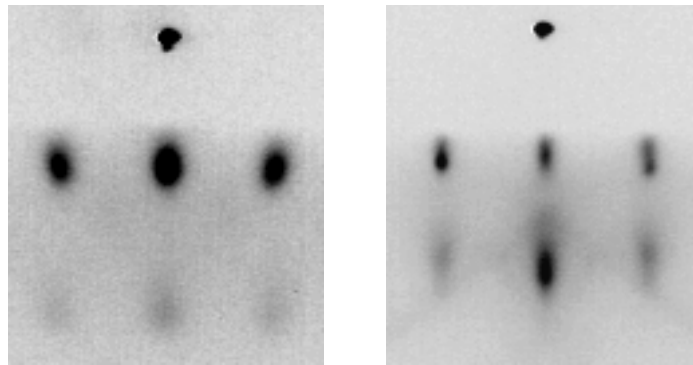
**Abbildung 2.19:** Links:  $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$  großes STM-Bild der epitaktischen  $\text{ZnSe}$ -Oberfläche, darunter das Linienprofil; Rechts:  $100\text{nm} \times 100\text{nm}$  großer STM-Ausschnitt der  $\text{ZnSe}$ -Oberfläche, darunter das Linienprofil;

vorliegen.

Die Charakterisierung der  $\text{ZnSe}$ -Barriere wird durch die STM-Untersuchung der Oberfläche vervollständigt. Dabei ist festzustellen, dass keine atomar glatten Bereiche mehr zu erkennen sind, wie das bei der  $\text{Fe}$ -Oberfläche der Fall war (Abbildung 2.8). Die  $\text{ZnSe}$ -Oberfläche besteht vielmehr aus dreidimensionalen unregelmäßigen Inseln mit einer lateralen Ausdehnung von 10-30nm und 2nm Höhe. Trotz der Rauigkeit der  $\text{ZnSe}$ -Oberfläche, die eine Folge der niedrigen Wachstumstemperatur ist, ergibt sich in der  $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$  großen STM-Aufnahme in Abbildung 2.19 ein maximaler Höhenunterschied von nur 2nm. Wegen den maximalen Höhenunterschieden von 1,5nm in der unteren Grenzfläche (Abbildung 2.8) und 2nm in der oberen Grenzfläche (Abbildung 2.19) sollten die beiden  $\text{Fe}$ -Schichten ab einer  $\text{ZnSe}$ -Dicke von 4nm keine metallischen Verbindungen mehr aufweisen. Ab dieser Barrierendicke sollte also ein Tunnelstrom fließen und somit Tunnelmagnetowiderstandsmessungen möglich sein.

## 2.6 Wachstum der oberen Fe-Schicht

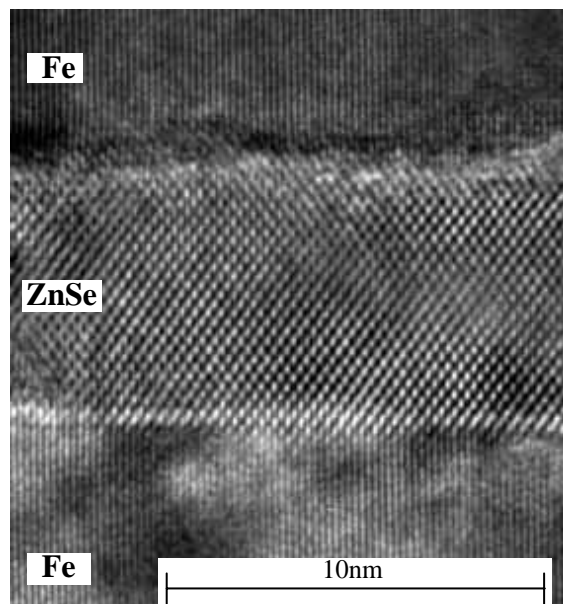
Der letzte Schritt des Herstellungsprozesses besteht in der Abscheidung einer einkristallinen  $\text{Fe}$ -Schicht auf dem  $\text{ZnSe}$ . Aus früheren Arbeiten ist bekannt, dass  $\text{Fe}$  bei Raumtemperatur ohne magnetisch tote Lagen epitaktisch auf  $\text{ZnSe}$  aufwächst [Rei00]. Dass dies auch trotz der rauen Oberfläche und den Versetzungen in der  $\text{ZnSe}$ -Schicht möglich ist, zeigen die RHEED-Aufnahmen in Abbildung 2.20. Dort ist das Beugungsbild einer rauen bcc-Eisen-Oberfläche zu sehen, das mit dem von epitaktischem  $\text{Fe}$  auf  $\text{GaAs}(001)$  übereinstimmt. Bei genügend großem Auflösungsvermögen sind auch in den beiden  $\text{Fe}$ -Schichten der HRTEM-Aufnahme des Querschnittspräparats (Abbil-



**Abbildung 2.20:** Links: RHEED-Aufnahme der oberen Fe-Schicht; Rechts: RHEED-Aufnahme der unteren Fe-Schicht vor der Glättung (siehe auch Abbildung 2.6);

dung 2.21) identische Gitternetzlinien zu erkennen.

Um das gesamte Schichtsystem vor Oxidation zu schützen, wird am Ende eine 5nm dicke *Au*-Schicht aufgedampft, die ebenfalls epitaktisch auf der oberen *Fe*-Schicht aufwächst. Dieses vollepitaktische Schichtsystem *GaAs*(001) / *Fe* / *ZnSe* / *Fe* / *Au* ist die Grundlage für die weiteren magnetischen und elektrischen Untersuchungen.



**Abbildung 2.21:** HRTEM-Aufnahme des *Fe* / *ZnSe* / *Fe* - Schichtsystems

# Kapitel 3

## Strukturierung

Im vorigen Kapitel ist beschrieben, wie das epitaktische Schichtsystem  $Fe / ZnSe / Fe / Au$  in dieser Arbeit hergestellt wurde. Im Weiteren sollen elektrische Transportmessungen sowie Magnetotransportmessungen an diesen Schichten durchgeführt werden. Dazu ist es jedoch notwendig, die beiden  $Fe$ -Schichten getrennt voneinander zu kontaktieren und den Strom senkrecht zur Schichtebene, („current perpendicular to plane“) von einer Elektrode zur anderen zu messen. Dies erfordert eine laterale Strukturierung des Schichtsystems, um die untere „vergrabene“  $Fe$ -Schicht freizulegen. Gleichzeitig ist es sinnvoll die aktive Fläche, in der die Elektronen von einer Elektrode zur anderen fließen, lateral einzuschränken, um die Wahrscheinlichkeit von pinholes in den Tunnelementen zu reduzieren. Unter pinholes versteht man Löcher in der Barriere, die durch elektrisch leitendes Material aufgefüllt werden. Dadurch kommt es zu einem Kurzschluß und der Großteil des Stromes fließt über diese Verbindung. Im Prinzip reicht also ein pinhole aus, um ein Tunnelement unbrauchbar zu machen. Je kleiner die Tunnelfläche ist, desto unwahrscheinlicher ist es ein pinhole in dem Element vorzufinden. Andererseits nimmt jedoch die Empfindlichkeit der Tunnelemente mit abnehmender Größe zu, da deren Kapazität ebenfalls abnimmt. Bei kleinen Kapazitäten reichen oft statische Aufladungen während des Einbaus der Probe aus, um Überschlüsse in der Tunnelstruktur zu erzeugen, die diese zerstören.

Für diese Arbeit wurde eine einheitliche Tunnelfläche von  $20\mu m \times 20\mu m$  gewählt, da dies mittels optischer Lithografie bequem realisierbar ist und eine ähnliche Tunnelfläche auch bei [Kre01] verwendet wurde. In den nächsten Abschnitten werden die einzelnen Schritte der Strukturierung, die dabei auftretenden Probleme und die entsprechenden Lösungsansätze beschrieben.

### 3.1 Prinzipieller Prozess

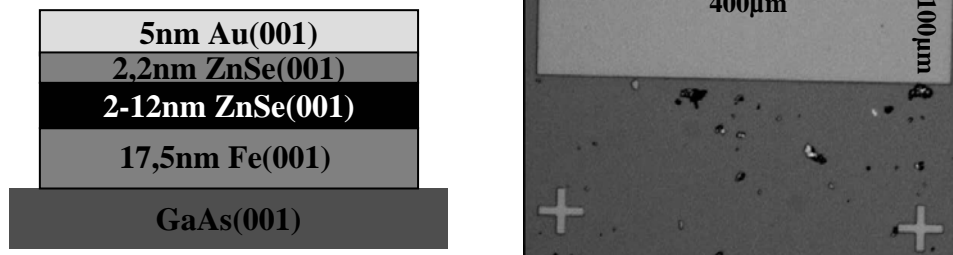
In einem ersten Schritt werden die  $1cm \times 1cm$  großen Proben in vier Teile geteilt, da in die Probenträger, die später für die Transportmessungen verwendet werden, maximal  $5mm \times 5mm$  große Probenstücke passen. Die verwendeten Chrom-Masken sind dabei so konzipiert, dass pro  $5mm \times 5mm$ -Probe 25 einzelne Tunnelemente strukturiert werden können. Um später Vierpunkt-Messungen durchführen zu können, benötigt man sowohl für die untere als auch für die obere Elektrode zwei Kontaktflächen

(pads), an denen die Verbindungsdrähte zum Probenträger festgemacht werden. Die  $100\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$  großen Kontaktflächen dürfen dabei nicht direkt über der Tunnelfläche liegen, da durch das „Ultraschall-Bonden“ große mechanische Kräfte auf die Unterlage wirken und somit die dünne Barrierenschicht beschädigt werden könnte.

In den folgenden Abbildungen werden die einzelne Strukturierungsschritte dargestellt:

### 1.Schritt: Strukturierung der Bottom-Elektrode:

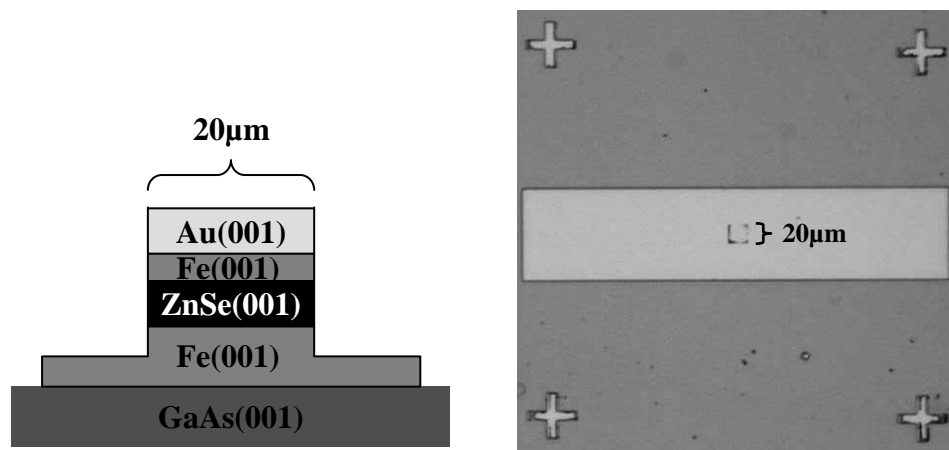
In diesem ersten Schritt wird die untere Elektrode strukturiert. Nach dem Aufbringen, Schreiben und Entwickeln des Lacks bleiben rechteckige Strukturen mit einer Länge von  $400\mu\text{m}$  und einer Breite von  $100\mu\text{m}$  auf der Probe übrig, die die untere Zuleitung für das Tunnelelement definieren. Durch Argon-Ionen-Ätzen wird anschließend das gesamte Schichtsystem bis zum *GaAs*-Substrat abgetragen, nur die vorher definierten Rechtecke bleiben stehen. In Abbildung 3.1 sind nach dem Entfernen der Fotolackreste die Rechteckstrukturen und die Positionierungskreuze zu sehen, die für die späteren Strukturierungsschritte gebraucht werden.



**Abbildung 3.1:** Links: Schematischer Querschnitt durch die Struktur. Rechts: Draufsicht mit dem Lichtmikroskop.

### 2.Schritt: Strukturierung der Tunnelfläche:

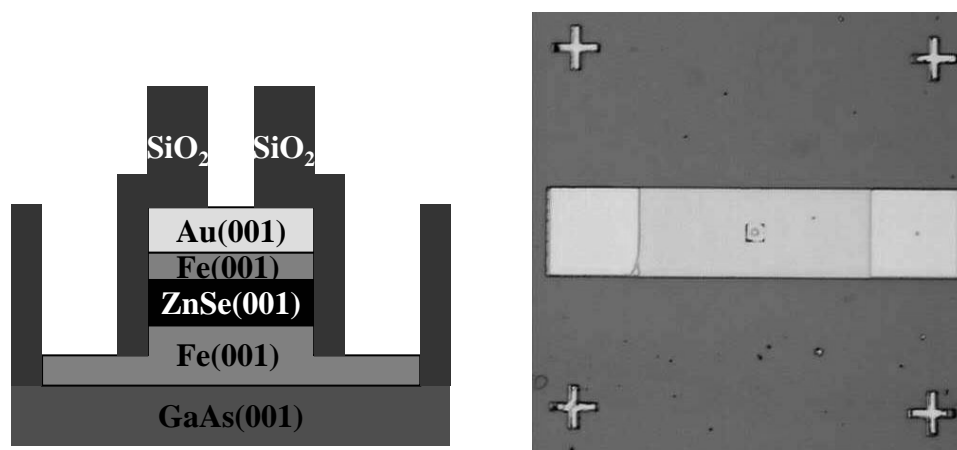
Als nächstes wird die  $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$  große Tunnelfläche strukturiert. Dies ist der kritischste Schritt im ganzen Prozess, da hierbei der Ätzprozess genau innerhalb der unteren 17nm dicken *Fe*-Schicht gestoppt werden muss, um diese elektrisch kontaktieren zu können (Abbildung 3.2). Nach dem Ätzschritt liegt zwar die untere *Fe*-Schicht zum größten Teil frei und oxidiert, aber der Teil der *Fe*-Schicht, der für den Tunnelprozess wichtig ist, hat keinen direkten Kontakt mit Luft und sollte deshalb nicht oxidiert werden. Der andere Bereich dient lediglich zur elektrischen Zuleitung, die trotz Oxidation ein ohmsches Verhalten vorweist, was aus Zweipunktmessungen an den beiden Bottom-Kontakten hervor geht.



**Abbildung 3.2:** Links: Schematischer Querschnitt durch die Struktur. Rechts: Draufsicht mit dem Lichtmikroskop. Das eigentliche Tunnelement befindet sich mittig auf dem Rechteck.

### 3.Schritt: Aufbringen des Isolators:

Hier wird mittels eines PECVD (Plasma Enhanced Chemical Vapour Deposition)-Prozesses eine 150nm dicke  $\text{SiO}_2$  Isolatorschicht aufgebracht, die einen direkten metallischen Kontakt zwischen der oberen und unteren Leiterbahn verhindern soll. Dabei kommt ein sogenannter Lift-off-Prozess zum Einsatz, bei dem der Fotolack an denjenigen Stellen stehen bleibt, die nicht mit  $\text{SiO}_2$  bedeckt werden sollen. Nach dem Aufbringen des Isolators wird der Lack wieder entfernt und wie in Abbildung 3.3 zu sehen, ergeben sich drei Löcher in der Isolatorschicht, die im vierten Schritt mit  $\text{Au}$  aufgefüllt werden. Entscheidend bei diesem Schritt ist die Platzierung der  $15\mu\text{m}$  großen Lackstruktur auf dem Tunnelement. Die Lacksäule darf dabei nicht über den Rand der quadratischen Tunnelstruktur hinausragen, da es sonst zu einem metallischen Kontakt

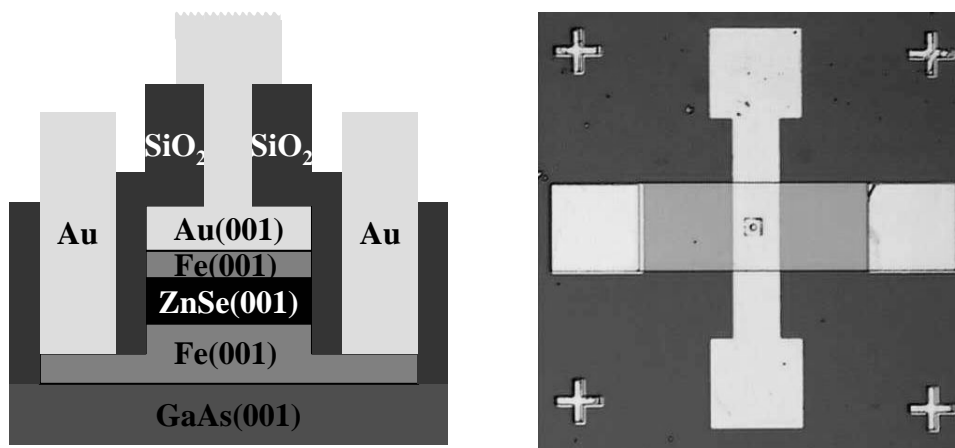


**Abbildung 3.3:** Links: Schematischer Querschnitt durch die Struktur. Rechts: Draufsicht mit dem Lichtmikroskop. Das  $15\mu\text{m}$  große Loch auf der Tunnelstruktur muss sich innerhalb der  $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$  großen Grundfläche befinden.

zwischen der oberen und unteren Leiterbahn kommt und das Tunnelelement dadurch kurzgeschlossen wäre. Die Platzierung der beiden rechteckigen Löcher, durch die die untere *Fe*-Schicht kontaktiert wird, ist dagegen weniger kritisch, da es keine Möglichkeit zum Kurzschluss mit der oberen Elektrode gibt.

#### 4.Schritt: Aufbringen der *Au*-Pads:

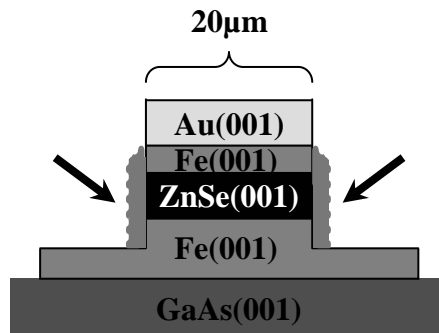
Der letzte Strukturierungsschritt erfolgt ebenfalls mit Lift-off-Technik. Vor dem Aufdampfen der 250nm dicken *Au*-Schicht wird noch eine 30nm dicke *Cr*-Schicht als Haftvermittler aufgebracht. Nach dem Entfernen des Fotolacks bleiben die vier *Au*-Kontaktflächen und die obere *Au*-Zuleitung übrig, wie in Abbildung 3.4 zu sehen ist.



**Abbildung 3.4:** Links: Schematischer Querschnitt durch die Struktur. Rechts: Draufsicht mit dem Lichtmikroskop. Die vier *Au*-Pads haben jeweils eine Größe von  $100\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$ .

Auf jeder Probe befinden sich bis zu 25 dieser Tunnelstrukturen. Mit Hilfe eines Spitzennessplatzes am Lehrstuhl Weiss werden von allen Elementen Strom-Spannungskennlinien aufgenommen, wodurch bereits hier kurzgeschlossene oder vollkommen isolierende Tunnelstrukturen herausgefiltert werden können. In dem Probenträger der für die Magnetotransportmessungen eingesetzt wird, stehen nur 20 Kontakte zur Verfügung, das heißt, dass bei Vierpunktmessungen maximal 5 Elemente gleichzeitig kontaktiert und vermessen werden können. Beim Einkleben der Proben ist zudem zu beachten, dass die [100]-Richtung des *GaAs*-Substrats parallel zur Probenträgerkante ausgerichtet ist, damit bei den Messungen im Kryostaten das Magnetfeld parallel zur [100]-Richtung anliegt, da man entlang dieser Richtungen ein abruptes Umschalten der beiden magnetischen Schichten erwartet (siehe Kapitel 4).

## 3.2 Strukturierungsprobleme und Lösungsansätze



**Abbildung 3.5:** Querschnitt der Tunnelstruktur nach dem 2. Ätzschritt. Die Pfeile zeigen auf den Belag hin der durch Redeposition entstanden ist.

Bereits bei den Voruntersuchungen am Spitzenmessplatz ist festzustellen, dass nur wenige Elemente einen sehr großen Widerstand ( $>10\text{M}\Omega$ ) vorweisen, der durch einen fehlgeschlagenen Lift-off-Prozess verursacht wird. Der Lack wird dabei nicht abgelöst, was auch im Mikroskop zu sehen ist, und sorgt für das isolierende Verhalten. Vielmehr werden bei den meisten Tunnelkontakten ohmsche Kennlinien mit sehr geringen Widerständen gemessen. Dies könnte zwar durch eine nicht perfekte *ZnSe*-Barriere verursacht werden, andererseits ist jedoch nicht auszuschließen, dass dies eine Folge von Redeposition während des Ätzprozesses (2.Schritt in 3.1) ist. Unter Redeposition versteht man die Ablagerung von Material auf der Probe, das durch den Ar-Ionen-Beschuss an anderer Stelle entfernt wird. So könnten sich Atome, die im 2.Prozessschritt von der unteren *Fe*-Schicht abgetragen werden, am Rand der Tunnelstruktur wieder ablagern (siehe Abbildung 3.5). Dies führt dazu, dass die *ZnSe*-Barriere am Rand kurzgeschlossen wird und dadurch ein ohmscher Widerstand gemessen wird [Nag03]. Um dies zu vermeiden, gibt es verschiedene Möglichkeiten: Hat man den physikalischen Ätzprozess gut im Griff, so könnte man genau nach dem Wegätzen der Barriere abbrechen. Man verhindert damit ein Abtragen der unteren *Fe*-Schicht und damit auch die störende Redeposition. Dazu muss aber die Äztiefe während des Ätzprozesses genau bekannt sein. Mit Hilfe eines Secundary Ion Mass Spectrometer Analyzers wäre dies theoretisch in der Ionen-Ätz-Anlage möglich. Jedoch sind die detektierten Signale der einzelnen Elemente zu klein, um dadurch einen gesicherten Ätz-Stopp festzulegen.

Eine andere Möglichkeit besteht darin, die Ar-Ionen unter einem schrägen Winkel aufzutreffen zu lassen und die Probe gleichzeitig zu rotieren. Dadurch werden *Fe*-Atome, die sich am Rand der Tunnelstruktur ablagern, sofort wieder abgetragen. Es kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, dass einige *Fe*-Atome während des Ar-Ionen-Ätzens in die Barriere implantiert werden, wie auch bei Ätzversuchen von *Fe* auf *GaAs* in [Spi04] vermutet wird. Um dies zu verhindern müsste man das physikalische Ätzen durch einen nasschemischen Prozess ersetzen, was hier aber nicht realisiert wurde. Der modifizierte physikalische Ätzprozess kann mit Hilfe des Rasterelektronenmikroskops mit Auger-Elektronen-Analyse (siehe Kap.2.2.3) angewandt werden. Die Probe wird dabei



verkippt und während des Ätzprozesses kontinuierlich gedreht, sodass die Ar-Ionen unter einem Winkel von  $30^\circ$  auftreffen. Mit Hilfe der Auger-Elektronen-Analyse kann das Oberflächenmaterial während des Ätzprozesses bestimmt werden. Damit der Elektronenstrahl nicht auf das  $100\mu\text{m} \times 400\mu\text{m}$  große rotierende Rechteck fokussiert werden muss, wurde der 2. Prozessschritt in 3.1 vorgezogen und erst dann das untere Rechteck (Abbildung 3.1) geschrieben. Somit steht für die Auger-Untersuchung nahezu die gesamte Probenfläche zur Verfügung. Auf die weitere Strukturierung sollte dies keinen Einfluss haben. Ein weiterer Vorteil dieser Anlage ist die geringere Ätzrate, da hiermit die Ätztiefe genauer eingestellt werden kann: So benötigt der schräge Ätzprozess mit Probenrotation ca. 60 min bis die untere *Fe*-Schicht frei liegt, wogegen dies in der Ionen-Ätz-Anlage innerhalb von 20s geschieht. Mit diesen Modifikationen sollte also Redeposition als Grund für die ohmschen Kennlinien ausgeschlossen werden, lediglich eine erhöhte Verunreinigung der *ZnSe*-Barriere mit *Fe*-Atomen an den Rändern der Tunnelstruktur könnte durch das physikalische Ätzen entstehen.

Ein weiteres Problem könnte die 150nm dicke *SiO<sub>2</sub>* darstellen, falls diese pinholes vorweist und es somit zu metallischen Verbindungen zwischen der oberen und unteren Strom-Zuleitung kommt. Dazu wurden Versuche gemacht, bei denen die gleichen Schritte wie in 3.1 beschrieben, durchgeführt wurden, aber bei Prozessschritt 3 das Tunnelement komplett mit *SiO<sub>2</sub>* bedeckt wurde. Die obere und untere Zuleitung wird dabei komplett durch die 150nm dicke *SiO<sub>2</sub>*-Schicht getrennt. Widerstandsmessungen ergaben dabei immer einen Widerstand von über  $10\text{M}\Omega$ , wodurch die isolierende Wirkung des *SiO<sub>2</sub>* verifiziert ist.

### 3.3 Strukturierung von Proben mit zusätzlicher Permalloy-Schicht

Damit auch bei tiefen Temperaturen ein getrenntes Umschalten der beiden *Fe*-Schichten garantiert ist (siehe Kap. 4.4), wird die obere an eine dicke *Py*-Schicht ferromagnetisch gekoppelt. Um dies zu ermöglichen, muß die epitaktische Au-Schicht zuerst abgetragen werden, bevor die Permalloy-Schicht und die *Pt*-Abdeckschicht mittels Kathodenzerstäubung („Sputtern“) aufgebracht werden kann. Beide Prozesse wurden in einer UHV-Sputteranlage (Aufbau siehe [Ede94]) durchgeführt, in der auch ein „inverser Sputterätzer“ zum Ar-Ionen-Ätzen vorhanden ist [Kre97]. Die Proben, die für die Bestimmung der magnetischen Eigenschaften (siehe Kap. 4.4) gedacht waren, wurden dabei flächig abgeätzt und anschließend wurden 10nm *Py* mit einer Abdeckung von 5nm *Pt* aufgebracht. Bei den Proben, die für Magnetotransportmessungen vorgesehen waren, wurden nur die  $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$  großen Quadrate abgeätzt und mit 100nm *Py* und 50nm *Pt* bedeckt, die das eigentliche Tunnelement definieren. Es wird also bevor die Probe in die Sputteranlage eingeschleust wird, eine Lackschicht strukturiert, die bis auf die Quadrate die ganze Probe bedeckt. Nach dem Sputtern wird der Fotolack abgelöst und mit dem weiteren Prozessschritten fortgefahren. Dabei fungieren die *Py/Pt*-Quadrate als Maske für den nächsten Ätzschritt, bei dem die untere *Fe*-Schicht freigelegt wird, wie in Kap. 3.2 beschrieben ist. Damit auch nach dem Prozess

das Permalloy abgedeckt bleibt und nicht oxidiert, wurde die *Pt*-Schicht mit 50nm hinreichend dick gewählt. Anschließend werden das untere *Fe*-Rechteck strukturiert und die restlichen Schritte (siehe Kap.3.1) durchgeführt.

## Kapitel 4

# Magnetisches Verhalten

Entscheidend für den TMR-Effekt sind unterschiedliche Schaltfelder der beiden ferromagnetischen Schichten, damit neben einer parallelen auch eine antiparallele Magnetisierungskonfiguration eingestellt werden kann. In konventionellen polykristallinen Tunnelementen mit  $Al_2O_3$ -Barrieren wird dies durch Festhalten („pinning“) der Magnetisierung einer der beiden Schichten erreicht. Dabei wird eine antiferromagnetische Schicht im Magnetfeld direkt auf den Ferromagneten aufgebracht. Aufgrund der Austauschkopplung zwischen Ferro- und Antiferromagnet ergibt sich eine unidirektionale Anisotropie, die für eine Verschiebung des Koerzitivfeldes in der Hysteresekurve der gekoppelten Schicht sorgt (siehe [Bay99]). Somit existiert immer ein Magnetfeld, bei dem sich eine antiparallele Magnetisierung der beiden Ferromagneten einstellen lässt. Eine andere Möglichkeit eine ferromagnetische Schicht zu „pinnen“, besteht darin, die oszillierende Zwischenschichtaustauschkopplung auszunutzen. Bei diesem sogenannten artificial antiferromagnet-System macht man die Schicht zwischen der einen Tunnelelektrode und einer zusätzlichen ferromagnetischen Schicht gerade so dick, dass sich das System im ersten antiferromagnetischen Maximum befindet. Somit ergibt sich ein „künstlicher“ Antiferromagnet, bei dem erst durch ein äußeres Magnetfeld die Kopplung überwunden wird. Somit schaltet die gekoppelte Elektrode des TMR-Elements später als die ungekoppelte und man erhält über einen größeren Magnetfeldbereich eine antiparallele Einstellung der ferromagnetischen Tunnelelektroden [Ber96].

In dieser Arbeit wurde bewusst auf zusätzliche antiferromagnetische Schichten oder künstliche Antiferromagneten verzichtet, um den Schichtaufbau möglichst einfach zu gestalten und zusätzliche Magnetowiderstandseffekte auszuschließen. Außerdem hätte die Entwicklung dieses Schichtsystems einen größeren Zeitaufwand in Anspruch genommen. Deshalb wurde hier versucht, unterschiedliche Schaltfelder nur durch unterschiedliche Dicken der beiden  $Fe$ -Schichten zu erreichen.

Nach einer kurzen Beschreibung der magnetischen Messmethoden wird in den nächsten beiden Unterkapiteln genauer auf das Ummagnetisierungsverhalten der beiden  $Fe$ -Elektroden eingegangen. Im vierten Abschnitt wird dann der Einfluss einer zusätzlichen weichmagnetischen Schicht untersucht, die direkt auf die obere  $Fe$ -Schicht aufgebracht wird. Am Ende wird die Domänenstruktur in den ferromagnetischen Filmen beschrieben und eine mögliche Kopplung über die Halbleiterbarriere diskutiert.

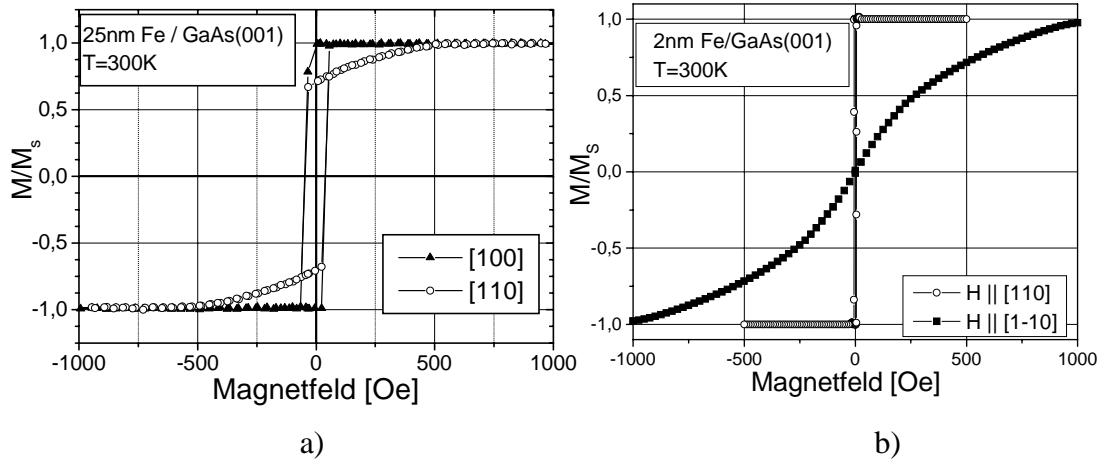
## 4.1 Magnetische Messmethoden

Die magnetischen Untersuchungen an den ausgedehnten Schichten wurden mit Hilfe des magneto-optischen Kerr-Effekts (MOKE) und eines SQUID (Superconducting Quantum Interference Device) -Magnetometers durchgeführt. Beim magneto-optischen Kerr-Effekt erfährt linear polarisiertes Licht bei der Reflexion aufgrund der Magnetisierung in der Schicht eine Drehung der Polarisationsachse und zugleich eine Elliptisierung. Trägt man die Kerrdrehung gegen das äußere Magnetfeld auf, so erhält man die gewünschte Ummagnetisierungskurve. Aus der gemessenen Kerrdrehung kann jedoch nicht auf das absolute magnetische Moment der Schicht geschlossen werden, da diese durch unterschiedliche Grenzflächen, Abdeckschichten und Eindringtiefen des Lichts in das Material beeinflusst wird. Durch die endliche Eindringtiefe des Lichts in das Material verursachen Schichtzonen nahe der Oberfläche eine stärkere Kerrdrehung als tief vergrabene Schichtzonen. In dieser Arbeit wurden für die Erzeugung des äußeren Feldes Luftspulen verwendet, die ein maximales Magnetfeld von 100Oe erreichen, da damit im Gegensatz zu Eisenkernmagneten auch sehr kleine Feldwerte auf 0,1Oe genau eingestellt werden können [Ben01]. Mit Hilfe eines Kryostaten konnte mit diesem Aufbau ein Temperaturbereich von Zimmertemperatur bis 80K abgedeckt werden. Ein großer Vorteil des MOKE-Magnetometers ist, dass lokale Messungen, hier in einem Bereich von ca.  $1\text{mm}^2$  möglich sind, was die Vermessung von Stufenkeilschichten erlaubt (siehe dazu 4.6). In einem Mikroskop-Aufbau, der auch zur Kerr-Mikroskopie verwendet wird, ist sogar eine laterale Auflösung von  $1\mu\text{m}^2$  möglich [Ste05]. Eine detaillierte Beschreibung des magneto-optischen Kerr-Effekts und des experimentellen Aufbaus ist in [Ker77],[Bec99] und [Ben01] zu finden.

Im Gegensatz zum MOKE-Magnetometer ist das SQUID-Magnetometer eine integrale Methode, die es erlaubt, das magnetische Moment absolut zu bestimmen und auch beliebig tief vergrabene Schichten zu vermessen. Damit konnten die magnetischen Eigenschaften der ganzen Probe in einem Temperaturbereich von 300K bis 4,2K untersucht werden. Eine genaue Beschreibung des SQUID-Magnetometers kann in [Ben01] und [Kip04] nachgelesen werden.

## 4.2 Magnetisches Verhalten bei Zimmertemperatur

Bei polykristallinen Schichten, wie sie in den meisten magnetischen Tunnelkontakten verwendet werden, erwartet man ohne die zuvor beschriebenen Methoden zum magnetischen pinning ein weitgehend isotropes Ummagnetisierungsverhalten. Dass sich polykristalline Schichten jedoch nicht vollkommen isotrop verhalten, liegt an induzierten Anisotropien. So kann durch ein äußeres Magnetfeld während des Aufdampfprozesses eine Anisotropie erzeugt werden. Gibt es keine isotrope Verteilung der einzelnen Kristallite in der magnetischen Schicht, sondern liegt eine Textur vor, in der eine Kristallausrichtung häufiger auftritt, so kommt es ebenfalls zu einer magnetischen Anisotropie. Die Ursache dafür ist die Spin-Bahn-Wechselwirkung, die für eine richtungsabhängige Ummagnetisierungsarbeit in den einzelnen Kristalliten sorgt. In einkristallinen Proben,



**Abbildung 4.1:** a) Ummagnetisierungskurve einer GaAs(001) / 25nm Fe / 5nm Au -Probe in [100] und [110]-Richtung. Die Ummagnetisierungskurven entlang der [010]- und [-110]-Richtung sind nicht gezeigt, haben aber die gleiche Form. (aus [Zöl01])

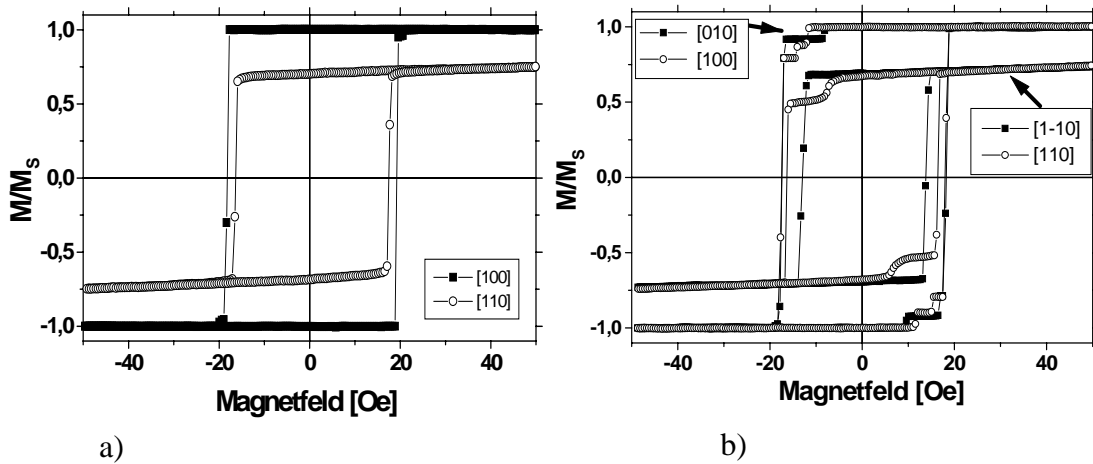
b) Ummagnetisierungskurve einer GaAs(001) / 2nm Fe / 5nm Au -Probe in [110]- und [1-10]-Richtung. (aus [Kip04])

wie sie hier vorliegen, ist die durch die Kristallstruktur hervorgerufene Anisotropie sogar vorherrschend und dominiert den Ummagnetisierungsprozess.

Betrachtet man einzelne einkristalline Fe-Schichten auf GaAs(001) oder ZnSe(001), so erhält man dabei das folgende Ummagnetisierungsverhalten: Aufgrund der kubischen bcc-Struktur des Eisens ergibt sich eine vierzählige Kristallanisotropie, mit zwei leichten ([100],[010]) und schweren ([110],[1-10]) Magnetisierungsrichtungen. Die Ummagnetisierung entlang der leichten Richtungen erfolgt dabei durch Keimbildung und Wandverschiebung sobald das Koerzitivfeld überschritten wird, was einen steilen Sprung in der Ummagnetisierungskurve in Abbildung 4.1a) zur Folge hat. Erfolgt die Ummagnetisierung entlang der schweren [110]- bzw. [1-10]-Richtungen, so dreht sich die Magnetisierung mit abnehmenden Magnetfeld in die leichte Richtung bis die Magnetisierung ohne äußeres Feld in der leichten Richtung liegt. Legt man ein Magnetfeld in der entgegengesetzten Richtung an, so schaltet die Magnetisierung plötzlich um  $180^\circ$  - wieder durch Keimbildung und Wandverschiebung - und dreht sich bei noch größerem Gegenfeld in Richtung des angelegten Feldes. Auf diese Weise kommen Ummagnetisierungskurven zu Stande, wie sie in Abbildung 4.1a) zu sehen sind. Die hier beschriebene vierzählige Anisotropie dominiert in Fe-Schichten, die dicker als 3nm sind, da es sich dabei um eine Volumenanisotropie handelt. Je dünner die epitaktischen Schichten sind, desto größer wird der Einfluss der Grenzflächenanisotropien. In den Systemen Fe auf GaAs(001) und Fe auf ZnSe(001) gibt es sowohl eine zweizählige als auch eine vierzählige Grenzflächenanisotropie (siehe [Bro00], [Bro99], [Moo03] und [Rei00]), wobei in den hier untersuchten Schichten die vierzählige Grenzflächenanisotropie vernachlässigt werden kann. Die leichte Richtung der in dünnen Schichten vorherrschenden zweizähligen Anisotropie ist dabei die [110]-Richtung, wie in Abbildung 4.1b) zu sehen ist. Entlang

der schweren  $[-110]$ -Richtung erfolgt die Ummagnetisierung komplett über eine kohärente Rotation der Magnetisierung um  $180^\circ$ . Die  $[100]$ - und  $[010]$ -Achsen stellen dabei mittelschwere Richtungen dar (in Abbildung 4.1b) nicht gezeigt), entlang derer sich die Magnetisierung während des Ummagnetisierungsprozesses zunächst in die leichte Richtung dreht. Bei einem hinreichend großen Gegenfeld setzt wieder Keimbildung ein und durch Wandverschiebung erfolgt eine Ummagnetisierung um  $180^\circ$ . Erst bei noch größeren Magnetfeldern dreht sich die Magnetisierung in die Richtung des angelegten Feldes.

Als nächstes ist zu klären, inwieweit das hier beschriebene Ummagnetisierungsverhalten von dünnen und dicken  $Fe$ -Schichten auf  $GaAs(001)$  und  $ZnSe(001)$  auch auf die beiden  $Fe$ -Schichten in dem Dreilagensystem  $Fe / ZnSe / Fe$  zutrifft. Obwohl beide  $Fe$ -Schichten eine einkristalline bcc-Struktur haben (siehe Kap. 2) sind die Herstellungsparameter nicht identisch mit denen der zuvor beschriebenen Einzelschichten. Denn die untere dicke  $Fe$ -Schicht wurde zusätzlich über einen längeren Zeitraum getempert und die Grenzfläche zwischen der oberen dünnen  $Fe$ -Schicht und der  $ZnSe$ -Barriere ist sehr rau. Das Ummagnetisierungsverhalten der dicken  $Fe$ -Schicht kann dabei leicht ermittelt werden, indem man die obere  $Fe$ -Schicht bei der Herstellung weglässt. Aus Abbildung 4.2a) ist klar zu erkennen, dass in der dicken  $Fe$ -Schicht wie erwartet eine vierzählige Anisotropie vorliegt, wobei entlang der leichten  $[100]$ -Richtung die Magnetisierung bei einem Koerzitivfeld von 20 Oe schaltet.



**Abbildung 4.2:** a) Ummagnetisierungskurve einer  $GaAs(001) / 17,5nm$   $Fe / 11nm$   $ZnSe / 5nm$   $Au$  -Probe in  $[100]$  und  $[110]$ -Richtung. Die Ummagnetisierungskurven entlang der  $[010]$ - und  $[-110]$ -Richtung sind nicht gezeigt, haben aber die gleiche Form.

b) Ummagnetisierungskurve einer  $GaAs(001) / 17,5nm$   $Fe / 9nm$   $ZnSe / 2,2nm$   $Fe / 5nm$   $Au$  -Probe in vier verschiedenen Richtungen.

In beiden Bildern ist nur der Ausschnitt zwischen  $+50Oe$  und  $-50Oe$  gezeigt. Die Sättigung der vierzählig schweren  $[110]$ - und  $[-110]$ -Richtungen erfolgt bei etwa  $600-700Oe$ .

Leider kann das Ummagnetisierungsverhalten der dünnen *Fe*-Schicht nicht bestimmt werden, indem man die dicke *Fe*-Schicht weglässt, da man dadurch die Wachstumsbedingungen für die *ZnSe*-Barriere und somit auch für die dünnere *Fe*-Schicht ändern würde. Aus diesem Grund kann das Ummagnetisierungsverhalten der oberen dünnen *Fe*-Schicht nur aus der Überlagerung der Signale beider ferromagnetischen Schichten ermittelt werden. In Abbildung 4.2b) sind die überlagerten MOKE-Magnetisierungskurven einer *Fe / ZnSe / Fe* - Probe in verschiedenen Kristallrichtungen zu sehen. Aus dem Vergleich mit der Ummagnetisierungskurve der dicken *Fe*-Schicht geht hervor, dass die großen Sprünge bei  $\pm 20\text{Oe}$  von dieser Schicht verursacht werden. Dagegen müssen die kleineren Sprünge bei  $\pm 8\text{Oe}$  und  $\pm 16\text{Oe}$  in den  $[100]$ ,  $[010]$  und  $[110]$ -Richtungen von der dünnen *Fe*-Schicht stammen, da diese Sprünge in Abbildung 4.2a) nicht zu sehen sind. Nur entlang der  $[1-10]$ -Richtung ist kein Sprung zu erkennen, der von der dünnen *Fe*-Schicht verursacht wird. Bei  $2,2\text{nm}$  ist man gerade in einem Schichtdickenbereich, in dem man erwartet, dass der uniaxiale und vierzählige Anisotropiebeitrag die gleiche Größenordnung haben. Somit sollte sich auch die zweizählige Anisotropie bemerkbar machen. Deshalb ist in der  $[1-10]$ -Richtung kein Sprung zu sehen, der von der dünnen *Fe*-Schicht verursacht wird, da dies die schwere Richtung der zweizähligen Anisotropie ist und die Ummagnetisierung über eine kohärente Rotation der Magnetisierung erfolgt. Die  $[110]$ -Richtung ist demnach eine leichte Richtung der zweizähligen Anisotropie, aber eine schwere Richtung der vierzähligen Anisotropie. In beiden Fällen ergibt sich jedoch ein abruptes Umschalten der Magnetisierung beim Überschreiten des Koerzitivfeldes, was sich in Abbildung 4.2b) in einem Sprung in der Magnetisierungskurve bei ca.  $\pm 8\text{Oe}$  äußert.

Entlang den leichten Achsen der vierzähligen Anisotropie  $[100]$  und  $[010]$  treten in Abbildung 4.2b) zwei Sprünge in der Magnetisierungskurve auf, die von der dünnen *Fe*-Schicht verursacht werden. Dies kann durch einen zweistufigen Ummagnetisierungsprozess begründet werden: Bei dem ersten Sprung bei ca.  $\pm 11\text{Oe}$  ( $[100]$ -Richtung) dreht sich die Magnetisierung nicht abrupt um  $180^\circ$  sondern nur um einen Winkel von  $90^\circ$ . Die Magnetisierung liegt in diesem Magnetfeldbereich in  $[010]$  bzw.  $[0-10]$ -Richtung. Erst bei einem Magnetfeld von  $\pm 16\text{Oe}$  springt die Magnetisierung der dünnen *Fe*-Schicht nochmals um  $90^\circ$  in die  $[-100]$ -Richtung. Diese Erklärung wird durch zwei Feststellungen untermauert:

Die Sprunghöhen in Abbildung 4.2b) sollten proportional zu den Schichtdicken der ferromagnetischen Schichten sein. Das Dickenverhältnis zwischen dünner und dicker *Fe*-Schicht beträgt etwa 1:8. Dagegen ist das Verhältnis der Sprunghöhen bei  $11\text{Oe}$  - verursacht durch die dünne *Fe*-Schicht - und  $19\text{Oe}$  - verursacht durch die dicke *Fe*-Schicht - nur 1:16, also genau die Hälfte. Dies erwartet man auch bei einer Drehung um  $90^\circ$ . Bei den hier vorliegenden MOKE-Messungen ist jedoch zu berücksichtigen, dass aufgrund der endlichen Eindringtiefe des Lichts das Signal der oberflächenfernen Schicht stärker gedämpft wird als das der oberflächennahen *Fe*-Schicht. Dies bedeutet, dass das Verhältnis der beiden Sprunghöhen zueinander sogar noch kleiner sein kann und somit nicht dem erwarteten Schichtdickenverhältnis von 1:8 entspricht.

Des Weiteren wird in Kapitel 4.5 mit Kerrmikroskopaufnahmen nachgewiesen, dass im Magnetfeldbereich zwischen  $\pm 14\text{Oe}$  und  $\pm 20\text{Oe}$  die Magnetisierung um  $90^\circ$  gegenüber dem Sättigungszustand gedreht ist.

Gegen die hier aufgeführte Argumentation spricht jedoch, dass dieses stufenweise Schalten in einkristallinen *Fe*-Einzelschichten auf *ZnSe*(001) mit einer Dicke von 2,2nm nicht beobachtet wird [Rei00]. Dies liegt jedoch an der besseren Güte der einkristallinen Schichten verglichen mit der hier vorliegenden dünnen *Fe*-Schicht. Da bei dieser Schicht trotz der einkristallinen Struktur eine rauere Grenzfläche vorliegt und somit auch mehr Kristallfehler induziert werden, wird eine Domänenaufspaltung in einem größerem Magnetfeldbereich begünstigt.

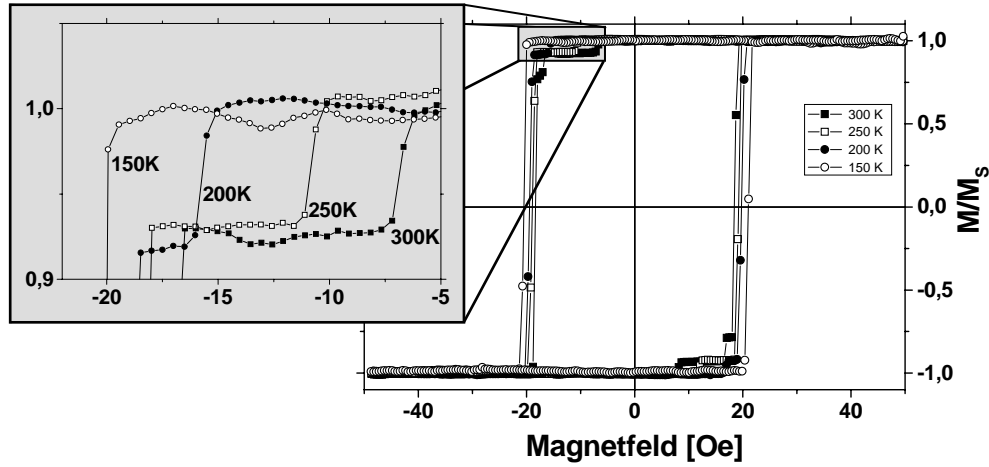
Zusammenfassend kann festgestellt werden, dass die untere *Fe*-Schicht bei Raumtemperatur die hartmagnetische Schicht ist und die erwartete vierzählige Anisotropie aufweist, die auch durch die Temperprozesse (siehe Kap. 2.4) nicht beeinflusst wird. Bei der oberen *Fe*-Schicht liegt zum Einen eine uniaxiale Anisotropie vor, die ein schlagartiges Umschalten der Schicht entlang der [1-10]-Richtung verhindert. Zum Anderen hat auch eine vierzählige Anisotropie Einfluss auf das Ummagnetisierungsverhalten der oberen Schicht entlang den [100]- und [010]-Richtungen, da sich die Magnetisierung nicht schlagartig um  $180^\circ$  ändert, sondern zwischen  $\pm 8\text{Oe}$  und  $\pm 16\text{Oe}$  eine  $90^\circ$ -Einstellung zur Ausgangslage einnimmt. Unterschiedliche Magnetisierungseinstellungen lassen sich somit entlang den [100]-, [010]- und [110]-Richtungen bei Raumtemperatur realisieren, auch wenn eine antiparallele Einstellung nicht immer gewährleistet ist. Um mit möglichst kleinen Magnetfeldern das System komplett sättigen zu können, wird im Weiteren immer die [100]-Richtung untersucht.

### 4.3 Temperaturabhängiges Umschaltverhalten

Für die späteren temperaturabhängigen Messungen des Magnetowiderstands ist es wichtig, dass die beiden magnetischen Schichten in einem weiten Temperaturbereich bei unterschiedlichen äußeren Magnetfeldern schalten. Deshalb wurde mit Hilfe des Stickstoff-Kryostaten am MOKE-Magnetometer das Umschaltverhalten bei tiefen Temperaturen untersucht. In Abbildung 4.3 sind die Magnetisierungskurven der im vorherigen Abschnitt bereits untersuchten *GaAs*(001) / 17,5nm *Fe* / 9nm *ZnSe* / 2,2nm *Fe* / 5nm *Au* -Probe für Temperaturen zwischen 300K und 150K zu sehen. Dabei nehmen die Koerzitivfelder beider Schichten mit abnehmender Temperatur zu. Bei der oberen dünnen *Fe*-Schicht variiert das Koerzitivfeld jedoch stärker mit der Temperatur als bei der unteren dicken Schicht. Dafür kommen zwei Begründungen in Frage: Wegen der kleineren Dicke und raueren Grenzflächen der oberen Schicht reduzieren thermische Oberflächenspinwellenanregungen die Gesamtmagnetisierung stärker [Kip04] und haben somit auch einen größeren Einfluss auf das Umschaltverhalten als bei der dickeren und glatteren (siehe Kap.2.4) unteren *Fe*-Schicht. Anschaulich kann man sich vorstellen, dass in der rauen und dünnen Schicht ein höherer Anteil an Spins mit einer niedrigeren Koordinationszahl vorliegt. Diese werden durch thermische Anregungen am stärksten ausgelenkt, schalten im Gegenfeld zuerst um und bilden Keime für die Domänennukleation. Bei tieferen Temperaturen nehmen die Anregungen ab und die Ummagnetisierung erfolgt erst bei größeren Feldern.

Außerdem treten in der oberen *Fe*-Schicht sicherlich mehr Kristallfehler auf als in der unteren Schicht, da auch die *ZnSe*-Schicht, die als Substrat dient, Versetzungen





**Abbildung 4.3:** Ummagnetisierungskurven einer  $\text{GaAs}(001) / 17,5\text{nm Fe} / 9\text{nm ZnSe} / 2,2\text{nm Fe} / 5\text{nm Au}$ -Probe entlang der  $[100]$ -Richtung zwischen  $300\text{K}$  und  $150\text{K}$ . Grau hinterlegt und vergrößert ist der Bereich, in dem nur die obere Schicht schaltet.

aufweist. Diese Versetzungen und Fehlstellen können ebenfalls als Keime für die Domänenbildung dienen und für einen stärker temperaturabhängigen Ummagnetisierungsprozess sorgen.

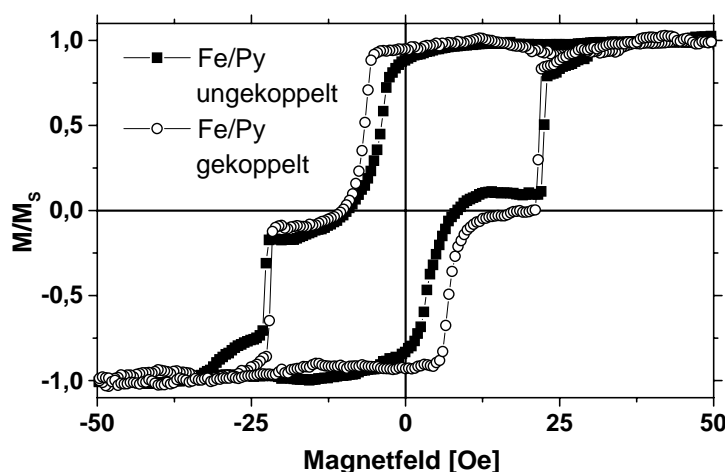
Wegen der unterschiedlichen Temperaturabhängigkeit der Koerzitivfelder, nähern sich diese mit abnehmender Temperatur immer mehr an und sind bei  $150\text{K}$  gleich groß ( $20\text{Oe}$ ), wodurch kein getrenntes Schalten mehr festgestellt werden kann. Nimmt man an, dass die Ummagnetisierung der beiden Schichten unabhängig voneinander passiert, so könnte man aus dem Temperaturverlauf in Abbildung 4.3 schließen, dass bei tieferen Temperaturen die dickere Schicht bei kleineren Feldern umschalten sollte als die dünnere. Mit Hilfe des SQUID-Magnetometers wurden Messungen bis zu  $10\text{K}$  durchgeführt, aber ein getrenntes Schalten konnte unterhalb von  $150\text{K}$  nicht festgestellt werden. Das heißt für diesen Temperaturbereich, dass spätestens bei dem Magnetfeld, bei dem die dicke Schicht umschaltet auch die dünne Schicht ummagnetisiert. Grund für dieses Verhalten sind möglicherweise die stärkeren Streufelder der dicken Schicht, die während des Ummagnetisierungsvorgangs an den Domänenwänden auftreten können. Diese Streufelder beeinflussen die obere Schicht und leiten deren Ummagnetisierung ein.

Im epitaktischen Dreilagensystem  $\text{Fe} / \text{ZnSe} / \text{Fe}$  erhält man also für Temperaturen über  $150\text{K}$  ein getrenntes Umschalten der ferromagnetischen Schichten, was für die Messung des Magnetowiderstandes notwendig ist. Bei tieferen Temperaturen ist ein getrenntes Umschalten nicht mehr feststellbar und der Magnetowiderstandseffekt müsste verschwinden.

## 4.4 Ummagnetisierung mit zusätzlicher Permalloy-Schicht

Im vorherigen Abschnitt wurde gezeigt, dass die beiden  $Fe$ -Schichten unterhalb von 150K nicht mehr getrennt schalten. Um nun auch bei diesen Temperaturen unterschiedliche Koerzitivfelder zu erreichen, wurde versucht, die obere Schicht an weichmagnetisches Permalloy ferromagnetisch zu koppeln, und somit ein früheres Umschalten dieser Schicht zu erzwingen. Dieses Verfahren wurde gewählt, da es weniger Aufwand erforderte als die Etablierung eines Prozesses der auf der Kopplung an einen Antiferromagneten beruht (siehe [Zan04]).

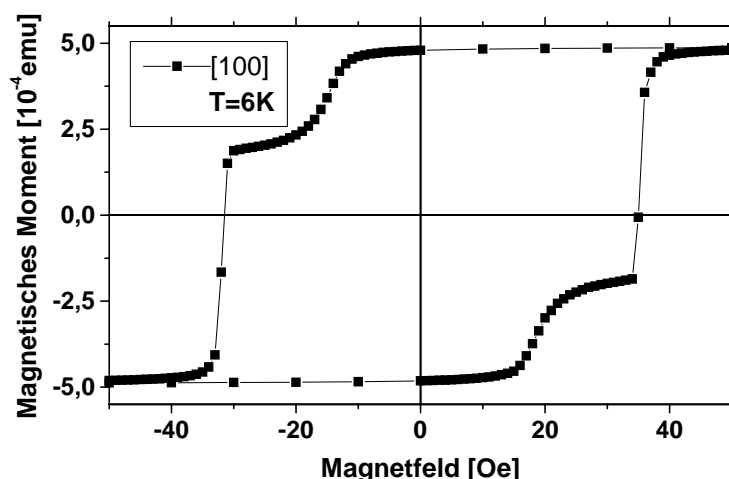
Wie bereits in Kapitel 3.3 beschrieben, muss die zum Oxidationsschutz aufgebrachte Gold-Deckschicht abgetragen werden, um auf die epitaktische obere  $Fe$ -Schicht direkt das weichmagnetische Permalloy per Sputterprozess aufbringen zu können. Dazu muss der Ätzprozess sehr genau angehalten werden, das heißt, es darf keine  $Au$ -Schicht übrig bleiben, aber auch die  $Fe$ -Schicht darf nicht abgetragen werden. Um auszutesten, ob dies möglich ist, wurde folgendes Experiment durchgeführt: Bei einer Hälfte einer epitaktischen Probe wird in einer UHV-Sputteranlage zuerst das  $Au$  abgeätzt und dann 10nm  $Py$  aufgebracht und mit 4nm  $Pt$  abgedeckt (siehe Kap. 3.3). Bei der anderen Hälfte wird auf das Abätzen verzichtet und die  $Py$ -Schicht auf die  $Au$ -Schicht aufgebracht. Während des Sputterprozesses liegt immer ein äußeres Magnetfeld entlang  $[100]$  an, das dafür sorgt, dass in dem polykristallinen Permalloy eine leichte magnetische Richtung entlang  $[100]$  entsteht. In Abbildung 4.4 sieht man das Ergebnis der MOKE-Messungen an diesen Proben bei Zimmertemperatur: In beiden Fällen schaltet die untere Eisenschicht bei etwa 22Oe. Im ungekoppelten Fall (mit  $Au$ -Schicht) liegt



**Abbildung 4.4:** Ummagnetisierungskurven einer  $GaAs(001)$  /  $14nm$   $Fe$  /  $6nm$   $ZnSe$  /  $2,8nm$   $Fe$  /  $(5nm$   $Au)$  /  $10nm$   $Py$  /  $4nm$   $Pt$  -Probe ( $T=300K$ ) entlang  $[100]$ , bei der die  $Au$ -Schicht im gekoppelten Fall weggeätzt wurde. Durch das erhöhte Koerzitivfeld kann geschlossen werden, dass eine ferromagnetische Kopplung zwischen  $Fe$  und  $Py$  besteht.

für die *Py*-Schicht ein Koerzitivfeld von 40 Oe vor, wogegen die gleiche *Py*-Schicht im gekoppelten Fall (ohne *Au*-Schicht) erst bei 70 Oe umschaltet. Das erhöhte Schaltfeld wird auf die Kopplung an die magnetisch härtere *Fe*-Schicht zurückgeführt, da diese normalerweise erst bei 110 Oe ummagnetisiert (Abb.4.2b)). Durch die ferromagnetische Kopplung sollten sich die Koerzitivfelder der hart- und weichmagnetischen Schicht im Verhältnis der Schichtdicken angleichen. Im Vergleich zu den Einzelschichten erhöht sich das Schaltfeld der weichmagnetischen Schicht, das der hartmagnetischen Schicht erniedrigt sich. Würde das Abätzen der *Au*-Schicht fehlschlagen, so hätte man eine einzelne *Py*-Schicht, die ein Koerzitivfeld von 40 Oe haben müsste.

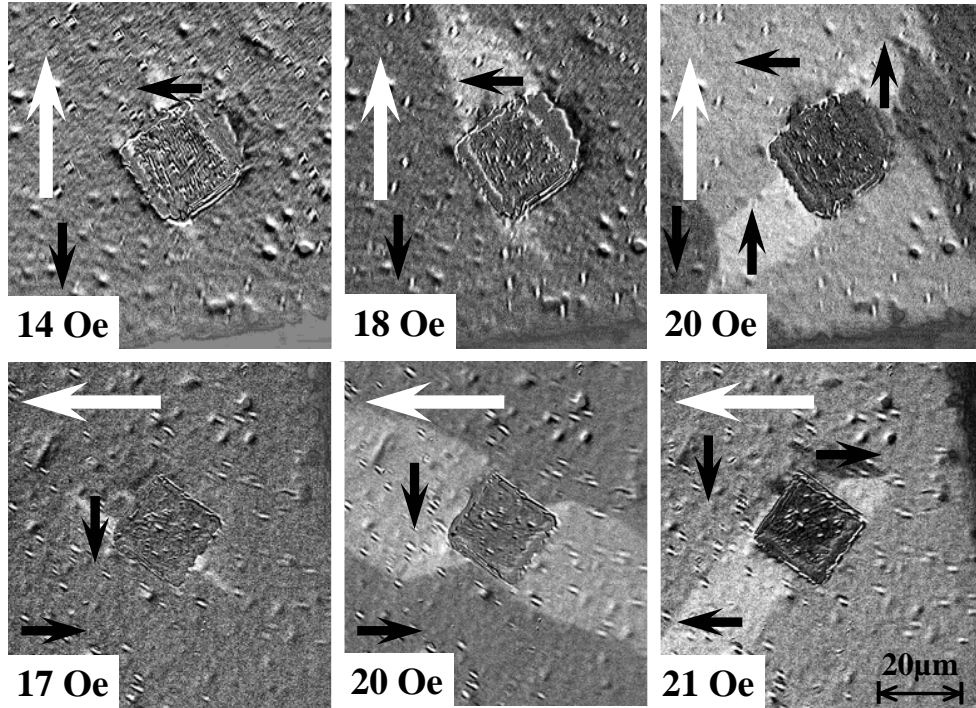
Geht man von einem gemeinsamen Umschalten der oberen *Fe*- und *Py*-Schicht aus, so ist aus Abbildung 4.5 ersichtlich, dass auch bei Temperaturen bis 6 K ein getrenntes Ummagnetisieren der beiden ferromagnetischen Elektroden möglich ist. Die Koerzitivfelder sind bei dieser Temperatur zwar um einiges höher als bei Zimmertemperatur, aber immer noch deutlich verschieden.



**Abbildung 4.5:** Ummagnetisierungskurve einer *GaAs(001)* / 14nm *Fe* / 6nm *ZnSe* / 2,8nm *Fe* / 10nm *Py* / 4nm *Pt* -Probe bei  $T=6K$  und in  $[100]$ -Richtung, gemessen mit dem SQUID-Magnetometer.

## 4.5 Domänenabbildung mittels Kerr-Mikroskopie

Da die Grenzflächen der oberen *Fe*-Schicht rauer sind und auch mehr Kristallfehler vorhanden sind, kann nicht davon ausgegangen werden, dass diese Schicht das gleiche Ummagnetisierungsverhalten zeigt wie eine gleich dicke *Fe*-Schicht auf einem atomar glatten *ZnSe*- oder *GaAs*-Substrat [Rei00],[Moo03],[Bro00]. Zudem befindet sich die Schichtdicke gerade in dem Bereich, in dem sowohl die vierzählige als auch die uniaxiale Anisotropie die gleiche Größenordnung haben. Um nun genauere Kenntnisse über den Ummagnetisierungsvorgang zu erlangen, wurden mit Hilfe eines am Lehrstuhl befindlichen Kerr-Mikroskops Domänenuntersuchungen durchgeführt.



**Abbildung 4.6:** Kerr-Mikroskopieaufnahmen einer  $\text{GaAs}(001)$  /  $17,5\text{nm Fe}$  /  $9\text{nm ZnSe}$  /  $2,2\text{nm Fe}$  /  $5\text{nm Au}$  -Probe, für verschiedene Magnetfelder bei Zimmertemperatur. Der weiße Pfeil markiert jeweils die Ausrichtung des äußeren Magnetfelds (obere Reihe  $[100]$ , untere Reihe  $[010]$ ). Die schwarzen Pfeile geben die Magnetisierungsrichtungen in den jeweiligen Domänen vor. Die quadratische Struktur entspricht der späteren Tunnelstruktur. Hier wurde die Au-Schicht entfernt und Py aufgebracht.

Mit dem Kerr-Mikroskop können mittels magnetooptischem Kerr-Effekt Domänenstrukturen im  $\mu\text{m}$ -Bereich abgebildet werden. Für eine detaillierte Beschreibung der Kerr-Mikroskopie sei auf [Hub99] verwiesen. Der verwendete Versuchsaufbau ist in [Ste05] beschrieben. Da die Kerr-Mikroskopie eine sehr oberflächensensitive Methode ist, eignet sie sich zur Untersuchung der oberen magnetischen Schicht der hier verwendeten Proben. An den  $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$  großen Stellen, wo später die eigentliche Tunnelstruktur sein soll, wurde die Au-Deckschicht bereits abgetragen und die weichmagnetische Py-Schicht aufgebracht, die wiederum mit  $50\text{nm Pt}$  abgedeckt wurde. Wegen der dicken Pt-Abdeckschicht können im eigentlichen Tunnelbereich keine Domänen beobachtet werden, sondern nur in den angrenzenden Bereichen, in denen die zu untersuchende Fe-Schicht nur durch  $5\text{nm Au}$  abgedeckt ist. Es kann vermutet werden, dass im Bereich der späteren Tunnelstruktur eine ähnliche Domänenstruktur wie im umliegenden Bereich vorliegt. Für die Untersuchung des Ummagnetisierungsverhaltens der Fe / ZnSe / Fe-Dreilagenschicht bietet die vorstrukturierte Probe jedoch den Vorteil, dass die Ummagnetisierung von der Permalloy-bedeckten Tunnelstruktur ausgeht, da diese als erstes umschaltet. Die Domänenstruktur ist deshalb im Mikroskop sehr

leicht auszumachen.

In Abbildung 4.6 sind Kerr-Mikroskop-Aufnahmen entlang der leichten  $[100]$ - (obere Reihe) und  $[010]$ -Richtungen (untere Reihe) zu sehen. Entlang beider Richtungen wurden die magnetischen Schichten zuerst bei  $-300\text{Oe}$  gesättigt, bevor das positive Feld angelegt wurde, bei dem die obigen Aufnahmen entstanden sind. In der  $[100]$ -Richtung erscheinen die ersten Domänen bei einem Feld von etwa  $14\text{Oe}$  und dehnen sich bei größeren Feldern weiter aus (mittleres Bild). Entscheidend ist jedoch die dritte Aufnahme, die bei  $20\text{Oe}$  gemacht wurde: Hier sieht man gleichzeitig drei verschiedene Graustufen, was zeigt, dass drei verschiedene Magnetisierungsrichtungen vorliegen. Da Domänen mit entgegengesetzter Magnetisierung die größten Helligkeitsunterschiede in der Kerr-Aufnahme zeigen, ist klar, dass die bei  $14\text{Oe}$  entstehende Domäne eine  $90^\circ$ -Ausrichtung gegenüber der Sättigung haben muss. Bei noch größeren Magnetfeldern schaltet die ganze Schicht um und die Domänenstruktur verschwindet. Das gleiche Verhalten findet man auch entlang der  $[010]$ -Richtung bei etwas größeren Feldern. Die Kerrmikroskopie-Aufnahmen liefern also den Beweis für die in 4.2 aufgestellte Behauptung, dass die Ummagnetisierung der oberen Schicht über  $90^\circ$ -Domänen erfolgt und die beiden Sprünge in der Magnetisierungskurve bei  $\pm 8\text{Oe}$  und  $\pm 16\text{Oe}$  dadurch verursacht werden.

Die kleineren Strukturen in den Kerrmikroskop-Aufnahmen in Abbildung 4.6 stammen von Verunreinigungen auf der Probe. Auch die „Ausfransungen“ an der rechten oberen Kante der oberen Bilderreihe sind Artefakte, die durch das Mikroskop entstehen [Ste05]. Es bleibt noch zu klären, ob mit dem Kerr-Mikroskop wirklich die obere  $Fe$ -Schicht und nicht die untere dickere  $Fe$ -Schicht abgebildet wird. Dies kann jedoch mit Hilfe von Abbildung 4.2a) entkräftet werden, in der der Ummagnetisierungsprozess der dicken  $Fe$ -Schicht gezeigt ist: Entlang der leichten  $[100]$ -Richtung ist zwischen  $+20\text{Oe}$  und  $-20\text{Oe}$  kein Sprung in der Magnetisierungskurve zu sehen, der in diesem Magnetfeldbereich auf die Existenz von Domänen in der magnetischen Schicht hinweisen würde. Die komplette Ummagnetisierung der Schicht erfolgt erst bei dem Koerzitivfeld von  $\pm 20\text{Oe}$ .

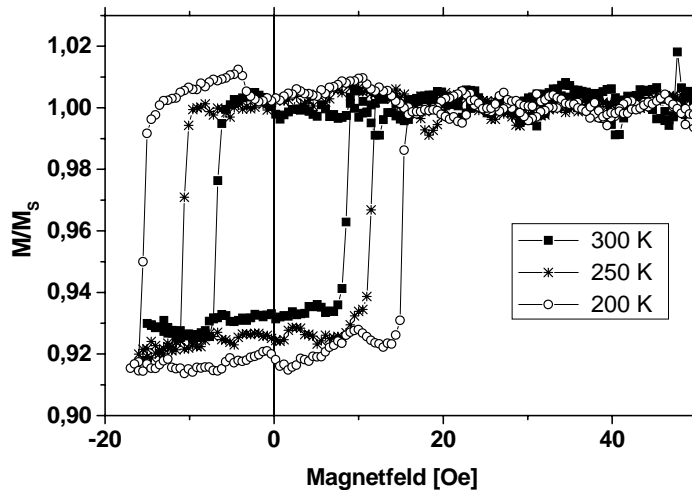
## 4.6 Magnetische Kopplung über ZnSe-Barrieren

Seit der Entdeckung einer antiferromagnetischen Kopplung zweier  $Fe$ -Schichten, die durch eine dünne  $Cr$ -Schicht getrennt sind [Grü86], gab es intensive Untersuchungen zur Zwischenlagen-Austausch-Kopplung, die zeigten, dass es einen oszillatorischen Zusammenhang zwischen der Zwischenschichtdicke und der Kopplung gibt [Par90]. Eine Erklärung dieses Effekts ist in [Bru99], [Grü99] und [Bür99] zu finden. Diese Phänomene wurden aber zunächst nur bei metallischen Zwischenschichten nachgewiesen. Bei isolierenden Zwischenschichten gab es erst später theoretische Berechnungen [Bru94], [Bru95], die auch eine antiferromagnetische Kopplung voraussagten. Aufgrund der hohen Anforderungen an die isolierende Zwischenschicht, die extrem dünn ( $8\text{\AA}$ ) und durchgehend isolierend sein muss, konnte erst vor kurzem der experimentelle Nachweis einer antiferromagnetischen Kopplung zweier  $Fe$ -Schichten über eine epitaktische  $MgO$ -Schicht erbracht werden [Pop02], [Fau02]. Bei früheren Versuchen waren

die Schichtdicken entweder zu dick, was zu einem ungekoppelten System führte, es waren pinholes vorhanden [Kea97] oder die Schichten waren zu wellig, so dass eine Neél-Kopplung [Neé62] vorherrschend war [Hei97]. In den beiden letzten Fällen ergibt sich eine ferromagnetische Kopplung.

Bei halbleitenden Zwischenschichten konnte vor allem bei epitaktischen  $Fe/Si$ -Vielagensystemen eine extrem starke antiferromagnetische Kopplung festgestellt werden [Ful92], [Gar02]. Dagegen wurde bei einkristallinem  $ZnSe$  als Zwischenschicht nur eine schwache ferromagnetische [Ste02] bzw. antiferromagnetische [Var02] Kopplung gefunden. Frühere Untersuchungen mit amorphem  $ZnSe$  zeigten, dass sich bei gleicher Schichtdicke nur durch Variation der Temperatur sowohl ferromagnetische als auch antiferromagnetische Kopplungen einstellen lassen [Wal99].

Um das Kopplungsverhalten der hier hergestellten epitaktischen  $Fe / ZnSe / Fe$ -Proben festzustellen, wurden Stufenkeilschichten (siehe [Bro00]) hergestellt, bei denen sämtliche Schichten identisch sind, und nur die  $ZnSe$ -Dicke variiert wird. Sollten sich die Schaltfelder der einzelnen Stufenkeilschichten voneinander unterscheiden, so könnte man dies eindeutig den unterschiedlichen  $ZnSe$ -Dicken zuweisen. Um eine Kopplung zwischen den beiden ferromagnetischen Schichten festzustellen, wurden sogenannte minor-loops gemessen. Dabei wird die Probe zuerst gesättigt und anschließend das Magnetfeld soweit gesenkt, bis die obere Schicht schaltet, aber sich die Magnetisierung der unteren Schicht noch nicht geändert hat. Danach wird das Magnetfeld wieder erhöht, bis die obere Schicht wieder zurückschaltet. Somit erhält man eine Magnetisierungskurve von nur einer Schicht (siehe Abbildung 4.7). Liegt nun eine antiferromagnetische Kopplung vor, so müsste die Hysteresekurve der oberen Schicht eine Verschiebung in Richtung des Sättigungsfeldes erfahren, bei ferromagnetischer Kopplung dagegen in die andere Richtung.



**Abbildung 4.7:** *Minor-loops einer GaAs(001) / 17,5nm Fe / 9nm ZnSe / 2,2nm Fe / 5nm Au -Probe, für verschiedene Temperaturen entlang [100]*

Die minor-loop-Messungen wurden mit dem MOKE-Magnetometer in einem Temperaturbereich von 150K-300K an Proben mit  $ZnSe$ -Dicken von 2nm bis 12nm durchgeführt, wobei bis zu 16 verschiedene Schichtdicken auf einer Probe vermessen wurden. Es

konnten jedoch keine signifikanten Verschiebungen der minor-loop-Kurven in den gemessenen Temperaturbereichen festgestellt werden, da sämtliche asymmetrischen Abweichungen der Koerzitivfelder kleiner als 1Oe waren. In den hier untersuchten Proben liegt also keine magnetische Kopplung vor. Es konnte also weder die antiferromagnetische Kopplung nachgewiesen werden, die von Varalda *et al.* in  $Fe / ZnSe$  (Dicke: 5nm) /  $Fe$ -Schichten gezeigt wurde, noch eine ferromagnetische Kopplung, die von Steren *et al.* für das gleiche System gefolgert wurde. Vergleicht man das Ergebnis mit den Daten für  $MgO$ -Zwischenschichten [Fau02] (diese sind eindeutiger als die für  $ZnSe$ ), so ist offensichtlich, dass die hier verwendeten  $ZnSe$ -Dicken von 3nm und mehr im Vergleich zu den 0,5-1,5nm dicken  $MgO$ -Barrieren zu dick sind, um magnetische Kopplungen zu messen. Im Rahmen dieser Messungen wurde auch festgestellt, dass die beiden ferromagnetischen Schichten erst bei einer  $ZnSe$ -Dicke von über 3nm bei Zimmertemperatur eindeutig getrennt schalten. Darunter ist die Zwischenschicht löchrig und es kommt zum direkten Kontakt der beiden  $Fe$ -Schichten, was zu einem gemeinsamen Umschalten führt. Um die magnetische Kopplung über einkristalline  $ZnSe$ -Barrieren untersuchen zu können, sind deshalb ähnlich wie im Fall des  $MgO$  dünnere und noch glattere Halbleiterschichten nötig.

# Kapitel 5

## Transportmessungen

In diesem Kapitel werden elektrische Transportmessungen ohne äußeres Magnetfeld und Magnetowiderstandsmessungen vorgestellt, bei denen der elektrische Widerstand in Abhängigkeit von einem äußeren Magnetfeld gemessen wird. Da der Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit in der Herstellung und Charakterisierung der einkristallinen Tunnelkontakte liegt, werden hier nur erste Messergebnisse präsentiert, die zeigen, dass ein Tunnelmagnetowiderstandseffekt in den Elementen vorliegt. Eine Optimierung und systematische Untersuchung des TMR-Effekts in Abhängigkeit von der Barrierendicke oder der Biasspannung soll in zukünftigen Arbeiten erfolgen.

Nach einer kurzen Beschreibung der möglichen Magnetowiderstandseffekte und der Messmethoden wird zuerst auf den elektrischen Transport durch die Barriere eingegangen. Hierbei soll in erster Linie geklärt werden, ob der Elektronentransport durch die Barriere diffusiv oder ballistisch erfolgt. Im vierten Abschnitt werden die Ergebnisse der Magnetowiderstandsmessungen dargestellt. Eine ausführliche Diskussion der Ergebnisse sowie verschiedener Fragen, die durch die Messungen aufgeworfen werden, erfolgt dann im letzten Abschnitt.

### 5.1 Magnetowiderstand

Unter dem Begriff Magnetowiderstand werden sämtliche Effekte zusammengefasst, bei denen sich der elektrische Widerstand in Abhängigkeit von einem äußeren Magnetfeld ändert. Im Weiteren werden die einzelnen Magnetowiderstandseffekte kurz beschrieben und anschaulich erklärt.

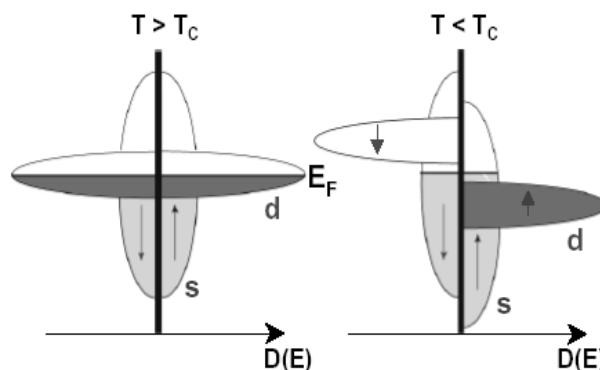
#### 5.1.1 Positiver Magnetowiderstand

Beim positiven Magnetowiderstand, auch Lorentz-Widerstand genannt, steigt der Widerstand mit zunehmenden Magnetfeld kontinuierlich an. Der Grund dafür ist die Lorentzkraft, die auf bewegte Leitungselektronen wirkt, diese auf Schraubenbahnen zwingt und somit die Streuwahrscheinlichkeit und damit auch den Widerstand erhöht. Am größten ist dabei der Einfluß, wenn das Magnetfeld und die Stromrichtung aufeinander senkrecht stehen. Dieser Effekt fällt jedoch erst bei größeren Magnetfeldern im Tesla-Bereich merklich ins Gewicht (siehe Kap.: 5.4.3). Der Widerstand sollte sich dabei der



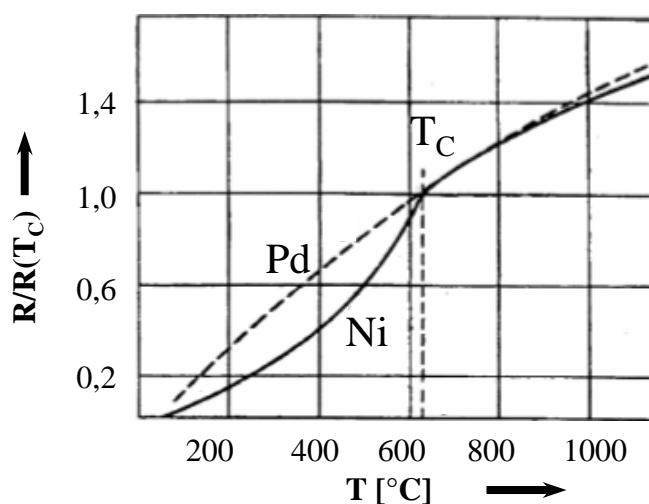
Kohler-Regel folgend quadratisch mit dem angelegten Magnetfeld ändern [Gro00].

### 5.1.2 Negativer Magnetowiderstand



**Abbildung 5.1:** Schematische Darstellung der Zustandsdichte von s- und d-Bändern über- und unterhalb der Curie-Temperatur [Gro00].

Sinkt in ferromagnetischen Metallen der Widerstand mit zunehmenden Magnetfeld, so spricht man von einem negativen Magnetowiderstand [Gro00]. Um diesen isotropen Effekt zu erklären, muß man den Elektronentransport im Bändermodell der Übergangsmetalle betrachten [Mot64]: Der Strom wird hauptsächlich von den s-Elektronen getragen. Diese können jedoch durch inelastische Stöße in 3d-Zustände gestreut werden. In ferromagnetischen Materialien spaltet das 3d-Band jedoch in ein Majoritäts- und ein Minoritätsband auf, wobei das Majoritätsband fast vollständig gefüllt ist, und somit keine freien Plätze mehr für Streuprozesse liefert (Abbildung 5.1). Da sich damit das Angebot an freien Zuständen für den Streuprozess verringert hat, erniedrigt sich

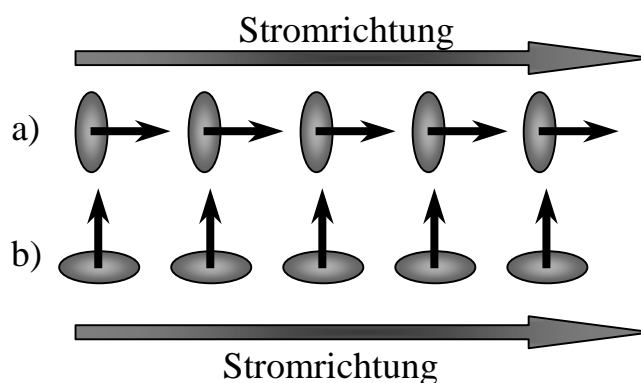


**Abbildung 5.2:** Temperaturabhängiger Widerstand von Ni und Pd [Gro00].

in Ferromagneten die Streuwahrscheinlichkeit und der Widerstand sinkt. Dies wird besonders beim Absinken der Temperatur unterhalb der Curie-Temperatur deutlich (Abbildung 5.2). Durch das Ansteigen der Spinordnung beim Einsetzen des Ferromagnetismus nimmt somit der elektrische Widerstand ab. Die Spinordnung kann jedoch auch durch äußere Magnetfelder gesteigert werden, da dadurch Spinwellenanregungen unterdrückt werden. Somit ergibt sich ein Mechanismus, der den Widerstand bei steigendem Magnetfeld kontinuierlich absenkt.

### 5.1.3 Anisotroper Magnetowiderstand

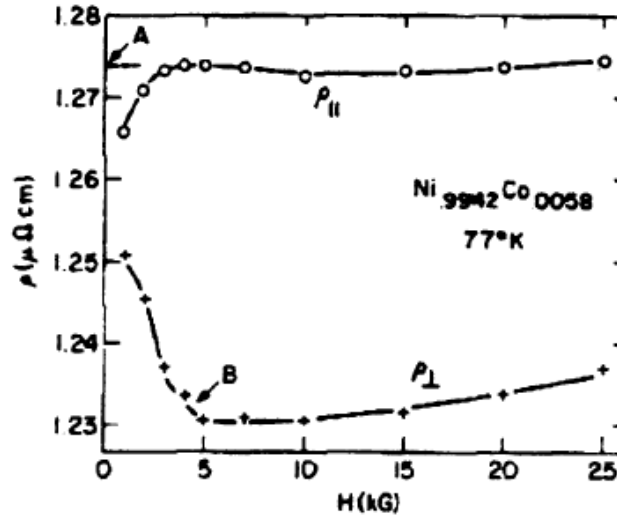
Der AMR (Anisotropic Magneto-Resistance)-Effekt wurde bereits 1857 von William Thomson entdeckt [Tho57] und wurde ab 1971 in Leseköpfen für die magnetische Datenspeicherung eingesetzt [Hun71]. Bei diesem Magnetowiderstandseffekt ist die Ausrichtung der Magnetisierung zur Stromrichtung entscheidend: Sind beide parallel zueinander, so misst man einen höheren Widerstand als bei einer senkrechten Ausrichtung von Strom- und Magnetisierungsrichtung. Um dieses Verhalten zu erklären, muss die Spin-Bahn-Wechselwirkung in den ferromagnetischen Atomen berücksichtigt werden. Denn durch diese Wechselwirkung sind die Orbitale an den Atomspin gekoppelt und richten sich mit diesem aus. Man erhält somit unterschiedliche Querschnitte der Elektronenwolken in der Stromrichtung (Abbildung 5.3). Nur bei kugelsymmetrischen Orbitalen hat eine Änderung der Magnetisierung keinen Einfluß. Dagegen ist der Querschnitt in Stromrichtung bei den 3d-Orbitalen bei paralleler Ausrichtung der Magnetisierung größer als im senkrechten Zustand, was zu dem beschriebenen Widerstandsverhalten führt. Auch aus quantenmechanischen Herleitungen ([McG75] und [Cam82]) ergibt sich eine höhere Wahrscheinlichkeit für die Streuung der stromleitenden s-Elektronen in d-Zustände bei einer parallelen Ausrichtung der Stromrichtung mit der Magnetisierung.



**Abbildung 5.3:** Schematische Darstellung der asymmetrischen Ladungsverteilung der 3d-Elektronen. Im Fall a) ergibt sich ein höherer Widerstand als im Fall b).

Da beim AMR-Effekt der Widerstand nur von der Magnetisierung abhängt, tritt bei größeren Feldern eine Sättigung auf, ab der sich der Widerstand nicht mehr ändert. Der

Unterschied zwischen dem Widerstandswert im Sättigungszustand und ohne äußeres Feld kann in  $P_y$  bis zu 5% betragen. Fließt der Strom durch die Probe parallel zum angelegten Magnetfeld, so erhöht sich der Widerstand mit ansteigendem Magnetfeld. Bei einer senkrechten Ausrichtung des elektrischen Stromes zum äußeren Magnetfeld sinkt dagegen der Widerstand mit ansteigendem Magnetfeld (siehe Abbildung 5.4). Indem man also die Ausrichtung zwischen Magnetfeld und elektrischem Strom um  $90^\circ$  ändert, erreicht man eine Umkehrung des Magnetowiderstandseffektes. Dadurch kann dieser Effekt von den anderen Magnetowiderstandseffekten unterschieden werden.



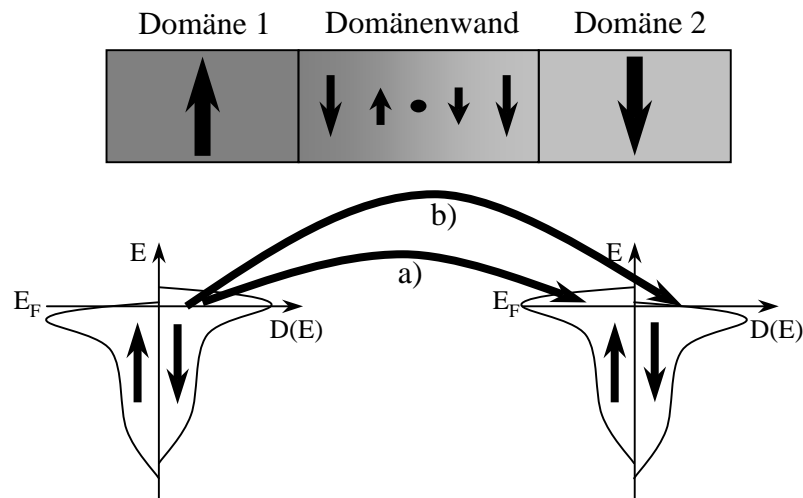
**Abbildung 5.4:** Spezifischer Widerstand von  $\text{Ni}_{0.9942}\text{Co}_{0.0058}$  bei  $77\text{ K}$  in Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld aus [McG75]. Bei  $\rho_{\parallel}$  ist die Stromrichtung parallel zur Magnetisierungsrichtung und bei  $\rho_{\perp}$  senkrecht dazu ausgerichtet.

#### 5.1.4 Domänenwand-Magnetowiderstand

Neben dem AMR-Effekt gibt es noch den Domänenwand-Magnetowiderstand als weiteren Magnetowiderstandseffekt, der in einzelnen magnetischen Schichten auftritt. Die große Schwierigkeit besteht jedoch darin, diese beiden Effekte voneinander zu unterscheiden, da sich diese in den meisten Fällen überlagern. Aus verschiedenen theoretischen und auch experimentellen Arbeiten ([Lev97], [Rue99], [Ebe00], [Gre96]) geht hervor, dass beim Vorhandensein von magnetischen Domänenwänden ein höherer Widerstand vorliegt als im magnetisch gesättigten Zustand, bei dem keine Domänenwände existieren. Um den reinen Domänenwand-Magnetowiderstand zu messen, dürfen während des Ummagnetisierens keine  $90^\circ$ -Domänen auftreten, da diese einen AMR-Effekt erzeugen würden. Dies wird in [Ebe00] durch 35nm breite Co-Drähte erreicht, in denen nur  $180^\circ$ -Domänen auftreten, die keinen AMR-Beitrag liefern.

Eine anschauliche Erklärung für diesen Effekt kann mit Hilfe des Zwei-Strom-Modells in Ferromagneten gegeben werden. Dabei wird der Strom von Majoritäts- und Minoritäts-Elektronen getragen. Durchwandern Elektronen eine Domänenwand, so folgt der Spin der Magnetisierung in der Wand und ein Majoritätselektron ist auch in der anderen Domäne wieder ein Majoritätselektron, was hierbei ohne Spinflip möglich ist. Bei

sehr dünnen Wänden (15nm) erfolgt der Magnetisierungswechsel so abrupt, dass der Spin der Magnetisierung nicht mehr adiabatisch folgen kann. Somit finden sich Minoritätselektronen der einen Domäne im Majoritätsband der anderen Domäne wieder (Abbildung 5.5). Haben Majoritäts- und Minoritätsband an der Fermikante unterschiedliche Zustandsdichten, müssen beim Übergang von der größeren zur kleineren Zustandsdichte energetisch höhere Zustände besetzt werden. Dies hat aber zur Folge, dass Elektronen mit größerer Wahrscheinlichkeit eine Rückstreuung erfahren, was zu einem erhöhten Widerstand führt. Somit kann erklärt werden, dass schmale Domänenwände eine Widerstandserhöhung bewirken, breitere Domänenwände aber nicht.



**Abbildung 5.5:** Zustandsdichten für zwei unterschiedliche Domänen. Im Fall a) liegt eine dicke Domänenwand vor. Der Elektronenspin folgt der Magnetisierung in der Wand. Minoritätselektronen bleiben auch nach dem Durchqueren der Wand Minoritätselektronen. Im Fall b) liegt eine dünne Domänenwand vor. Minoritätselektronen finden sich nach dem Durchqueren der Wand im Majoritätsband wieder, in dem weniger freie Zustände an der Fermikante vorliegen, eine Rückstreuung ist deshalb wahrscheinlicher.

### 5.1.5 Riesenmagnetowiderstand

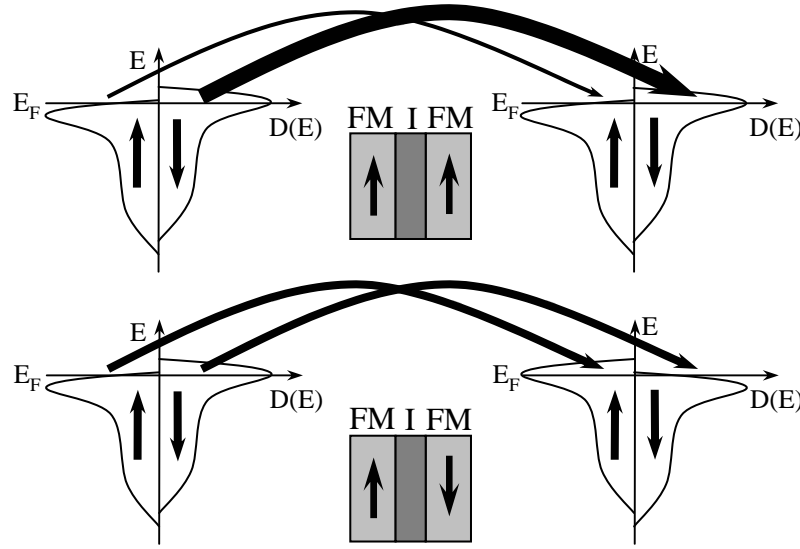
Der GMR (Giant-Magneto-Resistance)-Effekt wurde 1988 von P. Grünberg [Bin89] und A. Fert [Bai88] entdeckt und fand bereits 10 Jahre später Anwendung in Festplatten-Leseköpfe und Sensoren [Men99]. Im Gegensatz zu den vorher beschriebenen Effekten tritt der GMR-Effekt in magnetischen Schichtsystemen auf, bei denen zwei magnetische Filme durch eine dünne nicht ferromagnetische Metallschicht getrennt sind. Der Strom kann dabei senkrecht zur Schichtebene fließen (current perpendicular to plane-Geometrie) aber auch in der Ebene (current in plane-Geometrie). Je nach dem, wie die beiden Magnetisierungen ausgerichtet sind, ergeben sich unterschiedliche Widerstandswerte: Bei paralleler Ausrichtung ist der Widerstand in der Regel am kleinsten,

bei antiparalleler Ausrichtung ist er am größten. Da sich der Widerstand mit dem Winkel zwischen den beiden Magnetisierungsrichtungen ändert, wird der GMR-Effekt in Winkelsensoren ausgenutzt. Besonders interessant für die industrielle Anwendung ist vor allem die im Vergleich zum AMR-Effekt sehr große Magnetowiderstandsänderung, die sich durch die Verwendung von Multilagenschichtsystemen auf bis zu 200% steigern lässt.

Die anschauliche Erklärung für diesen Effekt ist im Prinzip die gleiche wie für den Domänenwand-Magnetowiderstand (siehe 5.1.4). Dabei ersetzt die nichtmagnetische Metallschicht die Domänenwand. Elektronen, die in die Zwischenschicht gelangen und keine Spinflip-Streuung erleiden, behalten ihre Spininformation, da die Zwischenschicht nicht ferromagnetisch ist und den Elektronenspin nicht beeinflusst. Beim Übertritt von der Zwischenschicht in die antiparallel magnetisierte Schicht haben die Elektronen eine höhere Rückstreuungswahrscheinlichkeit, für deren Spinausrichtung in der ferromagnetischen Schicht eine geringere Zustandsdichte vorliegt. Somit erhält man im Allgemeinen für die antiparallele Ausrichtung der beiden Magnetisierungen einen höheren Widerstand als im parallelen Fall. Dies gilt sowohl für die cpp- als auch für die cip-Geometrie, da auch in diesem Fall Elektronen durch Streuung von der einen ferromagnetischen Schicht zur anderen gelangen. Um hohe Magnetowiderstandswerte zu erzielen, ist es wichtig, dass möglichst wenige Elektronen in der Zwischenschicht eine Spinflipstreuung erfahren. Dies ist umso wahrscheinlicher, je dünner diese ist. Somit ist auch verständlich warum ein GMR-Effekt nur in Schichtsystemen auftritt, in denen die Zwischenschicht im Bereich der mittleren freien Weglänge (typisch 10nm in nichtmagnetischen Metallen) liegt, und mit abnehmender Zwischenschichtdicke zunimmt [Bai88].

### 5.1.6 Tunnelmagnetowiderstand

Beim TMR (Tunnel Magneto-Resistance)-Effekt sind ähnlich wie beim GMR-Effekt zwei ferromagnetische Schichten durch eine unmagnetische Schicht getrennt. Jedoch besteht hierbei die Zwischenschicht aus isolierendem Material. Dies hat zur Folge, dass Elektronen nur durch Tunnelprozesse von der einen Elektrode zur anderen gelangen und somit ein TMR-Effekt nur in cpp-Geometrie gemessen wird. Die ersten erfolgreichen experimentellen TMR-Messungen wurden bereits 1975 von Jullière durchgeführt und zugleich durch ein anschauliches Modell erklärt [Jul75]: Die Isolatorschicht wird dabei als rechteckige Tunnelbarriere angesehen, die für alle Elektronen an der Fermikante, die ja für den elektrischen Transport zuständig sind, mit der gleichen Wahrscheinlichkeit durchtunnelt werden kann. Der magnetfeldabhängige Widerstand kommt dann durch die unterschiedlichen Zustandsdichten von Majoritäts- und Minoritätselektronen an der Fermikante zustande. Sind beide Schichten parallel magnetisiert, so finden diejenigen Elektronen mit einer großen Zustandsdichte an der Fermikante auf der anderen Seite der Barriere auch viele freie Zustände vor, in die sie hineintunneln können. Im antiparallelen Fall sind für die Spin-down-Elektronen auf der einen Seite der Barriere viele Zustände besetzt und auf der anderen nur wenige freie Plätze vorhanden, bzw. umgekehrt für die Spin-up-Elektronen (siehe Abbildung: 5.6). Deshalb tunneln in diesem Fall weniger Elektronen von der einen Elektrode zur anderen und der Gesamtwiderstand ist in der Regel höher als im parallelen Fall. Somit kann ein



**Abbildung 5.6:** Schematische Darstellung der elektronischen Zustandsdichten der 3d-Bänder in ferromagnetischen Tunnelkontakten: oben für parallele Magnetisierung und unten für antiparallele Ausrichtung.

TMR-Wert definiert werden:

$$TMR = \frac{R_{\uparrow\downarrow} - R_{\uparrow\uparrow}}{R_{\uparrow\uparrow}}$$

$R_{\uparrow\uparrow}$  ist dabei der Widerstand bei paralleler Magnetisierung und  $R_{\uparrow\downarrow}$  bei antiparalleler Magnetisierung.

Bestehen beide Elektroden aus dem gleichen ferromagnetischen Material, so ist bei antiparalleler Magnetisierung der Widerstand größer als im parallelen Fall und der TMR-Wert ist positiv. Ersetzt man jedoch einen Ferromagneten durch einen anderen, bei dem nicht die Spin-down- sondern die Spin-up-Elektronen an der Fermikante überwiegen (bzw. umgekehrt), so kann man einen negativen bzw. inversen Magnetowiderstandseffekt feststellen, bei dem der Widerstand im parallelen Fall größer als im antiparallelen Fall ist [Du03][Gup01]. Qualitativ kann dies innerhalb des Jullière Modells noch erklärt werden, jedoch gibt es Experimente, denen dieses phänomenologische Modell nicht mehr gerecht wird: In [Ter00] wird gezeigt, dass nur durch Austauschen des Barrierenmaterials eine Umkehr des Magnetowiderstandeffekts erreicht werden kann. Daraus ist ersichtlich, dass auch die Barriere selbst einen entscheidenden Einfluss auf den Tunnelmagnetowiderstand hat, welcher im Jullière Modell nicht berücksichtigt wird. In späteren theoretischen Arbeiten wurde versucht, die unterschiedlichen Tunnelwahrscheinlichkeiten von Majoritäts- und Minoritätselektronen, die allein durch die Barriere verursacht werden, durch eine effektive Spinpolarisation zu berücksichtigen [Slo89]. Eine weitere Verbesserung brachte die Verwendung der effektiven Elektronenmasse im Isolator im Vergleich zur freien Elektronenmasse [Bra97]. In anderen Arbeiten wird für den einkristallinen Isolator bzw. Halbleiter eine komplexe Bandstruktur eingeführt und damit die Transmissionswahrscheinlichkeit für Elektronen unterschied-

licher Spinpolarisation berechnet [Mac99], [Mav00], [But97], [Mac98], [But01], wobei die in [But01] berechneten TMR-Werte auch experimentell bestätigt werden konnten [Bow01]. Ein Überblick über die theoretische Behandlung von einkristallinen Tunnelbarrieren ist auch in [Kre01] zu finden.

## 5.2 Messmethoden

Die Messung des Widerstands bzw. der anliegenden Spannung erfolgt in Vierpunkt-Geometrie. Dabei wird ein Strom zwischen zwei Kontakten aufgeprägt und an den anderen beiden Kontakten die Spannung abgegriffen. Dies hat insbesondere bei niederohmigen Proben den Vorteil, dass Zuleitungswiderstände eliminiert werden und somit nur der Widerstand des einzelnen Elements gemessen wird.

Für die Aufnahme von Strom-Spannung-Kennlinien und Magnetowiderstandskurven bei Zimmertemperatur wurde ein *Semiconductor Parameter Analyzer 4155A* von *Hewlett Packard* verwendet, der am Lehrstuhl Weiss zur Verfügung steht. Die für Magnetowiderstandsmessungen notwendigen Magnetfelder im Bereich zwischen -100 Oe und +100 Oe wurden dabei mit Hilfe der Luftspulen der MOKE-Apparatur (siehe Kap.4.2) erzeugt.

Für temperaturabhängige Messungen zwischen 6 K und 200 K steht ein SQUID-Magnetometer (*VTS-50L* von *S.H.E.*) zur Verfügung, in dem auch elektrische Transportmessungen mit Hilfe eines *Keithley 2400 Digital Sourcemeter* durchgeführt werden können. Das Magnetfeld kann dabei zwischen -50 kOe und +50 kOe, bzw. -1 kOe und +1 kOe im *low-field*-Modus, variiert werden. Die Ansteuerung und das Auslesen der Messgeräte erfolgt mit dem von T. Hagler weiterentwickelten Software-Paket „*TRASP*“ (genauere Beschreibung siehe [Hag00]). Um das manuelle Umschalten zwischen positiven und negativen Feld zu umgehen, wurde ein bipolarer Verstärker angeschafft, mit dem zwar nur Felder bis maximal 2,5kOe erreicht werden, dafür aber die automatische Aufnahme mehrerer Widerstandskurven unter der Verwendung des von F. Bensch entwickelten Software Programms „*VMCS*“ ermöglicht wird. Um nun alle kontaktierten Elemente auf dem Probenträger vermessen zu können, wurde ein neuer Probenstab für den SQUID-Kryostaten entwickelt, der es ermöglicht, jede einzelne Zuleitung separat zu erden. Dadurch wird verhindert, dass bei empfindlichen Proben Überspannungen und Aufladungen während des Einbaus zur Zerstörung der Tunnelelemente führen. Zudem erlaubt der neue Probenstab im Vergleich zum Vorgängermodell (siehe [Hag00]) ein leichteres Wechseln der chip carrier.

## 5.3 Elektrische Transporteigenschaften

Bevor Magnetotransportmessungen gemacht und interpretiert werden können, muss bekannt sein, welcher elektrische Transportmechanismus vorliegt. Denn nur bei ballistischem Transport ist ein TMR-Effekt zu erwarten. Mit den hier vorgestellten Messungen soll auch überprüft werden, ob die in Kapitel 3.1 beschriebene Strukturierung der Schicht zu lateral begrenzten Tunnelelementen erfolgreich war.

Bringt man ein Metall und einen Halbleiter in direkten Kontakt, so erhält man in

bestimmten Fällen einen Schottky-Kontakt [Rho88]. Dabei bildet sich in dem Halbleiter eine Verarmungszone aus, die sich je nach Dotierung bis zu mehreren 100nm in den Halbleiter ausdehnen kann. Da bei den hier untersuchten Elementen die Halbleiterschicht nur wenige nm dick ist, sollte die  $ZnSe$ -Schicht komplett von Elektronen entvölkert sein und eine rechteckige Potentialbarriere entstehen.

Ist ein reiner Tunnelprozess für den elektrischen Transport über die Barriere verantwortlich, so erwartet man eine nicht-lineare Strom-Spannung-Kennlinie, die nur schwach temperaturabhängig ist [Hag01]. Der Strom sollte dabei mit zunehmender Spannung exponentiell ansteigen. Ist dabei die genaue Fläche des Tunnелеlements bekannt, so kann unter der Annahme, dass die tunnelnden Elektronen eine rechteckige Potentialbarriere vorfinden und beide Elektroden identisch sind, die Stromdichte  $j$  mit Hilfe der Simmons-Formel [Sim63] angepasst werden.

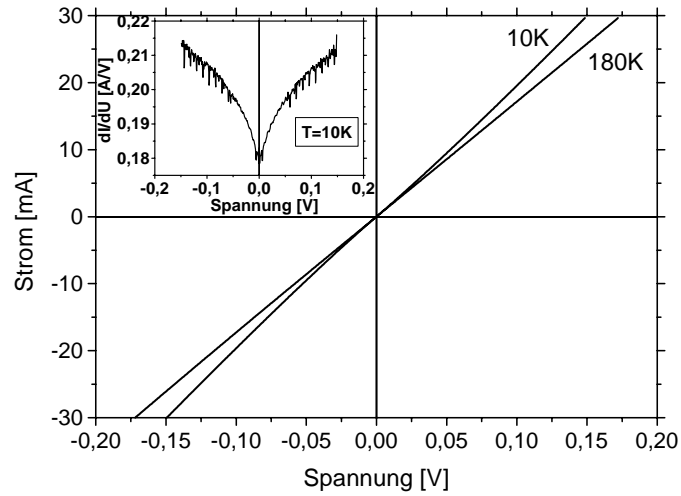
$$j = \frac{e}{4\pi^2\hbar d^2} \left\{ \left( \phi_0 - \frac{eU}{2} \right) \exp \left[ -\frac{2(2m)^{\frac{1}{2}}}{\hbar} \left( \phi_0 - \frac{eU}{2} \right)^{\frac{1}{2}} d \right] - \left( \phi_0 + \frac{eU}{2} \right) \exp \left[ -\frac{2(2m)^{\frac{1}{2}}}{\hbar} \left( \phi_0 + \frac{eU}{2} \right)^{\frac{1}{2}} d \right] \right\}$$

mit:  $m$  = effektive Elektronenmasse im Halbleiter;  $U$  = Spannung;  $\hbar$  = Plancksches Wirkungsquantum;  $e$  = Elementarladung.

In diese Formel gehen die Dicke  $d$  und Höhe  $\phi_0$  der Barriere als freie Parameter ein, die aus der Anpassung bestimmt werden können. Erhält man dabei „physikalisch plausible“ Werte, so geht man davon aus, dass quantenmechanisches Tunneln der vorherrschende Transportmechanismus ist. Die angepasste Dicke sollte dabei mit der geometrischen Dicke übereinstimmen und die Höhe der Barriere sollte bei Halbleitern der halben Bandlücke entsprechen [Ter84], [Kre01]. In [Jön00] wird jedoch darauf hingewiesen, dass allein eine erfolgreiche Anpassung der Simmonsformel an die Strom-Spannung-Kennlinie noch kein ausreichender Beweis für eine ideale Tunnelbarriere ist, da es möglich ist, eine „vernünftige“ Anpassung durchzuführen, obwohl in der Barriere erwiesenermaßen pin-holes vorhanden sind. Deshalb muss die Probe nach Jönsson-Åkerman *et al.* [Jön00] zusätzlich einen steigenden Widerstand bei abnehmender Temperatur aufweisen, da nur so metallische Kurzschlüsse in der Barriere auszuschließen sind.

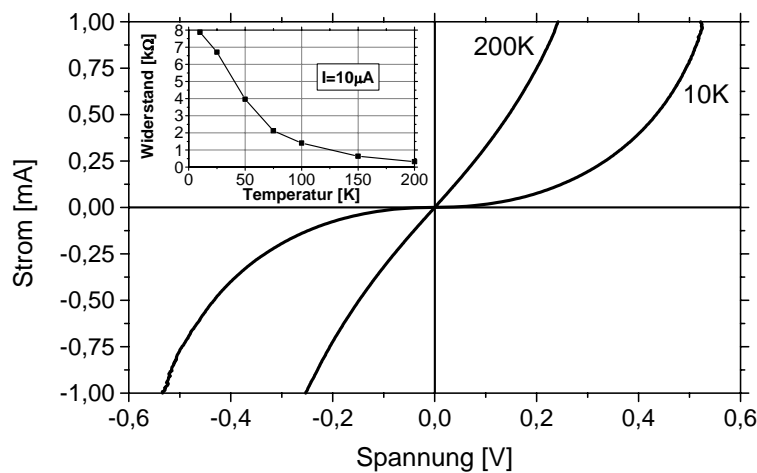
In Abbildung 5.7 sind Strom-Spannung-Kennlinien einer Probe mit einer 6nm  $ZnSe$ -Barriere bei 10K und 180K dargestellt. Dies ist auch die erste Probe, an der ein Magnetowiderstandseffekt festgestellt wurde (siehe 5.4.1). Es zeigt sich deutlich, dass der Widerstand mit sinkender Temperatur abnimmt, was auf eine vornehmlich metallische Leitfähigkeit der Barriere hinweist. Auch die Strom-Spannung-Kennlinie ist auf den ersten Blick weitgehend linear in dem gemessenen Bereich zwischen +30mA und -30mA. Es wurden keine höheren Ströme angelegt, um eine Beschädigung der Barriere zu vermeiden. Bei genauer Betrachtung der 10K-Kennlinie ist jedoch eine leichte Nicht-linearität erkennbar. Deutlicher wird diese in dem eingefügten Bild in Abbildung 5.7, in dem die Kennlinie numerisch differenziert wurde. Bei ohmschem Verhalten würde man eine konstante Leitfähigkeit erwarten, die bei größeren Spannungen infolge Erwärmung leicht abnimmt. Dagegen stellt man hier eine mit der Spannung ansteigende





**Abbildung 5.7:** Strom-Spannung-Kennlinie einer 17nm Fe / 6nm ZnSe / 3,5nm Fe -Probe bei 10K (Widerstand:  $5,0\Omega$ ) und 180K (Widerstand:  $5,8\Omega$ ). Eingefügtes Bild: Leitfähigkeit  $dI/dU$  (numerisch differenziert) aufgetragen gegen  $U$ .

Leitfähigkeit fest, wie sie auch in Tunnелеlementen gemessen wird [Kre01]. Dies deutet daraufhin, dass neben einem vorherrschenden diffusiven Transport über die Barriere auch ein kleiner Anteil an ballistischem Transport stattfindet, der durch tunnelnde Elektronen verursacht wird und der für das leicht nichtlineare Verhalten sorgt. In Abbildung 5.8 werden Strom-Spannungs-Kennlinien einer Probe mit einer 12nm dicken ZnSe-Barriere gezeigt. Wie zu erwarten ist der Widerstand dieser Probe mit fast  $8k\Omega$  bei 10K um mehrere Zehnerpotenzen größer als der Widerstand der Probe



**Abbildung 5.8:** Strom-Spannungs-Kennlinie einer 17nm Fe / 12nm ZnSe / 3,5nm Fe -Probe bei 10K und 200K. Eingefügtes Bild: Temperaturabhängiger Widerstand zwischen 10K und 200K bei einem Strom von  $10\mu A$ .

mit halber Barrierendicke. Auch die Temperaturabhängigkeit dieser Probe ist komplett anders als in Abbildung 5.7: Mit abnehmender Temperatur nimmt der Widerstand bei einem konstantem Strom von  $10\mu\text{A}$  beträchtlich zu (von  $0,3k\Omega$  bei 300K auf  $7,9k\Omega$  bei 10K siehe eingefügtes Bild in Abbildung 5.8). Ein ähnliches Verhalten wird auch in [Gus01] gefunden und dadurch begründet, dass thermisch aktivierte Ladungsträger in der Barriere bei tiefen Temperaturen „ausfrieren“ und nicht mehr für den Transport zur Verfügung stehen. Somit nimmt der Anteil der Elektronen, die durch die Barriere tunneln zu und der Widerstand steigt. Dass beim elektrischen Transport durch die Barriere die tunnelnden Elektronen eine größere Rolle spielen als bei der 6nm *ZnSe*-Schicht, ist auch aus der Form der Strom-Spannungs-Kennlinien ersichtlich, da die Proben mit 12nm Barriere auch bei höheren Temperaturen ein eindeutig nichtlineares Verhalten zeigen. Für die Anpassung mit der Simmonsformel muß beachtet werden, dass die effektive Masse der Elektronen im *ZnSe* ( $m = 0,16m_0$ , aus [Gra99];  $m_0$ : Ruhemasse des Elektrons) eingesetzt wird (siehe [Kre01]). Damit erhält man für die Barrierendicke  $d$  einen Wert von 4,7nm und für die Barrierenhöhe  $\phi_0$  einen Wert von 0,55eV bei 10K bzw. 3,9nm und 0,65eV bei 200K. Verglichen mit der realen Schichtdicke des *ZnSe* von 12nm sind die Werte aus der Anpassung eindeutig zu klein. Dies trifft auch für die Barrierenhöhe zu, da unter der Annahme, dass das Fermi-niveau des Metalls in der Mitte der Bandlücke des Halbleiters gepinnt ist, die Barrierenhöhe bei 1,4eV liegen müsste (Bandlücke für *ZnSe*: 2,8eV bei 4,2K und 2,7eV bei 300K aus [Lan82]).

Dies zeigt, dass obwohl diese Probe eine Temperaturabhängigkeit vorweist, wie man sie von einem Halbleiter erwartet, keine ideale Tunnelbarriere vorliegt. Eine Ursache könnte ein parasitärer diffusiver Strom sein, der am Rand der Probe fließt und durch Beschädigungen der Barriere beim Ar-Ionen-Ätzen zustande kommt (siehe Kap. 3.2). Dagegen sollte ein Leckstrom über pinholes bei einer Barrierendicke von 12nm auszuschließen sein, da aus den STM-Messungen (Kap. 2) hervorgeht, dass die größten auftretenden Stufen nur 2nm hoch sind. Auch im ungünstigsten Fall wäre die Barriere immer noch 8nm dick. Wegen der exponentiellen Abhängigkeit des Stromes von der Barrierendicke wird jedoch der größte Teil des Stromes gerade über diese dünnsten Stellen, sogenannte „hot spots“, fließen. Dies würde zum Teil die geringere Barrierendicke aus der Simmons-Anpassung erklären. Die ermittelte Barrierenhöhe müsste aber dennoch größer sein.

Die Tatsache, dass die *ZnSe*-Barriere keine ideale Tunnelbarriere darstellt, könnte auch an *Fe*-Verunreinigungen in der Barriere liegen, die mittels der Tiefenprofilmessungen (siehe Kap. 2.5) nicht nachgewiesen werden können. Wegen dieser Dotierungen des *ZnSe*-Kristalls kann es zu „hopping“-Prozessen kommen. Dabei tunneln die Elektronen nicht direkt von einer Elektrode zur anderen, sondern der Tunnelprozess erfolgt über eine oder mehrere Störstellen in der Barriere. Daraus ergibt sich auch ein exponentieller Zusammenhang zwischen Strom und Spannung, aber auch der Widerstand steigt stark mit abnehmender Temperatur an, wie in [Xu95] an Metall/Silizium(amorph)/Metall-Strukturen bzw. in [Vaz94] an *Ga*-dotiertem *ZnSe* gemessen wurde.

Man kann also zusammenfassen, dass weder bei Proben mit dünner noch mit dicker *ZnSe*-Barriere quantenmechanisches Tunneln vorherrschend ist, bei dem die Elektronen direkt von der einen Elektrode zur anderen tunneln. Bei dünnen Proben ist der Strom über metallische Verbindungen vorherrschend und nur ein kleiner Teil der Elek-

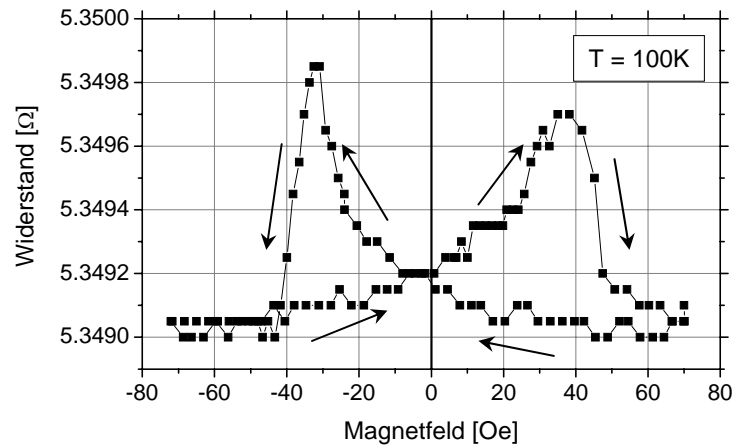
tronen scheint wirklich zu tunneln. Bei dicken Barrieren verschwindet die metallische Leitfähigkeit, dafür gelangen die Elektronen durch hopping-Prozesse über Störstellen und Verunreinigungen von der einen  $Fe$ -Schicht zur anderen. Ob trotzdem ein hinreichend großer Anteil an Elektronen an einem spin-erhaltenden Tunnelprozess teilnimmt, soll mit Magnetowiderstandsmessungen geklärt werden.

## 5.4 Magnetowiderstandsmessungen

Im Folgenden werden die magnetfeldabhängigen Messungen an den strukturierten  $Fe/ZnSe/Fe$ -Kontakten präsentiert. Dabei konnte nur an Proben zwischen 6nm und 8nm Barrierendicke ein messbarer Effekt festgestellt werden. Die Widerstände der einzelnen Proben sind sehr niedrig (1-20  $\Omega$ ), wie in Abschnitt 5.3 beschrieben ist. Aus diesem Grund ist es notwendig, relativ hohe Ströme (10-20 mA) durch die einzelnen Kontakte zu schicken, um noch Spannungen im mV-Bereich messen zu können, da bei geringeren Spannungen das Signal-Rausch-Verhältnis zu schlecht wird.

Gezeigt werden dabei Messungen an „normalen“  $Fe/ZnSe/Fe$ -Kontakten und an Proben mit zusätzlicher  $Py$ -Schicht, bei denen auch bei tiefen Temperaturen ein getrenntes Umschalten der beiden Ferromagneten vorliegt. Im dritten Teil wird auf Magnetotransportmessungen eingegangen, die bei hohen Magnetfeldern durchgeführt werden.

### 5.4.1 Magnetowiderstandsmessungen ohne Permalloy-Schicht



**Abbildung 5.9:** Magnetowiderstandskurve für eine 17nm  $Fe$  / 6nm  $ZnSe$  / 3,5nm  $Fe$  -Probe bei 100K und einem aufgeprägten Strom von 20mA.

Abbildung 5.9 zeigt die Magnetowiderstandsmessung einer Probe mit einer 6nm dicken  $ZnSe$ -Barriere bei 100K und einem aufgeprägten Strom von 20mA. Die gezeigte Kurve ist dabei über 50 Messungen gemittelt worden, wobei das äußere Magnetfeld zwischen +70Oe und -70Oe durchgefahen wurde.

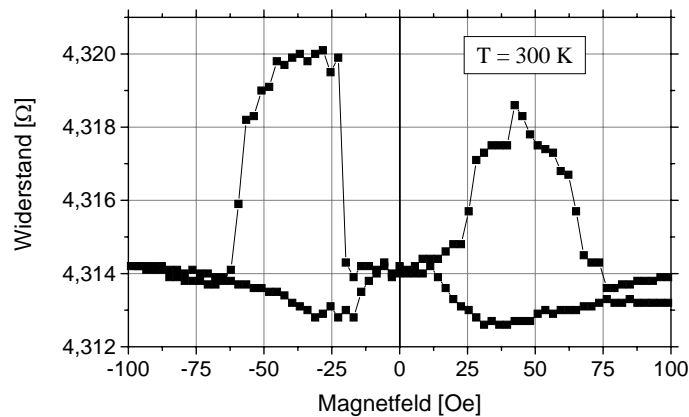
Bei maximalem Feld sind beide ferromagnetischen Schichten in gleicher Richtung magnetisiert. Die Probe ist dabei so in den Kryostaten eingebaut, dass das Magnetfeld entlang der leichten Richtung der Kristallanisotropie ([100] oder [010]) anliegt. Erniedrigt man das äußere Feld so steigt ab ca. 20 Oe der gemessene Widerstand langsam an, bis er bei -30 Oe ein Maximum erreicht. In diesem Bereich bilden sich in der weichmagnetischen oberen *Fe*-Schicht immer mehr Domänen aus, deren Magnetisierung nicht parallel zu der der unteren Schicht ist. Aus den Ummagnetisierungskurven (Kap. 4.2) und den Kerr-Mikroskop Aufnahmen in Kapitel 4.5 kann geschlossen werden, dass am Widerstandsmaximum bei -30 Oe die Magnetisierungen der beiden *Fe*-Schichten nicht antiparallel ausgerichtet, sondern 90° gegeneinander gedreht sind. Wird das Magnetfeld in negativer Richtung weiter erhöht, so schaltet die Magnetisierung der unteren Schicht in die entgegengesetzte Richtung und auch die obere Schicht dreht dann die Magnetisierung in die gleiche Richtung (siehe Kap. 4.3). Somit sind wieder beide Schichten gleich magnetisiert und der Widerstand der Probe sinkt wieder auf den ursprünglichen Wert. Da das Ummagnetisieren der unteren ferromagnetischen Schicht abrupt geschieht, ist der Abfall des Widerstandes vom Maximal- auf den Minimalwert steiler als der langsame Anstieg vorher, der mit dem Ummagnetisierungsvorgang der oberen Schicht einhergeht.

Bei der Bestimmung des TMR-Wertes kommt man auf ca 0,015% bei 100 K. Bei höheren Temperaturen wird der Wert noch kleiner bzw. ist bei Zimmertemperatur nicht mehr messbar. Auf die Frage, warum der Wert so klein ist, und ob es sich überhaupt um einen TMR-Effekt handelt, wird in der Diskussion in Kap. 5.5 eingegangen. Aus der Literatur ([Gus01]) ist bekannt, dass der TMR-Wert mit abnehmender Temperatur zunehmen sollte. Aus diesem Grund wurde auch bei tieferen Temperaturen gemessen. Es stellte sich jedoch heraus, dass der TMR-Wert unterhalb von 80 K auf null zurückgeht. Dies kann dadurch erklärt werden, dass die beiden *Fe*-Schichten bei diesen Temperaturen nicht mehr getrennt schalten (siehe Kapitel 4.3).

Durch die langwierigen Messungen bei einem Strom von 20 mA wurde die Probe zerstört. Dies zeigt sich darin, dass zum Einen der Magnetowiderstandseffekt verschwindet und zum Anderen der Widerstand des Elements schlagartig auf unter 1  $\Omega$  fällt. Dieser Ausfall kann durch Elektromigration erklärt werden. Das heißt, durch die hohe Stromdichte wird ein elektrisch leitender Pfad zwischen den beiden ferromagnetischen Elektroden ausgebildet, der den ganzen Strom durch das Element trägt. Da dabei der elektrische Strom nur durch *Fe* fließt (ohne Barriere oder Zwischenschicht), ist kein TMR-Effekt mehr zu erwarten.

#### 5.4.2 Magnetowiderstandsmessungen mit zusätzlicher Permalloy-Schicht

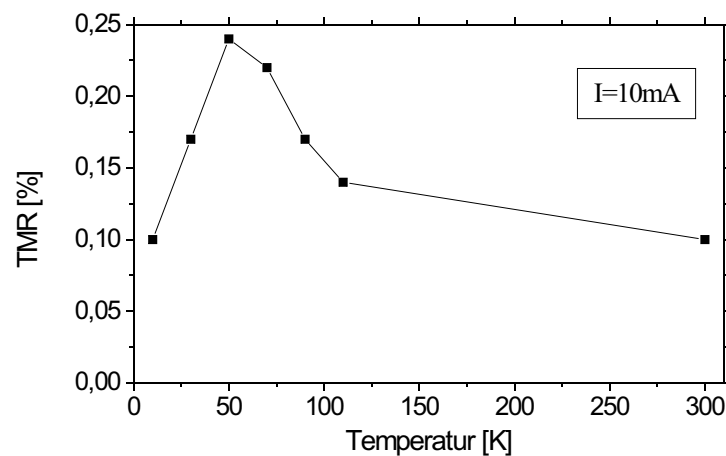
Im Folgenden sollen nun Messungen vorgestellt werden, bei denen eine zusätzliche *Py*-Schicht aufgebracht wurde. Dies sollte das Koerzitivfeld der oberen *Fe*-Schicht reduzieren (siehe Kap. 4.4), und dadurch für eine antiparallele Einstellung in der Magnetisierung der beiden *Fe*-Filmen sorgen. Der Einbau der Probe erfolgte ebenfalls so, dass das angelegte Magnetfeld parallel zur leichten Richtung der aufgeprägten uniaxialen Anisotropie der *Py*-Schicht ([100]) ausgerichtet ist. In Abbildung 5.10 ist eine Magne-



**Abbildung 5.10:** Magnetowiderstandskurve für eine 17nm Fe / 8nm ZnSe / 2,2nm Fe / 100nm Py -Probe bei Zimmertemperatur und einem aufgeprägten Strom von 10mA

towiderstandskurve einer Probe mit einer 8 nm dicken *ZnSe* - Barriere zu sehen, die bei Zimmertemperatur gemessen wurde. Diese Probe zeigt bereits bei Zimmertemperatur einen Magnetowiderstandseffekt von 0,14%, obwohl auch hier der Widerstand mit 4,3  $\Omega$  erneut sehr klein ist. Gegenüber den Messungen ohne zusätzliche *Py*-Schicht fällt auf, dass die Widerstandserhöhung durch das Ummagnetisieren der oberen Schicht abrupt bei einem Magnetfeld von 22 Oe passiert. Dagegen sollte diese bei Zimmertemperatur unterhalb von 10 Oe umschalten wie aus den magnetischen Messungen in Kapitel 4.4 hervorgeht. Eine Erklärung dafür wird in 5.5.3 geliefert.

Geht man zu tieferen Temperaturen, so nimmt auch hier der gemessene Widerstand ab, und die Schaltfelder der einzelnen Schichten nehmen zu. Aber auch der Magnetowi-

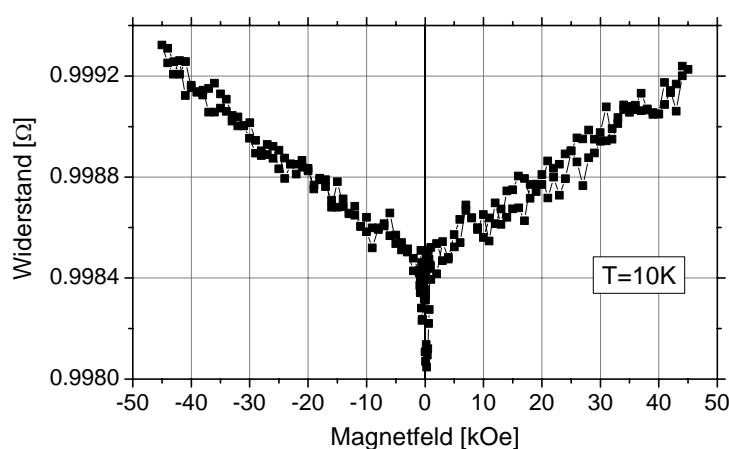


**Abbildung 5.11:** Magnetowiderstandswerte einer 17nm Fe / 8nm ZnSe / 2,2nm Fe / 100nm Py -Probe bei verschiedenen Temperaturen

derstandswert nimmt mit sinkender Temperatur zu, wie in Abbildung 5.11 zu erkennen ist und hat bei 50 K einen Maximalwert von 0,24 %. Darunter sinkt dieser aber wieder bis auf 0,1 % bei 10 K.

Zusammenfassend lässt sich feststellen, dass die untersuchten Elemente einen, wenn auch kleinen, Magnetowiderstandseffekt zeigen. Inwiefern es sich dabei um einen Tunnelmagnetowiderstandseffekt handelt und wie die hier beschriebene Temperaturabhängigkeit zu erklären ist, wird in Abschnitt 5.5 diskutiert.

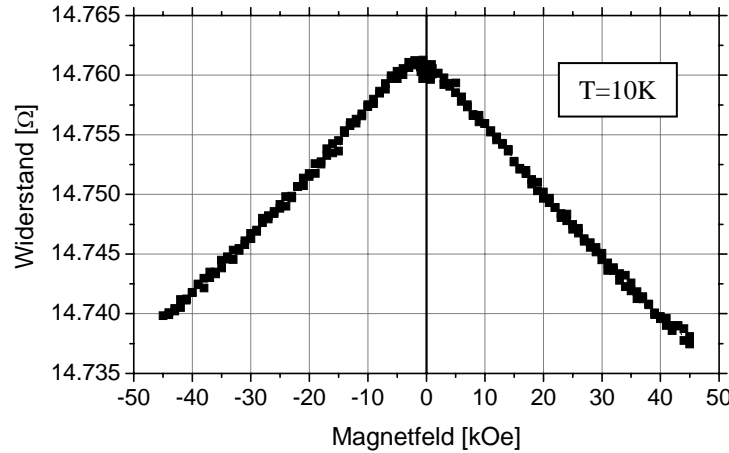
### 5.4.3 Magnetowiderstand bei hohen Magnetfeldern



**Abbildung 5.12:** Magnetowiderstand bei hohen Magnetfeldern einer 17nm Fe / 5nm ZnSe / 2,3nm Fe / 100nm Py -Probe bei 10K. Das scharfe Minimum bei 0Oe wird durch die Py-Schicht verursacht (siehe 5.5.3).

Weitere Magnetowiderstandseffekte treten bei hohen Magnetfeldern auf. Als Beispiel ist in Abbildung 5.12 der Widerstand im Bereich zwischen  $-45\text{kOe}$  und  $+45\text{kOe}$  bei einer Temperatur von 10K und einer Barrierendicke von 5nm zu sehen: Bei zunehmendem Betrag des Magnetfelds steigt auch der Widerstand leicht an. So ist der Widerstand bei 45kOe um 0,08% größer als im Nullfeld. Das scharfe Minimum bei 0Oe wurde dabei nicht berücksichtigt, da dieses durch die Py-Schicht verursacht wird (siehe 5.5.3). Wegen der geringen Barrierendicke ist in diesem Fall vor allem ein metallisches Leitfähigkeitsverhalten zu erwarten, was auch durch den sehr geringen Widerstand von ca.  $1\Omega$  bestätigt wird. In diesem Fall sieht man den Einfluss des positiven Magnetowiderstands wie er in Abschnitt 5.1.1 beschrieben ist.

Betrachtet man das Magnetowiderstandsverhalten bei hohen Feldern für Proben mit einer dickeren ZnSe-Barriere (Abb. 5.13) so fällt auf, dass hier der Widerstand mit zunehmendem Betrag des Magnetfelds abnimmt (bei 45kOe um 0,14%). Der vorher beschriebene Anstieg des Widerstands mit dem Magnetfeld aufgrund der Lorentzkraft, der eigentlich unabhängig von der Barrierendicke in allen Proben auftauchen sollte, wird hier also von einem anderen Effekt überlagert. Der deutlich größere Widerstand



**Abbildung 5.13:** Magnetowiderstand bei hohen Magnetfeldern einer 17nm  $Fe / 8\text{nm ZnSe} / 2,3\text{nm Fe} / 100\text{nm Py}$ -Probe bei 10K

dieser Probe zeigt schon, dass hier der Transport über die  $ZnSe$ -Barriere eine größere Rolle spielt. Wie bereits in 5.3 erwähnt ist es nicht auszuschließen, dass sich in der Barriere  $Fe$ -Verunreinigungen befinden. Ein Teil der Elektronen kann durch „hopping“-Prozesse über diese Störstellen von einer Elektrode zur Anderen gelangen. Da die einzelnen  $Fe$ -Atome in der Barriere paramagnetisch sind, finden auch spinabhängige Streuprozesse statt. Im starken Magnetfeld richten sich die Momente der paramagnetischen Verunreinigungen aus, und der Gesamtwiderstand sinkt, da in diesem Fall spin-flip-Streuungen unwahrscheinlicher sind. Man kann sich dabei den spinabhängigen Transport über die Verunreinigungen wie eine Serienschaltung von einzelnen Tunnelelementen vorstellen. Sind alle „Elektroden“ gleich ausgerichtet ist der Widerstand geringer als im „paramagnetischen“ Fall, wenn die einzelnen „Elektroden“ eine beliebige Ausrichtung haben. Dieses Verhalten des Widerstands bei hohen Feldern wurde auch bei einkristallinen  $GaAs$ -Barrieren gefunden und mit diesem Modell detailliert erklärt [Kre01],[Zen04].

## 5.5 Diskussion der Magnetowiderstandsmessungen

In diesem Abschnitt sollen die oben gezeigten Messergebnisse kritisch hinterfragt werden. Dabei soll geklärt werden, ob es sich bei den gemessenen TMR-Werten von maximal 0,24% tatsächlich um einen Tunnelmagnetowiderstandseffekt handelt. Argumente, die gegen die Existenz eines TMR-Effekts in den vermessenen Proben sprechen, sollen im Folgenden durch zusätzliche Experimente entkräftet werden. Als erstes wird auf das für TMR-Elemente unübliche Widerstandsverhalten eingegangen. Zudem wird diskutiert, ob die gemessenen Effekte durch andere Magnetowiderstandseffekte wie den AMR oder den Domänenwand-Magnetowiderstand verursacht werden können. Außerdem wird der Einfluss der zusätzlichen  $Py$ -Schicht auf die Magnetowiderstandskurven geklärt.

### 5.5.1 Ohmsches Widerstandsverhalten

Gegen eine Erklärung des Magnetowiderstands mittels TMR-Effekt spricht zunächst die metallische Leitfähigkeit der Proben, die bereits in Kap. 5.3 festgestellt wurde. Auch herkömmliche  $Al_2O_3$ -Tunnelemente können metallische Leitfähigkeit zeigen. Dies ist der Fall, wenn das Element einen elektrischen Kurzschluß über ein Loch im Isolator, ein sogenanntes pinhole aufweist. Dabei bricht der TMR-Wert drastisch ein, verschwindet aber nicht ganz [Shi00],[Oep99]. Dies wird darauf zurückgeführt, dass nicht der komplette Strom durch pinholes fließt. Ein kleiner Teil tunnelt nach wie vor durch die  $Al_2O_3$ -Barriere und sorgt somit für einen nicht verschwindenden TMR-Effekt. Der gleiche Mechanismus könnte auch bei den hier untersuchten  $Fe/ZnSe/Fe$ -Tunnelementen vorliegen, obwohl aus den STM-Aufnahmen in Kapitel 2 hervorgeht, dass keine pinholes vorhanden sein sollten. Man muss jedoch berücksichtigen, dass es sich bei den STM-Bildern nur um  $2\mu m \times 2\mu m$  große Ausschnitte der jeweiligen Oberflächen handelt. Um pinholes zu 100% auszuschließen, müsste die gesamte  $20\mu m \times 20\mu m$  große Fläche der Tunnelemente untersucht werden. Dies ist jedoch nicht möglich, da die STM-Untersuchung vor der Strukturierung erfolgt und eine STM-Untersuchung der gesamten  $5mm \times 5mm$  großen Probe nicht bewerkstelligt werden kann. Man kann aus den STM-Aufnahmen nur schließen, dass pinholes bei den hier vorliegenden Schichtdicken unwahrscheinlich sind, aber nicht ganz ausgeschlossen werden können. Die Wahrscheinlichkeit einer pinhole-freien Barriere lässt sich dabei mit kleineren Tunnelflächen weiter steigern.

Ein Leckstrom durch die Barriere kann aber auch andere Ursachen haben, wie eine sehr hohe Dotierung der Halbleiterschicht mit  $Fe$ -Atomen, oder aber auch einen metallischen Strompfad am Rand des Elements (siehe Kap. 3.2). Dies würde ebenfalls dazu führen, dass ein Hauptteil des Stroms über nicht spin-erhaltende Kanäle fließt, die auch für die metallische Leitfähigkeit sorgen, und nur ein kleiner Teil am spin-erhaltendem Tunneln durch die Barriere teilnimmt und den gemessenen TMR-Wert verursacht. Jedoch kann auch bei den tunnelnden Elektronen Spinstreuung auftreten, wenn nämlich der Tunnelprozess nicht direkt von einer Elektrode zur anderen, sondern über Gitter-Störstellen oder paramagnetische  $Fe$ -Verunreinigungen in der Barriere erfolgt. Tunneln die Elektronen dabei über mehrere Störstellen, so ist es sehr wahrscheinlich, dass die Spin-Information verloren geht und sich somit der TMR-Wert weiter erniedrigt. Dies kann insbesondere bei Proben mit dickerer Barriere auftreten, da bei diesen Proben zwar der ballistische Anteil am Strom größer ist, was man an den Strom-Spannungs-Kennlinien erkennt (Abbildung 5.8), aber dafür der Tunnelmagnetowiderstand verschwindet.

Aus Abbildung 5.11 ist ersichtlich, wie der TMR-Wert mit abnehmender Temperatur zunimmt (bis 50K). Dieses Verhalten kann auf den Transportmechanismus in der Halbleiterbarriere zurückgeführt werden: Bei höheren Temperaturen nehmen mehr thermisch aktivierte Elektronen am Ladungstransport teil, die aber nicht spinpolarisiert sind. Bei abnehmender Temperatur gibt es weniger thermisch aktivierte Ladungsträger und ein höherer Anteil von Elektronen, die von einer Elektrode zur anderen tunneln, trägt zum Gesamtstrom bei. Weil diese Elektronen spinpolarisiert sind, nimmt der TMR-Wert zu (siehe auch [Gus01]). Unterhalb von 50K sinkt der TMR-Wert in Ab-



bildung 5.11 wieder ab. Dies könnte bedeuten, dass in diesem Temperaturbereich die antiparallele Magnetisierungseinstellung in den strukturierten Tunnelelementen immer weniger erreicht wird. Zudem nimmt der Anteil des Stroms, der über metallische Pfade fließt, bei tiefen Temperaturen stärker zu. Dies kann daraus gefolgert werden, dass der Gesamtwiderstand der Probe in Abbildung 5.11 mit tieferen Temperaturen abnimmt, obwohl ein reiner Tunnelwiderstand leicht zunehmen sollte.

Die These, dass es einen, wenn auch nur geringen Anteil am Elektronentransport durch die Barriere gibt, der ballistisch ist und somit zum TMR-Effekt beiträgt, wird durch eine weitere Beobachtung gestützt: Wie bereits in 5.4.1 beschrieben konnte an dieser Probe ein sehr geringer TMR-Effekt gemessen werden (Abb. 5.9), der aber nach längeren Messungen irreversibel verschwindet. Da gleichzeitig auch der elektrische Widerstand einbricht, kann davon ausgegangen werden, dass sich in der *ZnSe*-Barriere ein ohmscher Strompfad ausgebildet hat, der den gesamten Strom trägt. Im Umkehrschluß folgt daraus, dass vorher ein ballistischer Teilstrom geflossen sein muß, der für den gemessenen TMR-Wert verantwortlich war.

### 5.5.2 TMR-Effekt oder andere Effekte

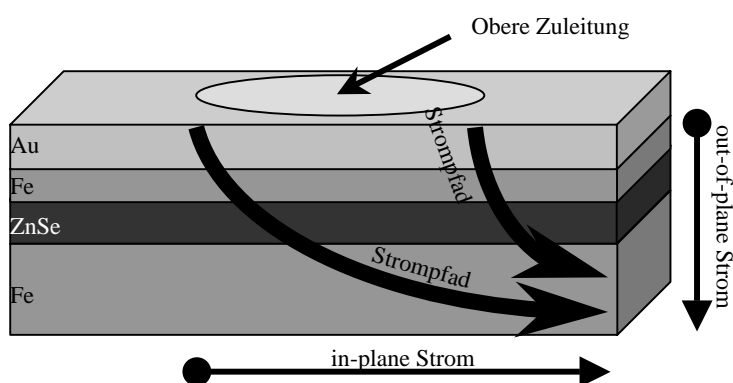
Neben dem zuvor beschriebenen ohmschen Widerstandsverhalten der Proben lässt vor allem der geringe Magnetowiderstandseffekt von maximal 0,24% an einem TMR-Effekt zweifeln, da man von TMR-Elementen viel höhere Werte aus der Literatur gewohnt ist. So werden bei polykristallinen Systemen mit *Co/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co* bei tiefen Temperaturen bis zu 76% [Nis02],[Sma03] erreicht, bei einkristallinen *Fe/MgO/Fe*-Schichten bis zu 188% [Bow01], [Fau03], [Yua04] und auch bei einkristallinen *Fe/ZnSe/Fe*-Schichten bis zu 16% [Gus01]. Dagegen liegen die hier gemessenen 0,24% genau in dem Bereich, in dem man auch einen AMR-Effekt oder den Domänenwand-Magnetowiderstand in den ferromagnetischen Elektroden erwarten würde. Da der Barrierenwiderstand so gering ist, macht sich auch der Widerstand der beiden Fe-Schichten im Gesamtwiderstand bemerkbar und somit auch ein AMR- oder Domänenwand-Effekt. Zwei Dinge sprechen aber gegen einen Domänenwandwiderstand: Zum Einen ist nicht zu erwarten, dass die Domänenwände so schmal sind (<15nm), dass dieser Effekt auftritt (siehe 5.1.4 und [Ebe00]), denn die Probengröße von  $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$  ist viel zu groß, um energetisch ungünstige schmale Domänenwände zu bevorzugen. Zum Anderen müssten nach Abbildung 5.10 in der Permalloy-Schicht Domänenwände bis zu einem äußeren Magnetfeld von 60Oe existieren, was jedoch mit Hilfe der Kerrmikroskop-Aufnahmen (Abbildung: 4.6) ausgeschlossen werden kann.

Um einen AMR-Effekt zu messen ist es notwendig, dass die Magnetisierung der Schichten, oder zumindest Teile davon, einmal parallel und einmal senkrecht zur Stromrichtung ausgerichtet sind. Somit muß sich ein Teil der Magnetisierung während des Ummagnetisierungsprozesses um 90° drehen. Ein reines Umschalten um 180° sollte zu keinem AMR-Effekt führen (siehe Abschnitt 5.1.3). Wie aus den Kerr-Mikroskopieaufnahmen (Abb. 4.6) zu sehen ist, kann sich in der oberen Fe-Schicht durchaus eine 90°-Einstellung der Magnetisierung ausbilden, wogegen dies in der unteren Fe-Schicht nicht passiert, was aus dem steilen Schalten in der Magnetisierungskurve ([100]-Richtung in Abb. 4.2) geschlossen werden kann. Im Weiteren soll nun genau untersucht werden, wie die

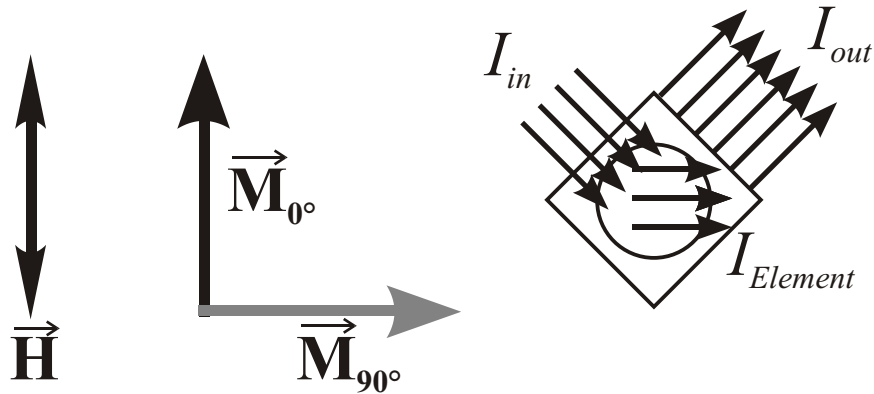
Magnetisierung und die Stromrichtung zueinander liegen müssen, um eine Magnetowiderstandskurve wie in Abbildung 5.10 oder 5.9 zu erhalten.

Für die Messung spielt nur der Widerstand eine Rolle, der im  $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$  großen Bereich des Tunnelements vorliegt, da alle anderen Widerstände durch die Vierpunkt-Messmethode kompensiert werden. Zuerst wird nun ein zur Substratoberfläche senkrechter Strom betrachtet. Dieser kann keinen Beitrag zu einem AMR-Effekt liefern, da die Magnetisierung der dünnen Schichten stets in-plane ist und somit während des Ummagnetisierungsprozesses immer ein  $90^\circ$ -Winkel zwischen Magnetisierung und Stromrichtung vorliegt. Lediglich Bloch-Wände hätten eine out-of-plane Magnetisierung und würden eine Widerstandsänderung bewirken. Jedoch ist das Volumen der Domänenwände gegenüber dem der Domänen viel kleiner und sollte nur einen verschwindenden Beitrag zum Widerstand liefern.

Um einen AMR-Effekt in den Strukturen zu messen, muss der Strom also in-plane fließen, da die Magnetisierung stets in der Ebene liegt. Bei herkömmlichen Tunnelementen mit isolierender Barriere hätte eine Änderung des metallischen in-plane Widerstandes keine Auswirkungen, da der out-of-plane Widerstand, der dem der Barriere entspricht, viel größer ist ( $\text{k}\Omega$ -Bereich). Dagegen ist bei den in dieser Arbeit hergestellten Tunnelementen der Widerstand so klein, dass auch der metallische in-plane Widerstand (Abb. 5.14) in den beiden Elektroden eine Rolle spielt. Dies sieht man an einem „Tunnelement“, bei dem die  $\text{ZnSe}$ -Barriere und die darüberliegende  $\text{Fe}$ -Schicht durch eine  $\text{Ta}$ -Schicht ersetzt, und somit ein voll metallisches System mit gleichen Abmessungen hergestellt wurde (siehe 5.5.3). Der Widerstand des metallischen Elements hat mit  $1,7\Omega$  die gleiche Größenordnung wie die Proben mit  $8\text{nm}$   $\text{ZnSe}$ -Barriere ( $4,3\Omega$ ). In der metallischen Probe ist der in-plane Widerstand vorherrschend, da die laterale Ausdehnung der Tunnelemente ( $20\mu\text{m}$ ) viel größer ist als die vertikale mit  $30\text{nm}$ . So



**Abbildung 5.14:** Hier wird die „aktive“ Zone des Tunnelements skizziert. Die Pfeile sollen dabei qualitativ den Stromverlauf wiedergeben. Dabei ist zu beachten, dass in Wirklichkeit das Aspektverhältnis von Breite ( $20\mu\text{m}$ ) zu Höhe ( $30\text{nm}$ ) viel größer ist, als hier dargestellt.



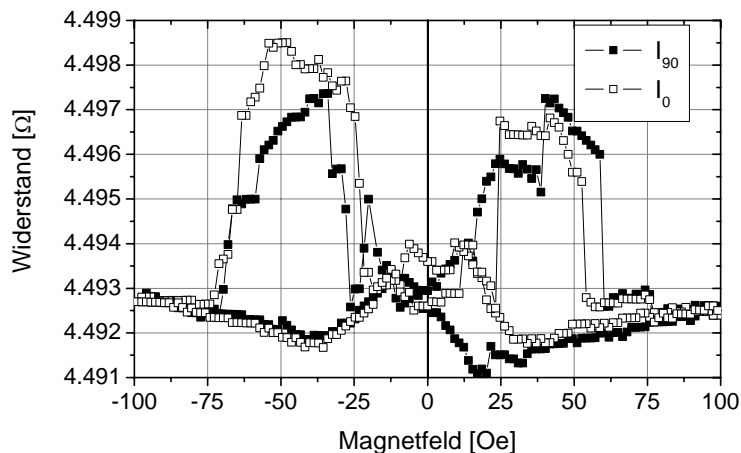
**Abbildung 5.15:** Hier sind die in-plane Strompfade von Abbildung 5.14 in Draufsicht abgebildet. Links ist die Magnetfeldachse dargestellt. Die beiden Pfeile in der Mitte zeigen die Richtung der Magnetisierung in Sättigung (schwarz) und während des Ummagnetisierungsvorgangs (grau), die um  $90^\circ$  gedreht sein muss, um einen AMR-Effekt zu messen. Rechts ist der Stromverlauf skizziert.  $I_{in}$  ist dabei der ankommende Strom,  $I_{out}$  der abfließende und  $I_{Element}$  ist der Strom im Tunnелеlement.

mit ist auch bei diesen niederohmigen ZnSe-Proben der in-plane Widerstand, der sich bei einem AMR-Effekt ändern sollte, nicht zu vernachlässigen.

Um nun mit Hilfe des AMR-Effekts Magnetowiderstandskurven in Abbildung 5.9 und 5.10 erklären zu können, müssen im gesättigten Zustand die Stromrichtung und die Magnetisierung senkrecht aufeinander stehen. Dagegen müssen im Bereich des erhöhten Magnetowiderstands Strom und Magnetisierung parallel zueinander ausgerichtet sein. In Abbildung 5.15 ist die Richtung des angelegten Feldes und der Magnetisierung dargestellt. Der Strom muß dabei wie eingezeichnet fließen, damit im magnetisch gesättigten Zustand der niedrigste Widerstand vorliegt. Schaltet während des Ummagnetisierens die Magnetisierung um  $90^\circ$ , so ist diese parallel zur Stromrichtung und der Widerstand erhöht sich. Bei noch größerem Feld richtet sich die Magnetisierung wieder parallel zum Magnetfeld und senkrecht zum Strom aus. Der Widerstand sinkt wieder auf den ursprünglichen Wert. Somit wären nur durch den AMR-Effekt die Magnetowiderstandskurven erklärt. Ist die Stromrichtung um  $45^\circ$  gedreht, so kann man sich leicht überlegen, dass der Ummagnetisierungsvorgang keine Widerstandsänderung bezwecken sollte (siehe Abschnitt 5.1.3).

Ist diese Argumentation richtig, so sollte sich das Vorzeichen des AMR-Effekts umdrehen, wenn die Stromrichtung um  $90^\circ$  gedreht wird, der Rest aber unverändert bleibt. Dies wird experimentell durchgeführt, indem man einfach die beiden *bottom*-Kontakte vertauscht. Ist vorher der Strom senkrecht zum äußeren Magnetfeld geflossen, so fließt er nach dem Vertauschen parallel dazu. In Abbildung 5.16 ist nun das Ergebnis der beiden Messungen zu sehen. Tatsächlich ist kein wesentlicher Unterschied zwischen den beiden Messkurven zu erkennen. Dies zeigt, dass der in-plane AMR-Effekt nicht die Ursache für die gemessenen Magnetowiderstandskurven sein kann.

Gegen einen AMR-Effekt als Ursache für den gemessenen Effekt spricht außerdem das



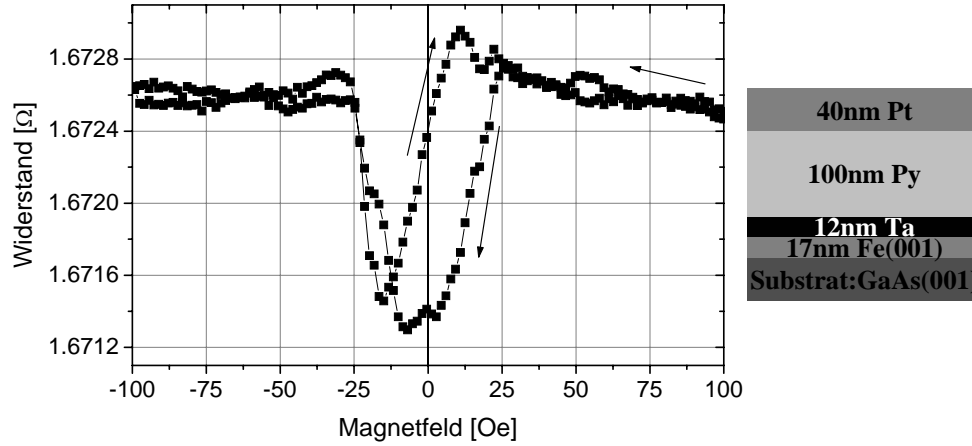
**Abbildung 5.16:** *Magnetowiderstandsmessungen ( $T = 300K$ ,  $ZnSe$ -Dicke  $8nm$ ), bei denen nur die Stromrichtung um  $90^\circ$  gedreht wurde (durch Vertauschen der beiden bottom-Kontakte).*

Verschwinden des Magnetowiderstandes unter  $80K$  in 5.4.1. Denn bei tieferen Temperaturen sollten  $90^\circ$ -Grad-Domänen zwar erst bei höheren Feldern entstehen, aber nicht ganz verschwinden. Somit müsste auch bei diesen Temperaturen ein AMR-Effekt gemessen werden, was aber nicht der Fall ist.

Des Weiteren ist auszuschließen, dass ein AMR-Effekt in der unteren Fe-Schicht vorliegt. Denn die Ummagnetisierungskurve in Abbildung 4.2 zeigt, dass die Schicht innerhalb weniger Oe komplett umschaltet und somit keine  $90^\circ$ -Ausrichtung der Magnetisierung über einen Bereich von  $25Oe$  bis  $60Oe$  bei Zimmertemperatur vorliegt. Deshalb müsste die obere Fe- bzw. Py-Schicht für den Effekt sorgen. Diese Schichten sind aber bereits bei  $30Oe$  gesättigt und nicht erst bei  $60Oe$ , was ebenfalls einem AMR-Effekt zur Erklärung des Magnetowiderstands widerspricht.

Die Tatsache, dass der Magnetowiderstandseffekt in 5.4.1 irreversibel verschwindet, widerspricht ebenfalls einem AMR-Effekt, da dieser nicht durch zu große Ströme oder Überspannungen zerstört werden sollte. Außerdem müsste der AMR-Effekt an allen niederohmigen Proben zu messen sein, da bei allen Proben die gleichen ferromagnetischen Schichten vom Strom durchflossen werden. Es zeigen aber nur 6 Proben einen messbaren Magnetowiderstandseffekt wie in Abbildung 5.10, bei dem der Widerstand in dem Magnetfeldbereich höher ist, in dem die Magnetisierungen der beiden Ferromagneteten nicht parallel sind. Bei einem Großteil der Proben ist aber kein Magnetowiderstandseffekt erkennbar oder der Widerstand sinkt bei kleinen Magnetfeldern ähnlich wie in Abbildung 5.17. Dies deutet ebenfalls daraufhin, dass nicht die Magnetfeldabhängigkeit des Widerstandes in den ferromagnetischen Filmen, sondern der Transport über die  $ZnSe$ -Barriere, deren Dicke oder Fe-Dotierung von Probe zu Probe variieren kann, für den Magnetowiderstandseffekt in Abbildung 5.10 verantwortlich ist.

### 5.5.3 Vergleichsmessung ohne ZnSe-Barriere



**Abbildung 5.17:** Links: Magnetowiderstandsmessungen ( $I=20\text{mA}$ ) bei  $T = 300\text{K}$  für  $17\text{nmFe} / 12\text{nmTa} / 100\text{nmPy} / 40\text{nmPt}$  beginnend bei  $+100\text{Oe}$  (siehe Pfeile) in leichter Richtung; Rechts: Schematischer Schichtaufbau des Vergleichselements.

An Proben mit zusätzlicher *Py*-Schicht kam es des Öfteren zu einem Absinken des Magnetowiderstandes bei kleinen Magnetfeldern ( $<30\text{Oe}$ ). Aus diesem Grund wurde eine Vergleichsprobe hergestellt, bei der die *ZnSe*- und obere *Fe*-Schicht durch *Ta* ersetzt wurde, der Rest aber gleich blieb. Dabei wurde die *Ta*-Schicht mit  $12\text{nm}$  so dick gewählt, dass kein GMR-Effekt entstehen kann. Neben dem zu erwartenden kleinen Widerstand ( $1,7\Omega$ ) fällt vor allem auf, dass der Magnetowiderstand um  $0,09\%$  zwischen  $+30\text{Oe}$  und  $-30\text{Oe}$  absinkt (Abb. 5.17). Dieses Experiment zeigt, dass die dicke *Py*-Schicht für das Absinken des Magnetowiderstandes im Bereich von  $\pm 30\text{Oe}$  verantwortlich ist. Damit lässt sich auch klären, woher das scheinbar höhere Schaltfeld der oberen ferromagnetischen Schicht in Abbildung 5.10 kommt: Da das Absinken des Widerstandes, verursacht durch das Permalloy, in etwa den gleichen Betrag hat, wie der Magnetowiderstandseffekt der *Fe/ZnSe/Fe*-Strukturen, heben sich beide Effekte im Bereich zwischen  $0\text{Oe}$  und  $+25\text{Oe}$  bzw.  $-25\text{Oe}$  gerade auf. Erst ab  $\pm 25\text{Oe}$ , wenn das *Py* wieder gesättigt ist, misst man rein den Magnetowiderstand der *Fe / ZnSe / Fe*-Schichten. In den Magnetowiderstandskurven sieht es also nur so aus, als ob sich das Schaltfeld der oberen Schicht erhöht hat.

Als Ursache für den negativen Magnetowiderstandseffekt kommt nur der anisotrope Magnetowiderstand in Frage, da es sich um eine einzelne Schicht handelt. Jedoch gilt hier die gleiche Argumentation wie im vorigen Abschnitt: Bei Vertauschen der beiden bottom-Kontakte sollte sich der Effekt vom Negativen ins Positive umkehren. Die Magnetowiderstandskurve ändert sich jedoch nicht bei einer Drehung der Stromrichtung. Einzige Erklärung für dieses Verhalten wäre eine out-of-plane Komponente der Magnetisierung (eventuell Bloch-Wände) im relevanten Bereich zwischen  $\pm 25\text{Oe}$ , da in diesem Fall bei einem in-plane Strom, egal in welcher Richtung, immer ein nega-

tiver AMR-Effekt vorliegt. Dies wurde jedoch nicht weiter verfolgt, da es für die hier geführte Diskussion ausreicht zu wissen, dass der negative Magnetowiderstandseffekt von der dicken *Py*-Schicht verursacht wird.

#### 5.5.4 Ergebnis der Diskussion

Aus den elektrischen Transportmessungen geht hervor, dass hauptsächlich diffusiver Elektronentransport durch die *ZnSe*-Barriere vorliegt, was auch zu einer Temperaturabhängigkeit des Widerstands führt, die einer metallischen Leitfähigkeit entspricht. Als Ursache für diesen diffusiven Transport kommen sowohl pinholes, eine verstärkte Dotierung des Halbleiters mit *Fe* oder Leckströme am Rand des Elements in Frage. Ein kleiner Teil des Stromes tunnelt jedoch durch die Barriere. Dieser Anteil ist für den gemessenen Tunnelmagnetowiderstandseffekt verantwortlich. Aufgrund des sehr kleinen ballistischen Stroms und zusätzlicher paramagnetischer *Fe*-Verunreinigungen in der Barriere, zu denen auch Durchmischung an den Grenzflächen gezählt wird, sind nur sehr kleine TMR-Werte messbar. Dabei ist unterhalb einer Barrierendicke von  $5\text{nm}$  der diffusive Transport so dominierend, dass kein TMR-Effekt gemessen werden kann. Oberhalb von  $8\text{nm}$  ist der Anteil des Tunnelstromes zwar größer, aber damit auch der Anteil an Elektronen die an „hopping“-Prozessen teilnehmen und wegen der spin-flip-Streuung einen TMR-Effekt verhindern. Somit kann nur zwischen  $6\text{nm}$  und  $8\text{nm}$  Barrierendicke ein Tunnelmagnetowiderstand gemessen werden. Die Vermutung, dass der gemessene Magnetowiderstandseffekt ein AMR-Effekt ist, konnte dabei durch verschiedene Messungen entkräftet werden.

## Kapitel 6

# Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit sollte getestet werden, ob vollständig einkristalline Tunnelmagnetowiderstandselemente mit einer Halbleiterbarriere und ausreichend scharfen Grenzflächen durch epitaktische Schichtabscheidung hergestellt werden können. Die Schwerpunkte waren dabei das Wachstum und die laterale Strukturierung des Schichtsystems, das Umschaltverhalten der beiden magnetischen Schichten und die Transportmessungen, die schließlich einen Magnetowiderstandseffekt zeigten.

Die Herstellung des Schichtsystems  $GaAs / Fe / ZnSe / Fe / Au$  erfolgte in einer Metall- und einer Halbleiter-MBE-Anlage, wobei die Proben unter UHV-Bedingungen von einer Kammer zur anderen transferiert wurden. Besonderes Augenmerk wurde auf die Glattheit der Grenzflächen gelegt. Diese begünstigen zum Einen das epitaktische Wachstum der Schichten und erlauben zum Anderen kleinere Barrierendicken. Besonders wichtig ist dabei, dass keine Stufen oder Löcher mit steilen Flanken von mehreren nm Höhe in den Substraten vorkommen, da sich diese im Schichtsystem fortsetzen und es somit zu metallischen Verbindungen zwischen den Metallschichten kommen kann. Bei den  $GaAs$ -Substraten wurde dies durch einen einstündigen Ar-Ionen-Ätzprozess bei einer Temperatur von  $620^{\circ}\text{C}$  erreicht. Nach dieser Vorbehandlung erhält man atomar glatte Terrassen mit lateralen Ausdehnungen von bis zu  $400\text{nm}$ , welche mit dem STM nachgewiesen wurden. Die erste  $Fe$ -Schicht wurde bei einer Substrattemperatur von  $300\text{K}$  aufgewachsen, wodurch sich eine Oberfläche ergibt, die anfänglich durch dreidimensionale Inseln dominiert wird. Durch einen Temper- und Ar-Ionen-Ätzprozess konnte aber auch diese Oberfläche geglättet werden, sodass sich auch hier atomar glatte Terrassen von bis zu  $40\text{nm}$  ergaben. Nur die relativ raue Oberfläche der  $ZnSe$ -Schicht konnte nicht geglättet werden, da die dafür nötige Temperatur sicherlich zu einer stärkeren Durchmischung an den anderen Grenzflächen geführt hätte und somit magnetisch tote Lagen verursacht hätte. Insgesamt ist jedoch festzuhalten, dass die maximalen Höhenunterschiede in den  $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$  großen Ausschnitten aller untersuchten Grenzflächen stets unterhalb von  $2\text{nm}$  lagen, so dass ab einer Barrierendicke von  $4\text{nm}$  keine metallischen Verbindungen zwischen den Metallschichten mehr existieren sollten.

Eine besondere Herausforderung war das epitaktische Wachstum von  $ZnSe$  auf  $Fe$ : Bei dem herkömmlichen Aufdampfverfahren, bei dem  $Zn$  und  $Se$  aus verschiedenen Tiegeln verdampft werden, erhält man bei einer Substrattemperatur bis zu  $270^{\circ}\text{C}$  po-

lykristallines Wachstum ohne stärkere Durchmischung an der Grenzfläche. Liegt eine höhere Substrattemperatur vor, so ist zwar in den Querschnittspräparaten und RHEED-Aufnahmen der *ZnSe*-Barriere eine einkristalline Struktur zu erkennen, diese entspricht aber nicht dem erwarteten fcc-Gitter. Außerdem ist in diesem Fall die Halbleiterbarriere massiv mit *Fe*-Atomen durchmischt.

Einen Ausweg aus diesem Dilemma bietet das Verdampfen der *ZnSe*-Schicht aus einem einzelnen Tiegel. Hier wurde ab einer Substrattemperatur von 200°C einkristallines fcc-Wachstum von *ZnSe* auf *Fe* festgestellt, wobei eine Verunreinigung der Barriere mit *Fe*-Atomen zwar nicht völlig ausgeschlossen werden kann, aber zumindest keine messbare Durchmischung mehr vorliegt. Im Rahmen dieser Untersuchungen konnte mit Hilfe der Elektronenholografie an Querschnittspräparaten gezeigt werden, dass eine mögliche Durchmischungszone an den Grenzflächen dünner als 1nm sein muss.

Für die Magnetotransportmessungen war es notwendig, die ausgedehnten Proben lateral zu strukturieren, um die beiden Metallschichten getrennt voneinander elektrisch zu kontaktieren. Mit fotolithografischen Methoden wurden dabei die Tunnelemente auf eine Größe von  $20\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$  eingeschränkt. Besonders kritisch war dabei der physikalische Ätz-Prozess, der das Tunnelement definiert. Hier kann es zu Redeposition von abgetragenem *Fe* am Rand der Tunnelstruktur kommen. Dies wurde jedoch durch einen schrägen *Ar*-Ionen-Einfall bei gleichzeitiger Rotation der Probe vermieden. Dass es trotzdem zu einer geringfügigen Implantation von *Fe* am Rand der *ZnSe*-Schicht gekommen ist, kann nicht ausgeschlossen werden.

Die magnetischen Untersuchungen an den ausgedehnten einkristallinen Proben zeigten, dass oberhalb von 150K die 2,2nm dicke *Fe*-Schicht bei kleineren Magnetfeldern umschaltet als die 17,5nm dicke *Fe*-Schicht. Aufgrund der unterschiedlichen Temperaturabhängigkeit der Koerzitivfelder beider Eisschichten nähern sich die Umschaltfelder mit abnehmender Temperatur an. Unterhalb von 150K schalten beide Schichten bei dem gleichen Magnetfeld. Da gerade bei tiefen Temperaturen die größten Magnetowiderstandseffekte erwartet werden, wurde versucht, auch in diesem Temperaturbereich ein getrenntes Schalten der beiden ferromagnetischen Schichten zu erreichen. Dies gelang durch die ferromagnetische Kopplung einer weichmagnetischen Permalloy-Schicht an den 2,2nm dicken *Fe*-Film, sodass im gesamten untersuchten Temperaturbereich ein getrenntes Umschalten der beiden ferromagnetischen Elektroden erreicht werden konnte.

Die entscheidenden Messungen sind jedoch letztendlich die Magnetotransportmessungen. Der maximale Magnetowiderstandswert, der bei einer Barrierendicke von 8nm und einer Temperatur von 50K gemessen wurde, betrug dabei 0,24%. Dagegen konnte bei Barrierendicken überhalb von 8nm und unterhalb von 5nm kein Tunnelmagnetowiderstandseffekt festgestellt werden. Der Grund für den kleinen Magnetowiderstandswert und den kleinen Dickenbereich, in dem ein Effekt gemessen werden konnte, ist ein dominierender Anteil an diffusivem Stromtransport über die *ZnSe*-Barriere, der dem Tunnelstrom überlagert ist und sich bei den dünneren Barrieren in nahezu ohmschen Strom-Spannungs-Kennlinien zeigt. Bei Tunnelementen mit Barrieren über 10nm konnten zwar nichtlineare Kennlinien gemessen werden, diese können aber auch durch „hopping“-Prozesse über eine verunreinigte Barriere hervorgerufen werden, wofür auch die starke Temperaturabhängigkeit dieser Strom-Spannungs-Kennlinien spricht.



Innerhalb dieser Arbeit konnte also gezeigt werden, dass die Herstellung einkristalliner Tunnelemente mit Halbleiterbarriere durch epitaktische Schichtabscheidung in der Tat möglich ist. Um zukünftig den Magnetowiderstandswert zu steigern, sind weitere Untersuchungen nötig, die vor allem darauf abzielen, den Anteil des Tunnelstroms im Vergleich zu den Leckströmen zu erhöhen. Dazu wäre es wichtig, quantitative Aussagen über die Dotierung bzw. Durchmischung der Halbleiterbarriere mit  $Fe$  machen zu können. Um diese in Zukunft zu verhindern, muss die Substrattemperatur noch genauer kontrolliert und eventuell sogar während des Wachstums des  $ZnSe$  variiert werden können. In diesem Zusammenhang sollte auch geklärt werden, ob tatsächlich durch den  $Ar$ -Ionen-Ätz-Prozess am Rand des Tunnelements ein leitfähiger Kanal entsteht, welcher eventuell durch einen nass-chemischen Ätzprozess verhindert werden könnte, worauf experimentelle Ergebnisse in jüngster Zeit hindeuten [Spi04].

# Literaturverzeichnis

- [Aba95] H. Abad, B.T. Jonker, C.M. Cotell, and J.J. Krebs: *Growth of ZnSe epilayers on Fe(001) films by migration enhanced epitaxy and self-limiting epitaxy*  
J. Vac. Sci. Tech. B, **13**(1995), 716
- [Bai88] M.N. Baibach, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friedrich und J. Chazelas: *Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*  
Phys. Rev. Lett., **61**(1988), 2472
- [Bau93] S. Bauer, H. Berger, P. Link, W. Gebhardt: *Raman studies of the growth mechanism of ZnSe/GaAs(001) heterostructures*  
J. Appl. Phys., **74**(1993), 3916
- [Bay99] G. Bayreuther: *Spinvalves*  
30. IFF-Ferienkurs, Magnetische Schichtsysteme, Forschungszentrum Jülich, 1999
- [Bec99] P.S. Bechthold: *Magnetooptische Effekte: Phänomenologische Beschreibung und Anwendungen*  
30. IFF-Ferienkurs, Magnetische Schichtsysteme, Forschungszentrum Jülich, 1999
- [Ben01] F. Bensch: *Der magnetische Phasenübergang und das Einsetzen des Ferromagnetismus bei dünnen Eisenschichten auf Galliumarsenid*  
Dissertation, Universität Regensburg 2001
- [Be01] F. Bensch, G. Garreau, R. Moosbühler, E. Beaupaire and G. Bayreuther: *Onset of ferromagnetism Fe epitaxially grown on GaAs(001) (4×2) and (2×6)*  
J. Appl. Phys., **89**(2001), 7133
- [Ber96] H.A.M. van den Berg et al.: *GMR Sensor Scheme with Artificial Antiferromagnetic Subsystem*  
I.E.E.E. Trans Magn., **32**(1996), 4624
- [Bin89] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach, and W. Zinn: *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*  
Phys. Rev. B, **39**(1989), 4828

- [Bin02] M. Binder: *Strukturelle Untersuchungen an querpräparierten Proben im Transmissionselektronenmikroskop*  
Diplomarbeit, Universität Regensburg 2002
- [Böh97] A. Böhm: *Grenzflächenuntersuchungen in Fe/Tb-Viellagen-Schichten mit verschiedenen Zwischenlagen*  
Diplomarbeit, Universität Regensburg, (1997)
- [Bow01] M. Bowen, V. Cros, F. Petroff, and A. Fert: *Large magnetoresistance in Fe/MgO/FeCo(001) epitaxial tunnel junctions on GaAs(001)*  
Appl. Phys. Lett., **79**(2001), 1655
- [Bra97] A.M. Bratkovsky: *Tunneling of electrons in conventional and half-metallic systems: Towards very large magnetoresistance*  
Phys. Rev. B, **56**(1997), 2344
- [Bri83] D. Briggs, M.P. Seah (eds.): *Practical Surface Science Analysis by AES and XPS*  
Wiley, Chichester, (1983)
- [Bro99] M. Brockmann, M. Zöfl, S. Miethaner, and G. Bayreuther: *In-plane volume and interface magnetic anisotropies in epitaxial Fe films on GaAs(001)*  
J.M.M.M., **198**(1999), 384
- [Bro00] M. Brockmann: *Epitaxie und magnetische in-plane-Anisotropie dünner Fe(001)-Schichten auf Au(001) und GaAs(001)*  
Disseration, Universität Regensburg, (2000)
- [Bru94] P. Bruno: *Theory of intrinsic and thermally induced interlayer magnetic coupling between ferromagnetic films separated by an insulating layer*  
Phys. Rev. B, **49** No. 18 (1994), 13231
- [Bru95] P. Bruno: *Theory of interlayer magnetic coupling*  
Phys. Rev. B, **52** No. 1 (1995), 411
- [Bru98] P. Bruno and J. Wunderlich: *Resonant tunneling spin valve: A novel magnetoelectronics device*  
J. Appl. Phys., **84**(1998), 978
- [Bru99] P. Bruno: *Theory of interlayer exchange coupling*  
30. IFF-Ferienkurs, Magnetische Schichtsysteme, Forschungszentrum Jülich, 1999
- [But97] W.H. Butler et al.: *Electronic structure of FM/semiconductor/FM spin tunneling structures*  
J. Appl. Phys., **81** (1997), 5518
- [But01] W.H. Butler, X.G. Zhang, T.C. Schulthess, and J.M. MacLaren: *Spin-dependent conductance of Fe/MgO/Fe sandwiches*  
Phys. Rev. B, **63** (2001), 54416

- [Bür99] D.E. Bürgler: *Zwischenschichtaustauschkopplung: Abhängigkeit vom Schichtaufbau und der Qualität der Grenzflächen*  
30. IFF-Ferienkurs, Magnetische Schichtsysteme, Forschungszentrum Jülich, 1999
- [Cam82] I.A. Campbell and A. Fert: *Transport properties of ferromagnets*  
Ferromagnetic Materials **3** (1982), 747, Editor: E. P. Wohlfarth, North Holland
- [Dja05] D.D. Djayaprawira, K. Tsunekawa, M. Nagai, H. Maehara, S. Yamagata, N. Watanabe, S. Yuasa, Y. Suzuki, and K. Ando: *230% room-temperature magnetoresistance in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junctions*  
Appl.Phys. Lett., **86** (2005), 092502
- [Du03] J. Du, W.T. Sheng, L. Sun, B.You, M. Lu, A. Hu, Q.Y. Xu, Y.G. Wang, Z. Zhang, and J.Q. Xiao: *Inverse tunnel magnetoresistance in over-oxidized FeCo/AlO<sub>x</sub>/Co junctions*  
phys. stat. sol. (a) **199** No. 2 (2003), 289
- [Ebe00] U. Ebels, A. Radulescu, Y. Henry, L. Piraux, and K. Ounadjela: *Spin Accumulation and Domain Wall Magnetoresistance in 35nm Co Wires*  
Phys. Rev. Lett., **84**(2000), 983
- [Ede94] S. Eder: *Magnetische Eigenschaften von Fe/Au-Viellagenschichten mit kontrollierter Grenzflächenrauigkeit*  
Diplomarbeit, Universität Regensburg, (1994)
- [Fau02] J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, und A. Schuhl: *Interlayer Magnetic Coupling Interactions of Two Ferromagnetic Layers by Spin Polarized Tunneling*  
Phys. Rev. Lett., **89**(2002), 107206
- [Fau03] J. Faure-Vincent, C. Tiusan, E. Jouguelet, F. Canet, M. Sajieddine, C. Bellouard, E. Popova, M. Hehn, F. Montaigne, und A. Schuhl: *High tunnel magnetoresistance in epitaxial Fe/MgO/FeCo(001) tunnel junctions*  
Appl. Phys. Lett., **82**(2003), 4507
- [Ful92] E.E. Fullerton, J.E. Mattson, S.R. Lee, C.H. Sowers, Y.Y. Huang, G. Felcher, S.D. Bader, F.T. Parker : *Non-oscillatory antiferromagnetic coupling in sputtered Fe/Si superlattices*  
J. M. M. M., **117**(1992), L301
- [Gal92] J.M. Gallego, J.M. Garcia, J. Alvarez, and R. Miranda: *Metallization-induced spontaneous silicide formation at room temperature: The Fe/Si case*  
Phys. Rev. B, **46**(1992), 13339

- [Gar02] R.R. Gareev, D.E. Bürgler, M. Buchmeier, R. Schreiber, P. Grünberg: *Very strong interlayer exchange coupling in epitaxial Fe/Fe<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub>/Fe trilayers ( $x=0.4-1.0$ )*  
J. M. M. M., **240**(2002), 235
- [Geb00] O. Gebele, M. Böhm, U. Krey and S. Kompriewski: *Systematic two-band model calculations of the GMR effect with metallic and non-metallic spacers and with impurities*  
J. M. M. M., **214**(2000), 309
- [Gra99] Holger T. Grahn: *Introduction to semiconductor physics*  
World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., Singapore, (1999)
- [Gre96] J.F. Gregg, W. Allen, K.Ounadjela, M. Viret, M. Hehn, S.M. Thompson, and J.M.D. Coey: *Giant Magnetoresistive Effects in Single Element Magnetic Thin Films*  
Phy. Rev. Lett., **77**(1996), 1580
- [Gro00] R. Gross und Achim Marx: *Grundlagen der Magnetoelektronik*  
Vorlesungsskript zur Vorlesung im WS 2000/2001 Walther-Meissner-Institut, Garching
- [Grü86] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M.B. Brodsky, and H. Sower: *Layered Magnetic Structures: Evidence of Antiferromagnetic Coupling of Fe Layers across Cr Interlayers*  
Phys. Rev. Lett., **57** (1986), 2442
- [Grü99] P. Grünberg: *Zwischenschichtaustauschkopplung: Phänomenologische Beschreibung, Materialabhängigkeit*  
30. IFF-Ferienkurs, Magnetische Schichtsysteme, Forschungszentrum Jülich, 1999
- [Gup01] A. Gupta, X.W. Li, and Gang Xiao: *Inverse magnetoresistance in chromium-dioxide-based magnetic tunnel junctions*  
Appl. Phys. Lett., **78** No.13 (2001), 1894
- [Gus01] F. Gustavsson, J-M. George, V.H. Etgens, and M. Eddrief: *Structural and transport properties of epitaxial Fe/ZnSe/FeCo magnetic tunnel junctions*  
Phy. Rev. B, **64**(2001), 184422
- [Hag00] T. Hagler: *Die Temperaturabhängigkeit des Tunnel Magnetowiderstandes*  
Diplomarbeit, Universität Regensburg, (2000)
- [Hag01] T. Hagler, R. Kinder, and G. Bayreuther: *Temperature dependence of the tunnel-magnetoresistance*  
J. Appl. Phys., **89**(2001), 7570
- [Har68] L.A. Harris: *Analysis of Materials by Electron-Excited Auger Electrons*  
J. Appl. Phys., **39**(1968), 1419

- [Hei97] P.A.A. van der Heijden, P.J.H. Bloemen, J.M. Metselaar, R.M. Wolf, J.M. Gaines, J.T.W.M. van Eemeren, P.J. van der Zaag, and W.J.M. de Jonge: *Interlayer coupling between  $Fe_3O_4$  layers separated by an insulating nonmagnetic MgO layer*  
Phys. Rev. B, **55**(1997), 11569
- [Heu05] M. Heumann: *Elektronenholografie an magnetischen Nanostrukturen*  
Disseration, Universität Regensburg, (2005)
- [Hub99] A. Hubert and R. Schäfer: *Magnetic Domains / the analysis of magnetic microstructures*  
Springer-Verlag, Berlin, (1999)
- [Hun71] R.P. Hunt: *A Magnetoresistive Readout Transducer*  
I.E.E.E. Trans. Mag **7**(1971), 150
- [Ina01] M. Inada, T. Fujishima, I. Umezu, A. Sugimura, and S. Yamada: *Conduction-type control of Ge films grown on  $(NH_4)_2S$ -treated GaAs by molecular beam epitaxy*  
Journal of Crystal Growth, **227-228** (2001), 791
- [Jön00] B.J. Jönsson-Åkerman, R. Escudero, C. Leighton, S. Kim, and I. K. Schuller: *Reliability of normal-state current-voltage characteristics as an indicator of tunnel-junction barrier quality*  
Appl. Phys. Lett., **77** 12 (2000), 1870
- [Jul75] M. Jullière: *Tunneling between ferromagnetic films*  
Physics Letters, **54A** (1975), 225
- [Kea97] D.J. Keavney, E.E. Fullerton, and S.D. Bader: *Perpendicular conductance and magnetic coupling in epitaxial Fe/MgO/Fe(100) trilayers*  
J. Appl. Phys., **81** (1997), 795
- [Ker77] J. Kerr: *On Rotation of the Plane of Polarization by Reflection from the Pole of Magnet*  
Phil. Mag., **3** (1877), 321
- [Kip04] W. Kipferl: *Spinwellenanregungen in ferromagnetischen ultradünnen epitaktischen Fe-Schichten und Nanostrukturen*  
Dissertation, Universität Regensburg, (2004)
- [Kre97] S. Kreuzer: *Präparation und Charakterisierung magnetischer Nanostrukturen*  
Diplomarbeit, Universität Regensburg, (1997)
- [Kre01] S. Kreuzer: *Spinpolarisiertes Tunneln durch einkristalline Halbleiterbarrieren*  
Dissertation, Universität Regensburg, (2001)
- [Lan82] Landolt-Börnstein: *Semiconductors: Physics of II-IV and I-VII Compounds, Semimagnetic Semiconductors*  
Neue Serie III/17b, Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, (1982)

- [Lev97] P.M. Levy and S. Zhang: *Resistivity due to Domain Wall Scattering*  
Phys. Rev. Lett. **79** (1997), 5110
- [Mac98] J.M. MacLaren, W.H. Butler, and X.G. Zhang: *Spin-dependent tunneling in epitaxial systems: Band dependence of conductance*  
J. Appl. Phys., **83** (1998), 6521
- [Mac99] J.M. MacLaren, X.G. Zhang, W.H. Butler, and X. Wang: *Layer KKY approach to Bloch-wave transmission and reflection: Application to spin-dependent transport*  
Phys. Rev. B, **59** (1999), 5470
- [Mav00] Ph. Mavropoulos, N. Papanikolaou, and P.H. Dederichs: *Complex Band Structure and Tunneling through Ferromagnet/Insulator/Ferromagnet Junctions*  
Phys. Rev. Lett. **85** (2000), 1088
- [McG75] T.R. McGuire and R.I. Potter: *Anisotropic Magnetoresistance in Ferromagnetic 3d Alloys*  
I.E.E.E. Trans. Mag. **11** (1975), 1018
- [Men99] S. Mengel: *Magnetoelektronik*  
30. IFF-Ferienkurs, Magnetische Schichtsysteme, Forschungszentrum Jülich, 1999
- [Moo02] R. Moosbühler, F. Bensch, M. Dumm and G. Bayreuther: *Epitaxial Fe films on GaAs(001): does the substrate surface reconstruction affect the uniaxial magnetic anisotropy?*  
J. Appl. Phys., **91**(2002), 8757
- [Moo03] R. Moosbühler: *GaAs(001)-Oberflächen-Rekonstruktionen und epitaktische Fe-Schichten auf GaAs(001): Wachstum und magnetische Anisotropie*  
Dissertation, Universität Regensburg, (2003)
- [Mot64] N.F. Mott: *Electrons in Transition Metals*  
Advances in Physics **13**(1964), 325
- [Nag03] K. Naghara, T. Mukai, N. Ishwata, H. Hada, and S. Tahara: *Magnetic Tunnel Junction (MTJ) Patterning for Magnetic Random Access Memory (MRAM) Process Applications*  
Jpn. J. Appl. Phys., **42**(2003), L499
- [Neé62] L. Néel :  
C. R. Hebd. Seances Acad. Sci. **255**(1962), 1676
- [Nis02] K. Nishikawa, M. Tsunoda, S. Ogata, M. Takahashi: *New Plasma Source With Low Electron Temperature for Fabrication of an Insulating Barrier in Ferromagnetic Tunnel Junctions*  
I.E.E.E. Trans. Magn., **38**(2002), 2718

- [Oep99] W. Oepts and J. Verhagen: *Analysis of breakdown in ferromagnetic tunnel junctions*  
J. Appl. Phys., **86**(1999), 3863
- [Ohk96] K. Ohkawa, A. Tsujimura, T. Nishikawa, S. Yoshii, T. Yokogawa, M. Kubo, and Y. Sasai: *Compound source molecular beam epitaxy for II-VI laser structures*  
J. Crystal Growth, **159**(1999), 632
- [Oht99] A. Ohtake, T. Hanada, T. Yasuda, K. Arai, and T. Yao: *Structure and composition of the ZnSe(001) surface during atomic-layer epitaxy*  
Phys. Rev. B, **60**(1999), 8326
- [Pal72] P.W. Palmberg: *Use of Auger Electron Spectroscopy and Inert Gas Sputtering of Obtaining Chemical Profiles*  
J. Vac. Sci. Tech., **9**(1972), 160
- [Par04] S.S.P. Parkin, C. Kaiser, A. Panchula, P.M. Rice, B. Hughes, M. Samant, and S. Yang: *Giant tunnelling magnetoresistance at room temperature with MgO(100) tunnel barriers*  
Nat. Mater., **3**(2004), 862
- [Par90] S.S.P. Parkin, N. More, and K.P. Roche: *Oscillations in exchange coupling and magnetoresistance in metallic superlattice structures: Co/Ru, Co/Cr, and Fe/Cr*  
Phys. Rev. Lett., **64**(1990), 2304
- [Pop02] E. Popova, J. Faure-Vincent, C. Tiusan, C. Bellouard, H. Fischer, M. Hehn, F. Montaigne, M. Alnot, S. Andrieu, and A. Schuhl: *Epitaxial MgO layer for low-resistance and coupling-free magnetic tunnel junctions*  
Appl. Phys. Lett., **81**(2002), 1035
- [Pre00] H. Preis: *Selbstorganisierte Inselbildung in CdSe/ZnSe(001)*  
Dissertation, Universität Regensburg (2000)
- [Rei00] E. Reiger, E. Reinwald, G. Garreau, M. Ernst, M. Zölfl, F. Bensch, S. Bauer, H. Preis, and G. Bayreuther: *Magnetic moments and anisotropies in ultrathin epitaxial Fe films on ZnSe(001)*  
J. Appl. Phys., **87**(2000), 5923
- [Rei97] L. Reimer: *Transmission Electron Microscopy*  
Springer-Verlag Berlin, (1997)
- [Rho88] E.H. Rhoderik: *Metal-Semiconductors*  
2nd Edition, Oxford University Press, (1988)
- [Rue99] U. Rüdiger and J. Yu: *Magnetoresistance, micromagnetism, and domain-wall scattering in epitaxial hcp Co films*  
Phys. Rev. B, **59**(1999), 11914



- [San91] K. Sano and T. Miyagawa: *Surface segregations during epitaxial growth of Fe/Au multilayers on GaAs(001)*  
Jpn. J. Appl. Phys., **30**(1991), 1434
- [Sim63] J. G. Simmons: *Generalized Formula for the Electric Tunnel Effect between Similar Electrodes Separated by a Thin Insulating Film*  
J. Appl. Phys., **43**(1963), 1793
- [Sma03] J. Schmalhorst and G. Reiss: *Temperature and bias-voltage dependent transport in magnetic tunnel junctions with low energy Ar-ion irradiated barriers*  
Phys. Rev. B, **68**(2003), 224437
- [Shi00] K. Shimazawa, N. Kasahara, J. J. Sun, S. Araki, H. Morita, and M. Matsuzaki: *Electrical breakdown of the magnetic tunneling junction with an  $AlO_x$  barrier formed by radical oxidation*  
J. Appl. Phys., **87**(2000), 5194
- [Slo89] J.C. Slonczewski: *Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier*  
Phys. Rev. B, **39**(1989), 6995
- [Spi04] A. Spitzer: *Schottky-Kontakte auf GaAs*  
Diplomarbeit, Universität Regensburg, (2004)
- [Ste05] F. Steinbauer: *Statistisches Magnetisierungsverhalten von Mikro und Nanomagneten*  
Dissertation, Universität Regensburg, (2005)
- [Ste02] L.B. Steren, J. Milano, M.Eddrief, and V.H. Etgens: *Magnetic properties of Fe/ZnSe/Fe trilayers*  
Physica B, **320**(2002), 162
- [Str93] J.A. Stroscio, D.T. Pierce, and R.A. Dragoset: *Homoepitaxial Growth of Iron and a Real Space View of Reflection-High-Energy-Electron Diffraction*  
Phys. Rev. Lett, **70**(1993), 3616
- [Tar02] S. Tari, R. Sporken, T. Aoki, D.J. Smith, V. Metlushko, K. AbuEl Rub, and S. Sivananthan: *Growth of Fe/Ge(001) heterostructures by molecular beam epitaxy: interface structure, electronic and magnetic properties*  
J. Vac. Sci. & Tec. B, Microelectronics and Nanometer Structures, **20**(2002), 1586
- [Ter00] J.M. de Teresa, A. Barthélémy, J.P. Contour, and A. Fert: *Manganite-based magnetic tunnel junctions: new ideas on spin-polarised tunneling*  
J.M.M.M., **211**(2000), 160
- [Ter84] J. Tersov: *Schottky Barrier Heights and the Continuum of Gap States*  
Phys. Rev. Lett., **52**(1984), 465

- [Tho57] W. Thomson: *On the electro-dynamic qualities of metals: effects of magnetization on the electric conductivity of nickel and iron*  
Proc. Roy. Soc., **8**(1857), 546
- [Var02] J. Varalda, G.A.P. Ribeiro, W.A. Ortiz, A.J.A. de Oliveira, D.H. Mosca, V.H. Etgens, and M.Eddrief: *Magnetic behavior of Fe(001)/ZnSe(001)/Fe(001) sandwiches grown on ZnSe(001) epilayer on GaAs(001)*  
Physica B, **322**(2002), 312
- [Vaz94] M. Vaziri: *Low-temperature conductivity of epitaxial ZnSe in the impurity band regime*  
Appl. Phys. Lett., **65**(1994), 2568
- [Wal99] P. Walser, M. Hunziker, T. Speck, and M. Landolt: *Heat-induced antiferromagnetic coupling in multilayers with ZnSe spacers*  
Phys. Rev. B, **60** No.6 (1999), 4082
- [Wil96] D.B. Williams and C.B. Carter: *Transmission Electron Electron Microscopy*  
Plenum Press, New York, (1996)
- [Wil99] S. Willkofer: *Präparation mikrostrukturierter Tunnelkontakte und Untersuchung der Transporteigenschaft*  
Diplomarbeit, Universität Regensburg, (1999)
- [Xu95] Y. Xu, Ephron, and M.R. Beasley: *Directed inelastic hopping of electrons through metal-insulator-metal tunnel junctions*  
Phys. Rev. B, **52**(1995), 2843
- [Xu02] Q.Y. Xu, Y. Wang, Z. Zhang, B. You, J. Du, and A. Hu: *Characterization of the asymmetrical barrier potentials in CoFe/AlO<sub>x</sub>/Co magnetic tunneling junction by electron holography*  
J. M. M. M., **263**(2003), 83
- [Yua04] S. Yuasa, T. Nagahama, A. Fukushima, Y. Suzuki, and K. Ando: *Giant room-temperature magnetoresistance in single-crystal Fe/MgO/Fe magnetic tunnel junctions*  
Nat. Mater., **3**(2004), 868
- [Zan04] A. Zankl: *Herstellung und Untersuchung ultradünner magnetischer Py/FeMn-Zweilagenschichten mit Exchange-Bias*  
Diplomarbeit, Universität Regensburg, (2004)
- [Zav00] F. Zavaliche, W. Wulfhekkel, H. Xu, and J. Kirschner: *Suppression of silicide formation in Fe films grown on Si(001)*  
J. Appl. Phys., **88**(2000), 5289
- [Zen04] M. Zenger, J. Moser, W. Wegscheider, D. Weiss, and T. Dietl: *High-field magnetoresistance of Fe/GaAs/Fe tunnel junctions*  
J. Appl. Phys., **96**(2004), 2400

- [Zöl97] M. Zölfl, M. Brockmann, M. Köhler, S. Kreuzer, T. Schweinböck, S. Miethaner, F. Bensch, and G. Bayreuther: *Magnetic films epitaxially grown on semiconductors* J. M. M. M., **175**(1997), 16
- [Zöl01] M. Zölfl: *Eisen auf Galliumarsenid: Epitaxie, Magnetismus und Transport* Dissertation, Universität Regensburg, (2001)

# Danksagung

An erster Stelle gilt mein Dank dem Betreuer dieser Arbeit **Prof. Dr. Günther Bayreuther**, der nie um einen Ratschlag verlegen war und durch seine wissenschaftliche Kompetenz wesentlich am Gelingen dieser Arbeit beteiligt war. Seine bewundernswerte Fähigkeit unter enormen Zeitdruck die besten Drittmittelanträge zu verfassen, war Grundlage für diese und zahlreiche andere Arbeiten in der Arbeitsgruppe.

**Prof. Dr. Horst Hoffmann** und **Prof. Dr. Christian Back** danke ich für die Möglichkeit, die gesamte Infrastruktur des Lehrstuhls nutzen zu können.

Ebenso danke ich **Prof. Dr. Dieter Weiss** und seinen Mitarbeitern für die Möglichkeit im Reinraum arbeiten zu dürfen und für die bereitwillige Unterstützung bei lithografischen Problemen. Genauso danke ich **Prof. Dr. Werner Wegscheider** und insbesondere **Tobias Leeb** für die Möglichkeit die ZnSe-MBE-Anlage nutzen zu dürfen.

Ich danke der TEM-Gruppe von **Prof. Dr. Joe Zweck**: **Renate Fischer**, **Michael Binder**, **Melanie Blomenhofer**, **Olga Ganicheva**, **Karl Engl** und **Martin Heumann**, die durch die Anfertigung zahlreicher Querschnittspräparate Licht in das Kristallwachstum gebracht haben.

**Dr. Johann Vancea** danke ich für die Anfertigung der Auger-Tiefenprofilanalysen.

**Dr. Florian Steinbauer** danke ich für die Kerr-Mikroskop-Aufnahmen und die langjährige EDV-Unterstützung, genauso **Matthias Sperl** und **Dr. Wolfgang Kipferl** für die SQUID-Messungen.

**Friedl Dorfner** danke ich für Röntgenfluoreszenzmessungen und seine aufmunternden und gleichsam gefürchteten Sprüche.

**Christa Mayer** gilt mein Dank für die Unterstützung bei bürokratischen Problemen.

Besonders danke ich der Hardware-Abteilung am Lehrstuhl: **Tobias Stöckl**, **Dieter Schierl**, **Rainer Stemp** und **Günther Rödl** für ihre Hilfe beim Bau elektronischer und mechanischer Bauteile aller Art.

Meinen Lehrmeistern **Dr. Michael Zölfl**, **Dr. Frank Bensch** und **Dr. Rupert Moosbühler** danke ich für die Vermittlung ihrer profunden Vakuumerfahrungen, ohne die der reibungslose Betrieb der MBE-Anlagen nicht möglich gewesen wäre.

Meinen Zimmerkollegen **Matthias Sperl** und **Philipp Kottisek** danke ich, da sie nicht nur mich, sondern auch meine Musikbelästigungen ertragen haben und wertvolle Diskussionspartner und Zuhörer waren.

Den Mitgliedern des Lehrstuhls Hoffmann/Back und besonders den Mitgliedern der Arbeitsgruppe Bayreuther gebührt mein Dank für die vorbildliche Hilfsbereitschaft. Besonders angesprochen sind dabei diejenigen Lehrstuhlmitglieder, die mich bei den zahlreichen und zum Teil nächtlichen „Schleusaktionen“ tatkräftig unterstützt haben.

Zuletzt gilt mein Dank noch den ehrenamtlichen **Getränkewärtern** und dem **Lustrat**, als Hüter der von vielen unterschätzten gemütlichen Atmosphäre am Lehrstuhl Hoffmann/Back. Dieser traditionsreichen Institution habe ich nicht nur hochinformativen Sitzungen zu verdanken, sie war für mich auch eine zukunftsweisende Einrichtung.