

## Bachelorarbeit

# Nanostrukturierung CoFeB/MgO/CoFeB-basierter Tunnelkontakte

## Nanopatterning of CoFeB/MgO/CoFeB-based tunneljunctions

angefertigt von

**Johannes Christian Leutenantsmeyer**

aus Nordhorn

am I. Physikalischen Institut - Tieftemperaturphysik

**Bearbeitungszeit:** 2. Mai 2011 bis 8. August 2011

**Betreuer:** Marvin Walter

**Erstgutachter:** Prof. Dr. Markus Münzenberg

**Zweitgutachter:** Prof. Dr. Vasily Moshnyaga



# Inhaltsverzeichnis

<b>1. Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2. Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1. Quantenmechanisches Tunneln . . . . .	3
2.2. Der Tunnelmagnetowiderstand . . . . .	5
2.3. Kohärentes Tunneln . . . . .	8
2.4. Spin Transfer Torque . . . . .	10
<b>3. Experimentelle Methoden</b>	<b>13</b>
3.1. Probenprozessierung . . . . .	13
3.1.1. Präparation im Ultrahochvakuum . . . . .	13
3.1.2. Strukturierung . . . . .	15
3.1.3. Bondpadstrukturierung . . . . .	18
3.2. Lithographie . . . . .	20
3.2.1. Optische Lithographie . . . . .	20
3.2.2. Elektronenstrahlithographie . . . . .	20
3.2.3. Parameter der Elektronenstrahlithographie . . . . .	21
3.3. Charakterisierung der Proben . . . . .	29
3.3.1. Probestation . . . . .	29
3.3.2. Wire-Bonder . . . . .	29
<b>4. Ergebnisse und Diskussion</b>	<b>31</b>
4.1. Belichtungs- und Entwicklungsparameter . . . . .	31
4.2. Dicke der Siliziumoxid-Schicht . . . . .	36
4.3. Bondpadprozessierung . . . . .	39
4.4. MTJ-Strukturierung durch Elektronenstrahlithographie . . . . .	41
4.5. Schaltverhalten . . . . .	42
<b>5. Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>47</b>

<b>A. Anhang</b>	<b>49</b>
A.1. Positionslisten zur Elektronenstrahlolithographie . . . . .	49
A.2. Kurzanleitung Probenprozessierung . . . . .	50
A.3. Kurzanleitung Elektronenstrahlolithographie . . . . .	52
A.3.1. Schreibfeldkalibrierung . . . . .	53
A.3.2. Justage des UV-Koordinatensystems . . . . .	53
A.4. Probenübersicht . . . . .	54
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>59</b>

# 1. Einleitung

## Motivation

Diese Arbeit befasst sich mit der Nanostrukturierung magnetischer Tunnelkontakte. Magnetische Tunnelkontakte (*Magnetic Tunneljunctions*, MTJs) sind besonders für den in ihnen auftretenden magnetfeldabhängigen Widerstand (*Tunnelmagnetowiderstand*, TMR) interessant. Sie bestehen aus zwei spinpolarisierten ferromagnetischen Elektroden, die durch eine wenige Nanometer dünne Isolatorschicht getrennt sind. Im Allgemeinen besitzt eine MTJ darüber hinaus einen Buffer- und einen Caplayer, welche den Effekt optimieren. Aufgrund der geringen Barrierendicke sind Elektronen in der Lage, durch die Barriere hindurch in die zweite Elektrode zu tunneln. Der Tunnelstrom ist dabei von der relativen Magnetisierung der Elektroden zueinander abhängig, sodass die Zustände antiparallel (*hoher Widerstand*) und parallel (*geringer Widerstand*) unterschieden werden können.

Dieser Effekt wurde 1975 von Michel Jullière in Fe/Ge/Co-Schichtsystemen an der Universität Rennes entdeckt. Der Widerstandsunterschied beider Zustände betrug damals bei 4,2 K bis zu 14% [1]. Erst 1994 wurden ähnlich große TMR-Werte in CoFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Co-MTJs auch unter Raumtemperatur gemessen [2]. Derzeit liegt der höchste gemessene Tunnelmagnetowiderstand in CoFeB/MgO/CoFeB-Tunnelkontakten bei etwa 600% bei Raumtemperatur und über 1000% bei 4 K [3].

Der TMR-Effekt ist ein Teil des *Spinelektronik* genannten Forschungsfeldes. In der herkömmlichen Elektronik wird lediglich die Ladung des Elektrons verwendet. In der Spinelektronik wird weiterhin der Spin des Elektrons zur Informationsspeicherung genutzt. Die erste weit verbreitete Anwendung ist der 1988 von Albert Fert und Peter Grünberg entdeckten *Giant Magnetoresistance* (GMR). Dieser Effekt ermöglichte es, kleinere magnetische Domänen auszulesen, wodurch die Speicherkapazität in Festplatten drastisch gesteigert werden konnte. Für diese Entdeckung wurden Fert und Grünberg 2007 mit dem Physik-Nobelpreis geehrt [4, 5].

Eine ähnliche große Verbreitung wird in den nächsten Jahren der *magnetische Ar-*

## 1. Einleitung

*beitsspeicher* (MRAM) erreichen. Der MRAM basiert auf dem Tunnelmagnetowiderstand. Einzelne MTJs fungieren als Speicherbit und werden parallel oder antiparallel magnetisiert. Neben einer hohen möglichen Speicherdichte bieten sie mit *Nichtvolatilität* (Informationserhalt erfordert keine Spannungsversorgung), unbegrenzter Auslesbarkeit, schnellen Zugriffszeiten und geringem Energieverbrauch weitere Vorteile [6].

Ziel ist es, die Tunnelkontakte möglichst klein zu strukturieren. Kleine Strukturen bedeuten für die Speicheranwendung hohe Speicherdichten. Des Weiteren treten auf kleinen Längenskalen interessante Effekte wie beispielsweise das *Spin-torque*-Schalten auf. Letzteres erfordert Strukturgrößen von wenigen hundert Nanometern. Für derartige Strukturgrößen scheidet die bisher verwendete optische Lithographie aufgrund der zu großen Wellenlänge aus. Eine Alternative stellt die Elektronenstrahl-lithographie dar. Sie ermöglicht Strukturgrößen deutlich unterhalb 100 nm sowie die Strukturierung beliebig geformter Tunnelkontakte. Durch die Formanisotropie wird im Tunnelkontakt eine magnetisch harte und weiche Achse vorgegeben, welche wiederum das Schaltverhalten beeinflusst.

## Ziele

Primäres Ziel dieser Arbeit ist es, einen Prozess zu erarbeiten, welcher die Kontaktierung per Elektronenstrahlolithographie strukturierter Tunnelkontakte ermöglicht. Die kleinsten Strukturgrößen sollten hierbei unterhalb eines  $\mu\text{m}$  liegen. Weiterhin soll der Prozess die Untersuchung des Schaltverhaltens verschiedener Kontaktgeometrien erlauben.

## Gliederung

Im folgenden Kapitel 2 wird auf die Theorie eingegangen, welche dem Tunnelmagnetowiderstand zugrunde liegt. Abschnitt 3 befasst sich mit den experimentellen Methoden, die zur Präparation der Proben verwendet werden. Kapitel 4 stellt die Vorgehensweise und erzielten Ergebnisse dar. In Abschnitt 5 werden die gefundenen Ergebnisse zusammengefasst und ein Ausblick auf weitere Arbeit gegeben.

Die Kurzanleitungen und die Datenlisten zur Elektronenstrahlolithographie befinden sich im Anhang A.

## 2. Grundlagen

In diesem Kapitel wird auf die theoretischen Grundlagen eingegangen, die für das Verständnis der Arbeit notwendig sind. Zunächst wird mit dem quantenmechanischen Tunneln die Grundlage des TMR-Effektes beschrieben. Anschließend folgen die Vorstellung des TMR-Effektes sowie des Mechanismus des kohärenten Tunnelns. Abschließend wird mit dem Effekt des Spin-Transfer-Torque eine Motivation zur Herunterskalierung magnetischer Tunnelkontakte gegeben.

### 2.1. Quantenmechanisches Tunneln

Quantenmechanisches Tunneln liefert die Grundlage für den Tunnelmagnetowiderstand. In diesem Abschnitt wird daher aufgezeigt, dass es einem Elektron möglich ist, durch Tunneln eine Potentialbarriere zu überwinden. Hierbei wird nach [7] vorgegangen.

Elektronen lassen sich nach de Broglie als Materiewellen beschreiben. Diese müssen die Schrödingergleichung erfüllen. Für die Gebiete I (vor der Barriere,  $x < a$ ), II (in der Barriere,  $a < x < b$ ) und III (hinter der Barriere,  $x > b$ ) lassen sich die Wellenfunktionen als Linearkombination zweier reeller linear unabhängiger Funktionen darstellen:

$$\text{I : } \Psi_E(x) = c_+^{\text{I}} \cos(k_E x) + c_-^{\text{I}} \sin(k_E x) \quad (2.1)$$

$$\text{II : } \Psi_E(x) = c_+^{\text{II}} \Psi_{E+}^{\text{II}}(x) + c_-^{\text{II}} \Psi_{E-}^{\text{II}}(x) \quad (2.2)$$

$$\text{III : } \Psi_E(x) = c_+^{\text{III}} \cos(k_E x) + c_-^{\text{III}} \sin(k_E x) \quad (2.3)$$

Dabei bezeichnet  $k_E = \sqrt{2mE}/\hbar$ . Die Anschlussbedingung für die  $\Psi_E$  sowie deren

## 2. Grundlagen

Ableitungen  $\Psi'_E$  lassen sich an den Punkten  $x = a$  und  $x = b$  als Matrix darstellen:

$$\underbrace{\begin{pmatrix} \cos(k_E a) & \sin(k_E a) \\ -k_E \sin(k_E a) & k_E \cos(k_E a) \end{pmatrix}}_{A(a)} \underbrace{\begin{pmatrix} c_+^I \\ c_-^I \end{pmatrix}}_{c^I} = \underbrace{\begin{pmatrix} \Psi_{E+}^{II}(a) & \Psi_{E-}^{II}(a) \\ \Psi_{E+}'^{II}(a) & \Psi_{E-}'^{II}(a) \end{pmatrix}}_{B(a)} \underbrace{\begin{pmatrix} c_+^{II} \\ c_-^{II} \end{pmatrix}}_{c^{II}} \quad (2.4)$$

$$\underbrace{\begin{pmatrix} \cos(k_E b) & \sin(k_E b) \\ -k_E \sin(k_E b) & k_E \cos(k_E b) \end{pmatrix}}_{A(b)} \underbrace{\begin{pmatrix} c_+^{III} \\ c_-^{III} \end{pmatrix}}_{c^{III}} = \underbrace{\begin{pmatrix} \Psi_{E+}^{II}(b) & \Psi_{E-}^{II}(b) \\ \Psi_{E+}'^{II}(b) & \Psi_{E-}'^{II}(b) \end{pmatrix}}_{B(b)} \underbrace{\begin{pmatrix} c_+^{II} \\ c_-^{II} \end{pmatrix}}_{c^{II}} \quad (2.5)$$

$$A(a)c^I = B(a)c^{II} \quad (2.6)$$

$$A(b)c^{III} = B(b)c^{II} \quad (2.7)$$

Multipliziert man an Gleichung 2.7 die inverse Matrix  $A^{-1}(b)$  und ersetzt  $c^{II}$  durch Gleichung 2.6, so erhält man den Zusammenhang zwischen  $c^{III}$  und  $c^I$  durch die Transfermatrix  $M$ :

$$c^{III} = \underbrace{A^{-1}(b)B(b)B^{-1}(a)A(a)}_M c^I \quad (2.8)$$

Da die Wronski-Determinanten  $\det A(x)$  und  $\det B(x)$  unabhängig von  $x$  sind, gilt für  $\det M$ :

$$\det M = \frac{\det B(b)}{\det B(a)} \cdot \frac{\det A(a)}{\det A(b)} = 1 \quad (2.9)$$

Somit existieren für jeden Energiewert  $E > 0$  zwei linear unabhängige Lösungen. Aus der Beziehung 2.8 und 2.9 ergibt sich bereits der Tunneleffekt. Ist  $c^I$  ungleich Null (es läuft eine Welle ein), so ist ebenfalls  $c^{III}$  ungleich Null und es existiert hinter der Barriere eine Welle.

Um das Tunneln zu beschreiben, ist es sinnvoll, den Ansatz so zu wählen, dass vor der Barriere eine einlaufende und eine reflektierte Welle existieren und hinter der Barriere eine transmittierte Welle vorliegt:

$$x < a : \Psi_E(x) = e^{ik_E x} + A e^{-ik_E x} \quad (2.10)$$

$$= (1 + A) \cos(k_E x) + i(1 - A) \sin(k_E x) \quad (2.11)$$

$$x > b : \Psi_E(x) = B e^{ik_E x} = B \cos(k_E x) + iB \sin(k_E x) \quad (2.12)$$



Also lässt sich für  $c^{\text{III}} = M c^{\text{I}}$  schreiben:

$$\begin{pmatrix} B \\ iB \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 + A \\ i(1 - A) \end{pmatrix} \quad (2.13)$$

Aus der Multiplikation mit der inversen Matrix  $M$  ergeben sich die Gleichungen:

$$(1 + A)/B = M_{22} - iM_{12} \quad (2.14)$$

$$(1 - A)/B = M_{11} + iM_{21} \quad (2.15)$$

Durch Addition und Subtraktion beider Gleichungen erhält man:

$$\frac{1}{B} = \frac{1}{2} (M_{11} + M_{22} + i(M_{21} - M_{12})) = \alpha \quad (2.16)$$

$$\frac{A}{B} = \frac{1}{2} (M_{22} - M_{11} - i(M_{12} + M_{21})) = \beta \quad (2.17)$$

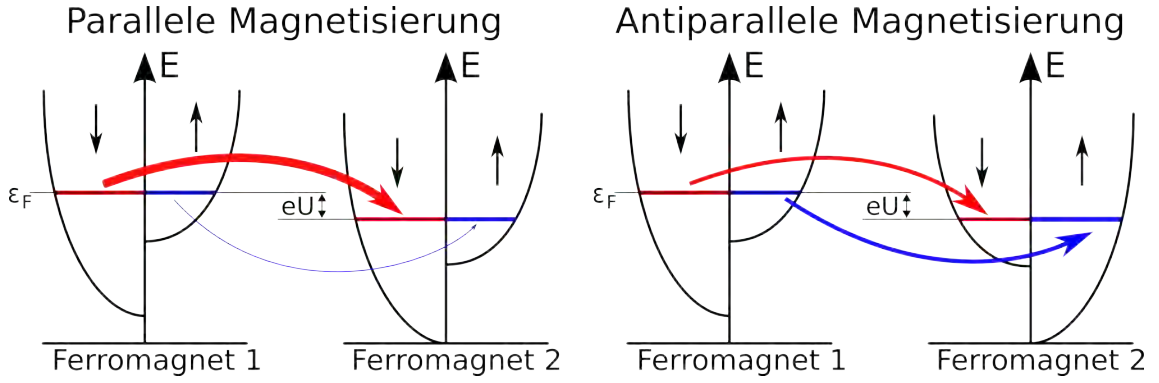
Somit gilt  $B = 1/\alpha$  und  $A = \beta/\alpha$ . Aufgrund von  $\det M = 1$  (Gleichung 2.9) müssen  $\alpha$  und  $\beta$  auch  $|\alpha|^2 - |\beta|^2 = 1$  erfüllen. So kann man  $|A|^2$  mit dem Reflexionskoeffizienten  $R$  und  $|B|^2$  mit dem Transmissionskoeffizienten  $T$  identifizieren. Aus  $|\alpha|^2 - |\beta|^2 = 1$  folgt direkt  $R + T = 1$ . Dies entspricht der Erhaltung der Wahrscheinlichkeitsstromdichte.

## 2.2. Der Tunnelmagnetowiderstand

Die Bänder eines Ferromagneten zeigen eine energetische Aufspaltung je nach Spinrichtung der Elektronen in das Majoritäts- (Spin zeigt in Feldrichtung) und Minoritätsband (Spin zeigt entgegen Feldrichtung). Der Tunnelstrom durch eine Isolatorschicht besitzt eine Spinabhängigkeit. Der Transport wird hierbei maßgeblich von den Elektronen an der Fermikante bestimmt. Beim Tunnelprozess gehen sie, unter Annahme der Spinerhaltung, in das äquivalente Band der zweiten Elektrode über.

Im Zustand paralleler Magnetisierung der Elektroden können Elektronen aus dem Majoritätsband der ersten Elektrode in das Majoritätsband der zweiten Elektrode tunneln. Hierbei stehen den vielen mit Majoritäts Elektronen besetzten Zuständen viele unbesetzte Elektronenzustände im Majoritätsband der zweiten Elektrode zur Verfügung. Der geringeren Zahl an Minoritäts Elektronen der ersten Elektrode stehen in der zweiten Elektrode weniger unbesetzte Zustände entgegen, sodass insgesamt ein hoher Tunnelstrom fließen kann.

## 2. Grundlagen



**Abbildung 2.1.:** Darstellung des TMR-Effektes. Das Majoritätsband ist mit  $\uparrow$ , das Minoritätsband mit  $\downarrow$  gekennzeichnet.

Im Zustand antiparalleler Magnetisierung stehen vielen Minoritätselektronen der ersten Elektrode wenige unbesetzte Zustände in der zweiten Elektrode zur Verfügung. Somit bleibt den Elektronen in den stark besetzten Majoritätszuständen nur das Tunneln in das Minoritätsband. In diesem Fall nimmt der Tunnelstrom ab und der Widerstand des Tunnelkontaktes steigt.

Der Tunnelstrom (bzw. der Widerstand der MTJ) zeigt eine Abhängigkeit von der relativen Magnetisierung der ferromagnetischen Elektroden. Eine Veränderung der relativen Magnetisierung lässt sich durch unterschiedliche Koerzitivfelder beider Schichten realisieren. In Abhängigkeit eines von außen angelegten Feldes durchläuft der Widerstand des Tunnelkontaktes einen Bereich, in welchem dieser maximal wird. Aus der Differenz zwischen dem Zustand hohen Widerstands ( $R_{ap}$ ) und geringen Widerstands ( $R_p$ ) ergibt sich der TMR-Wert nach der Formel:

$$\text{TMR} = \frac{R_{ap} - R_p}{R_p} \quad (2.18)$$

In [1] stellte Michel Jullière bereits ein einfaches Modell zur Beschreibung des TMR-Effektes auf. Hierbei wird nur die Spinpolarisation  $P$  der Elektronen an der Fermikante betrachtet. Diese lässt sich über die Zustandsdichte der Majoritäts- ( $n^\uparrow(\epsilon_F)$ ) und Minoritätselektronen ( $n^\downarrow(\epsilon_F)$ ) berechnen.

$$P = \frac{n^\uparrow(\epsilon_F) - n^\downarrow(\epsilon_F)}{n^\uparrow(\epsilon_F) + n^\downarrow(\epsilon_F)} = 2N - 1 \quad N = \frac{n^\uparrow(\epsilon_F)}{n^\uparrow(\epsilon_F) + n^\downarrow(\epsilon_F)} \quad (2.19)$$

$N$  bzw.  $1 - N$  bezeichnet dabei die Verteilung auf Majoritäts- und Minoritätselektronen. Unter der Annahme, dass ein Umklappen des Spins (*Spinflip*) während des

Tunnelns ausgeschlossen ist [1], lässt sich die Leitfähigkeit zwischen den Elektroden 1 und 2 in Abhängigkeit zur Spinausrichtung beschreiben durch:

$$G_{\uparrow\uparrow} \propto N_1 N_2 + (1 - N_1)(1 - N_2) = \frac{1}{2} (1 - P_1 P_2) \quad (2.20)$$

$$G_{\uparrow\downarrow} \propto N_1(1 - N_2) + N_2(1 - N_1) = \frac{1}{2} (1 + P_1 P_2) \quad (2.21)$$

Hierdurch ergibt sich für den TMR:

$$\text{TMR} = \frac{R_{\text{ap}} - R_{\text{p}}}{R_{\text{p}}} = \frac{G_{\uparrow\downarrow} - G_{\uparrow\uparrow}}{G_{\uparrow\uparrow}} = \frac{2P_1 P_2}{1 - P_1 P_2} \quad (2.22)$$

$$\text{JMR} = \frac{R_{\text{ap}} - R_{\text{p}}}{R_{\text{ap}}} = \frac{G_{\uparrow\downarrow} - G_{\uparrow\uparrow}}{G_{\uparrow\downarrow}} = \frac{2P_1 P_2}{1 + P_1 P_2} \quad (2.23)$$

Analog zum TMR lässt sich der JMR (*junction magnetoresistance*) angeben. Er ist auf den Widerstand im antiparallelen Zustand normiert und erreicht für Elektroden mit vollständiger Spinpolarisation ( $P_1 = P_2 = 1$ ) den Maximalwert 1. Der üblicherweise angegebene TMR strebt in diesem Fall gegen unendlich. Theoretische Modelle sagen hier Werte deutlich jenseits der 1000% vorher. Derzeit liegt der höchste gemessene TMR unter Raumtemperatur bei 604% [3].

Die nach 2.22 errechneten Werte der Spinpolarisationen verschiedener magnetischer Materialien stimmen mit den gemessenen Werten dieser überein [8]. Allerdings vernachlässigt das Jullière-Modell mit dem Einfluss der Tunnelbarriere sowie der Eigenschaften der Grenzflächen entscheidende Parameter.

Jullières Modell basiert auf der Annahme, dass der Tunnelprozess abhängig von der Dichte der Anfangs- und Endzustände ist. Der Transport wäre somit spin-unabhängig, was nur für sehr hohe oder breite Tunnelbarrieren gute Resultate liefert. Ist die Barriere transparent, so kann der Wellenfunktionsüberlapp nicht weiter vernachlässigt werden. Hierzu stellte Slonczewski 1989 seine quantenmechanische Beschreibung des Transports vor [9]. Hierbei tragen die delokalisierten Elektronen der sp-Orbitale am meisten zum Transport bei. Dieses Modell beachtet die Tunnelbarriere, basiert jedoch auf der Annahme freier Elektronen. Die Bänder des Ferromagneten sind dabei um die Austauschspaltung versetzt. Unter der Annahme der Impulserhaltung der Elektronen und Lösung der Schrödingergleichung getrennt nach spin-up und spin-down ergibt sich eine effektive Spinpolarisation abhängig von

## 2. Grundlagen

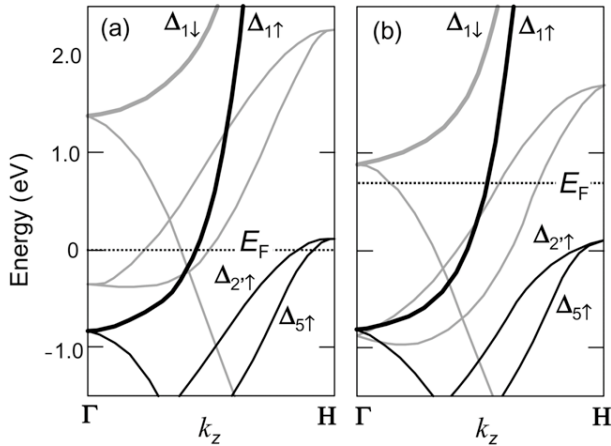
der Barrierenhöhe:

$$P_{\text{eff}} = P \frac{\kappa^2 - k_{\uparrow}k_{\downarrow}}{\kappa^2 + k_{\uparrow}k_{\downarrow}} \quad (2.24)$$

Dabei bezeichnet  $k$  den Fermi-Wellenvektor der Elektronen. Aus der Dämpfungskonstante im Isolator  $\kappa = \sqrt{2mV}/\hbar$  ergibt sich im Grenzfall kleiner Barrieren ein Vorzeichenwechsel der Spinpolarisation. Im Fall dicker Barrieren ergibt sich wieder die von Jullière hergeleitete Formel 2.22. Eine bessere Beschreibung unter Beachtung der effektiven Elektronenmasse in der Barriere führte Bratkovsky in [10] ein.

### 2.3. Kohärentes Tunneln

Als Tunnelbarriere wird in den im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Tunnelkontakten stets MgO verwendet. MgO bietet den Vorteil, dass es eine kristalline Struktur aufweist. Dies ermöglicht es, epitaktische Schichtsysteme aufzubauen. Aufgrund der starken Abhängigkeit der Tunnelleitfähigkeit von der Symmetrie der Blochzustände der Elektroden lässt sich im Gegensatz zu einer amorphen Tunnelbarriere die Symmetrie der Elektronen filtern und somit ein deutlich höherer TMR-Wert erreichen.

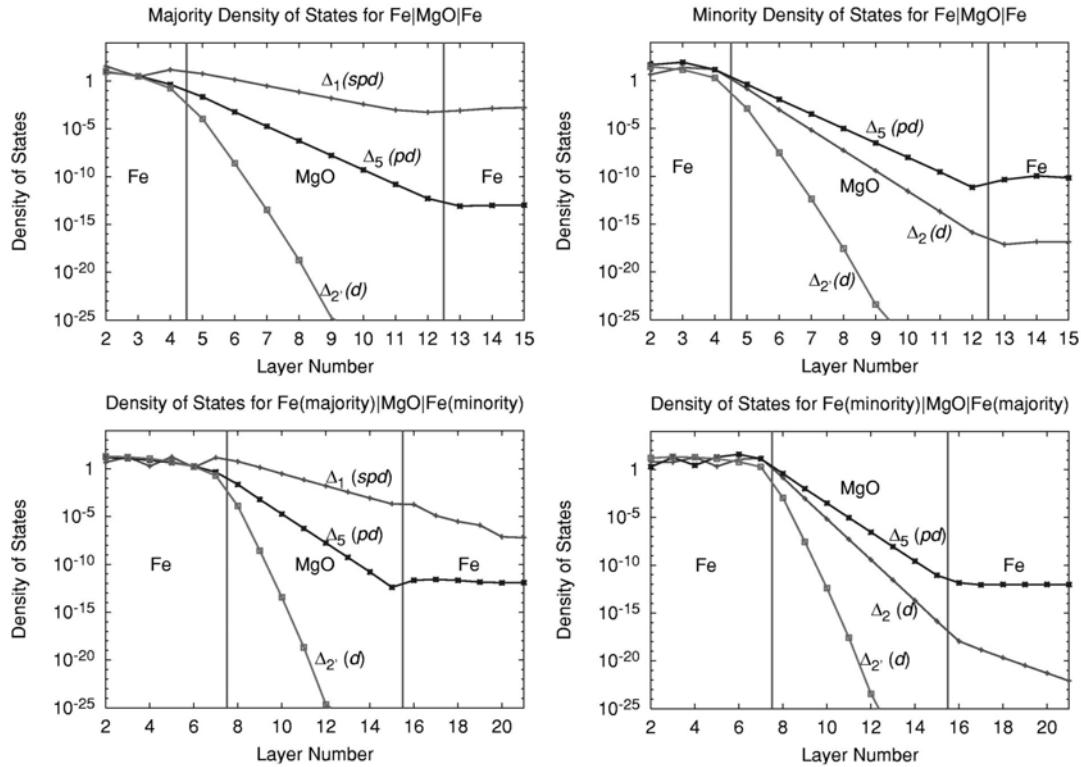


**Abbildung 2.2.:** Bandstruktur von Eisen (links) und Cobalt (rechts). Aus [11].

Zustandsdichten in Fe|MgO|Fe-Systemen [12]. Im parallelen Zustand fällt das  $\Delta'_2$ -Band bereits in der Barriere vollständig ab, das  $\Delta_5$ -Band leistet kaum einen Beitrag zum

Die Bandstrukturen der Ferromagneten Eisen und Kobalt liegen nach Majoritäts- und Minoritätselektronen aufgespalten vor (Abbildung 2.2). Das  $\Delta_1$ -Band liegt an der Fermienergie vollständig spinpolarisiert vor. Falls das  $\Delta_1$ -Band den Ladungstransport durch die Barriere maßgeblich bestimmen würde, so führte dies nach Gleichung 2.22 zu einem hohen TMR-Wert.

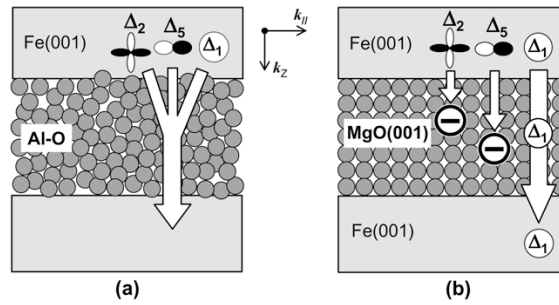
Abbildung 2.3 zeigt die von Butler et al. berechneten Zu-



**Abbildung 2.3.:** Berechneter Verlauf der Zustandsdichten für epitaktisches Fe|MgO|Fe-Schichtsystem. Aus [12].

Tunnelstrom und fällt wie das  $\Delta_2$ -Band bereits nach wenigen Monolagen MgO um mehrere Größenordnungen hinter dem  $\Delta_1$ -Band zurück. Im antiparallelen Zustand existieren für das  $\Delta_1$ -Band keine Zustände im zweiten Ferromagneten und es klingt stark ab. Hier trägt nur das  $\Delta_5$ -Band den Transport durch die Barriere, sodass der Tunnelstrom geringer ist als im parallelen Fall.

Der Unterschied zwischen kohärentem Tunneln (Abbildung 2.4b) und dem Jullière-Modell (Abbildung 2.4a) liegt in der Barriere. Durch die amorphe Aluminiumoxidbarriere zeigt die Tunnelleitfähigkeit keine bandspezifischen Unterschiede. Demgegenüber zeigt kohärentes Tunneln durch eine kristalline MgO-Barriere eine starke Abhängigkeit der Leitfähigkeit von der Orbitalsymmetrie. Hier koppeln die Blochzustände mit den Abklingzuständen in der Barriere, falls gleiche Symmetrie vorliegt. Die im CoFe vollständig spinpolarisierten  $\Delta_1$ -Zustände bestimmen die Leitfähigkeit. Die Kombination aus CoFe und MgO führt somit zu sehr großen TMR-Werten.

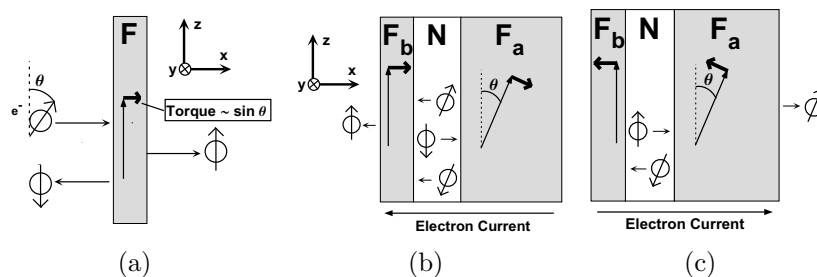


**Abbildung 2.4.:** (a) Inkohärentes Tunneln durch eine amorphe Aluminiumoxidbarriere. (b) Kohärentes Tunneln durch eine kristalline MgO-Barriere in einem epitaktischen Schichtsystem. Aus [11].

## 2.4. Spin Transfer Torque

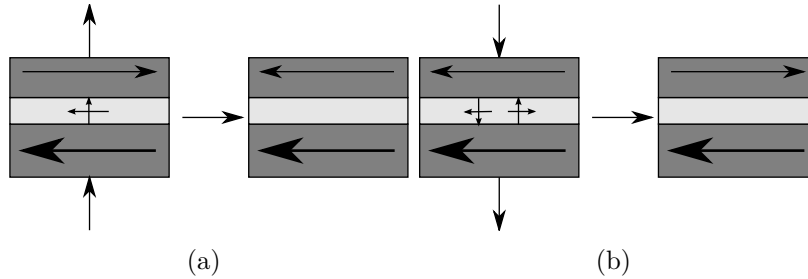
1996 konnten Berger und Slonczewski zeigen, dass ein durch einen Ferromagneten fließender spinpolarisierter Strom zu einem Drehmoment führt, welches auf die Magnetisierung wirkt. Spinpolarisierter Strom ändert beim Übergang in unterschiedlich magnetisierte Gebiete seine Polarisationsrichtung und überträgt aufgrund der Drehimpulserhaltung ein Drehmoment an die Magnetisierung [13, 14].

Durch diesen Effekt ist es möglich, die Magnetisierung eines Tunnelkontaktes durch einen schwachen Strompuls auszulesen. Ein stärkerer Puls würde hingegen die Magnetisierung umschalten. Dies ist insbesondere für die Anwendung im magnetischen Arbeitsspeicher (MRAM) interessant. Mit der Größe der Tunnelkontakte bleibt das zum Schalten benötigte Feld nahezu konstant. Kleinere Strukturen würden daher genauso große Leiterbahnen benötigen, um das Schaltfeld zu erzeugen. Mittels Spin-Torque besteht nun die Möglichkeit, auf diese Leiterbahnen zu verzichten. Weiterhin ist das spinpolarisierte Schalten mittels Spin-Torque erheblich energieeffizienter als das bisher verbreitete Feldschalten [15].



**Abbildung 2.5.:** Spin-Torque-Schaltvorgang. Aus: [16].

Abbildung 2.5a zeigt die Reflexion und Transmission spinpolarisierter Elektronen an einer magnetischen Schicht der Magnetisierungsrichtung  $F$ . Die zur Magnetisierungsrichtung senkrechte Komponente wird von der Schicht absorbiert, wodurch ein Drehmoment proportional zu  $\sin(\theta)$  auf die Magnetisierung wirkt.



**Abbildung 2.6.:** Spin-Torque-Schalten im Fall antiparalleler (a) und paralleler Ausgangsmagnetisierung (b). Nach: [15].

Abbildung 2.6a zeigt den Schaltvorgang im Fall antiparalleler Magnetisierung. Um in den Zustand paralleler Magnetisierung zu gelangen, wird spinpolarisierter Strom durch den Tunnelkontakt geleitet. In der ungepinnten Schicht bewirkt das Drehmoment das Umschalten der Magnetisierung. Im Fall paralleler Magnetisierung fließt der Spinstrom in die entgegengesetzte Richtung. An der gepinnten Schicht wird ein Teil reflektiert und transportiert das magnetische Moment dieser Schicht zur variablen Schicht, welche dadurch geschaltet wird.

Da die wirkenden Kräfte extrem klein sind, funktioniert dieses Verfahren nur auf kleinen Skalen. Die Strukturgröße darf dafür höchstens im Bereich einiger hundert Nanometer liegen [15].

## 2. Grundlagen



# 3. Experimentelle Methoden

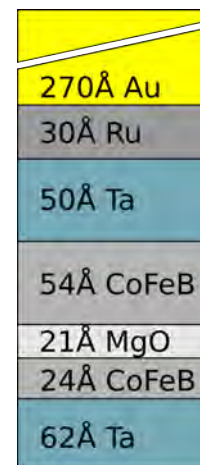
## 3.1. Probenprozessierung

In diesem Kapitel werden die Schritte, die zur Herstellung einer Probe durchlaufen werden, skizziert. Zunächst werden die vollflächige Präparation der Substrate sowie die anschließende Probenstrukturierung und Charakterisierung beschrieben. Der erarbeitete Prozess zur Strukturierung mit relativ großen Kontaktflächen wird in Abschnitt 3.1.3, die Lithographietechnik sowie deren Parameter werden in Abschnitt 3.2 vorgestellt.

### 3.1.1. Präparation im Ultrahochvakuum

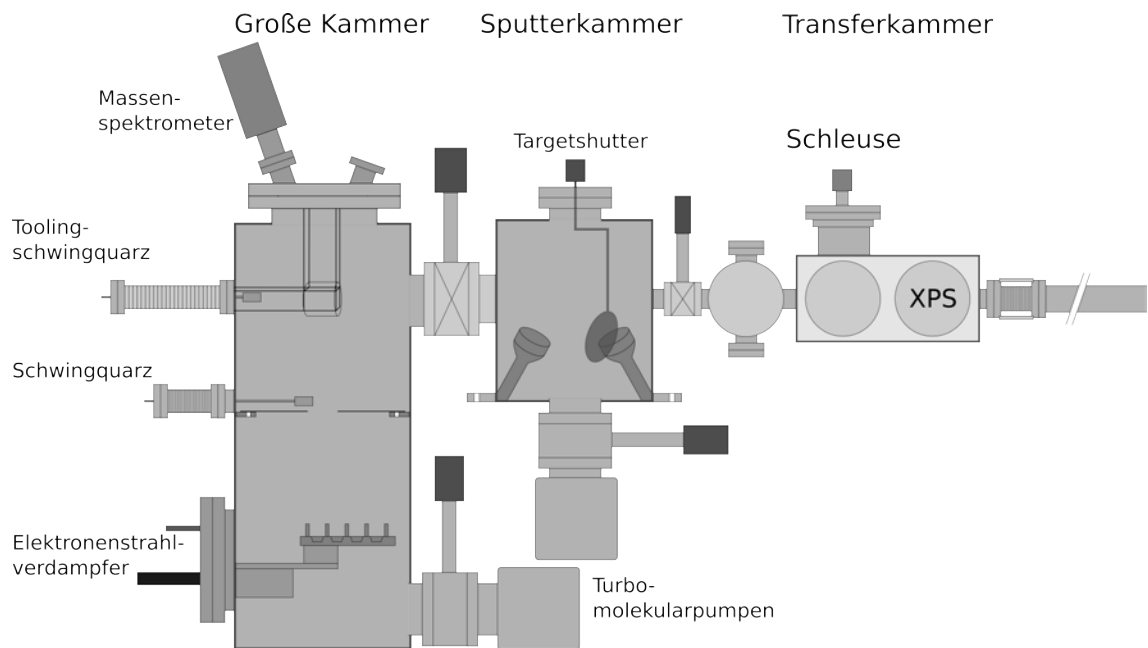
Die Präparation der Schichtsysteme findet im Ultrahochvakuum, also unterhalb von  $10^{-7}$  mbar, statt. Der geringe Restgasanteil ermöglicht es, extrem reine Schichten herzustellen, die für den TMR von enormer Wichtigkeit sind. Die UHV-Kammer besitzt in den Depositionskammern einen Basisdruck unterhalb von  $10^{-9}$  mbar. Dies bedeutet, dass nach der kinetischen Gastheorie für die Deposition einer Monolage des Restgases statistisch gesehen 6 Stunden vergehen müssten. Bei einem Basisdruck von  $10^{-8}$  mbar würde hierfür eine Stunde vergehen. Die Präparation der Substrate dauert hingegen nur etwa eine Stunde [17].

Auf die gereinigten Siliziumoxidsubstrate wird in der UHV-Präparation (Abbildung 3.2) das Schichtsystem in Abbildung 3.1 bis zur oberen Rutheniumschicht aufgetragen. Anschließend wird auf der Probe eine 27 nm Goldschicht deponiert. Diese dient während der Charakterisierung als Kontaktschicht und verhindert eine Oxidation der



**Abbildung 3.1.:** Schematischer Aufbau des untersuchten Schichtsystems.

### 3. Experimentelle Methoden



**Abbildung 3.2.:** Schematischer Aufbau der UHV-Anlage. Die große Kammer ermöglicht die Deposition per Elektronenstrahlverdampfen sowie die Auslagerung im heiz- und kühlbaren Probenhalter. Die Sputterkammer enthält ein CoFeB sowie ein Tantal-Target für die Sputterdeposition. An die Transferkammer ist zur Untersuchung der Schichten eine XPS-Kammer angeschlossen.

unterliegenden Schichten. Da sich das Verdampfen von Gold negativ auf den Kammerdruck auswirkt und Gold aufgrund der starken Diffusion während des Auslagerns erst nach diesem Schritt aufgetragen werden kann, findet die Deposition in der Aufdampfanlage Univex 350 im Reinraum statt.

Für die Deposition stehen derzeit die Sputterkammer und die Große Kammer zur Verfügung. In der Sputterkammer kann aus einem CoFeB-Target und einem Tantal-Target gewählt werden. Die Deposition findet durch gezündetes Argonplasma statt. In der Großen Kammer befinden sich zwei Elektronenstrahlverdampfer der Firma Thermionics. Sie bieten je vier Verdampferquellen zur Deposition verschiedener Materialien.

Die Dicken der aufgedampften Materialien werden durch Schwingquarze in beiden Kammern überwacht. Durch die Deposition lagert sich Material auf dem Schwingquarz ab und ändert dessen Masse und Eigenfrequenz. Dies wird durch die *Deposition Controller* registriert, sodass mit den Materialparametern eine Rate angegeben werden kann, die auf dem Schwingquarz auftrifft. Da dies nicht der Rate an der Probenposition entspricht, muss die Schwingquarzmessung auf die Rate an der

Probenposition kalibriert werden (*Tooling*). In der Großen Kammer ist dazu ein zweiter Schwingquarz eingebaut, der an die Probenposition gefahren werden kann. Aus dem Quotienten beider Raten lässt sich der Toolingfaktor errechnen. In der Sputterkammer erfolgt die Kalibrierung per Profilometermessung. Auf Substrate mit überklebten Stellen wird bei Toolingfaktor 100% eine bestimmte Schichtdicke aufgedampft. Aus der Kantenmessung im Profilometer lässt sich anschließend die tatsächlich aufgetragene Schichtdicke bestimmen und anschließend der Toolingfaktor errechnen [18].

Nachdem das Schichtsystem auf das Substrat aufgetragen wurde, zeigen die CoFeB-Elektroden noch eine amorphe Struktur. Eine auf amorphem CoFeB aufgetragene MgO-Schicht liegt in den ersten vier Monolagen amorph vor und kristallisiert ab der fünften Lage bevorzugt in (001) Richtung [11]. Durch das Auslagern (*annealing*) im Hochvakuum ( $10^{-6}$  mbar) kristallisiert ab einer Temperatur von etwa 250°C das amorphe CoFeB in einem bcc-Gitter. Hierzu dient das MgO als Vorlage [19, 11].

Die Annealingkammer bietet weiterhin die Möglichkeit, während des Auslagerns ein externes Magnetfeld von bis zu 500 mT anzulegen, um die magnetischen Eigenschaften der ferromagnetischen Schichten beeinflussen zu können. Die Kristallisation der Elektroden ist entscheidend für das kohärente Tunneln, da andernfalls kein epitaktisches Schichtsystem entstehen würde. Der Einfluss der Auslagerungstemperatur und -dauer auf den TMR wurde ausführlich in der Diplomarbeit von Vladyslav Zbarsky [20] untersucht.

#### 3.1.2. Strukturierung

Ziel der Strukturierung ist es, aus einem vollflächig aufgedampften Schichtstapel viele kleine Tunnelkontakte zu erzeugen.

##### **Auftragen des Lackes**

Im ersten Schritt wird der Lack auf das Substrat aufgetragen. Zunächst wird die Probe in Aceton und Propanol gereinigt. Anschließend wird die Probe für zwei Minuten auf der Heizplatte gebacken, um Lösungsmittelreste zu verdampfen. Der Lack wird per Pipette auf die Probe aufgetragen und im Spincoater geschleudert, bis die gewünschte Lackdicke erreicht ist. Zur optischen Belichtung steht der Lack AR-N 4240, zur E-Beam-Lithographie der Lack AR-N 7520.18 des Herstellers Allresist zur Verfügung.

### 3. Experimentelle Methoden

Dieser Schritt entscheidet über die Dicke des entwickelten Lackes. Hieraus folgt direkt die Widerstandsfähigkeit gegenüber dem Argonplasma. Bei der ersten E-Beam-Probe wurden 400 nm augetragen, belichtet und entwickelt. Im Zuge einer weiteren Minimierung der Strukturgröße kann die Lackdicke weiter reduziert und so eine höhere Strukturauflösung erreicht werden.

#### **Belichtung**

Nach dem Auftragen des Lackes wird die Probe für zwei Minuten auf 85°C erhitzt. Dieser Schritt ist für die beiden verwendeten Lacke identisch. Der *Softbake* trocknet die Lackschicht und verdampft die restlichen Lösungsmittel.

Es folgt die Belichtung im REM oder dem Belichter. Für die optische Belichtung steht der Belichter MJB4 des Herstellers Karl Süss zur Verfügung. In den Belichter werden Maske und Probenhalter eingebaut und der Anpressdruck (KFA) zwischen Probe und Maske kalibriert. Anschließend kann der Lack für 5 s mit 30 mW/cm<sup>2</sup> bei 320 nm Wellenlänge belichtet werden.

Für die Belichtung im REM wird die belackte Probe auf dem kalibrierten Lithographiehalter befestigt und etwa hundert Nanometer große Latexkügelchen (*Nanospheres*) aufgetragen. Da am REM kein Gelblicht zur Verfügung steht, sollte hier so schnell wie möglich gearbeitet werden, um den Lack nicht zu lange dem Umgebungslicht auszusetzen. Der Halter wird eingebaut und das REM evakuiert. Anschließend kann auf dem Faraday-Detektor der Strahlstrom gemessen werden. Nun werden das Koordinatensystem gesetzt und die Belichtungsparameter von der Software bestimmt.

#### **Entwicklung**

Beide Lacke werden nach der Belichtung erneut für zwei Minuten ausgeheizt. Dieser Temperprozess bewirkt eine stärkere Vernetzung des Lackes, wodurch die Empfindlichkeit herabgesenkt und die Ätzstabilität erhöht wird.

Anschließend werden die Proben entwickelt und mit destilliertem Wasser gespült. Hierzu wird der Entwickler AR 300-47 verwendet. Für den optischen Lack wird der pure Entwickler verwendet, der E-Beam-Lack wird vor der Entwicklung mit destilliertem Wasser im Verhältnis 4:1 verdünnt. Die Entwicklungszeiten liegen bei 75 s beim AR-N 4240 und 60 s beim AR-N 7520.18.

Zu beachten ist, dass die Entwicklungszeiten und im Falle der Elektronenstrahl-lithographie das Mischungsverhältnis stimmen. Wird der Lack zu lange entwickelt,

so werden auch die belichteten Stellen abgetragen. Für zu kurze Entwicklungszeiten wird der unentwickelte Resist nicht vollständig entfernt. In beiden Fällen kann dies die Strukturierung negativ beeinflussen.

### Argonätzen

Zur Strukturierung steht in der Hochvakuumaufdampfanlage Univex 350 eine inverse Sputterätze zur Verfügung. In das zuvor erzeugte Hochvakuum (etwa  $10^{-5}$  mbar) wird Argon eingelassen, bis der Druck auf  $10^{-2}$  mbar angestiegen ist und das Plasma gezündet werden kann. Analog zur Sputterdeposition wird durch Impulsübertrag des Plasmas die Oberfläche der Probe abgetragen. Für eine umfangreiche Beschreibung ist auf die Diplomarbeit von Kai Ubben [21] zu verweisen.

Material	Ätzrate [nm/min]
MgO	3,08
CoFeB	3,91 (4,39)
Ta (e-beam)	4,42
Ta (sputter)	1,2 (1,42)
Ru	6,78
Pd	7,08
SiO <sub>x</sub>	10,16
Au	12,94
Positiv-Resist	22,08
Negativ-Resist	25,87

**Tabelle 3.1.:** Ätzraten bei 450 W Leistung und 9 sccm Argonfluss. Die eingeklammerten Werte entsprechen den Raten nach dem Annealing. Aus: [20].

Die Strukturierung der Tunnelkontakte muss äußerst präzise erfolgen. Daher müssen vor der Strukturierung die Ätzraten der verschiedenen Materialien ermittelt werden (Tabelle 3.1). Diese Werte lassen sich durch Messung des Höhenprofils zwischen aufgedampften und dabei verdeckten Stellen durch ein Profilometer ermitteln. Insbesondere für die Bondpadstrukturierung muss präzise geätzt werden. Im letzten Ätzschritt muss ausreichend tief geätzt werden, sodass die Siliziumoxidschicht ausreichend stark abgetragen wird und von der unteren Kontaktschicht möglichst viel Material verbleibt. Andernfalls würde dies den Widerstand des Bondpads erhöhen.

Zu beachten ist bei Anwendung der Raten, dass diese aus reinen Materialsichten ermittelt wurden. Die Grenzflächen in realen Tunnelkontakten werden zur Bestimmung der Ätzzeit folglich vernachlässigt. Darüber hinaus erreicht die Genauigkeit

### 3. Experimentelle Methoden

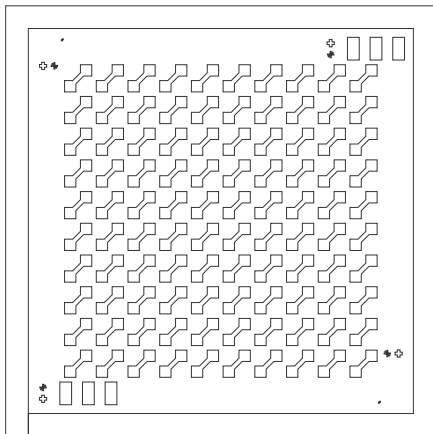
des Profilometers bei wenigen Nanometern ihr Limit. Die Ätzzraten besitzen somit eine Unsicherheit von mindestens  $\pm 10\%$  [21].

Als problematisch kann sich eine Verschiebung dieser Werte erweisen. So zeigte beispielsweise die erste nach längerer Zeit hergestellte Probe, dass nur wenige Tunnelkontakte funktionierten. Hier hatte die Ätzzeit nicht ausgereicht, um in die untere CoFeB-Elektrode hinein zu ätzen. Bei den funktionierenden Kontakten hatte aufgrund des inhomogenen Ätzens die Zeit gereicht. Die länger geätzten Proben zeigten keine derartigen Ausfälle.

#### Liftoff

Nachdem die Proben geätzt sind, muss der verbliebene Lack entfernt werden. Auch in diesem Prozessschritt unterscheiden sich der optische und E-Beam-Lack. Beim AR-N 4240 reicht es, die Substrate für 90 Minuten in Isopropanol im Ultraschallbad auf Stufe 2 zu reinigen. Der AR-N 7520.18 löst sich hierdurch kaum. Daher muss auf den Lackentferner (*Remover*) AR 300-70 zurückgegriffen werden. Um den Lack zu lösen, muss das Ultraschallbad auf  $80^\circ\text{C}$  vorgeheizt werden. Anschließend genügen 60 Minuten im Remover.

#### 3.1.3. Bondpadstrukturierung



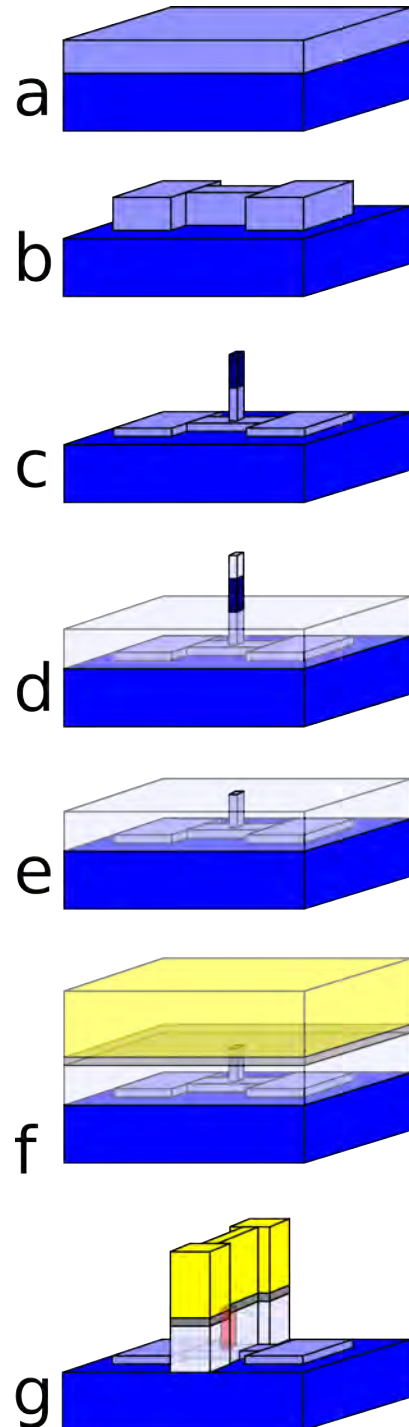
**Abbildung 3.3.:** Schema der Bondpadmaske mit 9,5 mm Kantenlänge.

Die Kontaktierung der strukturierten Tunnelelemente fand bisher mit Goldnadeln statt, welche einen Radius von  $20\ \mu\text{m}$  besitzen. Hierbei ist jedoch das Treffen von  $5 \times 15\ \mu\text{m}^2$  großen Elementen relativ schwierig. Für kleinere Strukturen, wie sie im Rahmen dieser Arbeit erzeugt wurden, ist diese Art der Kontaktierung nicht mehr möglich. Um dennoch die Elemente vermessen zu können, werden sogenannte *Bondpads* strukturiert. Sie bieten zwei  $250 \times 250\ \mu\text{m}^2$  große Kontaktflächen und lassen sich problemlos per *Wire-Bonder* (siehe Abschnitt 3.3.2) mit  $33\ \mu\text{m}$  dicken Drähten kontaktieren.

Die Maske mit den Bondpads ist in Abbildung 3.3 dargestellt.

Da der Strukturierungsprozess äußerst langwierig ist, wurden bisher nur die oberen Kontakte mit Bondpads kontaktiert. Für die kleineren Kontakte hingegen bietet es sich an, auch den unteren Kontakt zu strukturieren. Dies würde es ermöglichen die Dicke der Siliziumoxidschicht von bisher 100 nm zu verringern. Da sich die untere Kontaktfläche drastisch verringert, steigt der Widerstand zwischen oberer und unterer Schicht erheblich an, sodass die Elektronen nicht durch das Siliziumoxid tunneln und durch die MTJ fließen.

Der Strukturierungsprozess besteht aus sieben Schritten. Zunächst wird der untere Kontakt strukturiert. Das vollflächige Schichtsystem (a) wird mit der Bondpadmaske (Abbildung 3.3) belichtet und der Lack entwickelt. Nun wird bis in das Siliziumsubstrat hineingeätzt und der verbleibende Lack entfernt (b). Es folgt die Belichtung der Tunnelkontakte im REM. Die Struktur wird nun bis in den unteren Ferromagneten heruntergeätzt (c). Im Anschluss wird der Lack jedoch nicht gleich entfernt, sondern zunächst der Isolator aufgedampft (d). Nach dem Liftoff werden der verbliebene Lack sowie das darüber aufgedampfte Siliziumoxid gelöst und abgetragen (e). Anschließend werden 5 nm Chrom als Haftschrift und 20 nm Gold als Kontaktschicht aufgetragen (f). Im letzten Schritt wird das obere Bondpad strukturiert. Die Maske wird um 90° gedreht und belichtet. Beim folgenden Ätzen muss nun das untere Bondpad freigelegt werden. Hierbei darf nicht zu tief geätzt werden, da sonst die untere Kontaktfläche fehlt oder nicht ausreichend leitfähig ist. Andererseits darf auch nicht zuviel Isolator material verbleiben, welches später den elektrischen Kontakt unterbinden würde.



**Abbildung 3.4.:** Prozessschema zur Bondpadkontaktierung.

## 3.2. Lithographie

Um kleine Strukturen zu erzeugen, wird auf die Lithographietechnik zurückgegriffen. Sie beruht auf der Verwendung eines photoaktiven Stoffes, welcher nach seiner Belichtung die physikalischen Eigenschaften ändert. Dieser Photolack (engl. *resist*) wird auf die Probe aufgetragen und durch eine *Spincoater* genannte Zentrifuge gleichmäßig auf der Oberfläche verteilt. Anschließend kann die Belichtung erfolgen. Für die Belichtung existieren verschiedene Verfahren. Am weitesten verbreitet und in dieser Arbeit verwendet worden sind die optische Lithographie und die Elektronenstrahlithographie.

Bei den Lacken unterscheidet man zwischen Positiv- und Negativresisten. Negativlacke bilden das Maskenbild auf dem Photolack ab. Die belichteten Bereiche gewinnen an Stabilität, die unbelichteten Gebiete werden im anschließenden Entwicklungsschritt abgetragen. Im Gegensatz dazu verliert Positivlack während der Belichtung die Härte und wird gelöst. Hier bleiben die unbelichteten Bereiche stehen. Zur Strukturierung wird die Probe anschließend im Argonplasma geätzt, bevor im Liftoff-Prozess der verbliebene Resist entfernt wird (Abbildung 3.5).



Abbildung 3.5.: Optische Strukturierung unter Verwendung von Negativlack.

### 3.2.1. Optische Lithographie

Bei der optischen Lithographie wird die Maske mit einer Lichtquelle bestrahlt und der Photolack belichtet. Bei der in dieser Arbeit angewendeten *contact lithography* hat die Strukturmaske direkten Kontakt zur Lackschicht. Die kleinstmögliche Strukturgröße (*minimum feature size*, MFS) ist durch die Wellenlänge  $\lambda$  der emittierten Photonen sowie der Photolackdicke  $d$  gegeben. Sie beträgt  $MFS = \sqrt{d \cdot \lambda}$  [22].

### 3.2.2. Elektronenstrahlithographie

Elektronenstrahlithographie dient der Erzeugung kleiner Strukturen mit Hilfe eines Elektronenstrahls. Aus diesem Grund bietet sich für die Belichtung die Verwendung



eines Rasterelektronenmikroskops an, welches mit Hilfe eines Elektronenstrahls Proben abrastert und aufgrund der gestreuten und im Detektor auftreffenden Elektronen Aussagen über die Beschaffenheit der Probenoberfläche treffen kann. Um mit einem REM Elektronenstrahlolithographie zu betreiben, ist im Allgemeinen lediglich die Erweiterung des REMs um eine Steuereinheit nötig. Die E-Beam Lithographie ermöglicht Strukturen im Nanometerbereich und erfordert keine zuvor hergestellten Strukturierungsmasken.

Für diese Arbeit stand das Rasterelektronenmikroskop *Leo supra 35* des Herstellers Zeiss zur Verfügung. Die Lithographie wurde mit der FIB/Lithographieeinheit *Elphy Plus* der Firma Raith durchgeführt. Die Strukturen wurden in dem CAD-Editor der Elphy-Software erstellt.

Ein großer Nachteil dieser Belichtungsmethode ist die Dauer dieses Belichtungsprozesses. Während für die optische Belichtung nur wenige Sekunden benötigt werden, kann die Belichtung komplexer Strukturen mit Elektronenstrahlolithographie Stunden dauern.

### 3.2.3. Parameter der Elektronenstrahlolithographie

Im Folgenden wird kurz auf die bei der Elektronenstrahlolithographie relevanten Parameter eingegangen. Insbesondere die technische Realisierung kann an dieser Stelle nicht erläutert werden, da ihre Beschreibung den Rahmen dieser Arbeit erheblich sprengen würde. Für eine sehr umfangreiche Beschreibung der Elektronenstrahlolithographie kann an dieser Stelle nur auf das Manuskript von Braun [23] verwiesen werden.

#### Flächendosis (area dose)

Die Flächendosis bezeichnet die Strahldosis, die der Lack zur optimalen Belichtung benötigt. Eine grobe Einschätzung des Dosisfaktors für eine neue Strukturgröße ergibt sich im Abschnitt 4.1 aus der Tabelle 4.1.

Die Dosis  $D$  errechnet sich aus Strahlstrom  $I_B$ , Dwelltime  $T_D$  und der Schrittweite  $s$  nach:

$$D = \frac{I_B T_D}{s^2} \quad (3.1)$$

Aufgrund des Proximity-Effektes zeigen unterschiedliche Strukturgrößen unterschiedliche Belichtungs Dosen. Aufgrund der zurückgestreuten Elektronen wirkt auf

### 3. Experimentelle Methoden

die Umgebung des Lackes eine Dosis, sodass zur vollständigen Belichtung deutlich weniger Intensität benötigt wird. Die relativ großen Justierkreuze benötigen eine Dosis von  $25 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ , die Tunnelkontakte zum Teil deutlich höhere Dosen.

Um gute Ergebnisse zu erzielen, sollte für die Strukturen und Größen zur exakten Bestimmung der Entwicklungsdosis ein Dosistest erfolgen. Hierbei werden die Strukturen mit unterschiedlichen Faktoren geschrieben, entwickelt und anschließend im REM ausgewertet (Abbildung 4.1).

Für die Belichtung von Linien und Punkten existieren die entsprechenden Parameter *linedose* und *dotdose*. In dieser Arbeit wurde stets die Flächenbelichtung verwendet, weshalb beide Parameter nicht weiter aufgeführt werden.

#### **Proximity-Effekt**

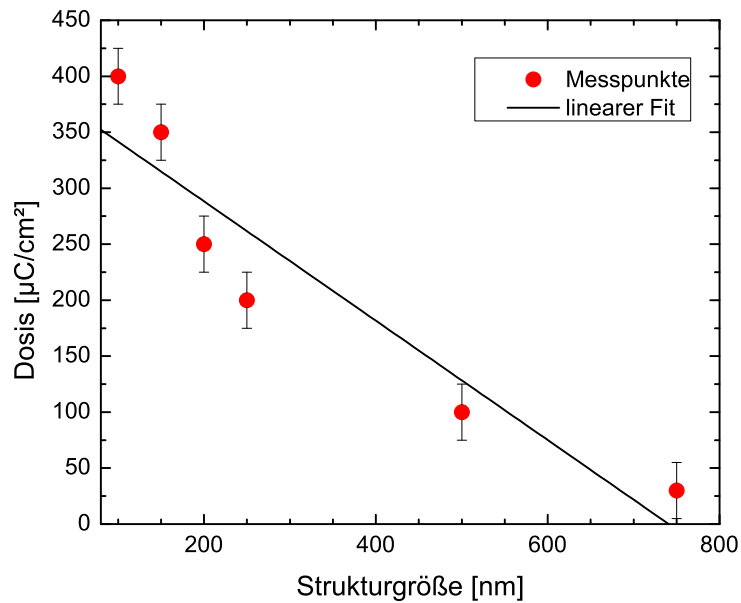
Aufgrund des Proximity Effektes erfordern unterschiedliche Strukturgrößen unterschiedliche Dosen. Trifft der Elektronenstrahl auf die Lackoberfläche, so dringt er in diesen ein und wird in diesem keulenförmig gestreut. Dies hat zur Folge, dass zwei nebeneinander liegende Punkte eine geringere Dosis erfordern, da die gestreuten Elektronen den den Punkt umgebenden Lack ebenfalls belichten.

Dieser Effekt zeigte sich auch in den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Dosistests. Insbesondere beim Übergang zu Strukturen unterhalb von 100 nm waren deutlich höhere Dosen erforderlich (Faktor 10–20) als bei Strukturen oberhalb eines  $\mu\text{m}$ . Ein Vergleich findet sich in Abbildung 3.6.

Die Lithographiesoftware bietet die Möglichkeit, eine Proximity-Korrektur durchzuführen, um die Auswirkungen dieses Effektes herauszurechnen. Die Korrektur wurde jedoch für diese Arbeit nicht benötigt und wird daher an dieser Stelle nicht weiter aufgeführt.

#### **Schrittweite (area stepsize)**

Die Step size ergibt sich aus der gewünschten Dosis sowie dem zuvor gemessenen Strahlstrom. Diese Schrittweite sollte höchstens ein Fünftel der Größe der kleinsten zu belichtenden Struktur betragen. Sie wirkt sich direkt auf die Strahlgeschwindigkeit aus. Falls die Schrittweite zu groß gewählt wurde, entsteht keine homogene Lackoberfläche und es können sich wie in Abbildung 3.7 Lackspitzen bilden, die die zugrunde liegenden Schichten während des Ätzens nicht wie gewünscht schützen.



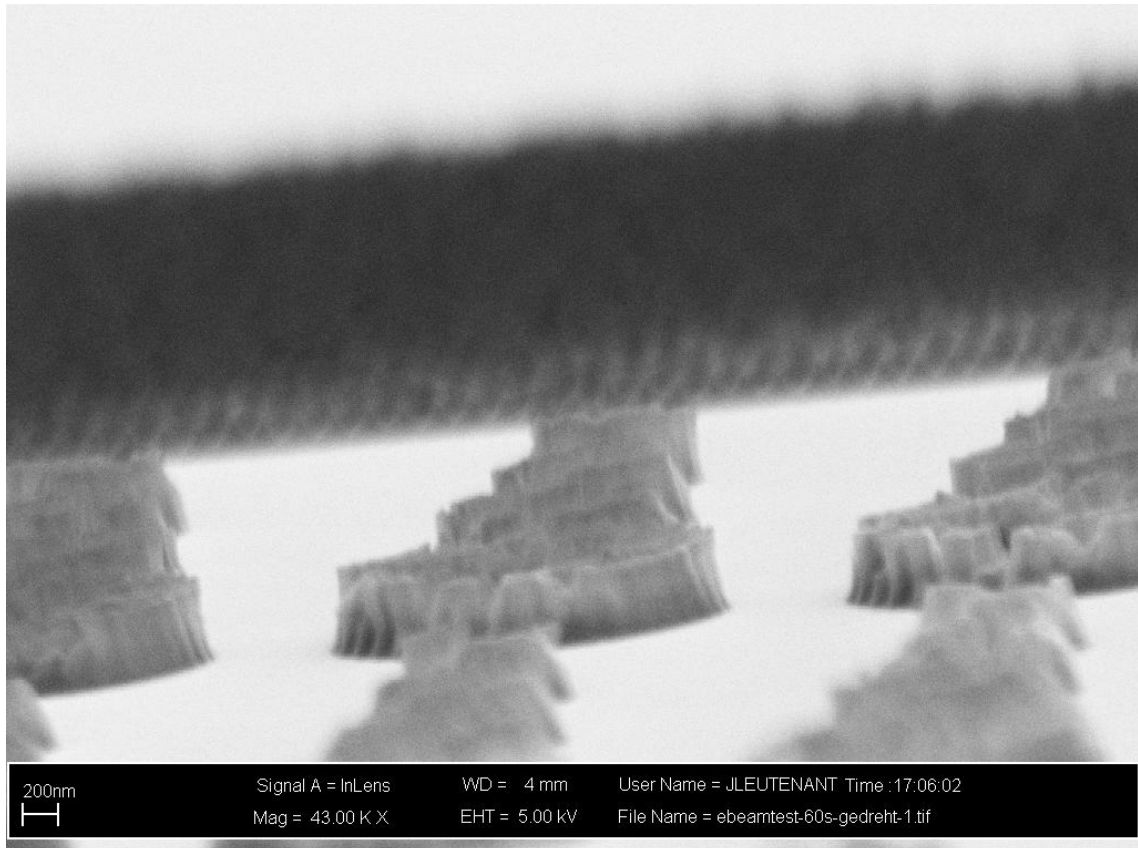
**Abbildung 3.6.:** Ermittelte Dosisfaktoren für verschiedene Strukturgrößen. Aufgrund des Proximity-Effektes sind für kleine Strukturen deutlich höhere Dosen erforderlich.

### Strahlgeschwindigkeit (beamspeed)

Eine zu große Geschwindigkeit des Elektronenstrahls kann unvollständig belichtete Strukturen verursachen. Diese wird nicht durch die Lithographieeinheit, sondern durch das REM begrenzt. In der Lithographiesoftware stellt es kein Problem dar, Geschwindigkeiten bis zu 40 mm/s einzustellen. Das angeschlossene REM (*Leo supra 35*) ist jedoch nur in der Lage, Geschwindigkeiten bis zu etwa 5 mm/s verlässlich zu schreiben. Im Falle einer größeren Geschwindigkeit ist das REM nicht mehr in der Lage, den Strahl schnell genug zu lenken, sodass sich in der belichteten Struktur Lücken finden. Die Strahlgeschwindigkeit hängt ebenfalls von der Größe des Schreibfeldes ab. Daher empfiehlt es sich, für sehr kleine Strukturen entsprechend kleine Schreibfelder zu verwenden.

Für den in dieser Arbeit verwendeten Lack AR-N 7520.18 ist die empfohlene Dosis von etwa  $25 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  für E-Beam-Lacke relativ gering. Bei einer EHT-Spannung von 20 kV hat dies zur Folge, dass die Schrittweite entsprechend größer wird, um die Geschwindigkeit unter 5 mm/s zu halten. Durch Wechseln der Aperturblende kann der Strahlstrom signifikant verringert werden, sodass Strahlgeschwindigkeit und Schritt-

### 3. Experimentelle Methoden



**Abbildung 3.7.:** Um  $8^\circ$  geneigte Aufnahme der Probe jl-eb1-t1-1. Die Schrittweite war auf 200 nm gestellt, um eine Belichtung mit der empfohlenen Dosis von  $25 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  bei einer Strahlgeschwindigkeit unterhalb von  $5 \text{ mm/s}$  zu erreichen. Die Spitzen besitzen einen Durchmesser von etwa 200 nm, was der relativ großen Schrittweite entspricht.

weite die gewünschte Belichtung erlauben. Allerdings wird durch kleinere Blenden das Fokussieren erschwert. Möglich wäre auch, die EHT-Spannung zu senken. Dies hat jedoch zur Folge, dass sich der Strahl aufweitet und stärker abgelenkt werden kann. Die erreichbare Auflösung würde dementsprechend abnehmen.

Aus der Strahlgeschwindigkeit ergibt sich die Einwirkzeit (*Dwelltime*). Sie bestimmt die Zeit, in der der Strahl einen Punkt belichtet. Die minimal mögliche *Dwelltime* beträgt  $0,375 \mu\text{s}$  [24].

#### **Aperturblende**

Als Aperturblenden stehen  $7,5 \mu\text{m}$ ,  $10 \mu\text{m}$ ,  $20 \mu\text{m}$ ,  $30 \mu\text{m}$ ,  $60 \mu\text{m}$  und  $120 \mu\text{m}$  zur Verfügung. Die Wahl einer größeren Blende verringert zwar die Auflösung, reduziert

im Allgemeinen aber auch das Rauschen. Kleinere Blenden ermöglichen hingegen eine bessere Auflösung, erzeugen allerdings körnige Bilder [25].

Als gute Blende hat sich bei den Dosistests die 10  $\mu\text{m}$ -Blende erwiesen. Mit ihr war das Fokussieren nach etwas Übung gut möglich. Nachdem die Dosisfaktoren bekannt waren, wurde auf die größere 20  $\mu\text{m}$ -Blende gewechselt, da der Strahlstrom für die höheren Dosen kein Problem mehr darstellte. Ein Wechsel der Aperturblende erfordert erneute Apertur- und Stigmatorkorrektur.

#### **Fokussieren, Apertur- und Stigmatorkorrektur**

If you want to be good in e-beam lithography, you  
have to be good in SEM imaging!

---

*(Raith Lithography Training Course)*

Das Fokussieren stellt den mit Abstand wichtigsten Schritt zur korrekten Belichtung dar. Ist der Strahl defokussiert, werden Strukturen nicht in der gewünschten Größe und Form abgebildet. Neben dem eigentlichen Fokussieren muss ebenfalls die Apertur- und Stigmatorkorrektur kalibriert werden. Die Aperturkorrektur bewirkt, dass der Strahl zentral auf die Aperturblende auftrifft. Die Korrektur findet im REM-Modus *Focus Wobble* statt.

Die Stigmatorkorrektur bestimmt die Strahlform. Durch Verunreinigungen oder Linsenfehler kann der Strahl nach Durchlaufen der Blenden eine elliptische statt einer runden Form haben. Zur Korrektur wird eine strukturierte Oberfläche benötigt, an die die abgebildete Form angepasst werden kann. Hierzu bietet sich die Verwendung von *Nanospheres* an. Diese etwa 100 nm großen Polymerkugeln werden an der Position aufgetragen, an der fokussiert werden soll. Durch ihre runde Form kann die Verzerrung des Strahls geprüft und gegebenenfalls korrigiert werden [24, 25].

#### **EHT-Spannung**

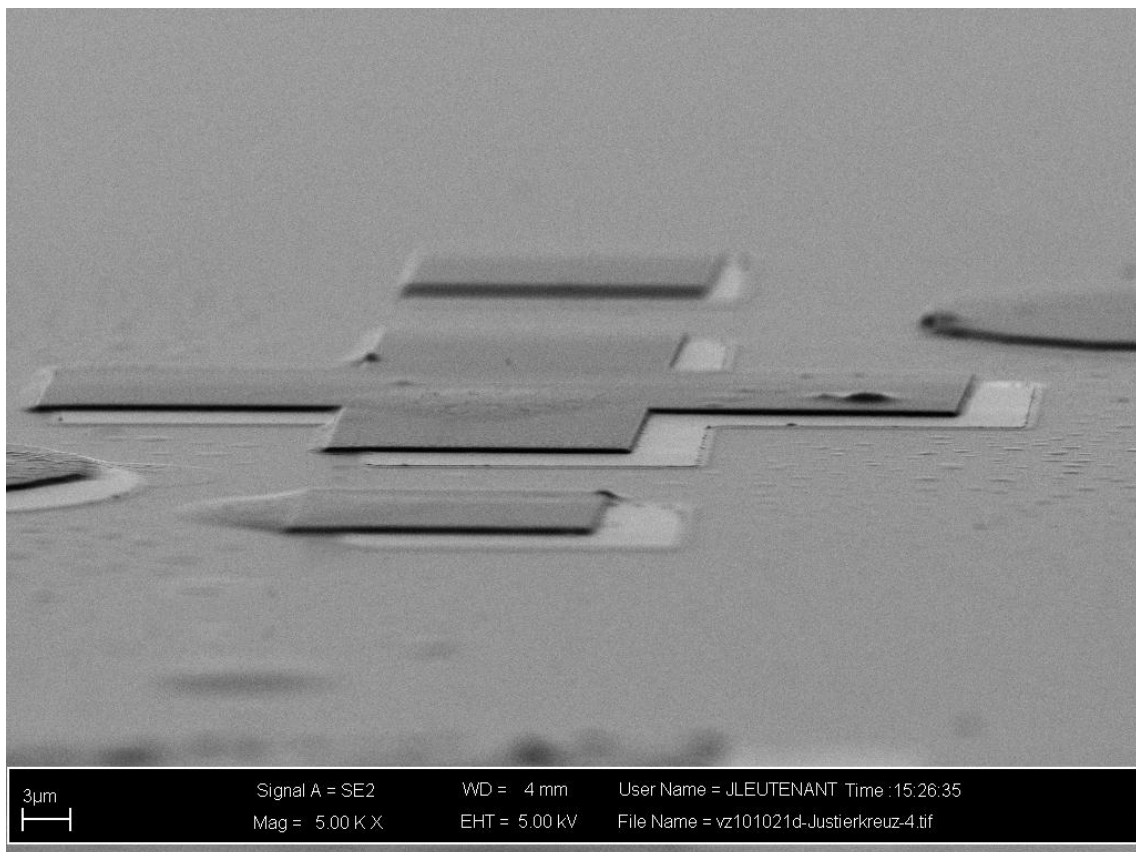
Die EHT-Spannung bezeichnet die Spannung, mit der die Elektronen beschleunigt werden. Eine geringe Spannung bewirkt einen aufgeweiteten Strahl. Somit verringert sich die Strukturgröße, die mit dem Strahl aufgelöst werden kann. Ebenso verringert sich das Rauschen und die Tiefenschärfe nimmt zu. Allerdings begünstigt ein höherer Strahlstrom Aufladungen, welche wiederum die Abbildungsqualität reduzieren. Dieser Effekt tritt bei nicht-leitfähigen Oberflächen auf, wie beispielsweise E-Beam-Lack.

### 3. Experimentelle Methoden

Die Wahl der EHT-Spannung muss der Resistdicke grob angepasst werden. Für sehr dünne Lacke muss eine geringere EHT-Spannung gewählt werden als für dicke Resistschichten. Die übliche Beschleunigungsspannung liegt bei 20 kV.

#### Schreibfeldkalibrierung

Sollten geschriebene und tatsächliche Strukturgröße sich stark unterscheiden (Abbildung 3.8), so kann außer einer falschen Dosis möglicherweise das *writefield alignment* nicht mehr zutreffend sein. Mit Hilfe des Kalibrierungsfeldes *Chessy* lassen sich die geschriebenen Strukturen in der Größe anpassen. Eine erneute Kalibrierung wird notwendig, wenn der Lithographiehalter verstellt oder Änderungen an der E-Gun vorgenommen wurden. Eine Kurzanleitung hierzu findet sich im Anhang A.3.1.



**Abbildung 3.8.:** Um 8° gekippte Ansicht der Justierkreuze auf der Probe vz101021d. Aufgrund einer schlechten Schreibfeldanpassung sind die per Elektronenstrahlolithographie geschriebenen Justierkreuze größer, als die optisch erzeugten Kreuze. Durch erneute Schreibfeldjustage ließen sich beide Größen anpassen. Die Versetzung des Justierkreuzes ist auf den Drift der Stage zurückzuführen. Der Größenunterschied ist dennoch gut erkennbar.

### Arbeitsabstand (working distance)

Der Arbeitsabstand bestimmt die Auflösung, die erreicht werden kann. Für die gewünschte hohe Auflösung ist ein Arbeitsabstand von 2 – 5 mm vorgesehen. Da der Lithographiehalter sowie die Elphy-Software auf einen Arbeitsabstand von 5 mm kalibriert sind und die gewünschte Auflösung bieten, wurde an dieser Stelle ebenfalls mit 5 mm Arbeitsabstand gearbeitet.

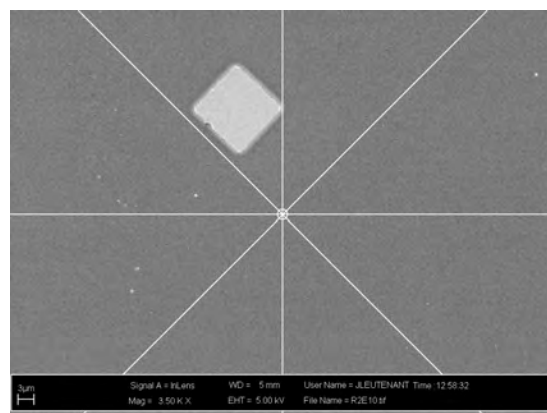
Zu beachten ist, dass der Arbeitsabstand die geringst mögliche Vergrößerung des REMs begrenzt. Da während der Arbeiten der Lithographiehalter verstellt wurde, verringerte sich der Arbeitsabstand von 5,3 mm auf 4,6 mm. Dies bedeutete, dass die 130-fache Vergrößerung, welche für das 1000er Schreibfeld benötigt wurde, nicht mehr erreicht werden konnte. Um dem Problem aus dem Weg zu gehen und auch bei erneuter Manipulation die Justierkreuze schreiben zu können, wurde für diese ein Schreibfeld der Größe 500  $\mu\text{m}$  erzeugt. Dieses Feld erlaubt Arbeitsabstände von bis zu 3 mm.

### Stagedrift

Erst gegen Ende der Bearbeitungszeit trat das Problem der Positionsgenauigkeit auf. Die Tunnelkontakte sollten mittig auf dem Bondpad sitzen, um so per Laser zur Spin-Seebeck-Messung anvisiert werden zu können. Die im Anhang A.1 angefügte Positionsliste gibt die Mittelpunkte der Bondpads und somit die Position, an der sich die Tunnelkontakt befinden sollten, wieder.

Die Probe auf der Stage wird über relativ ungenaue Motoren bewegt. Somit ergibt sich hier ein Drift, der Messungen zufolge bis zu 20  $\mu\text{m}$  betragen kann.

Für die Messung des Tunnelmagnetowiderstands stellt diese Ungenauigkeit kein großes Problem dar. Die Abweichung liegt höchstens im Bereich von 20  $\mu\text{m}$ , die Tunnelkontakte werden somit ausreichend genau geschrieben, um sich auf dem



**Abbildung 3.9.:** Abweichung zwischen tatsächlicher Position (Fadenkreuz) und zu treffender Position (Mitte des Tunnelkontaktes).

### 3. Experimentelle Methoden

100 × 100 μm großen Überlapp beider Bondpads zu befinden.

Diese Abweichung von der gewünschten Position lässt sich mit dem verwendeten System nicht umgehen. Eine Möglichkeit wäre, zur Lithographie an die E-Line der Röntgenphysik zu wechseln. Die Stage des REMs wird dort lasergesteuert bewegt und ermöglicht so die korrekte Positionierung der Tunnelkontakte.

#### **Nanospheres und Contamination Spot**

Um das Fokussieren zu vereinfachen, können Nanospheres auf den Lack aufgetragen werden. Die Lösung mit etwa 100 nm großen Latexkügelchen wird in der Ecke der Probe aufgetragen, in die der Ursprung des Koordinatensystems gelegt werden soll.

Auch wenn der Strahl gut genug fokussiert ist, um die Nanospheres auflösen zu können, bedeutet dies nicht, dass er auch ausreichend fein ist, um Strukturen jenseits der 100 nm schreiben zu können. Hierzu bietet sich der *Contamination Spot* zur Überprüfung der Strahlqualität an.

Wird für wenige Sekunden (üblicherweise zwischen 10 und 20 s) der Strahl auf einen Punkt fokussiert, so scheidet sich an dieser Stelle Kohlenstoff aus der Restgasatmosphäre des REMs ab. Die Breite und Form dieser Abscheidung lässt Rückschlüsse auf die Strahlqualität zu. Für die Lithographieschritte in dieser Arbeit wurde für 20 s auf den Lack gebrannt. Die resultierende Abscheidung lag in diesen Fällen zwischen 30 und 40 nm Breite. Als Kriterium wurde nach 20 s Brennen eine Spotgröße von unter 50 nm gewählt.

#### **UV-Koordinatensystem**

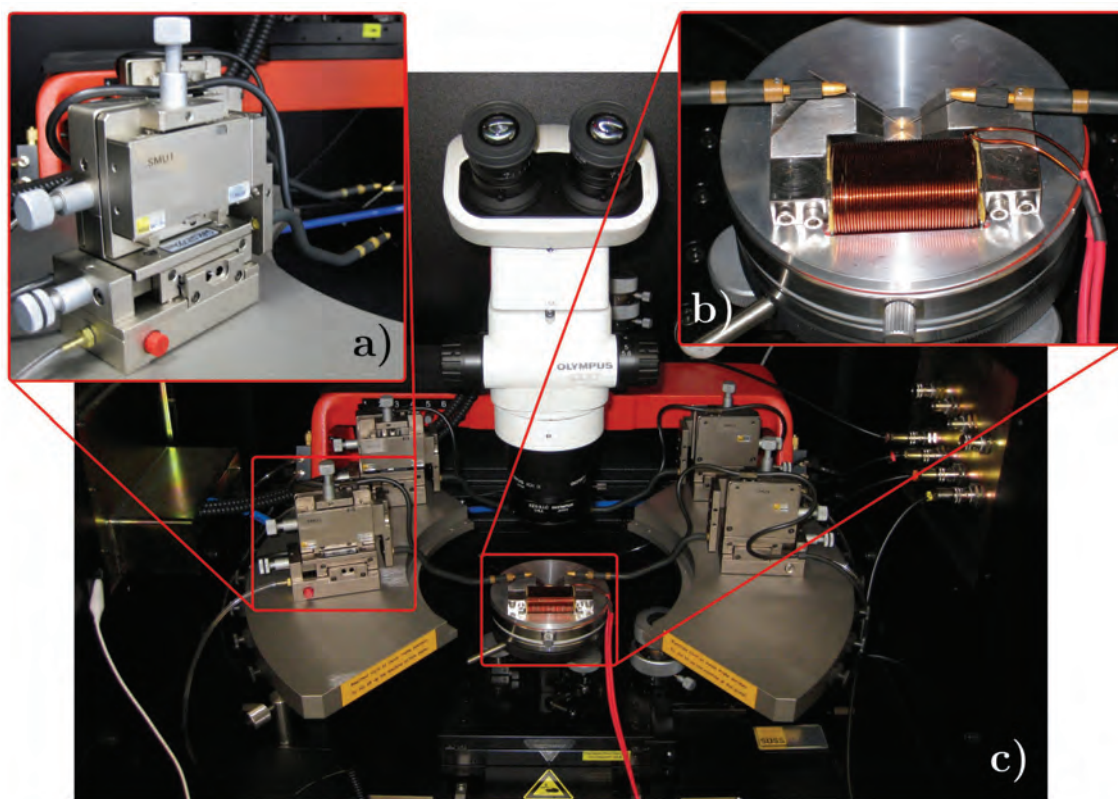
Die Positionen auf der Probe sind relativ zur inneren Kante der Probe angegeben (siehe Anhang A.1). Um die Tunnelkontakte korrekt schreiben zu können, benötigt die Lithographiesoftware die Angabe dieses sekundären Koordinatensystems. Hierzu wird zunächst als Ursprung die dem Klammerabdruck gegenüberliegende innere Ecke des Rahmens als neuer Ursprung eingelesen (Abbildung A.1). Bei der Wahl der U-Achse bietet es sich an, den unterhalb des Klammerabdrucks liegenden Punkt einzulesen. Bei Verwendung dieses Punktes wird die Winkelungenauigkeit minimiert und die Position der Justierkreuze genauer getroffen. Die Kurzanleitung befindet sich in Abschnitt A.3.2.



### 3.3. Charakterisierung der Proben

#### 3.3.1. Probestation

Für die Messung des TMR-Effektes stehen zwei Aufbauten zur Verfügung. In der Probestation lassen sich mit Hilfe zweier Mikrometermanipulatoren vergoldete Kupfer-Beryllium-Nadeln bewegen und die Proben kontaktieren. Die Manipulatoren wie auch die Probe werden durch Vakuumkontakte fixiert. Die Datenaufnahme wird über ein *Keithley 2400 SourceMeter*, welches per LabVIEW ausgelesen wird, realisiert. Die Magnetisierung der Probe wird durch einen Elektromagneten mit abgeschrägten Polschuhen variiert.



**Abbildung 3.10.:** Probestation mit Magnet sowie den Mikrometermanipulatoren. Aus [26].

#### 3.3.2. Wire-Bonder

Zur dauerhaften Kontaktierung außerhalb der Probestation steht ein K&S Wire Bonder der Serie 4500 zur Verfügung. Mit Hilfe des Bonders lassen sich Proben

### 3. Experimentelle Methoden

auf IC-Trägern kontaktieren. Dies wird zur Messung bei 4 K im PPMS sowie des Spin-Seebeck-Effektes benötigt.

Zur Kontaktierung können Aluminium- oder Golddrähte mit  $33\ \mu\text{m}$  Durchmesser eingelegt werden, welche durch den Bondkeil fixiert und durch einen kurzen Ultraschallpuls mit dem Untergrund verbunden werden. Zu beachten ist, dass bei Verwendung des Golddrahtes ein Vorheizen des Probenellers unerlässlich ist. Bei der Probenkontaktierung im Rahmen dieser Arbeit stellte sich hierbei der Aluminiumdraht als erheblich leichter zu handhaben dar. Gute Ergebnisse wurden mit den Parametern in Tabelle 3.2 erzielt.

	Kraft	Zeit	Leistung
Erster Kontakt	4,4	3,8	1,9
Zweiter Kontakt	4,2	3,2	2,2

**Tabelle 3.2.:** Parameter bei Verwendung des Aluminiumbonddrahtes.

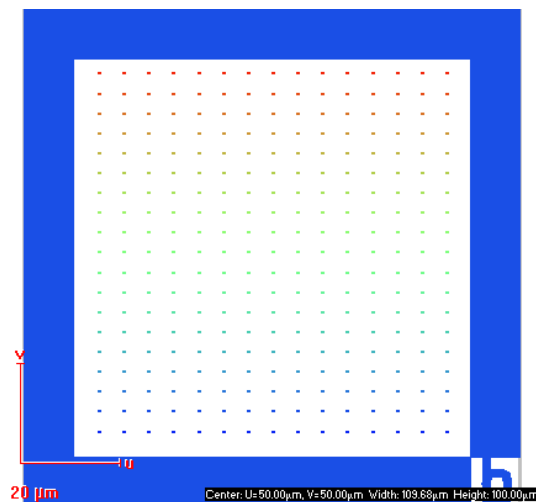
## 4. Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel wird das experimentelle Vorgehen erläutert, nach dem der Prozess erarbeitet worden ist. Zunächst wurden die Lithographieparameter ermittelt und optimiert. Anschließend wurde mit der Dicke der Isolatorschicht ein weiterer Parameter zur Bondpadprozessierung bestimmt, bevor der gesamte Prozess lauffähig war. Abschließend konnte anhand der strukturierten Ellipsen ein unterschiedliches Schaltverhalten beobachtet werden.

### 4.1. Belichtungs- und Entwicklungsparameter

Die Wahl des E-Beam-Resistes fiel auf den AR-N 7520.18 des Herstellers Allresist. Dieser Negativlack bietet mit einer Schichtdicke von 400 nm bei einer Schleuderbeschichtung von 4000 U/min, und einer Ätzrate von 8–9 nm/min laut Hersteller eine ausreichende Ätzstabilität, sowie mit einer Auflösung von bis zu 10 nm die Möglichkeit, extrem kleine Strukturen zu erzeugen. In [27] wurden Strukturen bis zu einer Größe von 20 nm demonstriert.

Gegen die Verwendung dieses Resistes sprach, dass der Lack Gelblicht erfordert, dies während des Einbauens am REM jedoch nicht zur Verfügung steht. Letzteres erwies sich jedoch als unproblematisch, da der Einbau in das REM unkompliziert möglich ist und der Lack

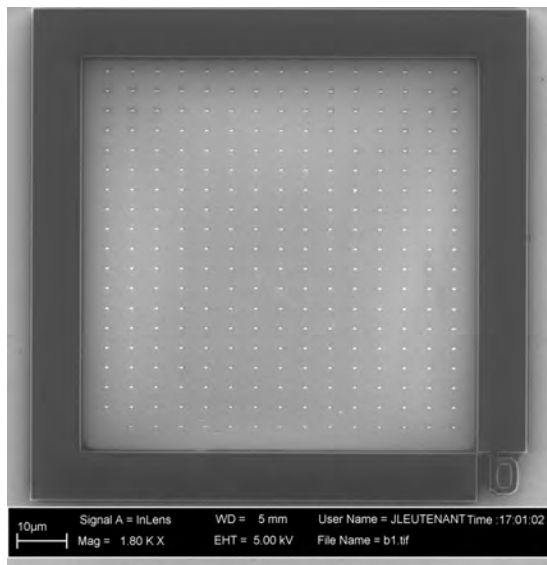


**Abbildung 4.1.:** Struktur zur Dosisfaktorbestimmung mit  $500 \times 250 \text{ nm}^2$  großen Strukturen. Die unterschiedliche Farbe zeigt die variierte Dosis an. *hier:*  $1\times$  (blau) bis  $19\times$  (rot)

#### 4. Ergebnisse und Diskussion

somit nur wenige Minuten dem Umgebungslicht ausgesetzt ist [28].

Um die Proben korrekt zu strukturieren, ist es notwendig, die optimalen Dosisfaktoren zu ermitteln. Ist die verwendete Dosis zu groß oder zu klein, stimmt die Größe der entwickelten Struktur nicht mehr mit der Vorgabe überein. Des Weiteren würde zu stark unterbelichteter Lack im Entwicklungsprozess abgetragen werden und ebenso wie überbelichtete Stellen nicht die benötigte Stabilität erreichen.



**Abbildung 4.2.:** Ergebnis der in Abbildung 4.1 gezeigten Struktur. Der Dosisgradient ist deutlich erkennbar, der überbelichtete Rahmen zeigt aufgrund des Proximity-Effektes keine scharfen Kanten. Dies ist besonders an dem Rahmen zu erkennen.

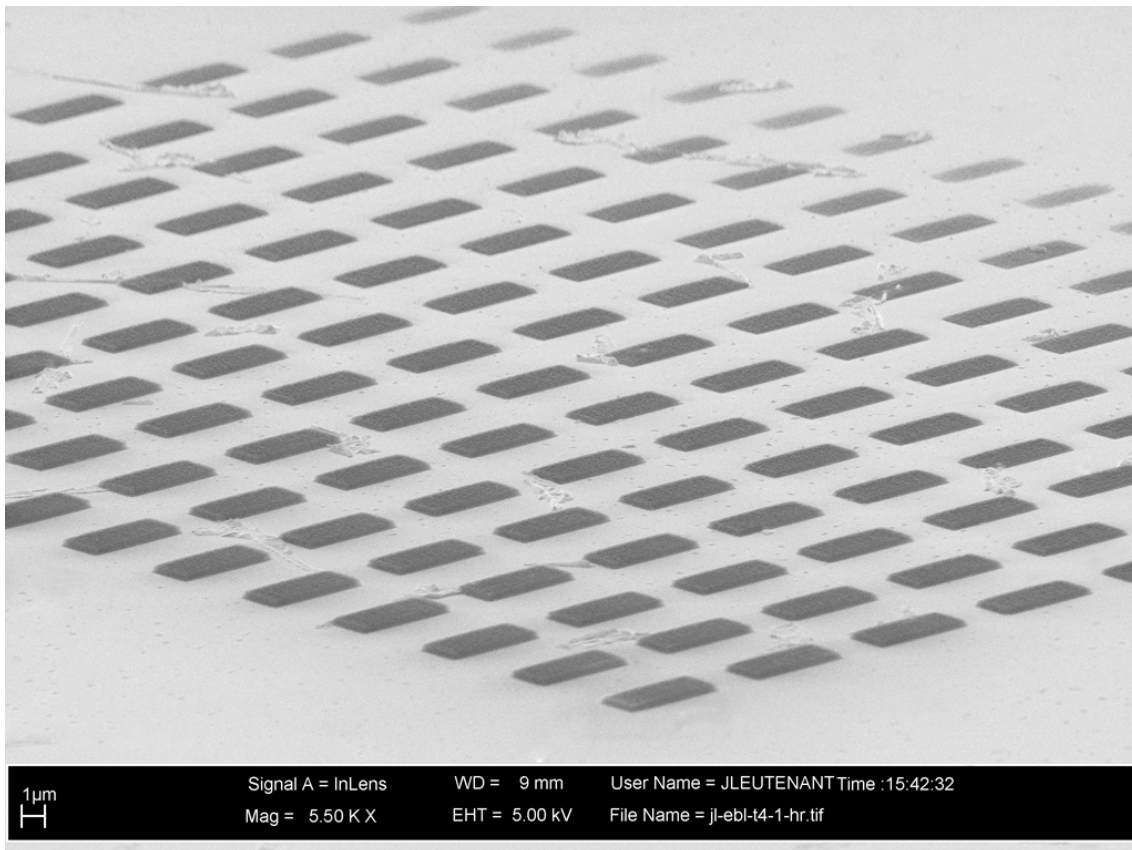
timeale Dosis ermittelt. Hieraus ergab sich Tabelle 4.1. Es zeigte sich hier bereits die Dosisabhängigkeit der Strukturgröße. Waren bei den ersten Größen noch alle Reihen mit variierten Dosisfaktoren vorhanden, so waren auf der  $100 \times 50$  nm-Struktur nur die Faktoren 16 – 19 und auf den  $150 \times 75$  nm-Strukturen die Faktoren 8 – 19 vorhanden.

Sollen neue Strukturen geschrieben werden, deren erforderliche Dosis noch nicht bekannt ist, so stellen die in Tabelle 4.1 aufgetragenen Werte einen guten Ausgangs-

Zur Bestimmung der richtigen Belichtungsdosis wurden in die  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$  großen Schreibfelder unterschiedlich große Rechtecke mit verschiedenen Dosisfaktoren geschrieben (Abbildung 4.1). Den Ausgangspunkt stellte die vom Hersteller empfohlene Dosis von  $25 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  dar [28].

Zur Verbesserung der Auffindbarkeit wurde um diese Strukturen ein  $10 \mu\text{m}$  dicker Rahmen geschrieben und dem Feld ein Buchstabe zugeordnet. Dabei zeigte sich, dass die optimale Dosis stark strukturgrößenabhängig ist. So erwies sich bei  $2,5 \times 5 \mu\text{m}^2$  großen Strukturen eine Dosis von  $32 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  als optimal. Unterhalb eines  $\mu\text{m}$  reicht diese Dosis allerdings nicht mehr aus.

Zuerst wurden die Strukturen mit der Ausgangsdosis von  $25 \mu\text{C}/\text{cm}^2$  sowie Dosisfaktoren zwischen  $1\times$  und  $19\times$  geschrieben (Abbildung 4.1) und deren optimale Dosis ermittelt.



**Abbildung 4.3.:** Geklippte Aufnahme eines genaueren Dosisfeldes der Probe jl-ebi-t4-1. Die Dosis wurde hierbei von 0,6-fach bis 1,5-fach variiert. Gut erkennbar: Die hinterste Reihe (Dosisfaktor: 0,6) ist deutlich unterbelichtet. Für den Dosisfaktor 1,2 ergibt sich die korrekte Größe sowie ein gutes Kantenprofil.

punkt dar.

Für die Entwicklung empfiehlt der Hersteller eine Verdünnung des Entwicklers AR 300-47 mit deionisiertem Wasser im Verhältnis AR 300-47:DI-Wasser von 4:1, sodass die Entwicklungszeit zwischen 40 und 120 Sekunden liegt. Um die Entwicklung zu optimieren, wurden die belichteten Proben für unterschiedliche Zeiten in unterschiedlich konzentriertem Entwickler gebadet und anschließend die Oberfläche unter einem optischen Mikroskop sowie dem REM begutachtet.

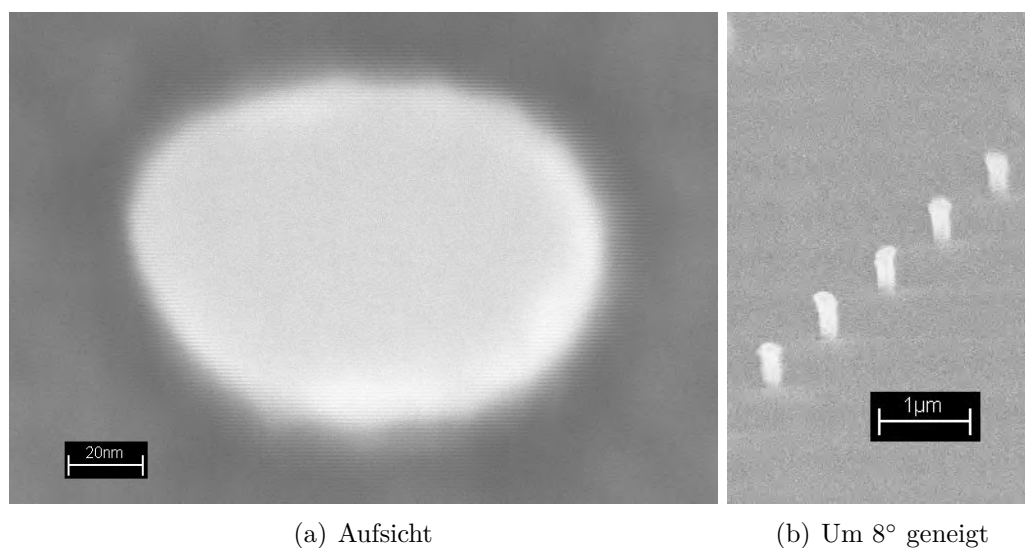
Hierbei zeigte sich, dass bei einer Entwicklung von 120 Sekunden und einem Mischungsverhältnis von 4:1 bereits keine Strukturen mehr zu erkennen waren. Für 40 Sekunden zeigte sich eine nicht sauber entwickelte Lackoberfläche. Hier fanden sich noch zahlreiche Lackreste. Als optimal erwiesen sich 60 s im Mischungsverhältnis 4:1.

#### 4. Ergebnisse und Diskussion

Strukturgröße [nm <sup>2</sup> ]	Ausgangsfaktor [ $\mu\text{C}/\text{cm}^2$ ]
$750 \times 375$	100
$500 \times 250$	100
$250 \times 125$	200
$200 \times 100$	250
$150 \times 75$	350
$100 \times 50$	400

**Tabelle 4.1.:** Ergebnisse der Dosisfaktorbestimmung.

Für den Liftoff-Prozess genügte es bisher, die Proben für 90 Minuten in Isopropanol im Ultraschallbad zu reinigen. Die Anwendung dieses Prozesses bei dem E-Beam-Lack zeigte keinen Effekt. Auch nach drei Stunden im Isopropanol war noch Lack auf der Probe vorhanden. Daher wurde auf den Remover AR 300-70 zurückgegriffen. Für den Liftoff zeigte sich, dass in einem auf 80°C vorgeheizten Ultraschallbad auf Stufe 2 eine Stunde im Lackentferner ausreichend war. Gegen Ende der Bearbeitungszeit waren nach dem Liftoff auf der Probe Lackreste vorhanden. Die strukturierten Elemente ließen sich dennoch problemlos charakterisieren. Für weitere Untersuchungen sollte erneut ein Parameter gefunden werden, sodass der Lack vollständig entfernt wird.



**Abbildung 4.4.:** Die kleinsten im Rahmen dieser Arbeit geschriebenen Strukturen mit  $50 \times 100 \mu\text{m}^2$  Kantenlänge. In der rechten Grafik ist auf den entwickelten Lack bereits Siliziumoxid aufgetragen.

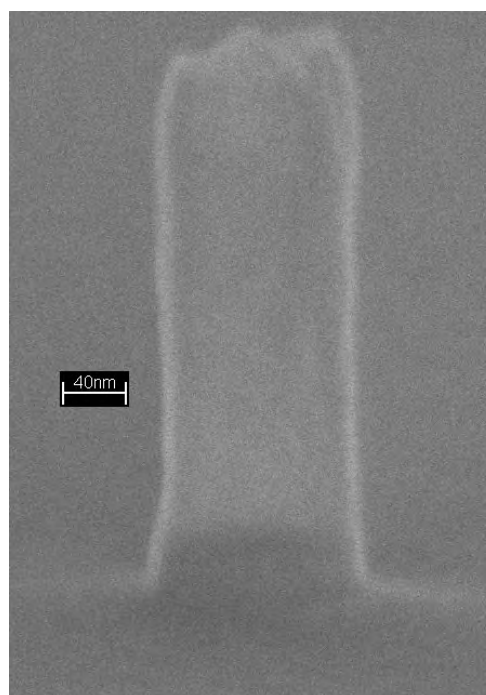
Auffällig war, dass sich die ermittelten Parameter bereits nach einem Vierteljahr

relativ stark verschoben haben. Die Ursache ist im Lack zu suchen. Im Laufe der Zeit verdunstet das Lösungsmittel des Resists und der Lack dickt ein. Laut Hersteller würde bereits ein Verlust des Lösungsmittelanteil von 1% eine bis zu 5% dickere Schicht bedeuten, sodass sich die benötigte Dosis drastisch verändern kann [28].

Der Lack basiert auf Novolak. Dieses Phenolharz reagiert sehr empfindlich auf Licht und Temperaturschwankungen. Die Alterungseffekte sind bei Lacken auf Novolakbasis deutlich stärker ausgeprägt als beispielsweise bei PMMA-basierten Lacken. Die ursprüngliche Lackflasche steht zwar im klimatisierten Reinraum, allerdings wurde von dieser Lack abgefüllt, um die Belackung außerhalb durchführen zu können. Dieses Fläschchen mit dem abgefüllte Lack lagerte hingegen unklimatisiert im Lithographieraum. Die Originalflasche wurde darüber hinaus bereits 2008 angebrochen und das vom Hersteller angegebene Verfallsdatum war bereits um über zwei Jahre überschritten. Das hohe Lackalter würde auch dafür sprechen, dass die kurze Zeit, in der der Lack während des Ein- und Ausbauens am REM dem Umgebungslicht ausgesetzt ist, keine Auswirkungen auf die Belichtung hat.

Bedingt durch die Alterungsprozesse ist davon auszugehen, dass eine präzise Bestimmung der Belichtungs- und Entwicklungsparameter nur für einen kurzen Zeitraum Gültigkeit hat. So zeigte anfangs eine Entwicklungszeit von 60 s optimale Ergebnisse. Gegen Ende der Bearbeitungszeit entwickelte Proben besaßen hingegen keine saubere Oberfläche mehr, sodass die Zeit auf 70 s erhöht werden musste. Die in Tabelle 4.1 aufgeführten Dosiswerte sollten künftig dennoch als Richtlinie dienen können.

Im Rahmen dieser Arbeit konnten Strukturen bis zu einer Größe von 50 nm geschrieben werden. Die entwickelten Strukturen zeigten allerdings 70 nm statt 50 nm Breite. Dies ist damit zu erklären, dass die Größe des Elektronenstrahls hier bereits beachtet werden muss. Insbeson-



**Abbildung 4.5.:** Struktur mit  $150 \times 75 \text{ nm}^2$  nach dem Ätzschritt.

#### 4. Ergebnisse und Diskussion

dere die runde statt eckiger Form lässt darauf schließen, dass hier deutlich besser fokussiert werden muss. Strukturen von  $150 \times 75 \text{ nm}^2$  (Abbildung 4.5) ließen sich hingegen verlässlich herstellen.

Für die Strukturierung der Tunnelkontakte wurden Ellipsen mit einer kleinsten Strukturgröße von 500 nm geschrieben. Die Wahl größerer Kontakte bot sich an, da die Strukturierung erst durchgeführt werden konnte, nachdem die Bondpadprozessierung verlässlich funktionierte. Hiernach zeigte sich bereits, dass die zuvor ermittelte Entwicklungszeit nicht mehr ausreichend war, um optimale Ergebnisse zu erzielen. Daher wurde auf größere Kontakte zurückgegriffen, um sicherzustellen, dass der Elektronenstrahlolithographieschritt keine Probleme bereitete.

### 4.2. Dicke der Siliziumoxid-Schicht

Zwischen dem oberen und dem unteren Bondpad befindet sich eine Siliziumoxid-Schicht (Abbildung 3.4). Sie dient der Isolation beider Kontakte. Diese Schicht muss ausreichend dick sein, sodass die Elektronen nicht durch sie hindurch tunneln, sondern durch den Tunnelkontakt fließen. Ebenso wünschenswert ist auch eine geringere Dicke, da so bei der Strukturierung der Tunnelkontakte eine dünnere Resistschicht verwendet werden kann, welche wiederum die minimale Strukturgröße reduziert. Da der Widerstand der optisch strukturierten Tunnelkontakte im Bereich von mehreren  $10^4 \Omega$  liegt, ist es wünschenswert, als Isolatorwiderstand mehrere  $\text{M}\Omega$  zu erreichen. Darüber hinaus wird aufgrund des theoretisch konstanten Flächenwiderstands für kleinere Strukturen der Widerstand des Kontakts wegen der kleineren Tunnelfläche weiter ansteigen.

Um zu bestimmen, welche Dicke diese Isolatorschicht mindestens aufweisen muss, wurden zunächst drei Proben hergestellt. In diesen Proben (22 nm Tantal / 3 nm Ruthenium) wurde zuerst das untere Bondpad strukturiert und bis in das zugrunde liegende Siliziumoxidsubstrat geätzt. Anschließend konnte auf die Proben  $\text{SiO}_2$  mit 45 nm, 60 nm bzw. 75 nm sowie als Kontaktschicht 5 nm Chrom mit 20 nm Gold aufgedampft werden. Im anschließenden Lithographieschritt wurde die Bondpadmaske um  $90^\circ$  gedreht und die obere Kontaktfläche bis in die Tantalschicht hineingeätzt.

Die erste Messung dieser Widerstandsproben in der Probestation zeigte keine stabilen Messergebnisse. Der auf einem *Keithley 2400 SourceMeter* angezeigte Widerstand lag bei der 60 nm Probe zunächst bei 2,1  $\text{M}\Omega$ . Dieser Widerstand schwankte bis auf 2,4  $\text{M}\Omega$ , fiel im Anschluss jedoch wieder auf 1,6 bis 1,8  $\text{M}\Omega$ . Ein Wechsel der

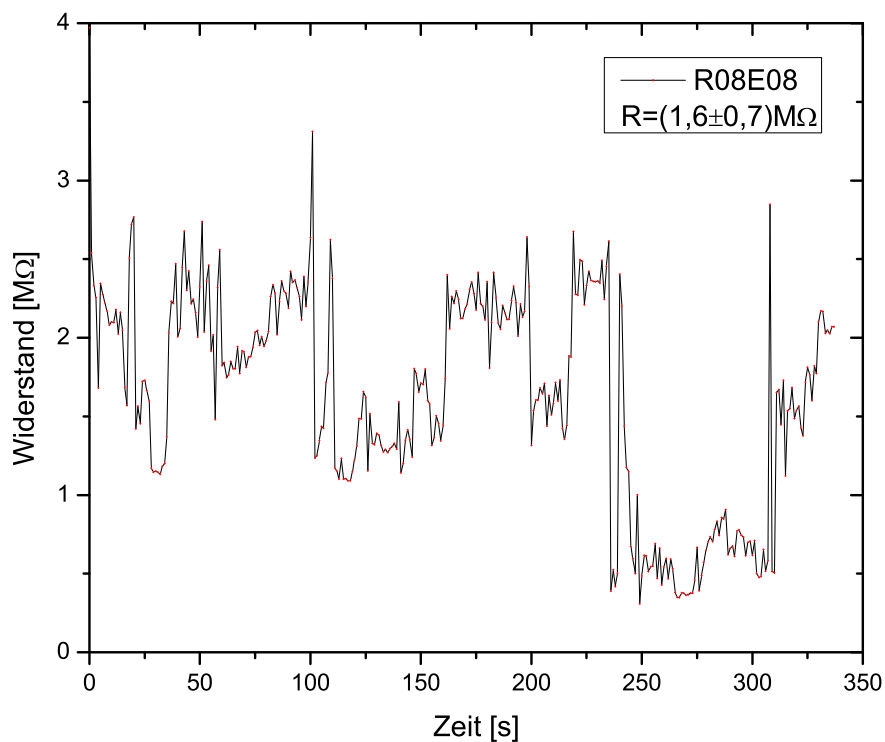


Nadeln erbrachte hier keine Verbesserung. Der Widerstand über die einzelnen Bondpads zeigte für Gold-Bondpads rund  $10\ \Omega$ , für Tantalpads rund  $150\ \Omega$  Widerstände im zu erwartenden Bereich.

Da es denkbar wäre, dass die Tantalkontaktschicht für dieses Schwanken verantwortlich sein könnte, wurden die Proben gebondet. Hierdurch sollte die oberste Tantaloxidschicht durchstoßen und ein stabiler Kontakt erreicht werden. Jedoch änderte sich weder mit Aluminium- noch mit Goldbonddraht das Problem. Die Widerstände zwischen Gold- und Tantal-Bondpad schwankten unverändert stark.

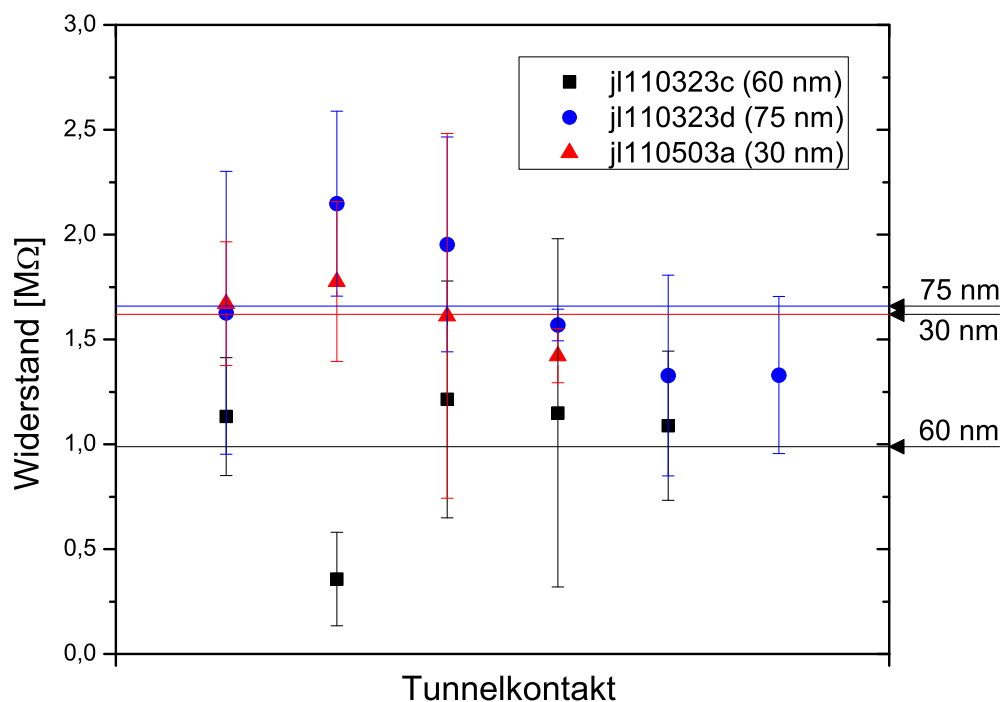
Aufgrund dieser starken Schwankungen ließ sich durch Ablesen kein Widerstandswert sinnvoll ermitteln. Daher wurde ein LabVIEW-Programm geschrieben, welches den Widerstand in Abhängigkeit zur Zeit aufnimmt und ausgibt.

Ein Widerstandsverlauf ist in Abbildung 4.6 dargestellt. Auffällig war, dass die gemittelten Widerstände stets im Bereich einiger  $M\Omega$  lagen. Die Dicke der Isola-



**Abbildung 4.6.:** Zeitlicher Verlauf des Kontaktes R8E8 am *Keithley 2400 SourceMeter*. Der gemittelte Widerstand liegt für die 75 nm dicke Isolatorschicht bei  $(1,6 \pm 0,7)\ M\Omega$ .

#### 4. Ergebnisse und Diskussion



**Abbildung 4.7.:** Zeitlicher Verlauf der vermessenen Kontakte am *Keithley 2400 SourceMeter*. Die Linien entsprechen den gewichteten Mittelwerten der einzelnen Messungen. Scheinbar hat die Dicke der Isolatorschicht keinen Einfluss auf den Widerstand.

torschicht schien dabei keinen (oder nur einen geringen) Unterschied zu bewirken (Abbildung 4.7). Die Widerstandsmessung im Keithley ist somit für diesen Zweck ungeeignet.

Um zu prüfen, ob die bisher gefundenen Ergebnisse mit der neuen Kontaktierung zusammenhängen (bisher wurde stets eine Goldoberfläche kontaktiert), wurden fünf Proben der Isolatorstärke 30 nm bis 150 nm strukturiert. Das unteren Bondpad bestand somit aus 5 nm Cr mit 20 nm Au. Da diese Proben bei der Charakterisierung per Keithley ebenfalls schwankende Widerstände zeigten, kann somit ausgeschlossen werden, dass die Ursache für diese in der Tantal-Kontaktschicht zu suchen ist. Ein weiterer Schritt zur Deponierung von Gold auf die unteren Bondpads ist somit nicht erforderlich.

Die Widerstände der einzelnen Bondpads untereinander lagen bei dieser Pro-

benserie mit Widerständen von  $(12,7 \pm 0,9) \Omega$  (oberes Bondpad) und  $(9,7 \pm 0,9) \Omega$  (unteres Bondpad) in dem Bereich, der bereits in der ersten Serie ermittelt wurde.

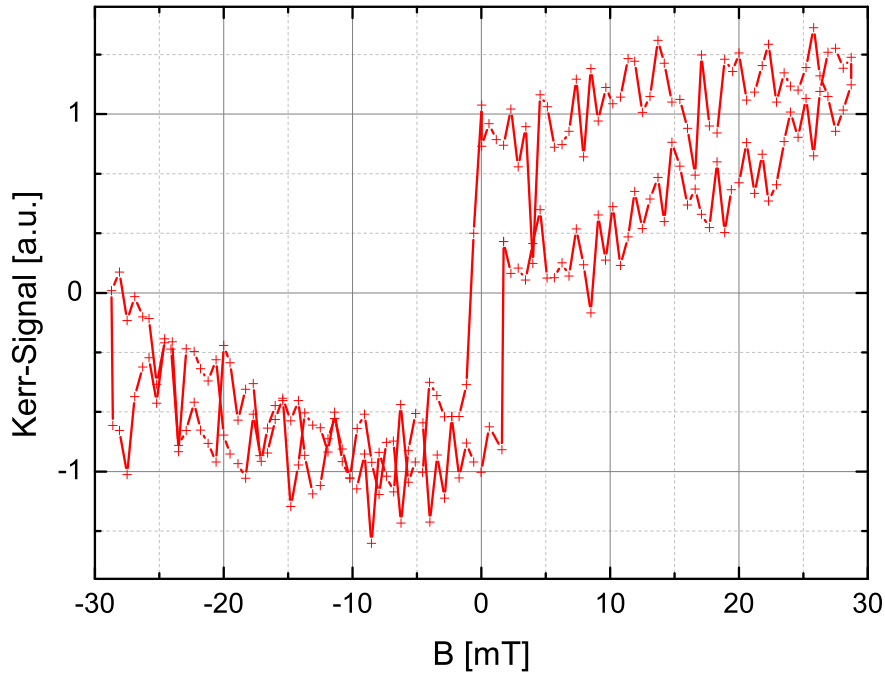
Da sich die Bestimmung der Widerstände nicht verbesserte, wurde die Probe j1110503a mit 30 nm Siliziumoxid durch Vierpunktkontaktierung vermessen. Per *Keithley 2000 Multimeter* wurde die an dem Kontakt abfallende Spannung gemessen. Hierbei zeigten sich zwar weiterhin Schwankungen, allerdings ließen sich die Tunnelströme nun gut ablesen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 4.2 dargestellt. Die gemessenen Ströme lagen bei einer angelegten Spannung von 2 V stets unterhalb von 10 nA. Somit liegt der Widerstand der 30 nm Siliziumoxidschicht bereits bei über 200 M $\Omega$ . Da der TMR-Stapel 42 nm aus dem Bondpad herausragt, werden künftig 40 nm Siliziumoxid als Isolatorschicht verwendet.

$U$ [V]	$I$ [nA]	$R$ [M $\Omega$ ]
2	3	667
2	10	200
2	<1	>2000
2	1,5	1330
2	1	2000
2	2,9	690
2	5,4	370
2	0,7	2860
2	4	500
2	1,3	1540

**Tabelle 4.2.:** Gemessene Widerstände an einer 30 nm Isolatorschicht per Vierpunktmessung am *Keithley 2400 SourceMeter* und *Keithley 2000 Multimeter*.

### 4.3. Bondpadprozessierung

Um die bisher gesammelten Ergebnisse zu überprüfen, wurde die Probe mw110509b nach dem in Abbildung 3.4 dargestellten Prozess strukturiert. Die Tunnelkontakte wurden optisch mit der Maske SQUARE 1 belichtet. Im Anschluss müsste dann nur die optische Strukturierung durch die E-Beam-Lithographie ersetzt werden. Dabei zeigte sich, dass die Kontaktierung der unteren Bondpads weiterhin problematisch war. Bei der Kontaktierung in der Probestation per Goldnadel ließ sich kein Tunnelstrom registrieren. Wurde hingegen eine Wolframnadel verwendet, ließ sich mit größerem Druck ein Kontakt herstellen. Die gebondete Probe ließ sich ebenfalls problemlos charakterisieren.



**Abbildung 4.8.:** Kerrsignal des unteren Bondpads der Probe mw110509b.

Durch eine Vermessung der unteren Bondpads durch den magnetooptischen Kerreffekt sollte überprüft werden, ob noch ferromagnetisches Material vorhanden ist. Dies würde bedeuten, dass die Ätzdauer nicht ausreichend war und sich aufgrund der verbleibenden Isolatorschicht der Kontakt nicht umgehend erreichen ließ. Die Kurve des Kerrsignals (Abbildung 4.8) zeigte deutlich eine Hysteresekurve. Denkbar wäre es, dass das Kerrsignal aufgrund der nur noch sehr dünnen CoFeB-Schicht oder der Isolatorschicht entsprechend schwach ist. Somit ist definitiv noch CoFeB im Bondpad vorhanden und die Ätzzraten sind, obwohl bei der Bestimmung der Zeiten großzügig aufgerundet wurde, nicht ausreichend gewesen. Zu beachten ist hierbei, dass keine Ätzrate für Chrom ermittelt worden ist. Stattdessen wurde mit der Rutheniumrate gerechnet. Dabei wäre zu erwarten gewesen, dass die 5 nm dicke Chromschicht keine relevante Verschiebung der Ätzdauer bedeuten würde.

Um die optimale Ätzdauer zu errechnen, wurden auf einige Siliziumoxidsubstrate 5 nm Chrom, 40 nm Siliziumoxid sowie 5 nm Chrom und 20 nm Gold aufgedampft. Die Proben wurden mit der Bondpadmaske belichtet und unterschiedlich lange geätzt. Anschließend wurde mit Hilfe des Profilometers die Ätztiefe bestimmt. Hierbei

zeigte sich, dass für eine 40 nm Siliziumoxidschicht mit 5 nm Chrom und 20 nm Gold 18:42 Minuten geätzt werden muss, um später in der Probestation die Kontaktflächen problemlos kontaktieren zu können.

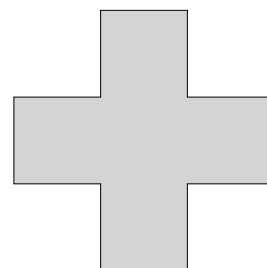
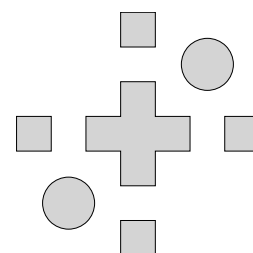
## 4.4. MTJ-Strukturierung durch Elektronenstrahlithographie

Um die MTJs korrekt zu positionieren, müssen Ursprung und Relativkoordinaten richtig gewählt werden. Der Ursprung muss hierfür in der inneren Kante des bereits strukturierten unteren Bondpads liegen. Um sicherzustellen, dass das Annealingfeld richtig ausgerichtet worden ist, sollte die Strukturierungskonvention in Abbildung A.1 im Abschnitt A.2 beachtet und dementsprechend das UV-Koordinatensystem gesetzt werden.

Für die Justage der oberen Bondpads sind auf der SQUARE-1-Maske jeweils vier Justierkreuze (Abbildung 4.9) vorhanden. Diese Positionshilfen müssen durch das REM in einem eigenen Schritt geschrieben werden. Für diese existieren eigens angelegte Schreibfelder der Größe  $500 \times 500 \mu\text{m}^2$  sowie die Positionsliste *Justierkreuze\_500\_final.pls*.

Da dieses Schreibfeld für die Strukturierung der Tunnelkontakte zu groß wäre und dies die Auflösung negativ beeinflussen würde, existiert hierfür ein eigenes Schreibfeld der Größe  $25 \times 25 \mu\text{m}^2$ . Bei der Positionierung der Schreibfelder (Tabelle A.1) ist zu beachten, dass deren Mittelpunkt relativ vom Ursprung aus geschrieben wird. Die angegebenen Positionen sind auf die innere Kante des Rahmens bezogen.

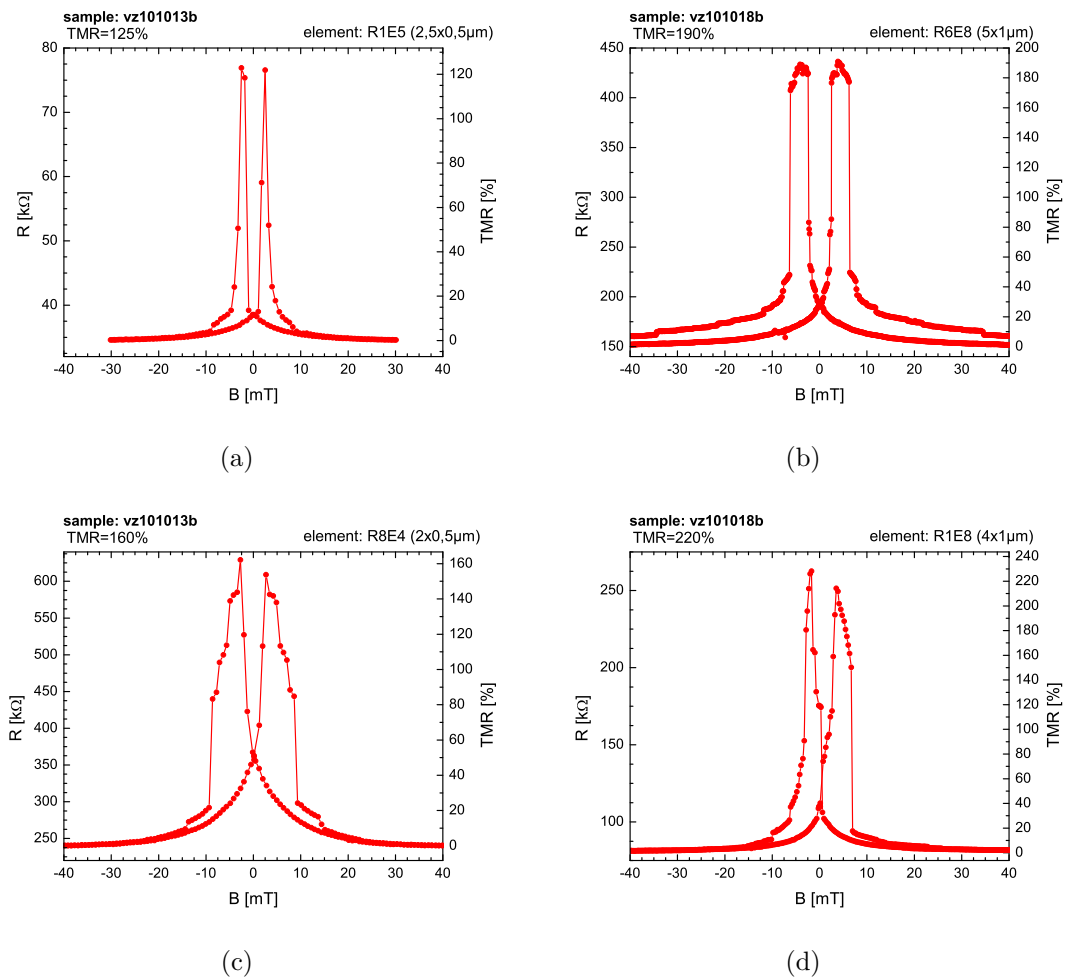
Durch die Elektronenstrahlithographie besteht nun die Möglichkeit, Strukturen beliebiger Geometrien zu schreiben. Zu erwarten ist, dass diese ein von der Form abhängiges unterschiedliches Schaltverhalten zeigen.

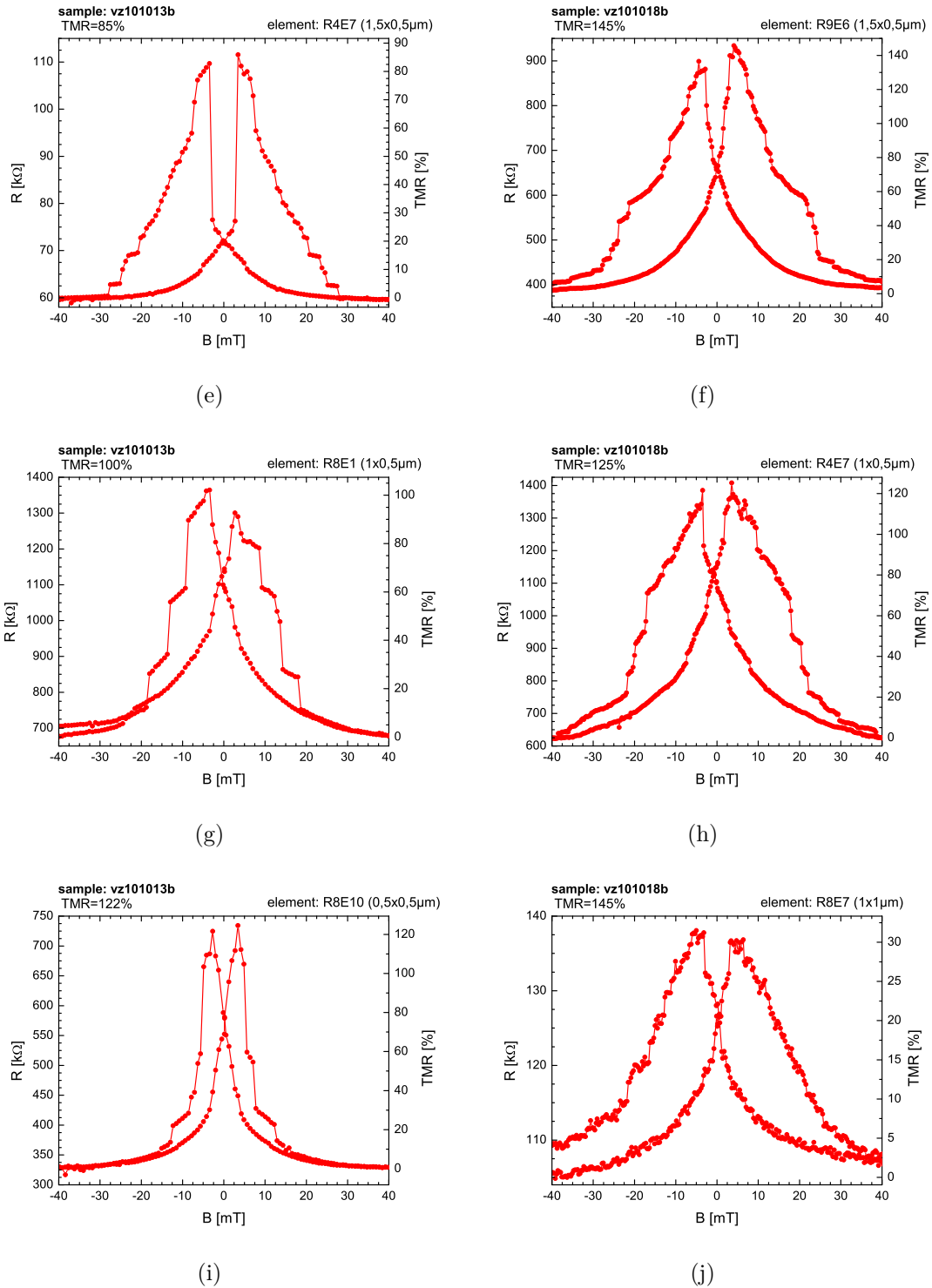


**Abbildung 4.9.:** Justierkreuz zur Positionierung der Maske. Die Seitenlänge beträgt  $400 \mu\text{m}$ .

## 4.5. Schaltverhalten

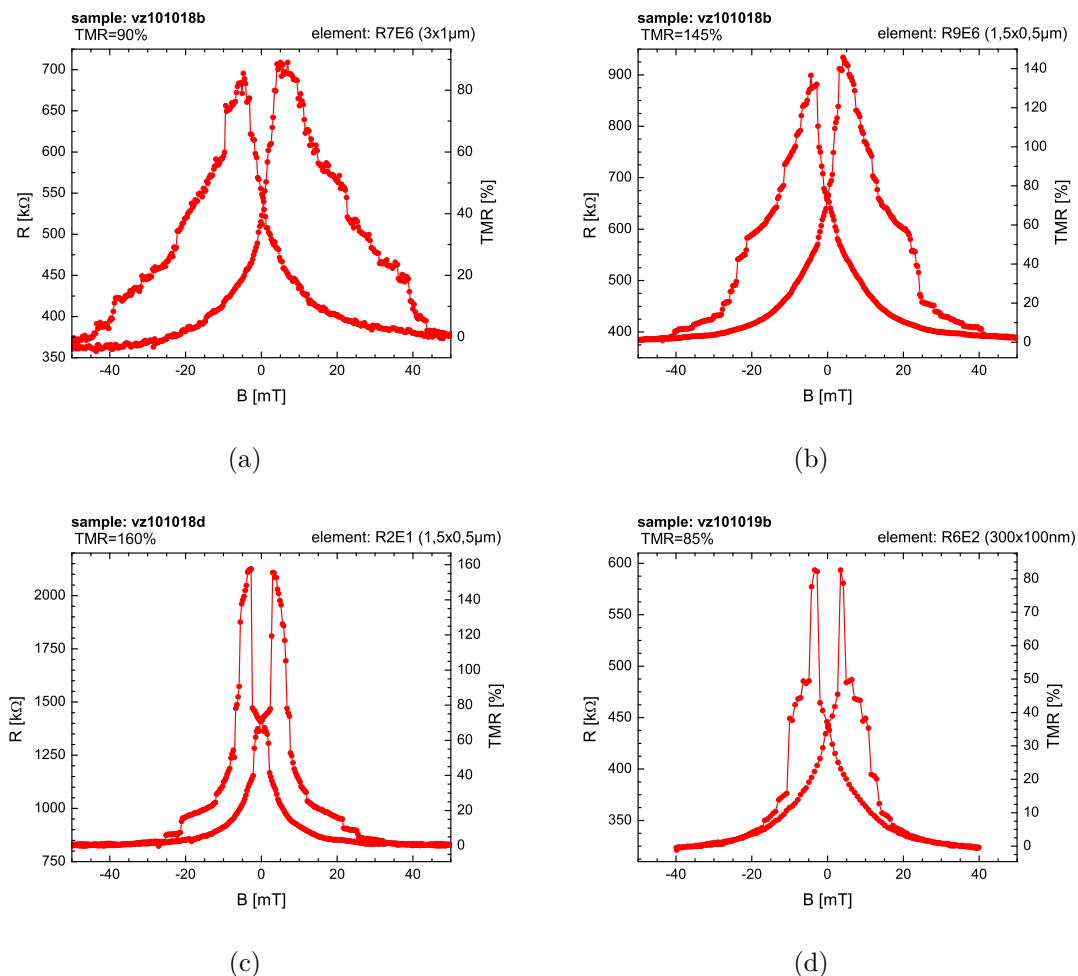
Durch den entwickelten Elektronenstrahlithographieprozess bestand nun die Möglichkeit das Schaltverhalten unterschiedlicher Kontaktgeometrien zu untersuchen. Hierzu wurden die unstrukturierten Probenhälften aus der Diplomarbeit von Vladyslav Zbarsky verwendet. Auf der Probe vz101018b konnten die ersten per E-Beam Lithographie hergestellte Tunnelemente vermessen werden. Bei dieser Probe wurde als Isolator 30 nm Siliziumoxid verwendet. Bei der später prozessierten Probe vz101013b war die Ätzrate von  $\text{SiO}_2$  bereits ermittelt, sodass hier 40 nm Isolator verwendet wurde. Da diese Proben erst gegen Ende der Bearbeitungszeit dieser Arbeit strukturiert werden konnten, war es nicht möglich, zuvor die Entwicklungsparameter neu zu bestimmen. Beide Proben zeigten keine optimal entwickelten Oberflächen, sodass hier möglicherweise Verunreinigungen die Anzahl an messbaren Elementen reduziert haben. Typische Widerstandsverläufe sind in Abbildung 4.9 dargestellt.





**Abbildung 4.9.:** Typische TMR-Messkurven der Proben vz101013b (links) und vz101018b (rechts). Hierbei sind die korrespondierenden Geometrien gegenübergestellt. Das Achsverhältnis variiert von 5:1 (a,b) zu 1:1 (i,j).

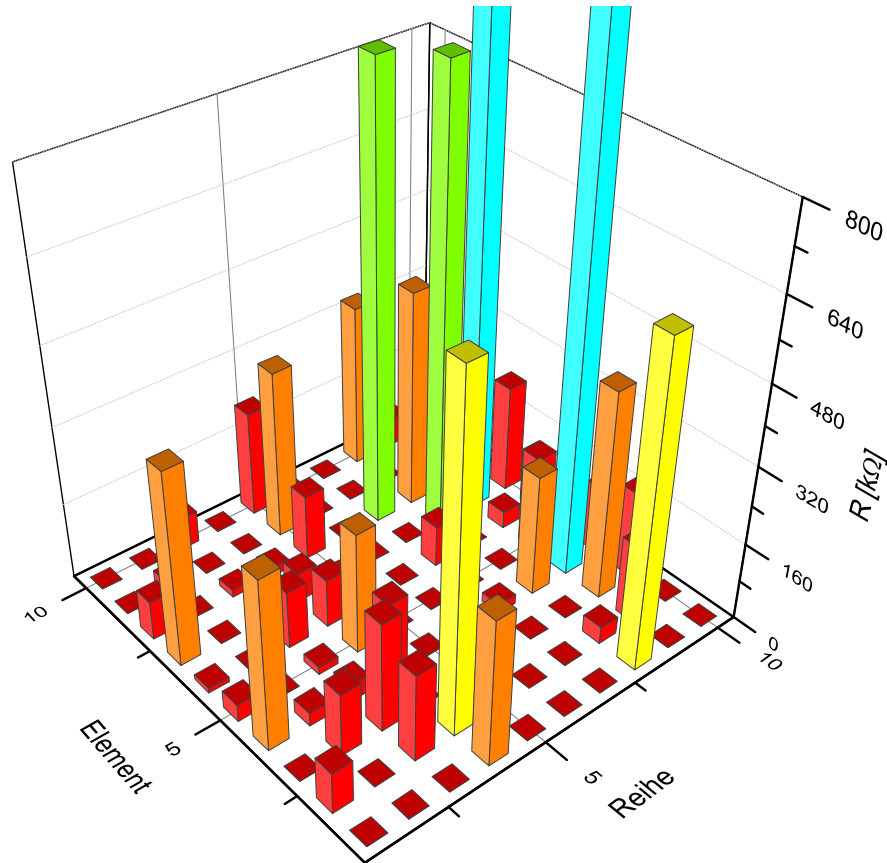
#### 4. Ergebnisse und Diskussion



**Abbildung 4.10.:** Größenvergleich zwischen Ellipsen des Achsverhältnisses 3:1 für verschiedene Strukturgrößen.

Abbildung 4.10 zeigt das beispielhafte Schaltverhalten einiger Tunnelkontakte auf den Proben vz101018b, vz101018d und vz101019b. Die Kontaktgeometrie beträgt in allen Fällen 3:1, die Strukturgrößen unterscheiden sich jedoch. Abbildung 4.10a und 4.10b stammen von derselben Probe. Hier erkennt man deutlich das ähnliche Schaltverhalten. Der Tunnelmagnetowiderstand unterscheidet sich jedoch deutlich. Auffällig ist an beiden Kontakten auch, dass der parallele Widerstand beider Kontakte in demselben Bereich liegt. Zu erwarten wäre gewesen, dass der Widerstand des kleineren Kontaktes deutlich über dem Widerstand des größeren liegt, wie in Abbildung 4.10c. Allerdings erwies sich während der Charakterisierung, dass der Kontaktwiderstand über die Probe hinweg sehr inhomogen verteilt ist (Abbildung 4.11).





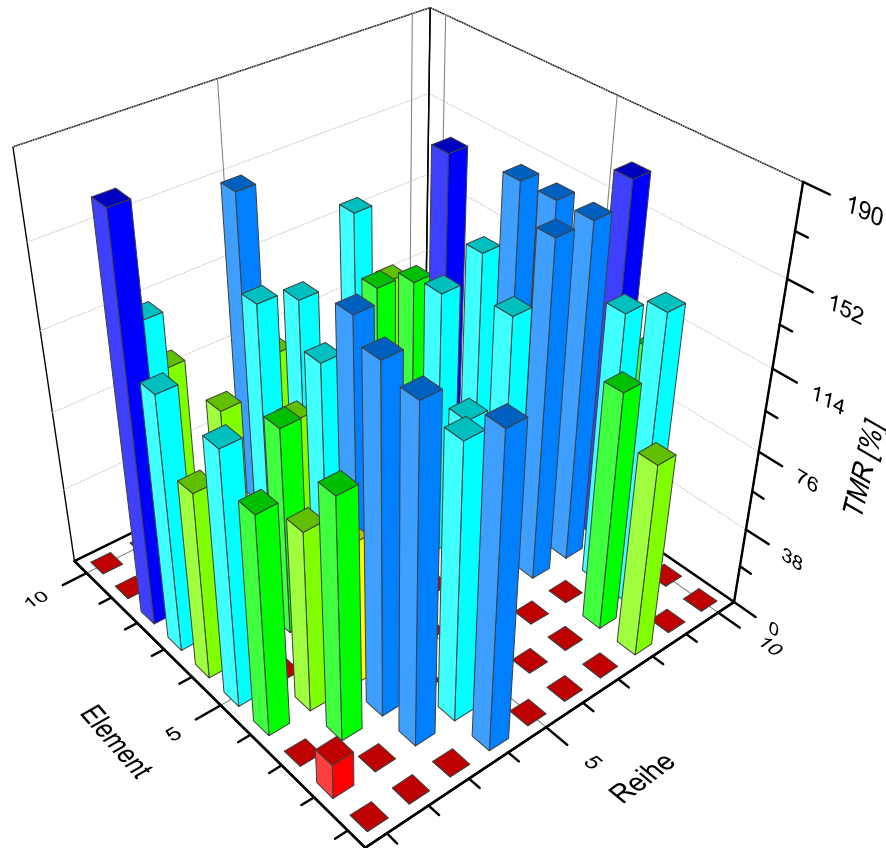
**Abbildung 4.11.:** Widerstände der einzelnen Tunnelkontakte der Probe vz101013b. Eine Charakterisierung wurde nur durchgeführt, falls der Tunnelstrom unterhalb von  $1\ \mu\text{A}$  lag.

In Abbildung 4.12 ist der TMR-Wert aller Tunnelkontakte der Probe vz101013b aufgetragen. Bei dieser Probe zeigte sich trotz des inhomogen verteilten Widerstands eine relativ ausgeglichene Verteilung der TMR-Werte. Auffällig ist, dass weiterhin etwa die Hälfte aller Tunnelkontakte einen Tunnelstrom über  $1\ \mu\text{A}$  hatten. Dies spricht dafür, dass entweder die Tunnelbarriere defekt oder die Isolatorschicht nicht vollständig isolierend ist. Letzteres wäre auf die unsaubere Entwicklung zurückzuführen und würde möglicherweise durch erneute Anpassung der Entwicklungsparameter oder frischen E-Beam-Lack vermeidbar sein.

Die Messungen der ersten Probenhälfte vz101013a zeigten bei den optisch strukturierten Tunnelkontakten einen Widerstand zwischen 6 und  $10\ \text{k}\Omega$ , im gewichteten Mittel  $(7 \pm 2)\ \text{k}\Omega$ . Die TMR-Werte lagen mit  $(200 \pm 10)\%$  deutlich über den ermittelten Werten. Interessant wäre ein direkter Vergleich zwischen einer per Elek-

#### 4. Ergebnisse und Diskussion

tronenstrahlolithographie und einer optisch strukturierten Probe gewesen. Allerdings hatten die während der Bearbeitungszeit präparierten Proben nur einen geringen TMR, sodass auf diese alten Proben zurückgegriffen werden musste.



**Abbildung 4.12.:** Verteilung des TMR-Effektes auf der Probe vz101013b.

Abschließend lässt sich feststellen, dass die per Elektronenstrahlolithographie strukturierten Proben ein von der Probengeometrie abhängiges Schaltverhalten zeigen. Die Schaltkurven wurden auf unterschiedlichen Proben reproduziert, sodass dieses Verhalten nicht von der Probe abhängig sein kann. Der TMR-Effekt blieb unter den zuvor gemessenen Werten der zuvor strukturierten Probenhälfte, sodass durch Herunterskalieren der Kontaktgröße (bisher) keine Steigerung des TMR-Effektes ermittelt werden konnte.

## 5. Zusammenfassung und Ausblick

Ziel dieser Arbeit war es, einen Strukturierungsprozess zu erarbeiten, der es ermöglicht, per Elektronenstrahlithographie magnetische Tunnelkontakte zu erzeugen.

Der in Abschnitt 4.3 vorgestellte Prozess bietet die Strukturierung von Tunnelkontakten durch optische Lithographie und Elektronenstrahlithographie. Die fertigen Proben können anschließend per Vierpunktkontaktierung in der Probestation oder gebondet anderweitig charakterisiert werden. Per Elektronenstrahlithographie wurden erfolgreich MTJs mit einer Strukturgröße von bis zu 100 nm und verschiedenen Achsverhältnissen erzeugt und anschließend vermessen. Dabei zeigte sich, dass ein dem Achsverhältnis entsprechend unterschiedliches Schaltverhalten auf unterschiedlichen Proben zu beobachten war.

Die kleinsten geschriebenen Strukturen hatten eine Größe von  $50 \times 100 \text{ nm}^2$ . Mit diesen Strukturen wurden allerdings keine Tunnelkontakte erzeugt. Dies würde eine Anpassung der Tunnelbarriere erfordern. Die im Rahmen dieser Arbeit strukturierten Proben stammten aus dem Oktober 2010 und besaßen den in Abbildung 3.1 gezeigten Aufbau. Auf die alten Proben musste zurückgegriffen werden, da die während der Bearbeitungszeit präparierten Proben nicht charakterisiert werden konnten.

Weiteres Potential für kleinere Strukturen bietet die Punktbelichtung. Hiermit ist die Reduktion der Strukturgröße in den Bereich von 20 bis 30 nm möglich. Allerdings würde die Form hierbei auf Punkte beschränkt bleiben. Um die Auflösung zu erhöhen, müsste jedoch zuvor die Lackdicke reduziert werden. Gegebenenfalls könnte hierfür auch auf frischen Lack gewechselt werden. Jedoch ist zu beachten, dass hiernach alle bestimmten Parameter neu ermittelt werden müssten. Weiterhin kann die Eigenschaft, dass eine problemlose Belichtung auch trotz der Einwirkung des Umgebungslichtes am REM möglich ist, verloren gehen. Ebenso könnte dann Haftvermittler erforderlich sein, da der verringerte Lösungsmittelanteil die Viskosität verringert und die Haftung des Lacks erhöht hat. Der Vermittler würde in diesem Fall den Halt des Resistes auf der Oberfläche erhöhen.

Für die 30 nm Siliziumoxidschicht wurde ein funktionierender Prozess aufgestellt.

## 5. Zusammenfassung und Ausblick

Die Messung der Siliziumoxid-Ätzrate ergab 2,2 nm/min. Für eine 40 nm Isolatorschicht müssen mit der Chrom- und Goldkontaktschicht 18:40 Minuten geätzt werden. Eine Möglichkeit, auf die Bestimmung der Ätzraten zu verzichten, bietet das Massenspektrometer-gesteuerte Ätzen. Hierbei wird an eine Ätzkammer eine weitere Turbopumpe angeschlossen, die in der Umgebung des abgesputterten Materials pumpt und dieses zur Analyse an das Massenspektrometer führt. Durch die Massenspektren kann genau darauf geschlossen werden, welches Material aktuell abgetragen wird. In diesem Fall würde eine Veränderung der Raten nicht ins Gewicht fallen, da jederzeit bekannt ist, welche Schichten abgetragen werden.

Auf den zur TMR-Messung hergestellten Proben stellte die Ungenauigkeit der Stagepositionierung kein Problem dar. Die Tunnelkontakte wurden stets auf das untere, bereits strukturierte Bondpad geschrieben. Allerdings variierte auf diesem die Position. Für optische Messungen ist es hingegen erforderlich, dass sich der Tunnelkontakt exakt an der vorhergesehenen Stelle befindet. Die Steuerung der Stage am LEO-REM hatte hier eine Abweichung von der vorgegebenen Position von bis zu 20  $\mu\text{m}$  gezeigt. Auffällig war, dass die Abweichung umso größer wurde, je weiter man sich von dem gesetzten Ursprung entfernte. Diese Ungenauigkeit ist bauartbedingt und lässt sich nicht vermeiden. Die Kontakte dennoch mit der größtmöglichen Präzision zu schreiben, würde den Wechsel der Lithographie an die E-Line der Röntgenphysik erfordern. Hier wird die Position der Stage per Laserinterferometer kontrolliert und somit eine vielfach höhere Präzision erreicht.

# A. Anhang

## A.1. Positionslisten zur Elektronenstrahlolithographie

Alle Positionen sind relativ zum inneren Rand! Die Justierkreuze liegen bei A: (1,495;0,495 mm), B: (0,495;7,845 mm), C: (7,845;7,975 mm), D: (7,975;1,495 mm).

	<b>R1</b>		<b>R2</b>		<b>R3</b>		<b>R4</b>		<b>R5</b>	
U/V [mm]	U	V	U	V	U	V	U	V	U	V
<b>E1</b>	1,1	1,1	1,8	1,1	2,5	1,1	3,2	1,1	3,9	1,1
<b>E2</b>	1,1	1,8	1,8	1,8	2,5	1,8	3,2	1,8	3,9	1,8
<b>E3</b>	1,1	2,5	1,8	2,5	2,5	2,5	3,2	2,5	3,9	2,5
<b>E4</b>	1,1	3,2	1,8	3,2	2,5	3,2	3,2	3,2	3,9	3,2
<b>E5</b>	1,1	3,9	1,8	3,9	2,5	3,9	3,2	3,9	3,9	3,9
<b>E6</b>	1,1	4,6	1,8	4,6	2,5	4,6	3,2	4,6	3,9	4,6
<b>E7</b>	1,1	5,3	1,8	5,3	2,5	5,3	3,2	5,3	3,9	5,3
<b>E8</b>	1,1	6	1,8	6	2,5	6	3,2	6	3,9	6
<b>E9</b>	1,1	6,7	1,8	6,7	2,5	6,7	3,2	6,7	3,9	6,7
<b>E10</b>	1,1	7,4	1,8	7,4	2,5	7,4	3,2	7,4	3,9	7,4
	<b>R6</b>		<b>R7</b>		<b>R8</b>		<b>R9</b>		<b>R10</b>	
U/V [mm]	U	V	U	V	U	V	U	V	U	V
<b>E1</b>	4,6	1,1	5,3	1,1	6	1,1	6,7	1,1	7,4	1,1
<b>E2</b>	4,6	1,8	5,3	1,8	6	1,8	6,7	1,8	7,4	1,8
<b>E3</b>	4,6	2,5	5,3	2,5	6	2,5	6,7	2,5	7,4	2,5
<b>E4</b>	4,6	3,2	5,3	3,2	6	3,2	6,7	3,2	7,4	3,2
<b>E5</b>	4,6	3,9	5,3	3,9	6	3,9	6,7	3,9	7,4	3,9
<b>E6</b>	4,6	4,6	5,3	4,6	6	4,6	6,7	4,6	7,4	4,6
<b>E7</b>	4,6	5,3	5,3	5,3	6	5,3	6,7	5,3	7,4	5,3
<b>E8</b>	4,6	6	5,3	6	6	6	6,7	6	7,4	6
<b>E9</b>	4,6	6,7	5,3	6,7	6	6,7	6,7	6,7	7,4	6,7
<b>E10</b>	4,6	7,4	5,3	7,4	6	7,4	6,7	7,4	7,4	7,4

Tabelle A.1.: Positionen der Schreibfelder auf den Bondpads.

## A.2. Kurzanleitung Probenprozessierung

### Strukturierung des unteren Bondpads

- vollflächiges Schichtsystem mit Aceton und Propanol reinigen
- 2 Minuten Hotplate bei 85°C
- Spincoater (Programm AGMUENZE) für 60 s bei 6000 U/min mit AR-N 4240
- 2 Minuten Hotplate bei 85°C
- 5 s Belichten mit 320 nm und 30 mW/cm<sup>2</sup> im Modus CH1
- 2 Minuten Hotplate bei 85°C
- 75 s entwickeln in AR 300-47, spülen in deionisiertem Wasser und N<sub>2</sub> trocknen
- Argon-Ätzen für 20 Minuten bei 450 W und 9 sccm Argonfluss
- 90 Minuten Liftoff in Isopropanol im Ultraschallbad Stufe 2
- Spülen in deionisiertem Wasser und N<sub>2</sub> trocknen

### Elektronenstrahlolithographie

- vollflächiges Schichtsystem mit Aceton und Propanol reinigen
- 2 Minuten Hotplate bei 85°C
- Spincoater 60 s bei 4000 U/min mit AR-N 7520.18
- 2 Minuten Hotplate bei 85°C
- Belichten im REM
- 2 Minuten Hotplate bei 85°C
- 60 s entwickeln in 4:1 AR 300-47, spülen in deionisiertem Wasser und N<sub>2</sub> trocknen
- Argon-Ätzen für 8:30 Minuten bei 450 W und 9 sccm Argonfluss
- Aufdampfen von 40 nm Siliziumoxid
- mindestens 60 Minuten Liftoff in AR 300-70 im auf 80°C vorgeheizten Ultraschallbad Stufe 2

### Strukturierung des oberen Bondpads

- Aufdampfen von 5 nm Chrom und 20 nm Gold
- Spincoater 60 s bei 6000 U/min mit AR-N 4240
- 2 Minuten Hotplate bei 85°C
- 5 s Belichten mit 320 nm und 30 mW/cm<sup>2</sup> im Modus CH1
- 2 Minuten Hotplate bei 85°C
- 75 s entwickeln in AR 300-47, spülen in deionisiertem Wasser und N<sub>2</sub> trocknen
- Argon-Ätzen für 18:42 Minuten bei 450 W und 9 sccm Argonfluss
- 90 Minuten Liftoff in Isopropanol im Ultraschallbad Stufe 2
- Spülen in deionisiertem Wasser und N<sub>2</sub> trocknen

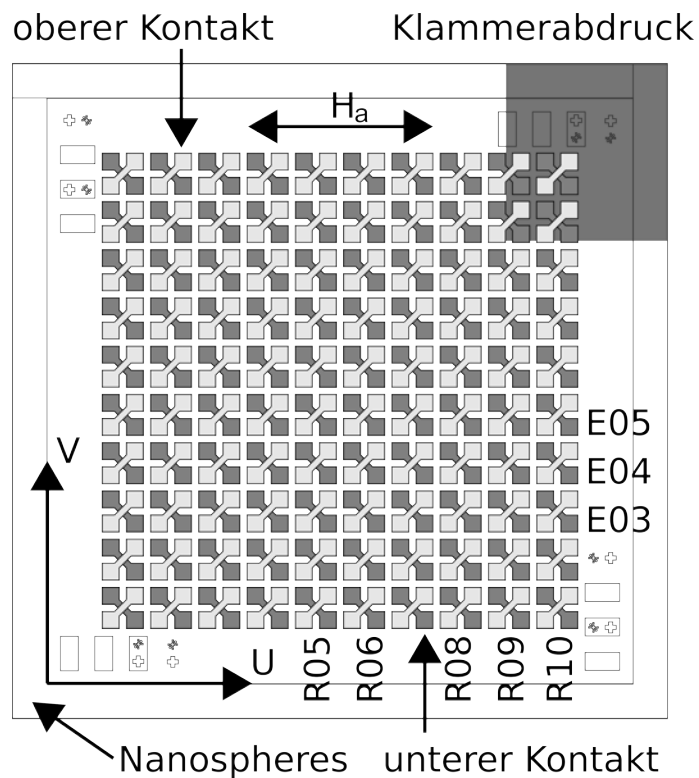


Abbildung A.1.: Verwendete Strukturierungskonventionen.

### A.3. Kurzanleitung Elektronenstrahlolithographie

- Substrat mit unteren Bondpads strukturieren und belackten
- Anmelden am REM, Kammer belüften
- Einbauen des Substrates auf den Lithographiehalter
- Auftragen der Nanospheres (dem Klammerabdruck gegenüberliegend)
- Einbauen in das REM, Abpumpen, Initialisieren der Stage
- Laden der Position *FaradayCup\_WD5\_Christian*
- grobes Fokussieren auf den FaradayCup mit 30  $\mu\text{m}$  Blende
- Starten des Programms Raith-Rem-Com und öffnen des Ports 4
- Anschalten der Elphy-Einheit und anschließend des Rechners
- Überprüfen ob der Schalter auf Raith steht
- Anmelden am Lithographierechner und Messen des Strahlstroms
- Fokussieren anhand der Nanospheres
- Setzen des UV-Koordinatensystems
- Berechnen der Belichtungswerte
- Schreiben der Justierkreuze (Schreibfeld: *Christian\_500er\_WD5\_300x*)
- (ggf.) Wechsel der Blende, erneute Strahlstrommessung mit erneutem Fokussieren, Apertur- und Stigmatorkorrektur
- Berechnung der Belichtungsparameter für den neuen Strahlstrom
- Schreiben der MTJs (Schreibfeld: *Christian\_25er\_WD5\_3kx*)
- Wenn Strahl definitiv aus, Port 4 schließen, Raith-Computer ausschalten, Elphy-Einheit ausschalten, REM belüften und Probe ausbauen



### A.3.1. Schreibfeldkalibrierung

- Einbauen des Substrates *Chessy*
- Abpumpen, Laden der Faradaycup-Position und Fokussieren auf dem Schachfeldmuster
- unter Magnification Control Schreibfeld wählen und Vergrößerung anpassen
- File: New image, Bild einmalig einlesen (Tastkleiste)
- Laden der Positionsliste *align\_fein\_\*.pls*
- Scan: All. Die Eckpunkte des Schreibfeldes werden abgerastert. Hierbei müssen die Eckpunkte (nicht die Mittelpunkte!) die Größenmarkierungen des Chessy-Musters berühren.
- Neue Parameter übernehmen
- unter *writefield alignment* die Werte Shift und Rotate negativ in das Eingabefeld tippen und calculate drücken. Nur die Zoomwerte bleiben erhalten.
- Send und unter *Microscope Control* die neuen Werte sichern
- Soll ein neues Schreibfeld erzeugt werden, wird zuvor unter *Microscope Control* eine neue Schreibfeldgröße und die zugehörige Vergrößerung eingestellt. Hierbei muss die künftige Schreibfeldgröße etwa ein Drittel des sichtbaren Bereichs einnehmen.

### A.3.2. Justage des UV-Koordinatensystems

- im REM: Anzeigen des *Crosshairs*
- Positionieren des Ursprungs
- Rait: Adjust UVW: Origin Correction: Adjust
- Angle Correction: erster Punkt: Read
- REM per Joystick entlang der U-Achse verfahren
- Angle Correction: zweiten Punkt einlesen: Read

## A.4. Probenübersicht

Im Rahmen dieser Arbeit und des Spezialisierungspraktikums wurden folgende Proben hergestellt, strukturiert und charakterisiert:

Datum	Probe	Zweck / Struktur	Ergebnis
04.11.10	jl-eb1-t1-1	Entwicklungszeit (Pillar)	Stepsize zu groß, Entwicklungszeit: 60s (4:1) gut
04.11.10	jl-eb1-t1-2	Entwicklungszeit (Pillar)	Stepsize zu groß, Entwicklungszeit: 90s (4:1) zu lang
04.11.10	jl-eb1-t1-3	Entwicklungszeit (Pillar)	Stepsize zu groß, Entwicklungszeit: 120s (4:1) viel zu lang (keine Lack vorhanden)
17.11.10	jl-eb1-t2-1	Entwicklungszeit (Ellipsen, Justierkreuz)	Entwicklungszeit: 40s (2:1) zu kurz, Nachentwickeln 40s funktioniert nicht
17.11.10	jl-eb1-t2-2	Entwicklungszeit (Ellipsen, Justierkreuz)	Entwicklungszeit: 50s (2:1) zu kurz
17.11.10	jl-eb1-t2-3	Entwicklungszeit (Ellipsen, Justierkreuz)	Entwicklungszeit: 80s (2:1) zu kurz
17.11.10	jl-eb1-t2-4	Entwicklungszeit (Ellipsen, Justierkreuz)	Entwicklungszeit: 100s (2:1) zu kurz, Entwicklungsmischung 2:1 zu schwach!
19.11.10	jl-eb1-t2-5	Entwicklungszeit (Ellipsen, Justierkreuz)	Entwicklungszeit: 30s (4:1) zu kurz, Entwicklungsmischung 4:1 gut!
19.11.10	jl-eb1-t2-6	Entwicklungszeit (Ellipsen, Justierkreuz)	Entwicklungszeit: 40s (4:1) zu kurz, wenig Resist noch auf der Probe
03.12.10	jl-eb1-t3-1	Dosistest (Rechtecke, $2,5 \times 5 \mu\text{m}$ )	Entwicklungszeit: 80s (4:1) zu lang, Aperturblende $10 \mu\text{m}$ für gute Stepsize
03.12.10	jl-eb1-t3-2	Dosistest (Rechtecke, $2,5 \times 5 \mu\text{m}$ )	Entwicklungszeit: 60s (4:1) gut, Dosisfaktor: 1,3 Aperturblende $10 \mu\text{m}$ für kleine Stepsize

Datum	Probe	Zweck / Struktur	Ergebnis
09.12.10	jl-eb1-t4-1 jl-eb1-t4-2	Reproduktion Dosistest (Rechtecke, $2,5 \times 5 \mu\text{m}$ )	60s entwickeln + Aperturblende $10 \mu\text{m}$ !
12.01.11	jl-eb1-t5-1 jl-eb1-t5-2 jl-eb1-t5-3	Dosistest/ Downscaling $5 \times 2,5 \mu\text{m}$ ; $3,5 \times 1,75 \mu\text{m}$ ; $2 \times 1 \mu\text{m}$ ; $1 \times 0,5 \mu\text{m}$ ; $750 \times$ $375 \text{ nm}$ ; $500 \times 250 \text{ nm}$ ; $250 \times 125 \text{ nm}$ ; $100 \times 50 \text{ nm}$	8 nm Stepsize (ca. 40nm Strukturgröße) mit $7,5 \mu\text{m}$ Blende möglich! Strukturen nur bis $250 \times 125 \text{ nm}$ vorhan- den, Dosis zu gering! → Dosis stärker variieren!
24.02.11	jl-eb1-t6	Dosistest/ Downscaling ( $750 \times 375 \text{ nm}$ ; $500 \times$ $250 \text{ nm}$ ; $250 \times 125 \text{ nm}$ ; $200 \times 100 \text{ nm}$ ; $150 \times$ $75 \text{ nm}$ ; $100 \times 50 \text{ nm}$ )	DF=1,2,3...19-fach $25 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ , grobe Be- stimmung: $750 \times 375 \text{ nm}$ : $100 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ ; $500 \times 250 \text{ nm}$ : $100 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ ; $250 \times 125 \text{ nm}$ : $200 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ ; $200 \times 100 \text{ nm}$ : $250 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ ; $150 \times 75 \text{ nm}$ : $350 \mu\text{C}/\text{cm}^2$ ; $100 \times 50 \text{ nm}$ : $400 \mu\text{C}/\text{cm}^2$
25.02.11	jl-eb1-t7	Reproduktion von jl-eb1- t6, Stepsizetest	8 nm Stepsize, 0,009 nA Be- amcurrent
27.02.11	jl-eb1-t7-2	Reproduktion/ Dosistest	(Ergebnisse für Dresden)
28.02.11	jl-eb1-t7-3	Ätztest/ Liftoff	Resist widersteht 11 Minuten Ar-Ätzen, noch ca. 200 nm Resist (8-9 Minuten benötigt), Liftoff 30 min @ $60^\circ\text{C}$ USB Stufe 2 funktioniert, (ob Lack abgetragen nicht am REM zu beurteilen, später: weni- ger $\text{SiO}_2$ , daher dann nochmal überprüfen ob Lack ordentlich abgetragen)
01.03.11	jl-eb1-t8-1 jl-eb1-t8-2	Prozesstest (+ $\text{SiO}_2$ , Lif- toff)	Ätzen klappt, 100nm $\text{SiO}_2$ auftragen klappt, Dektak: Peaks am Übergang zur MTJ → Ultraschall stärker?

A. Anhang

Datum	Probe	Zweck / Struktur	Ergebnis
16.05.11	mm110406	Justierkreuze testen	Fehlgeschlagen, keine Strukturen erkennbar
24.05.11 25.05.11	jl-ebl-t9a jl-ebl-t9b jl-ebl-t9c	Justierkreuze/ erzeugtes 500er Schreibfeld testen	Position kann nur als Mittelpunkt des Schreibfeldes angegeben werden! Größe des Justierkreuzes passt nicht.
24.03.11 11.04.11	mw110323 jl110411 mm110406	MTJ-Proben für E-Beam-Tests	Zu hoch annealed / zeigt keinen TMR, Barriere im TEM ok / zeigt keinen TMR
25.03.11	jl110322a jl110322b jl110322c jl110322d	Widerstandsproben für 25/45/60/75 nm SiO <sub>2</sub> -Schichten, Ätzzeiten für BP-Strukturierung	Keine stabilen Signale, Widerstand am Keithley nur per 4-Punkt-Messung verlässlich, 30nm: $R > 200M\Omega$
03.05.11	jl110503	Reproduktion jl110322	Obere Kontaktschicht abgelöst
10.05.11	mw110509b	Bondpads + Square 1	Prozess läuft mit 30nm SiO <sub>2</sub> , MTJs länger ätzen
19.05.11	jl110503b	Ätzdauer 42nm SiO <sub>2</sub>	6:50 Minuten ätzen
20.05.11	jl110520	Widerstandsproben, Reproduktion	Fehlgeschlagen, erneut obere Kontaktschicht abgelöst
30.05.11	vz101015b	Bondpads + E-Beam, 42nm Isolator	Fehlgeschlagen, unteres Bondpad nicht kontaktierbar, wahrscheinlich zu tief geätzt (EDX: kein Ta/Co/Fe)
02.06.11	jl-ebl-t8-3	Justierkreuze justieren	Writefield alignment justiert, Größen passen
03.06.11	vz101018b	E-Beam Ellipsen (5:1 bis 1:1, Kurze Achse: 500 nm/1 $\mu$ m, 30nm SiO <sub>2</sub>	SiO <sub>2</sub> (vmtl.) auf unterem BP, dennoch problemlos kontaktierbar, Prozess läuft!

Datum	Probe	Zweck / Struktur	Ergebnis
09.06.11	jl110609a, jl110609b, jl110609c, jl110609d, jl110609e, jl110609f	5nm Cr, 40nm SiO <sub>2</sub> , 5nm Cr, 20nm Au	Ätzrate thermisch verdampftem SiO <sub>2</sub> bestimmen, Werte nicht vergleichbar, Rate bei 2,2 nm/min, bisher nie tief genug geätzt! Für 40nm SiO <sub>2</sub> 18:42 Min ätzen
22.06.11	mm110615b, mm110601b, mm110620b, mw110617b	Strukturieren via E-Beam	a-Hälften zeigen kaum TMR, weitere Strukturierung abgebrochen
28.06.11	vz101018d, vz101019b, vz101013b	Strukturieren via E-Beam 100 nm & 500 nm, 40 nm SiO <sub>2</sub> mit neuer Ätzrate testen	Entwicklung relativ unsauber, Problemlos charakterisierbar, gute Ergebnisse



# Literaturverzeichnis

- [1] JULLIÈRE, M.: Tunneling between ferromagnetic films. In: *Physics Letters A* 54 (1975), Nr. 3, S. 225–226. – ISSN 0375–9601
- [2] MOODERA, J. S. ; KINDER, L. R. ; WONG, T. M. ; MESERVEY, R.: Large Magnetoresistance at Room Temperature in Ferromagnetic Thin Film Tunnel Junctions. In: *Physical Review Letters* 74 (1995), Apr, Nr. 16, S. 3273–3276
- [3] IKEDA, S. ; HAYAKAWA, J. u. a.: Tunnel magnetoresistance of 604% at 300 K by suppression of Ta diffusion in CoFeB/MgO/CoFeB pseudo-spin-valves annealed at high temperature. In: *Applied Physics Letters* 93 (2008), 8, Nr. 8. – ISSN 0003–6951
- [4] BAIBICH, M. N. ; BROTO, J. M. ; FERT, A. u. a.: Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices. In: *Physical Review Letters* 61 (1988), Nr. 21, S. 2472–2475
- [5] BINASCH, G. ; GRÜNBERG, P. ; SAURENBACH, F. ; ZINN, W.: Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. In: *Physical Review B* 39 (1989), Nr. 7, S. 4828–4830
- [6] SLAUGHTER, J. M. ; DAVE, R. W. u. a.: Fundamentals of MRAM Technology. In: *Journal of Superconductivity* 15 (2002), S. 19–25. – ISSN 0896–1107
- [7] SCHÖNHAMMER, K.: *Quantenmechanik I*, Georg-August-Universität Göttingen, Vorlesungsskript, 2011
- [8] MOODERA, J. S. ; MATHON, G.: Spin polarized tunneling in ferromagnetic junctions. In: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 200 (1999), S. 248–273
- [9] SLONCZEWSKI, J. C.: Conductance and exchange coupling of two ferromagnets separated by a tunneling barrier. In: *Physical Review B* 39 (1989), Apr, Nr. 10, S. 6995–7002

- [10] BRATKOVSKY, A. M.: Tunneling of electrons in conventional and half-metallic systems: Towards very large magnetoresistance. In: *Phys. Rev. B* 56 (1997), Aug, Nr. 5, S. 2344–2347
- [11] YUASA, S. ; DJAYAPRAWIRA, D.D.: Giant tunnelmagnetoresistance in magnetic tunnel junctions with a crystalline MgO barrier. In: *Journal of Physics D: Applied Physics* 40 (2007), 10, Nr. 21, S. R337–R354
- [12] BUTLER, W. H.: Tunneling magnetoresistance from a symmetry filtering effect. In: *Science and Technology of Advanced Materials* 9 (2008), Nr. 1, S. 014106
- [13] BERGER, L.: Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current. In: *Physical Review B* 54 (1996)
- [14] SLONCZEWSKI, J. C.: Current-driven excitation of magnetic multilayers. In: *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 159 (1996)
- [15] SLAUGHTER, J. M.: Materials for Magnetoresistive Random Access Memory. In: *Annual Review of Materials Research* 39 (2009), S. 277–296. – ISSN 1531–7331
- [16] WAIN TAL, Xavier ; MYERS, Edward B. ; BROUWER, Piet W. ; RALPH, D. C.: Role of spin-dependent interface scattering in generating current-induced torques in magnetic multilayers. In: *Phys. Rev. B* 62 (2000), Nov, Nr. 18, S. 12317–12327
- [17] KREBS, H.-U.: *Dünne Schichten*, Georg-August-Universität Göttingen, Vorlesungsskript, 2011
- [18] EILERS, G.: *Grundlegende Untersuchungen zu Tunnelmagnetowiderstandselementen: Schichtrauigkeit, Tunnelbarriere und mikromagnetische Simulationen*, Georg-August-Universität Göttingen, Diplomarbeit, 2004
- [19] S. YUASA, Y. Suzuki T. K. ; ANDO, K.: Characterization of growth and crystallization processes in CoFeB/MgO/CoFeB magnetic tunnel junction structure by reflective high energy electron diffraction. In: *Applied Physics Letters* 87 (2005), S. 242502
- [20] ZBARSKY, V.: *Charakterisierung und Optimierung der magnetischen Tunnel-elemente*, Georg-August-Universität Göttingen, Diplomarbeit, 2011



- [21] UBBEN, K.: *Strukturierung von CoFeB/MgO/CoFeB-Tunnelmagnetowiderstands-Elementen*, Georg-August-Universität Göttingen, Diplomarbeit, 2009
- [22] *Kapitel 9: Lithography*. In: WASER, R. (Hrsg.): *Nanoelectronics and Information Technology. Advanced Electronic Materials and Novel Devices*. 1. Wiley-VCH, 2003. – ISBN 9783527403639
- [23] BRAUN, H.-G.: *Electron beam lithography*, Leibniz-Institut für Polymerforschung Dresden, Manuskript, 2008
- [24] RAITH GMBH: *Software Manual for Elphy Plus System Version 3.00*, Handbuch, 2002
- [25] CARL ZEISS NTS GMBH: *Handbuch für die Rasterelektronenmikroskope SUPRA(VP) und ULTRA*, Handbuch, 2004
- [26] WALTER, M.: *Untersuchung der Transporteigenschaften von CoFeB | MgO | CoFeB-Tunnelmagnetowiderstandselementen*, Georg-August-Universität Göttingen, Diplomarbeit, 2009
- [27] BORZENKO, T. ; FRIES, P. u. a.: A process for the fabrication of large areas of high resolution, high aspect ratio silicon structures using a negative tone Novolak based e-beam resist. In: *Microelectronic Engineering* 86 (2009), S. 726–729
- [28] ALLRESIST GMBH: *Negativ-E-Beam Resists für mix & match AR-N 7500 und AR-N 7520*, Datenblatt, 2009



# Danksagung

Abschließend möchte ich an dieser Stelle all denjenigen danken, die mich dabei unterstützt haben diese Arbeit zu verfassen:

- Prof. Dr. Markus Münzenberg für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe, für die Möglichkeit diese Arbeit zu verfassen, und für die mir gewährten Freiheiten während der Arbeit
- Prof. Dr. Vasily Moshnyaga für die Übernahme des Korreferates
- Marvin Walter für seine umfassende Betreuung
- der Spingroup, insbesondere Gerrit Eilers und Vladyslav Zbarsky für unermüdlige Hilfestellung während der Probenherstellung sowie für die angenehme Arbeitsatmosphäre

Für die Geräteeinweisungen sowie ständige Offenheit meinen zahlreichen Rückfragen gegenüber möchte ich Dennis Bedorf, Christian Denker, Uta Filippich, Jochen Herbst, Antje Krüger und Dr. Jörg Malindretos herzlich danken.

Schießlich möchte ich meinen Eltern für die besondere Unterstützung in den vergangenen drei Jahre danken.

**Erklärung** nach §13(8) der Prüfungsordnung für den Bachelor-Studiengang Physik und den Master-Studiengang Physik an der Universität Göttingen:

Hiermit erkläre ich, dass ich diese Abschlussarbeit selbständig verfasst habe, keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe und alle Stellen, die wörtlich oder sinngemäß aus veröffentlichten Schriften entnommen wurden, als solche kenntlich gemacht habe.

Darüberhinaus erkläre ich, dass diese Abschlussarbeit nicht, auch nicht auszugsweise, im Rahmen einer nichtbestanden Prüfung an dieser oder einer anderen Hochschule eingereicht wurde.

Göttingen, den 22. August 2011

(Johannes Christian Leutenantsmeyer)