
Aufbau, Struktur und Eigenschaftsprofile von Viellagenschichtsystemen aus Tantal- oder Titannitriden mit Eisenkobaltlagen

Zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Ingenieurwissenschaften

der Fakultät für Maschinenbau
Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

genehmigte
Dissertation

von

Dipl.-Phys. Christian Klever

aus Eschweiler

Tag der mündlichen Prüfung: 14. Februar 2012

Hauptreferent: Prof. Dr.-Ing. Karl-Heinz Zum Gahr

Korreferent: Prof. Dr.-Ing. Volker Schulze

Kurzfassung

Im Mittelpunkt der Forschungsarbeiten stand die Entwicklung von Verschleißschutzschichten mit einer integrierten Sensorfunktionalität. Ziel war es hierbei, eine fernabfragbare Messung von dem Abtrag, der Temperatur und dem Verspannungszustand der Verschleißschutzschichten zu ermöglichen. Der in dieser Arbeit verfolgte Ansatz hierfür bestand in der Herstellung von Viellagenschichten aus Hartstoff- und ferromagnetischen Funktionslagen.

Viellagenschichten aus den Hartstoffen TaN oder TiN und dem ferromagnetischen Werkstoff FeCo wurden mit Gleichstrom-Magnetronkathodenzerstäubung abgeschieden. Alle Schichten wurden mit Gesamtschichtdicken von 1 μm hergestellt und bestanden aus bis zu 781 Lagen. Durch die Variation der Lagenzahlen, der Depositionszeiten unter jedem Target und von Prozessparametern wurden der Viellagenaufbau und das Schichtwachstum systematisch verändert. Die Herstellung der Schichten erfolgte hierbei unter Verwendung von stöchiometrischen TaN-, TiN- und FeCo-Targets in Ar- und Ar/N₂-Prozessgasatmosphäre.

Im Anschluss an ihre Herstellung wurden alle Viellagenschichtsysteme unter Vakuum bei gleichzeitig angelegtem Magnetfeld gegläht, um Gitterbaufehler auszuheilen und eine uniaxiale ferromagnetische Anisotropie in der Schichtebene einzuprägen. Die Viellagenschichten wurden bezüglich ihrer chemischen Zusammensetzung, ihres Viellagenaufbaus, ihrer Konstitution und ihres Gefüges sowie ihrer mechanischen und magnetischen Eigenschaften charakterisiert.

Die beste Kombination mechanischer und magnetischer Eigenschaften wurde bei FeCo/TiN-Viellagenschichten mit geringen Doppellagendicken erreicht. Bei einer Doppellagendicke von 2,6 nm und einem FeCo-Volumenanteil von 25 % wies das Schichtsystem auch nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C eine Härte auf, die mit $(25,2 \pm 4,4)$ GPa höher war als die der ungeglühten Schicht, und die hiermit die Härte einer TiN-Einlagenschicht deutlich übertraf. Gleichzeitig war dieses Schichtsystem mit einer Koerzitivfeldstärke von 0,22 mT sehr weichmagnetisch, und es wies, bezogen auf den ferromagnetischen Materialanteil, eine beträchtliche Netto-Anfangspermeabilität von 560 auf. Die Netto-Sättigungspolarisation entsprach, trotz der 780 Lagengrenzflächen bei 1 μm Gesamtschichtdicke, mit 2 T nahezu dem mit einer FeCo-Einlagenschicht erreichten Wert. Es wurde nachgewiesen, dass die beschriebene Eigenschaftskombination mit lokalem heteroepitaktischem Wachstum stark (200)-texturierter, säulenförmiger Kristallite einherging. Unterhalb einer kritischen FeCo-Lagendicke waren hierbei TiN-Lagen abwechselnd mit (Fe,Co,Ti)N-Substitutionsmischkristalllagen in einer metastabilen kfz-Kristallstruktur geschichtet. Das Wachstum der Viellagenschichten in dieser neuartigen Mikrostruktur konnte durch ergänzende Experimente auf den kinetischen Energieeintrag während des Schichtwachstums zurückgeführt werden.

Mit im Rahmen eines Kooperationsprojektes durchgeführten Experimenten konnte beispielhaft demonstriert werden, dass die entwickelten Schichtsysteme für die Nutzung als berührunglos abfragbare Sensoren geeignet sind. Aufgrund der gleichzeitig vorliegenden mechanischen Eigenschaften bieten sie sich daher für eine Nutzung als fernabfragbare Verschleißschutzschichten an.

Abstract

Aim of this work was the development of multilayer coatings combining wear resistance and ferromagnetic functional properties. The integration of a ferromagnetic material into a state-of-the-art hard material thin film could then allow for the contact-less real-time online monitoring of the thin films' conditions, such as, for instance, wear, temperature, and strain. On base of material scientific fundamentals, the deposition of wear resistance coatings with integrated sensor functionality was investigated.

The approaches applied for this work had been the deposition of both FeCo/TaN- and FeCo/TiN-multilayer films by non-reactive and reactive DC magnetron sputter deposition using stoichiometric targets. Films with 1 μm thickness and up to 781 individual layers were fabricated. By systematically varying layer number and process parameters, both the multilayer design and the film growth were changed. Each multilayer film was vacuum annealed in a static magnetic field in order to induce a uniaxial ferromagnetic anisotropy in the film plane. The multilayer films were characterised with respect to their microstructure as well as to mechanical and magnetic properties.

The best property combination observed was obtained with FeCo/TiN-multilayer coatings with small bilayer periods Λ . At $\Lambda=2.6$ nm and an FeCo volume fraction of 0.25, the multilayer film showed a hardness of (25.2 ± 4.4) GPa after vacuum annealing at 600 °C while simultaneously exhibiting a coercive field as small as 0.22 mT. These properties were combined with both a considerable initial permeability of 560 and considerable saturation polarisation of 2 T despite the extremely high number of interfaces between individual layers.

It could be shown that the above-described best property combination was accompanied by the growth of metastable (Fe,Co,Ti)N individual layers in fcc structure and fcc-TiN individual layers in a hetero-epitaxial relationship, resulting in the formation of a columnar film structure with a strong (200) texture. The formation of the metastable (Fe,Co,Ti)N individual layers was caused by kinetical physical processes such as the impact of particles during film growth.

Exemplary experiments in the framework of a research cooperation could demonstrate that the multilayer films developed can be appropriate for the use as sensor films. In applications such as wear resistance coating or part of a complex coating system, wear, temperature, as well as strain state can be read out in real-time and in contact-less manner.

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungsverzeichnis.....	vii
Symbolverzeichnis	xi
1 Grundlagen.....	15
1.1 Motivation und Ansatz.....	15
1.2 Phänomenologische Beschreibung des Magnetismus	16
1.2.1 Statischer Magnetismus	16
1.2.1.1 Terminologie und Klassifizierung	16
1.2.1.2 Korngrößenabhängigkeit der Koerzitivfeldstärke.....	17
1.2.1.3 Magnetostriktion und Villari-Effekt.....	18
1.2.2 Ferromagnetismus in hochfrequenten Wechselfeldern.....	19
1.2.2.1 Terminologie.....	19
1.2.2.2 Ferromagnetische Resonanz und Dämpfung.....	20
1.3 Berührungslose Sensorik magnetischer Eigenschaften.....	21
1.4 Schichtwerkstoffe.....	22
1.4.1 Eisenkobalt (Fe-Co)	22
1.4.2 Tantalnitrid (Ta-N)	23
1.4.3 Titannitrid (Ti-N)	24
1.5 Dünnschichtherstellung mittels Magnetronkathodenzerstäubung.....	25
1.5.1 Prinzip und technische Realisierung der Magnetronkathodenzerstäubung.....	25
1.5.2 Schichtgefüge	27
1.6 Stand der Forschung.....	29
1.6.1 Multifunktionale Dünnschichtsysteme mit sensorischen und Verschleißschutzeigenschaften.....	29
1.6.2 Konzepte zur Echtzeiterfassung des Abtrags von Verschleißschutzschichten....	29
1.6.3 Viellagenschichten mit einstellbaren magnetischen Eigenschaften	30
1.6.4 Viellagenschichten mit einstellbaren mechanischen Eigenschaften.....	31
1.7 Zielsetzung und Vorgehensweise.....	33
2 Materialien und experimentelle Methoden	37
2.1 Herstellung der Proben	37
2.1.1 Konfiguration der verwendeten Beschichtungsanlage	37
2.1.2 Target- und Substratmaterialien, Substratvorbehandlung.....	37
2.1.3 Probenherstellung	38
2.1.4 Prozessbedingungen und Viellagenaufbau	39
2.1.5 Glühbehandlung im Magnetfeldofen.....	41
2.2 Methoden zur Analyse von chemischer Zusammensetzung, Viellagenaufbau, Mikrostruktur und Textur	42
2.2.1 Elektronenstrahlmikrosondenuntersuchung und Augerelektronenspektroskopie	42
2.2.2 Röntgendiffraktometrie und -reflektometrie.....	43
2.2.3 Transmissionselektronenmikroskopie.....	45
2.2.4 Rasterelektronenmikroskopie	46
2.3 Bestimmung der Gesamtschichtdicken	46
2.4 Messung mechanischer Eigenschaften.....	47
2.4.1 Härte und Elastizitätsmodul.....	47

2.4.2	Eigenspannung der Schichtsysteme	49
2.5	Charakterisierung der magnetischen Eigenschaften	50
2.5.1	Statische magnetische Eigenschaften.....	50
2.5.2	Dynamische magnetische Eigenschaften.....	51
3	Versuchsergebnisse	53
3.1	FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme	53
3.1.1	Stark unterstöchiometrische Zusammensetzung in den Hartstofflagen	53
3.1.1.1	Schichtaufbau.....	53
	Bruch- und Oberflächenbeschaffenheit	53
	Chemische Zusammensetzung und Viellagenaufbau.....	53
	Mikrostruktur und Textur	55
3.1.1.2	Mechanische Eigenschaften	56
3.1.1.3	Magnetische Eigenschaften.....	57
3.1.2	Leicht unterstöchiometrische Zusammensetzung in den Hartstofflagen	58
3.1.2.1	Schichtaufbau.....	59
	Bruch- und Oberflächenbeschaffenheit	59
	Chemische Zusammensetzung und Viellagenaufbau.....	60
	Mikrostruktur und Textur	61
3.1.2.2	Mechanische Eigenschaften	65
3.1.2.3	Magnetische Eigenschaften.....	68
3.1.3	Leicht überstöchiometrische Zusammensetzung in den Hartstofflagen	69
3.1.3.1	Schichtaufbau.....	69
	Bruch- und Oberflächenbeschaffenheit	69
	Chemische Zusammensetzung und Viellagenaufbau.....	70
	Mikrostruktur und Textur	72
3.1.3.2	Mechanische Eigenschaften	77
3.1.3.3	Magnetische Eigenschaften.....	78
3.2	FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme.....	80
3.2.1	Leicht unterstöchiometrische Zusammensetzung in den Hartstofflagen	80
3.2.1.1	Schichtaufbau.....	80
	Bruch- und Oberflächenbeschaffenheit	80
	Viellagenaufbau	81
	Chemische Zusammensetzung.....	82
	Mikrostruktur und Textur	83
3.2.1.2	Mechanische Eigenschaften	92
3.2.1.3	Magnetische Eigenschaften.....	94
3.2.2	Einfluss der Erhöhung des Stickstoffanteils.....	96
3.2.2.1	Schichtaufbau.....	97
	Bruch- und Oberflächenbeschaffenheit	97
	Viellagenaufbau	97
	Mikrostruktur und Textur	98
3.2.2.2	Mechanische Eigenschaften	99
3.2.2.3	Magnetische Eigenschaften.....	100
3.3	Beinflussung von Mikrostruktur und Eigenschaften von FeCo/TiN- Viellagenschichtsystemen	103
3.3.1	Einfluss der FeCo-Targetleistung	103

3.3.1.1	Schichtaufbau.....	103
	Viellagenaufbau	103
	Mikrostruktur und Textur	105
3.3.1.2	Mechanische Eigenschaften	106
3.3.1.3	Magnetische Eigenschaften.....	108
3.3.2	Einfluss des Prozessgasdrucks während der Schichtherstellung	109
3.3.2.1	Schichtaufbau.....	110
	Viellagenaufbau	110
	Mikrostruktur und Textur	111
3.3.2.2	Mechanische Eigenschaften	112
4	Diskussion.....	115
4.1	Mikrostruktur und Textur der Viellagenschichtsysteme.....	115
4.1.1	Übersicht.....	115
4.1.2	Einfluss des Viellagenaufbaus und des Stickstoffgehalts in den TaN-Hartstofflagen.....	116
4.1.3	Heteroepitaktisches Säulenwachstum mit TiN-Hartstofflagen.....	119
4.2	Mechanische Eigenschaften	125
4.2.1	Härte	125
4.2.2	Elastizitätsmodul	128
4.2.3	Eigenspannung	129
4.3	Magnetische Eigenschaften	131
4.4	Eigenschaftsprofile der entwickelten Schichtsysteme im Vergleich	136
4.5	Wirkprinzipien zur berührungslosen Eigenschaftsmessung und exemplarische Versuche zur berührungslosen Temperaturbestimmung	137
5	Zusammenfassung	141
6	Literaturverzeichnis	145

Abkürzungsverzeichnis

Abkürzung	Beschreibung
100Cr6	niedriglegierter Stahl
647B	Typbezeichnung der verwendeten Gasflussregler
8753 ES	Typbezeichnung des verwendeten Netzwerkanalysators
a-C:H	amorpher wasserstoffhaltiger Kohlenstoff
Abb.	Abbildung
AES	Augerelektronenspektroskopie
Al ₂ O ₃	Aluminiumoxid
Ar	Argon
At.-%	Atomprozent
C	Kohlenstoff
CM30	Typbezeichnung des Transmissionselektronenmikroskops der Firma PHILIPS
Co	Kobalt
CoSn	Kobalt-Zinn
CsCl	Cäsiumchlorid
Cu	Kupfer
CVD	Chemische Gasphasenabscheidung (engl.: <i>Chemical vapour deposition</i>)
DC	Gleichstrom (engl.: <i>Direct current</i>)
δTaN	Delta-Phase des Tantalnitrids
EPMA	Elektronenstrahlmikrosondenuntersuchung (engl.: <i>Electron probe microanalysis</i>)
εTaN	Epsilon-Phase des Tantalnitrids
F20	Typbezeichnung des Transmissionselektronenmikroskops der Firma TECNAI
Fe	Eisen
Fe ₅₀ Co ₄₈ V ₂	Eisen-Kobalt-Vanadium
FeCo	Eisenkobalt
FIB	Ionenfeinstrahlanlage (engl.: <i>Focused ion beam</i>)
GCr15	Chromstahl
hdp	dichteste Kugelpackung
hex	hexagonal
HV	Härte nach Vickers
ID3003	Typbezeichnung des Röntgendiffraktometers der Firma SEIFERT

PDF	<i>Powder Diffraction File</i> , Referenzdatenbank für einphasige polykristalline Materialien, herausgegeben vom <i>International Centre for Diffraction Data</i>
JSM-840	Typbezeichnung des Rasterelektronenmikroskops der Firma JEOL
kfz	kubisch-flächenzentriert
krz	kubisch-raumzentriert
LMR	Lineare Mischungsregel
N	Stickstoff
NaCl	Natriumchlorid
Nb	Niob
Ni	Nickel
NiAs	Nickelarsenid
O	Sauerstoff
P-10	Typbezeichnung des Tastschnittgeräts der Firma TENCOR
PVD	Physikalische Gasphasenabscheidung (engl.: <i>Physical vapour deposition</i>)
REM	Rasterelektronenmikroskopie
RF	Radiofrequenzband (engl.: <i>Radio frequency</i>)
S	durch Röntgenbeugung am Substrat erzeugter Reflex
Si	Silizium
SPS	Speicherprogrammierbare Steuerung
Tab.	Tabelle
Ta ₂ N	Tantalnitrid
TaC	Tantalcarbid
TaN	Tantalnitrid
TEM	Transmissionselektronenmikroskopie
Ti	Titan
Ti ₂ N	Titannitrid
TiAlN	Titanaluminiumnitrid
TiN	Titannitrid
V ₂ N	Vanadiumnitrid
Vol.-%	Volumenprozent
VSM	Vibrationsmagnetometer (engl.: <i>Vibrating sample magnetometer</i>)
W	Wolfram
WC	Wolframcarbid
XL30S	Typbezeichnung des Rasterelektronenmikroskops der Firma PHILIPS
XRR	Röntgenreflektometrie (<i>X-ray reflection</i>)
Z550	Typbezeichnung der Beschichtungsanlage der Firma LEYBOLD
ZA	Zonenachse

Zn	Zink
ZrO ₂	Zirkondioxid

Symbolverzeichnis

Symbol	Einheit	Beschreibung
A	$\text{J} \cdot \text{m}^{-1}$	Austauschkonstante
a	nm	Gitterparameter
A_C	nm^2	Querschnittsfläche des Eindrucks nach Entlastung
\bar{a}	nm	mittlerer Gitterparameter
a_{FeCo}	nm	Gitterparameter von FeCo in kubisch-flächenzentrierter Kristallstruktur
a_{TiN}	nm	Gitterparameter von TiN in kubisch-flächenzentrierter Kristallstruktur
α	1	phänomenologischer Dämpfungsparameter
B	T	magnetische Flussdichte
b	nm	Gitterparameter
β	1	geometrieabhängiger Faktor
c	nm	Gitterparameter
c_0	$\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$	Lichtgeschwindigkeit im Vakuum
$C_0, C_1; C_2$	1	Konstanten
χ	1	magnetische Suszeptibilität
d	nm	Schichtdicke
d_{FeCo}	nm	FeCo-Lagendicke
$d_{\text{FeCo, krit}}$	nm	kritische FeCo-Lagendicke
d_{hkl}	nm	Ebenenabstand der Netzebenenchar (hkl)
d_{Mess}	nm	unkorrigierte Schichtdicke
d_S	nm	Substratdicke
d_{TaN}	nm	TaN-Lagendicke
d_{TiN}	nm	TiN-Lagendicke
Δt	s	Zeitdifferenz
E	GPa	Elastizitätsmodul
E_1, E_2	GPa	Elastizitätsmodul eines ersten und eines zweiten Materials
E_{EK}	GPa	Elastizitätsmodul des Eindringkörpers
E_{LMR}	GPa	nach Linearer Mischungsregel berechneter Elastizitätsmodul
E_r^*	GPa	unkorrigierter Reduzierter Elastizitätsmodul
E_r	GPa	Reduzierter Elastizitätsmodul
e_{Str}	$\text{J} \cdot \text{m}^{-3}$	Streifeldenergiedichte
ϵ	1	relative Dehnung
ε	1	geometrieabhängige Konstante
$\epsilon_{\text{eff}}^{\text{leer}}$	1	effektive Permittivität eines homogenen Leerraums

$\epsilon_{\text{eff}}^{\text{Substrat}}$	1	effektive Permittivität eines Substrats
F	N	Last
f_1, f_2	Hz	Frequenzen
f_{FMR}	Hz	ferromagnetische Resonanzfrequenz
F_{max}	N	Maximallast
f_{W}	Hz	Wolmannsche Grenzfrequenz
g_1, g_2, g_3		Funktionen
γ	$\text{m} \cdot (\text{A} \cdot \text{s})^{-1}$	gyromagnetisches Verhältnis
H_{m}	$\text{A} \cdot \text{m}^{-1}$	magnetische Feldstärke
h	nm	Eindringtiefe
H	GPa	Härte
H_1, H_2	GPa	Härte eines ersten und eines zweiten Materials
H_{LMR}	GPa	nach Linearer Mischungsregel berechnete Härte
H_{A}	$\text{A} \cdot \text{m}^{-1}$	Anisotropiefeldstärke
H_{C}	$\text{A} \cdot \text{m}^{-1}$	Koerzitivfeldstärke
h_{C}	nm	Entlastungseindringtiefe
H_{CE}	$\text{A} \cdot \text{m}^{-1}$	Koerzitivfeldstärke in leichter Richtung
H_{eff}	$\text{A} \cdot \text{m}^{-1}$	effektives inneres Magnetfeld
h_{SL}	mm	Gesamthöhe eines Streifenleiters
j	1	Zählindex
J	T	ferromagnetische Polarisierung
J_{netto}	T	ferromagnetische Netto-Polarisierung, $J \times \Lambda \times (d_{\text{FeCo}})^{-1}$
k	1	Ordnungszahl
K_0	$\text{J} \cdot \text{m}^{-3}$	Kristallanisotropiekonstante nullter Ordnung
K_1	$\text{J} \cdot \text{m}^{-3}$	Kristallanisotropiekonstante erster Ordnung
Δl	m	Längenänderung
l	m	Länge
L_{Aus}	nm	Austauschlänge
l_{leer}	mm	Länge eines Streifenleiters
l_{Substrat}	mm	Länge eines Substrats
Λ	nm	Doppellagendicke
λ_{S}	1	Sättigungsmagnetostruktionskonstante
M	$\text{A} \cdot \text{m}^{-1}$	Magnetisierung
m	1	Ordnungszahl
M_{R}	$\text{A} \cdot \text{m}^{-1}$	Remanenz
M_{S}	$\text{A} \cdot \text{m}^{-1}$	Sättigungsmagnetisierung
μ_0	$\text{V} \cdot \text{s} \cdot (\text{A} \cdot \text{m})^{-1}$	magnetische Feldkonstante
μ'	1	Realteil der relativen magnetischen Permeabilität
μ''	1	Imaginärteil der relativen magnetischen Permeabilität

μ_{Anf}	1	Anfangspermeabilität
μ_r	1	relative magnetische Permeabilität
$\mu_r, \text{ netto}$	1	relative magnetische Netto-Permeabilität, $\mu_r \times \Lambda \times (d_{\text{FeCo}})^{-1}$
n	1	Lagenzahl
ν	1	Poissonzahl
ω	s^{-1}	Kreisfrequenz
p	Pa	Prozessgasdruck
P_{FeCo}	W	FeCo-Targetleistung
P_{TaN}	W	TaN-Targetleistung
P_{TiN}	W	TiN-Targetleistung
q	1	Ordnungszahl
q_{N_2}	sccm	N_2 -Gasfluss
r	1	Proportionalitätsfaktor
r_e	$\text{nm} \cdot \text{s}^{-1}$	Ätzrate
S	$\text{N} \cdot \text{m}^{-1}$	Steifigkeit
S_{11}^{Schicht}	1	S-Parameter des Substrats mit aufgebrachtener Schicht
σ	GPa	Eigenspannung
t	s	Zeit
T	$^{\circ}\text{C}, \text{K}$	Temperatur
T_C	$^{\circ}\text{C}, \text{K}$	Curie-Temperatur
t_e	s	Dauer des Ätzprozesses
T_h	$^{\circ}\text{C}, \text{K}$	homologe Temperatur
T_{Schmelz}	$^{\circ}\text{C}, \text{K}$	Schmelztemperatur
T_{Substrat}	$^{\circ}\text{C}, \text{K}$	Substrattemperatur
Θ	$^{\circ}$ (Grad)	Beugungswinkel
Θ_{krit}	$^{\circ}$ (Grad)	kritischer Winkel bei XRR
V_1, V_2	nm^3	Volumen eines ersten und eines zweiten Materials
V_{ges}	nm^3	Gesamtvolumen
z	1	Exponent

1 Grundlagen

1.1 Motivation und Ansatz

Mit Magnetronkathodenzerstäubung abgeschiedene nitridische Oberflächenbeschichtungen sind Stand der Technik zur Standzeitverlängerung von Bauteilen des Maschinenbaus. Nitridische Beschichtungen werden hierbei beispielsweise auf Zerspanungswerkzeugen, in Gleitlagern oder auf Laufbahnen und Bordflächen von Wälzlagern eingesetzt. Der Zustand einer Verschleißschicht, wie vor allem ihr Abtrag, aber auch ihre Dehnung oder ihre Temperatur, kann in vielen Fällen nicht während des Einsatzes gemessen werden. Viele Verfahren zur Echtzeiterfassung des Abtrags von Verschleißschutzbeschichtungen beruhen auf der Messung elektronischer Kenngrößen [1-3] oder der Detektion optischer Emission [4-6]. Der Einsatz solcher Verfahren bedingt jedoch im ersten Fall einen direkten elektrischen Kontakt und im zweiten Fall die optische Zugänglichkeit der Oberfläche. In Fällen, in denen beides nicht oder nur unter großem Aufwand möglich ist, ist vielfach die Nutzung probabilistischer Methoden Stand der Technik.

Ein neuer Ansatz zur Detektion des Abtrags, der Gitterdehnung und der Temperatur von Verschleißschutzschichten ist die berührungslose Messung dieser Größen unter Nutzung von ferromagnetischen Eigenschaften. Hierfür stellt sich die Herausforderung, Verschleißschutzschichten mit einer Kombination aus geeigneten ferromagnetischen und mechanischen Eigenschaften zu entwickeln.

In dieser Arbeit wurde das Konzept der Viellagenschichtsysteme genutzt, um ferromagnetische und Hartstoffmaterialien miteinander zu kombinieren. Die Herstellung von Viellagenschichten aus verschiedenen Materialien ist eine in vielerlei Hinsicht vorteilhafte Methode, da die Abscheidung jedes der Materialien unabhängig kontrolliert werden kann. Neben einer hohen Flexibilität in der Kombination von Materialien unterschiedlicher Eigenschaften bei prinzipiell beliebiger Variation der Volumenverhältnisse zeichnen sich Viellagenschichtsysteme vor allem durch eine große Anzahl von Lagengrenzflächen aus. In der Folge können Viellagenschichten entwickelt werden, deren Eigenschaftsprofile die Summe der inhärenten und der durch Konstitution und Gefüge der jeweiligen Materialien bedingten Eigenschaften deutlich übertreffen [7-10].

Eine wichtige Voraussetzung für die Herstellung neuartiger Schichtsysteme für Verschleißschutzanwendungen ist, dass die üblicherweise industriell genutzten Verfahren verwendet werden können. Bei Verschleißschutzbeschichtungen sind dies neben der Chemischen Gasphasenabscheidung (engl.: *Chemical vapour deposition*, CVD) die Methoden der Physikalischen Gasphasenabscheidung (engl.: *Physical vapour deposition*, PVD), insbesondere die Magnetronkathodenzerstäubung. In dieser Arbeit wurde die Magnetronkathodenzerstäubung aufgrund ihrer Vorteile bei der Herstellung sehr feinskaliger Viellagenschichtsysteme verwendet. Mit diesem Verfahren können Festkörper großflächig auch bei vergleichsweise geringen Temperaturen von etwa 100–200 °C abgeschieden werden. Da die Abschreckgeschwindigkeiten bei der Kathodenzerstäubung sehr hoch sind, und es viele variable Prozessparameter gibt, ist in weiten Bereichen eine Kontrolle der Mikrostruktur der abgeschiedenen Schichten möglich. Insbesondere ist auch die Abscheidung von metastabilen Schichten möglich, so dass auch Schichtsysteme mit neuartigen Eigenschaftsprofilen entwickelt werden können.

1.2 Phänomenologische Beschreibung des Magnetismus

In diesem Kapitel wird die Terminologie zur Beschreibung wichtiger Phänomene magnetischen Verhaltens von Festkörpern, insbesondere von Dünnschichten, vorgestellt.

1.2.1 Statischer Magnetismus

1.2.1.1 Terminologie und Klassifizierung

Die Antwort eines in einem Magnetfeld \vec{H}_m befindlichen Materials wird als magnetische Flussdichte [11]

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H}_m + \vec{M}) = \mu_0\vec{H}_m + \vec{J} \quad (1.1)$$

bezeichnet. In Gl. (1.1) sind $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7} \text{ V} \cdot \text{s} \cdot (\text{A} \cdot \text{m})^{-1}$ die magnetische Feldkonstante, \vec{M} die Magnetisierung und $\vec{J} = \mu_0\vec{M}$ die Polarisation des Materials. Der Zusammenhang zwischen \vec{M} und \vec{H}_m kann bei nicht zu großen Magnetfeldern mit dem Zusammenhang

$$\vec{M} = \chi\vec{H}_m = (\mu_r - 1) \cdot \vec{H}_m \quad (1.2)$$

beschrieben werden. In Gl. (1.2) sind χ die magnetische Suszeptibilität und μ_r die relative magnetische Permeabilität.

Kollektiven Magnetismus aufweisende Materialien ($\chi \gg 0$) zeichnen sich durch eine spontane Anordnung der auf atomarer Ebene erzeugten magnetischen Momente aus. Bei gegenläufig orientierten magnetischen Momenten bezeichnet man ein Material als ferrimagnetisch mit dem Spezialfall antiferromagnetischer Materialien bei der Gesamtmagnetisierung $\vec{M} = 0$. Das Auftreten von in großen Bereichen (Domänen bzw. Weißsche Bezirke) parallel zueinander gerichteten magnetischen Momenten wird als Ferromagnetismus bezeichnet. Die einzigen ferromagnetischen Elemente sind Fe, Co und Ni. Darüber hinaus gibt es ferromagnetische Legierungen nichtferromagnetischer Elemente, wie beispielsweise Legierungen von Seltenen Erden und Heusler-Legierungen. Die Phänomene des kollektiven Magnetismus sind temperaturabhängig. So sinkt die Magnetisierung ferromagnetischer Materialien mit steigender Temperatur, bis bei der Curie-Temperatur T_C die Magnetisierung verschwindet. Oberhalb der Curie-Temperatur weist ein ferromagnetisches Material nur noch paramagnetisches Verhalten auf [11].

Eine schematische Darstellung einer typischen Magnetisierungskurve eines ferromagnetischen Festkörpers ist in Abb. 1-1 gezeigt. Bei erstmaliger Magnetisierung eines unmagnetisierten ferromagnetischen Festkörpers steigt der Betrag der Magnetisierung bis zum Betrag der Sättigungsmagnetisierung M_S an. Bei anschließender Reduzierung des äußeren Magnetfelds auf 0 geht die Magnetisierung nicht wieder vollständig verloren, sondern es bleibt eine Restmagnetisierung (die Remanenz M_R) weiterhin bestehen. Die Magnetisierung verschwindet erst wieder bei einem in entgegengesetzter Richtung wirkenden äußeren Magnetfeld mit hinreichender Feldstärke (Koerzitivfeldstärke H_C). Dieses Verhalten resultiert in einer Hysterese, wie sie in Abb. 1-1 dargestellt ist. Die von dieser Hysterese umrandete

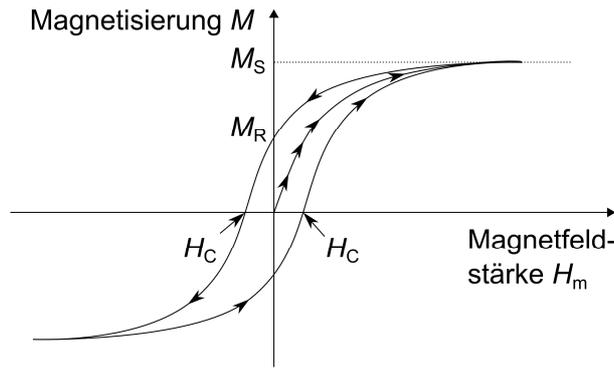


Abb. 1-1 Schematische Darstellung der Magnetisierungskurve eines ferromagnetischen Festkörpers.

Fläche ist ein Maß für die für einen vollständigen Magnetisierungs- und Entmagnetisierungszyklus netto aufzubringende Energie. Kleine Werte der Koerzitivfeldstärke bedeuten die Möglichkeit der leichten Ummagnetisierbarkeit. Das Material wird dann als „weichmagnetisch“ bezeichnet [11]. Das Zustandekommen der Form einer Magnetisierungskurve kann im Domänenmodell beschrieben werden. Gemäß diesem Modell finden innerhalb eines in einem Magnetfeld befindlichen ferromagnetischen Körpers zunächst Domänenwandverschiebungen zur Energieminimierung durch Wachstum von in Magnetfeldrichtung ausgerichteten Domänen statt, die nach Erreichen der Remanenzmagnetisierung irreversibel sind. Bei weiter erhöhter Stärke des externen Magnetfelds erfolgt die Ausrichtung aller Domänen durch die Rotation der magnetischen Domänen. Die Form der Magnetisierungskurve reflektiert die Domänenbewegung sowie deren Verzögerung durch Kristallgitterdefekte [11].

1.2.1.2 Korngrößenabhängigkeit der Koerzitivfeldstärke

Während die Magnetisierung eines einkristallinen Festkörpers qualitativ gut über die Minimierung der magnetischen Energie unter Berücksichtigung der in dem Festkörper vorhandenen magnetischen Anisotropien verstanden werden kann, liegen die meisten für technische Anwendungen interessanten Materialien amorph, nano- oder polykristallin vor. Die Magnetisierung von einem amorphen Festkörper wurde von Alben *et al.* modelliert [12]. Später wurde hierauf aufbauend von Herzer [13] ein Modell zur Erklärung der Magnetisierung nano- und mikrokristalliner Festkörper entwickelt. Sind in einem Bereich unterhalb der Reichweite der Austauschwechselwirkung L_{AUS} viele zufällig orientierte Kristallite vorhanden, so verhält sich das Ensemble der Kristallite isotrop. Anisotropieeffekte sind also vernachlässigbar klein, was sich in geringen Koerzitivfeldstärken und hohen Permeabilitäten äußert. Bei einem Beispiel eines aus vielen Kristalliten mit geringer Ausdehnung bestehenden Festkörpers gilt unter der vereinfachenden Annahme von kugelförmigen Kristalliten mit Durchmessern $\lesssim L_{\text{AUS}}$ für die mittlere magnetokristalline Anisotropie eines Korns

$$\bar{K}_1 = \frac{\sum_j K_1^j}{\sum_j j} \approx K_1 \left(\frac{\bar{D}}{L_{\text{AUS}}} \right)^6 \quad (1.3)$$

mit der Austauschkonstante A , der magnetokristallinen Anisotropie eines Korns K_1^j und dem mittleren Korndurchmesser \bar{D} . Mit Gl. (1.3) folgt

$$H_C \propto \overline{K}_1 \Leftrightarrow H_C \propto \overline{D}^6 \quad (1.4)$$

mit der Koerzitivfeldstärke H_C sowie

$$\mu_{\text{Anf}} \propto \overline{K}_1^{-1} \Leftrightarrow \mu_{\text{Anf}} \propto \overline{D}^{-6} \quad (1.5)$$

mit der Anfangspermeabilität μ_{Anf} [13]. Bei zusätzlichem Vorliegen einer uniaxialen Anisotropie kann die Austauschlänge größer sein. Es gilt dann [14]

$$H_C \propto \overline{D}^z \quad (1.6)$$

sowie

$$\mu_{\text{Anfang}} \propto \overline{D}^{-z} \quad (1.7)$$

mit $3 \leq z \leq 6$. Die Austauschlänge ist materialabhängig und beträgt einige 10 nm. Sind die Korndurchmesser größer als die Austauschlänge, gilt für die Koerzitivfeldstärke die Relation $H_C \propto \overline{D}^{-1}$. Diese Zusammenhänge werden in Abb. 1-2 gezeigt.

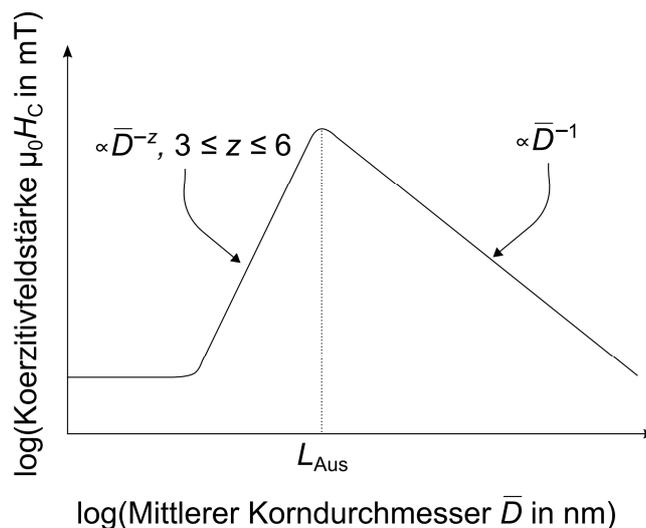


Abb. 1-2 Schematische Darstellung der Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke amorpher, nano- und polykristalliner Festkörper von der mittleren Korngröße \overline{D} , nach [13].

1.2.1.3 Magnetostriktion und Villari-Effekt

Als Magnetostriktion wird die Volumenänderung eines ferromagnetischen magnetostriktiven Körpers in einem Magnetfeld bezeichnet. Im Eindimensionalen ist die Magnetostriktion als die relative Längenänderung

$$\lambda = \frac{d/l}{I} \quad (1.8)$$

eines Körpers der Länge l in einem Magnetfeld definiert [11].

Die Magnetostriktion ist im Allgemeinen eine anisotrope Eigenschaft. In Festkörpern mit kubischer Kristallstruktur können in [100]- und in [111]-Richtung verschiedene Werte der Magnetostriktion $\lambda_{[100]}$ und $\lambda_{[111]}$ vorliegen. In einem nano- oder polykristallinen Festkörper aus Kristalliten kubischer Kristallstruktur ist die Magnetostriktion global betrachtet isotrop und kann als gewichteter Mittelwert aus $\lambda_{[100]}$ und $\lambda_{[111]}$ mit

$$\lambda = \frac{2}{5}\lambda_{[100]} + \frac{3}{5}\lambda_{[111]} \quad (1.9)$$

berechnet werden.

In Abb. 1-3 a ist die Abhängigkeit der Magnetostriktion von der magnetischen Flussdichte des externen Magnetfelds für das Beispiel einer positiv magnetostriktiven Dünnschicht schematisch dargestellt. Die Magnetfeldlinien verlaufen hierbei parallel zu der Schichtebene. In dem Bereich der Sättigung wird die Magnetostriktion auch als Sättigungsmagnetostriktion λ_s bezeichnet. Wird ein magnetostriktives Material in seiner Form verändert, wirkt sich dies auf den Verlauf seiner Magnetisierungskurve aus. Dieser Effekt wird als Villari-Effekt bezeichnet [11]. Dies ist in Abb. 1-3 b für das Beispiel einer positiv magnetostriktiven und unter Zugspannung stehenden Probe gezeigt.

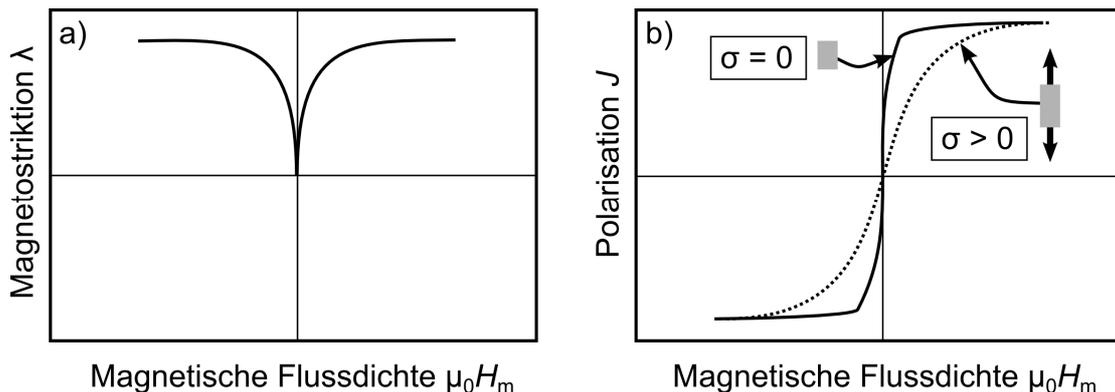


Abb. 1-3 Schematische Darstellung a) der Abhängigkeit der Magnetostriktion von der magnetischen Flussdichte und b) der durch den Villari-Effekt verursachten Veränderung der Magnetisierungskurve bei Einwirkung einer Zugspannung, jeweils für das Beispiel eines positiv magnetostriktiven Materials [15], [16].

1.2.2 Ferromagnetismus in hochfrequenten Wechselfeldern

1.2.2.1 Terminologie

Wenn ein anregendes externes Magnetfeld oszilliert, so oszilliert um eine Zeitdifferenz Δt verzögert auch die magnetische Flussdichte \vec{B} mit der gleichen Frequenz ω . Die magnetische Flussdichte kann dann durch den Term [17]

$$\vec{B} = \vec{B}_0 \cdot \exp(i\omega(t - \Delta t)) \quad (1.10)$$

mit der imaginären Zahl i , der Amplitude \vec{B}_0 der magnetischen Felddichte und der Zeit t beschrieben werden. Die in Gl. (1.2) eingeführte magnetische Permeabilität wird dann zu einer komplexen Größe, die mit

$$\mu_r = \mu' - i\mu'' \quad (1.11)$$

beschrieben werden kann. Der Imaginärteil in Gl. (1.11) ist ein Maß für die auftretenden Energieverluste [17].

1.2.2.2 Ferromagnetische Resonanz und Dämpfung

Die Abhängigkeit der Magnetisierung von der Zeit in einem elektromagnetischen Wechselfeld wird durch die Landau-Lifshitz-Gilbert-Gleichung

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = -\gamma \vec{M} \times \vec{H}_{\text{eff}} + \frac{\alpha}{M_S} \left(\vec{M} \times \frac{\partial \vec{M}}{\partial t} \right) \quad (1.12)$$

beschrieben. In Gl. (1.12) sind \vec{H}_{eff} das effektive innere Magnetfeld als Überlagerung von äußerem Feld und lokaler Anisotropiefelder, \vec{M}_S die Sättigungsmagnetisierung, $\gamma = 2,2 \times 10^5 \text{ m} \cdot (\text{A} \cdot \text{s})^{-1}$ das gyromagnetische Verhältnis und α ein phänomenologischer Dämpfungsparameter [17, 18].

Aus Gl. (1.12) lassen sich die komplexe Permeabilität und die ferromagnetische Resonanzfrequenz sowie außerdem die gegenseitige Abhängigkeit beider Größen herleiten. Analytische Lösungen der Landau-Lifshitz-Gilbert-Gleichung können nur für einfache Spezialfälle hoher Symmetrie gefunden werden. Im Folgenden sind nur die Abhängigkeiten für den Spezialfall einer unendlich ausgedehnten dünnen Platte als vereinfachendes Modell einer Dünnschicht aufgeführt. Hierbei wird vorausgesetzt, dass ein uniaxiales Anisotropiefeld H_A in der Schichtebene vorliegt. Wenn die magnetische Komponente des hochfrequenten elektromagnetischen Wechselfeldes senkrecht zu dem Anisotropiefeld orientiert ist, gilt [17, 18]:

$$f_{\text{FMR}} = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{H_A \cdot (H_A + M_S)} \quad (1.13)$$

$$(\mu_{\text{Anf}} - 1) f_{\text{FMR}}^2 = \left(\frac{\gamma}{2\pi} M_S \right)^2 \quad (1.14)$$

In Gl. (1.13) und Gl. (1.14) sind f_{FMR} die ferromagnetische Resonanzfrequenz und μ_{Anf} die Anfangspermeabilität, also die Permeabilität bei sehr kleinen Frequenzen [17, 18].

Gemäß Gl. (1.13) führen ausgeprägte uniaxiale Anisotropiefelder in der Schichtebene sowie eine möglichst hohe Sättigungsmagnetisierung zu großen ferromagnetischen Resonanzfrequenzen. Bei gegebener Sättigungsmagnetisierung führen umso höhere Resonanzfrequenzen nach Gl. (1.14) jedoch zu geringeren Anfangspermeabilitäten. Bei der Auswahl von entsprechenden Materialien für konkrete Anwendungen muss ein Kompromiss zwischen μ_{Anf} und f_{FMR} gefunden werden.

1.3 Berührungslose Sensorik magnetischer Eigenschaften

In diesem Kapitel wird das Konzept der Frequenzmischung als grundlegende Methode zur berührungslosen Erfassung der Eigenschaften magnetischer Werkstoffe vorgestellt [19-21]. Anhand des Funktionsprinzips der Frequenzmischung wurden die Anforderungen an die zu entwickelnden ferromagnetischen Viellagenschichtsysteme definiert. Im Folgenden ist das Verfahren beschrieben:

- Voraussetzung dafür, dass das Verfahren der Frequenzmischung angewendet werden kann, ist das Vorliegen von magnetischen Materialien, deren Magnetisierungskurve sich nichtlinear mit der magnetischen Flussdichte ändert. In Abb. 1-4 a ist eine idealisierte Magnetisierungskurve eines sehr weichmagnetischen, ferromagnetischen Werkstoffs als Beispiel hierfür gezeigt.
- Dieser weichmagnetische Werkstoff wird einer zeitabhängigen magnetischen Flussdichte $\mu_0 H_m = \mu_0 H_m(t)$ ausgesetzt, die ohne Beschränkung der Allgemeinheit mit

$$\mu_0 H_m(t) \propto H_0 + H_1 \sin(2\pi f_1 t) + H_2 \sin(2\pi f_2 t) \quad (1.15)$$

beschrieben werden kann. In Gl. (1.15) sind H_0 , H_1 und H_2 magnetische Feldstärken, sowie f_1 und f_2 Modulationsfrequenzen. Außerdem gilt ohne Beschränkung der Allgemeinheit $f_1 \gg f_2$. Weiterhin ist der Betrag von H_2 genügend groß, um den Werkstoff ferromagnetisch zu sättigen.

- Die ferromagnetische Polarisation ändert sich mit der Zeit aufgrund der Wahl der externen magnetischen Flussdichte gemäß Gl. (1.15) als Überlagerung zweier Schwingungen, wie es in Abb. 1-4 b idealisiert gezeigt ist.
- Die Fouriertransformierte der in Abb. 1-4 b gezeigten zeitabhängigen Polarisation ist in Abb. 1-4 c gezeigt. Die Koeffizienten bei den Linearkombinationen

$$f_1 + 2j \cdot f_2 \quad (1.16)$$

sind als direkte Folge der Nichtlinearität der Magnetisierungskurve ungleich 0. In Gl. (1.16) ist j eine ganze, positive oder negative, Zahl, jedoch nicht 0. Aus den Fourierkoeffizienten lassen sich dann Rückschlüsse auf die Form der Magnetisierungskurve ziehen.

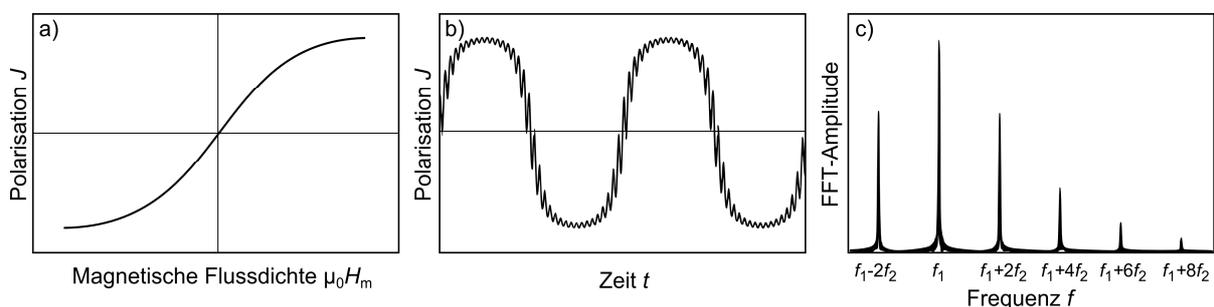


Abb. 1-4 Zum Prinzip der Frequenzmischung, nach [22].

Das Verfahren eignet sich somit vor allem für die Detektion von Eigenschaften ferromagnetischer Werkstoffe, wurde jedoch auch mit paramagnetischen Werkstoffen erfolgreich angewendet [19]. Mit dem Verfahren der Frequenzmischung wurden beispielsweise die Konzentration paramagnetischer Teilchen für biomedizinische Anwendungen [19], die Dehnung von magnetostruktiven Dünnschichten [21] und die Sättigungspolarisation ferromagnetischer Dünnschichten [20] berührungslos gemessen.

1.4 Schichtwerkstoffe

1.4.1 Eisenkobalt (Fe-Co)

Als ferromagnetischer Werkstoff wird in dieser Arbeit $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ verwendet. Eisenkobalt-Legierungen weisen die höchste der bekannten Sättigungspolarisationen auf, die in der hier genutzten Zusammensetzung mit etwa 2,35 T nahezu erreicht wird. Die in dieser Zusammensetzung im Vergleich zu anderen Zusammensetzungen deutlich höhere, und für diesen Werkstoff maximale, Permeabilität macht den Werkstoff für technische Anwendungen interessant und ist einer der wichtigsten Gründe für seine häufige Nutzung [24]. Gleichzeitig wird die für Eisenkobalt-Legierungen maximale Sättigungsmagnetostruktionskonstante von $\lambda_S \approx 70 \times 10^{-6}$ in dieser Zusammensetzung erreicht [24, 25].

In Abb. 1-5 ist das Gleichgewichtsphasendiagramm des binären Stoffsystems Fe-Co gezeigt. Unter Standardbedingungen liegt eine Legierung der Zusammensetzung $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ im einfach kubischen Kristallsystem als CsCl-Struktur vor, die Anordnung der Atome in dem Kristallgitter entspricht also einer kubisch-raumzentrierten Kristallstruktur. Bei einer Temperatur von $\approx 730 \text{ °C}$ wandelt der geordnete Zustand unter geringer Erhöhung der Gitterparameter in einen ungeordneten Zustand des kubisch-raumzentrierten Kristallsystems um. Oberhalb einer Temperatur von $\approx 985 \text{ °C}$ liegt $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ schließlich in dem kubisch-flächenzentrierten Kristallsystem vor. Im kubisch-flächenzentrierten Kristallsystem weist $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ kein ferromagnetisches, sondern paramagnetisches Verhalten auf. Die Phasenumwandlungstemperatur ist

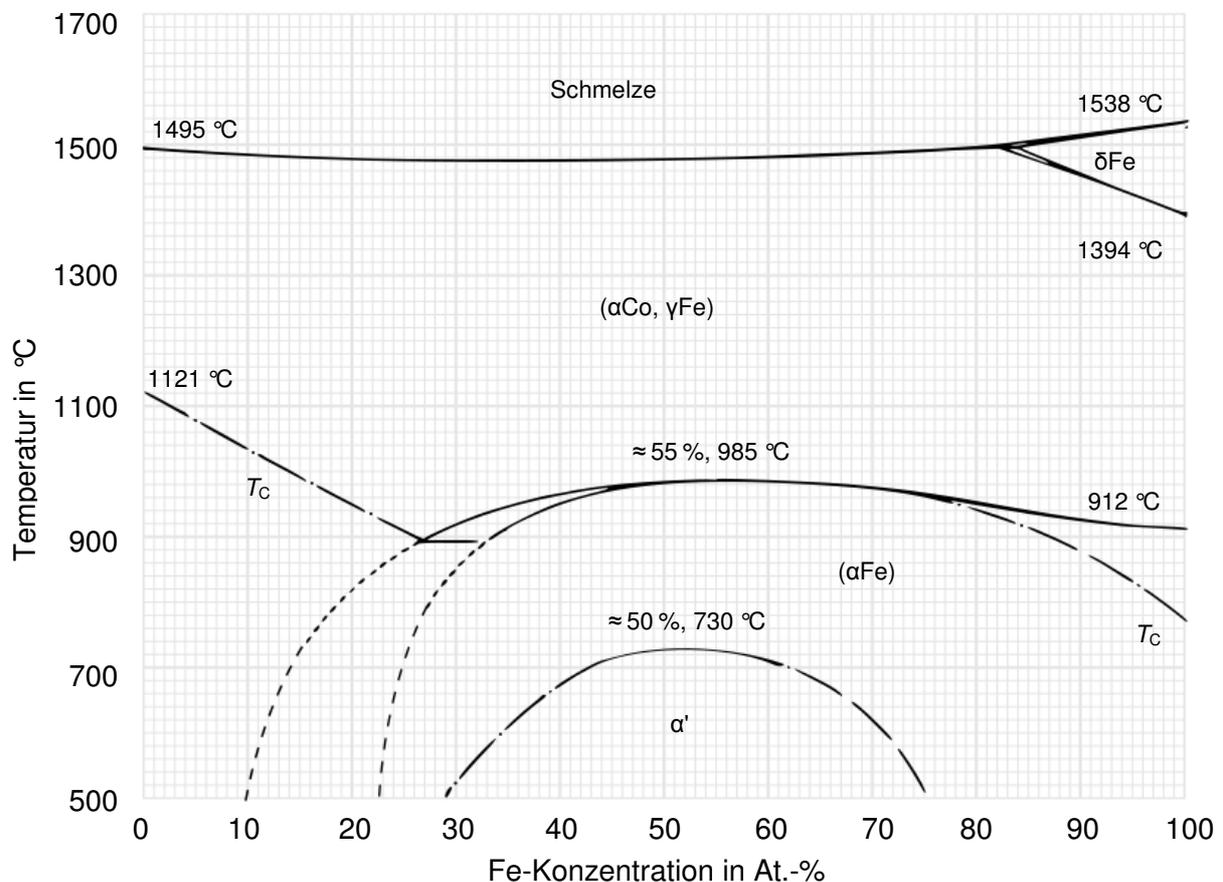


Abb. 1-5 Gleichgewichtsphasendiagramm des Stoffsystems Fe-Co, nach [23].

bei einer Fe-Konzentration zwischen 32 At.-% und 77 At.-% gleichzeitig die Curie-Temperatur. Die Schmelztemperatur von $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ beträgt $\approx 1480\text{ °C}$ [25].

Die Gitterparameter von $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ in den verschiedenen Kristallstrukturen sind in Tab. 1-1 zusammengefasst.

Tab. 1-1 Kristallstrukturen und Gitterparameter von FeCo.

Phase	Struktur	Typ	a nm	b nm	c nm	Referenz
$\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$	kubisch	CsCl/krz	0,28559/ 0,28571	–	–	[26]
$\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$	kubisch	kfz	0,35950	–	–	[26]

1.4.2 Tantalnitrid (Ta-N)

Einer der beiden für die in dieser Arbeit hergestellten Schichtsysteme genutzten Hartstoffe ist TaN.

In Abb. 1-6 ist der Ausschnitt des Gleichgewichtsphasendiagramms des binären Stoffsystems Ta-N für einen Stickstoffanteil zwischen 0 At.-% und 60 At.-% abgebildet. Wie viele Metallnitridverbindungen bildet auch TaN hexagonale und kubische Kristallstrukturen aus,

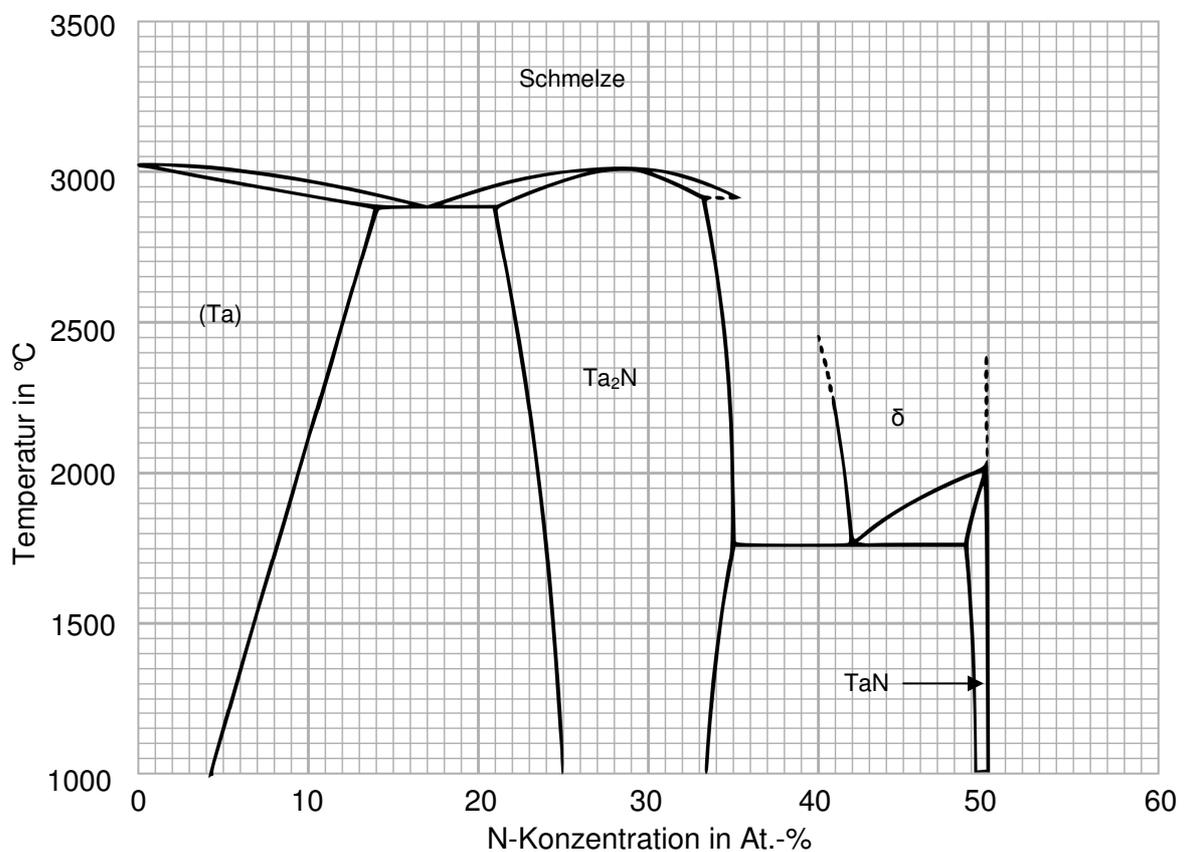


Abb. 1-6 Gleichgewichtsphasendiagramm des Stoffsystems Ta-N, nach [27].

die als Einlagerung von N-Atomen auf Zwischengitterplätzen des entsprechenden Ta-Gitters verstanden werden können. Insbesondere ist jedoch zu beachten, dass $Ta_{50}N_{50}$ oberhalb einer Temperatur von $\approx 2098\text{ °C}$ in der kubischen Kristallstruktur des Typs NaCl, unterhalb dieser Temperatur jedoch in hexagonaler Kristallstruktur des Typs CoSn vorliegt. Die Schmelztemperatur von stöchiometrischem TaN beträgt $\approx 3132\text{ °C}$. Die Gitterparameter der in dem Phasendiagramm benannten TaN-Phasen sind in Tab. 1-2 zusammengefasst.

Tab. 1-2 Kristallstrukturen und Gitterparameter im Stoffsystem Ta-N.

Phase	Struktur	Typ	a nm	b nm	c nm	Referenz
Ta ₂ N	hexagonal	NiAs	0,3048	–	0,4918	[28]
δTaN	kubisch	NaCl	0,4331	–	–	[29]
TaN	hexagonal	CoSn	0,5186	–	0,2913	[30]

1.4.3 Titanitrid (Ti-N)

TiN ist der zweite Hartstoff, der für die Herstellung von Schichtsystemen für diese Arbeit verwendet wird.

In Abb. 1-7 ist der Ausschnitt des Gleichgewichtsphasendiagramms des binären Stoffsystems Ti-N für einen Stickstoffanteil zwischen 0 At.-% und 55 At.-% gezeigt. In der Zusam-

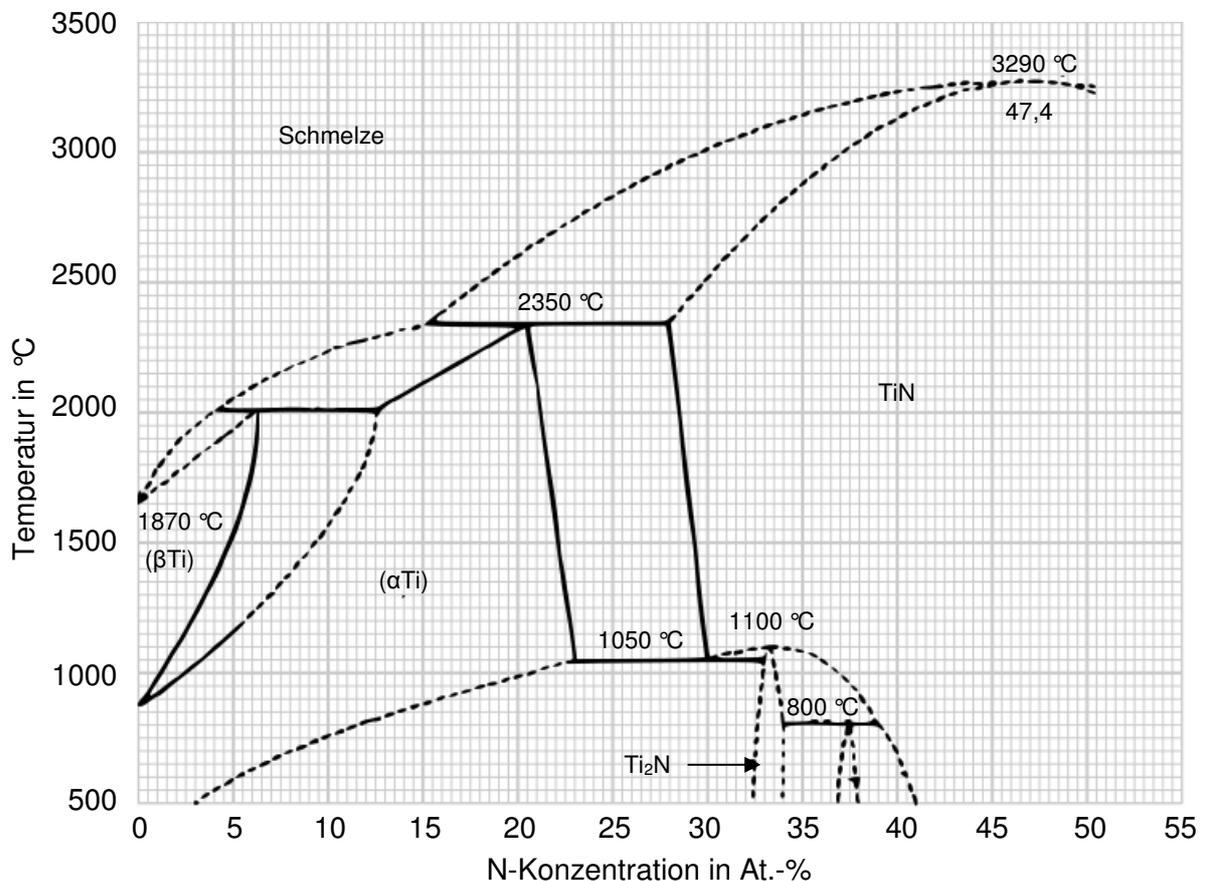


Abb. 1-7 Gleichgewichtsphasendiagramm des Stoffsystems Ti-N [27].

mensetzung $Ti_{50}N_{50}$ liegt das Material unter Standarddruck bei Temperaturen unterhalb der Schmelztemperatur von $\approx 3290\text{ °C}$ im kfz-Kristallsystem in NaCl-Struktur vor.

Die Gitterparameter der wichtigsten in dem Phasendiagramm benannten Phasen sind in Tab. 1-3 zusammengefasst.

Tab. 1-3 Kristallstrukturen und Gitterparameter im Stoffsystem Ti-N.

Phase	Struktur	Typ	a nm	b nm	c nm	Referenz
αTi	hexagonal	Mg	0,29717	–	0,97834	[31]
TiN	kubisch	NaCl	0,4235	–	–	[32]
Ti_2N	tetragonal	Ti_2N	0,4140	–	0,30342	[33]

1.5 Dünnschichtherstellung mittels Magnetronkathodenzerstäubung

1.5.1 Prinzip und technische Realisierung der Magnetronkathodenzerstäubung

Magnetronkathodenzerstäubung ist ein Verfahren der Physikalischen Gasphasenabscheidung (engl.: *Physical vapour deposition*, PVD). Hierbei werden Atome aus einem Festkörper („Target“) durch physikalische Stoßprozesse herausgelöst, die beim Auftreffen auf einem Substratmaterial wieder kondensieren.

In dem in Abb. 1-8 gezeigten einfachsten Fall der Kathodenzerstäubung („Sputtern“) wird das Target in einem Vakuumbehälter von diesem elektrisch isoliert montiert und in einem Gleichstromkreis als Kathode geschaltet. Die Kammer wird evakuiert, und es wird ein Inertgas eingelassen. Hierfür wird, aufgrund seiner geringen Kosten und seiner Handhabbarkeit, meist Argon verwendet. Wenn eine negative elektrische Gleichspannung zwischen Target und Kammer angelegt wird, bewegen sich die spontan in der Kammer vorhandenen positiv geladenen Teilchen in Richtung der Kathode. Bei ihrem Auftreffen auf der Targetoberfläche können dann aufgrund von Potentialemission, bei höheren Energien in der Größenordnung von $\approx 1\text{ keV}$ aufgrund von kinetischer Emission, oder – bei oxidischen Oberflächen –

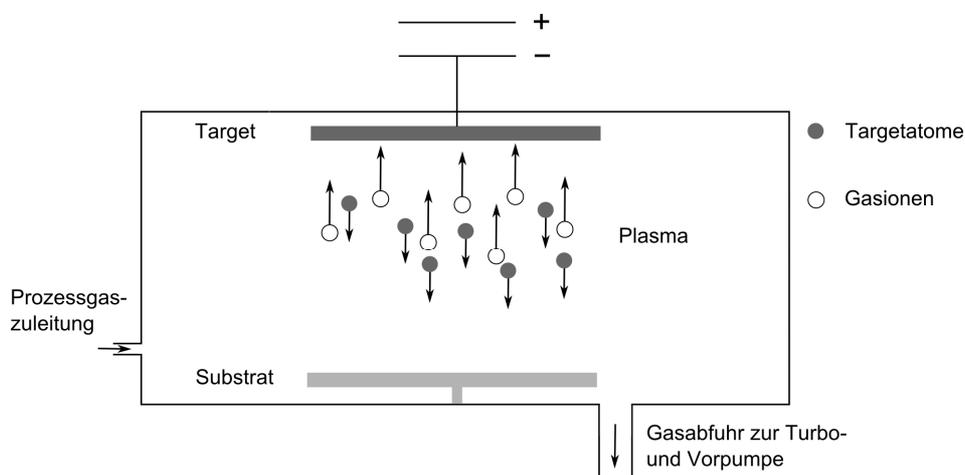


Abb. 1-8 Prinzip der Gleichstrom-Kathodenzerstäubung.

aufgrund von elektronischer Anregung, Sekundärelektronen ausgelöst werden [34-42]. Die Anzahl der pro eintreffendem Ion ausgelösten Sekundärelektronen liegt hierbei in der Größenordnung von $\approx 0,1$ [43]. Die Sekundärelektronen werden nun von der Kathode weg beschleunigt und können Ionisationsprozesse durch Elektronenstoßionisation und Sekundärprozesse auslösen. Diese Prozesse sind bei Energien oberhalb eines Schwellenwertes von ≈ 10 eV möglich [44, 45]. Bei genügend hohem Arbeitsgasdruck und folglich hoher Stoßwahrscheinlichkeit sowie genügend hoher Beschleunigungsspannung entsteht ein selbsterhaltendes Plasma. Die im Plasma erzeugten Inertgasionen führen beim Auftreffen auf dem Target, neben weiteren Prozessen, insbesondere zum Auslösen von Targetatomen, die sich anschließend von der Targetoberfläche wegbewegen und bei Ankunft am Substrat auf diesem kondensieren. Die wichtigsten durch auf dem Target eintreffende Ionen verursachten Phänomene sind in Abb. 1-9 dargestellt.

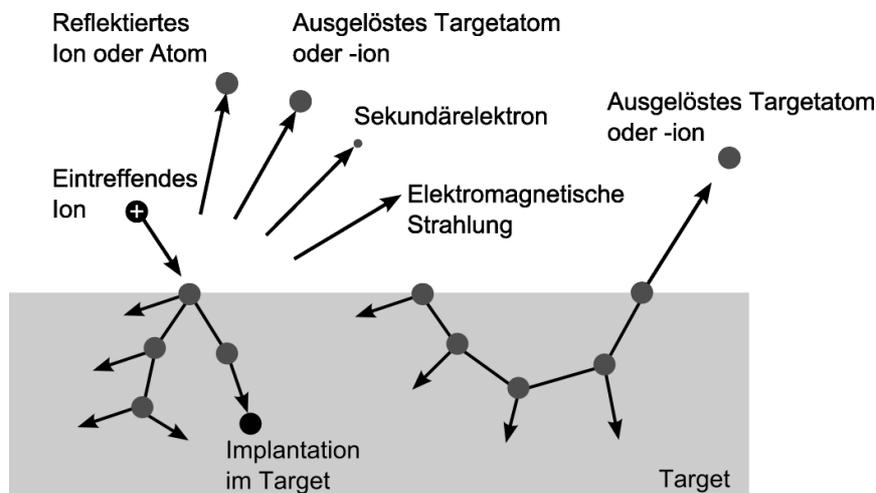


Abb. 1-9 Schematische Darstellung der wichtigsten während der Festkörperzerstäubung stattfindenden Prozesse, nach [46].

Die Nutzung eines Gleichstromkreises, wie er oben beschrieben ist, zur Kathodenzerstäubung ist nur bei Verwendung von elektrisch leitfähigen Targetmaterialien möglich (engl.: *Direct current*, „DC-Modus“). Die Kathodenzerstäubung von elektrisch isolierenden Materialien ist bei Verwendung von elektrischen Wechselstromfeldern möglich. Aufgrund der Massendifferenz und folglich unterschiedlichen Trägheit von Elektronen und (Arbeitsgas-)Atomen bildet sich bei Wechselspannungen hoher Frequenz eine elektrische Potentialdifferenz zwischen Kathode und Anode aus. In der Folge können dann die im vorigen Absatz beschriebenen Prozesse stattfinden. Typischerweise werden elektrische Wechselfelder mit der Frequenz 13,56 MHz verwendet (engl.: *Radio frequency*, „RF-Modus“).

Zusätzlich zu oder an Stelle des Inertgases kann für die Kathodenzerstäubung Reaktivgas verwendet werden. Die Reaktivgasatome können dann chemische Verbindungen auf der Substrat- und der Targetoberfläche eingehen, so dass die Herstellung einer Vielzahl weiterer Materialien möglich ist, von denen Oxide, Nitride und Carbide (bei Zugabe von Sauerstoff, Stickstoff bzw. Methan) die wichtigsten sind. Die Targetbedeckung mit diesen Verbindungsmaterialien führt hierbei aufgrund der unterschiedlichen Sekundärelektronenemissionsausbeute im Allgemeinen zu einer Veränderung der Plasmamparameter. Die Abhängigkeit der Plasmamparameter von dem Reaktivgasfluss unterliegt einem Hystereseeffekt. Dieser äußert sich darin, dass die bei Erhöhung des Reaktivgasflusses zwischen dem Bereich der nichtre-

aktiven und reaktiven Kathodenzerstäubung sich einstellenden Plasmaparameter bei einer nachfolgenden Reduktion des Reaktivgasflusses nicht reproduziert werden. Der Aufbau von mit reaktiver Kathodenzerstäubung abgeschiedenen Schichten ist somit im Allgemeinen von der Steuerung des Reaktivgasflusses pfadabhängig [47, 48].

In der technischen Anwendung werden bei der Magnetronkathodenzerstäubung Magnete hinter der Targetoberfläche platziert. Aufgrund des Lorentzeffekts steigt hierdurch die Elektronendichte in der Nähe der Targetoberfläche und dadurch die Wahrscheinlichkeit einer Ionisation von Prozessgasatomen. Dies führt zum einen zu einer Erhöhung der Abtragsraten von Targetatomen um mehrere Größenordnungen. Zum anderen sinkt aufgrund der Erhöhung der Ionisationswahrscheinlichkeit die für eine feste Durchbruchsspannung benötigte Arbeitsgasdruck. Letzterer führt zu höheren Teilchengeschwindigkeiten an der Substratposition, wodurch wiederum das Schichtwachstum insofern beeinflusst wird, dass die Abschreckrate mit steigender Depositionsrate zunimmt. In der Folge nimmt der Einfluss thermodynamischer Prozesse gegenüber kinetischen Prozessen noch weiter ab (vergleiche hierzu Kapitel 1.5.2). Nachteil der Nutzung eines Magnetrons bei der Kathodenzerstäubung ist ein inhomogener Teilchenabtrag vom Target [49]. Dieser Nachteil kann jedoch durch die gezielte Wahl der Magnetronkonfiguration zumindest minimiert werden.

1.5.2 Schichtgefüge

Bei der Abscheidung von Dünnschichten mittels Kathodenzerstäubung dominieren aufgrund der hohen Auftreffrate von schichtbildenden Teilchen und der ohne gezielte Erwärmung vergleichsweise geringen Substrattemperaturen kinetische Effekte das Schichtwachstum. Das Gefüge der abgeschiedenen Schichten ist deshalb nicht oder nur eingeschränkt mit thermodynamischen Prozessen zu erklären. Diese Tatsache ist charakteristisch für Methoden der Physikalischen Gasphasenabscheidung.

Als Folge bieten kathodenzerstäubungsbasierte Beschichtungsverfahren die Möglichkeit, Schichten in metastabilen Phasen abzuscheiden. Außerdem kann das Gefüge der wachsenden Schichten durch Wahl geeigneter Prozessparameter beeinflusst werden. Ergebnisse hierzu wurden erstmals von Movchan und Demchishin [50] in einem Strukturzonenmodell illustriert, in welchem sie die Mikrostruktur von vakuumverdampften, mehrere μm dicken, Ti-, Ni-, W-, ZrO_2 - und Al_2O_3 -Schichten mit der homologen Temperatur korrelierten. Die homologe Temperatur ist hierbei $T_h = T_{\text{Substrat}}/T_{\text{Schmelz}}$ mit der Substrattemperatur T_{Substrat} und der Schmelztemperatur des entsprechenden Materials T_{Schmelz} . Die Mikrostruktur der abgeschiedenen Schichten konnten Movchan und Demchishin in drei Kategorien einordnen, wie sie weiter unten als Zonen 1 bis 3 beschrieben sind. In einer Erweiterung des Modells durch Thornton [51-53] wurde auf Basis von mit Kathodenzerstäubung abgeschiedenen etwa $\approx 25 \mu\text{m}$ dicken Metallschichten zusätzlich die Abhängigkeit von dem Prozessgasdruck (Ar als Prozessgas) berücksichtigt und das oben genannte Modell um eine zusätzliche Zone erweitert. Das Strukturzonenmodell nach Thornton ist in Abb. 1-10 gezeigt. Die Klassifizierung der dargestellten Mikrostrukturen und ihre phänomenologische Erklärung ist im Folgenden beschrieben [51-53]:

- Zone 1: Aufgrund der geringen Beweglichkeit der Adatome spielen Abschattungseffekte eine dominante Rolle. Die gewachsenen Schichten bestehen aus kolumnaren

Kristalliten mit hoher Porosität zwischen den einzelnen Säulen und hoher Defektdichte innerhalb der Kristallite.

- Zone 2: Aufgrund der höheren Teilchenmobilität entstehen stängelförmige Kristallite mit höherem Durchmesser als in Zone 1. Die Größenverteilung wird gleichmäßiger, die Grenzflächen wachsen näherungsweise senkrecht zu der Substratoberfläche, und die Porosität sowie die Defektdichte nehmen ab. Zwischen Zone 1 und Zone 2 ist Zone T eingefügt. Diese Zone berücksichtigt, dass ein geringerer Gasdruck aufgrund höherer kinetischer Energie der ankommenden Teilchen zusätzlich deren Oberflächendiffusion zur Folge hat, durch die glattere Schichtoberflächen ermöglicht werden.
- Zone 3: Aufgrund der weiter erhöhten Teilchenmobilität tritt zusätzlich Volumendiffusion auf, so dass ein kompaktes Gefüge mit großen Kristalliten entsteht.

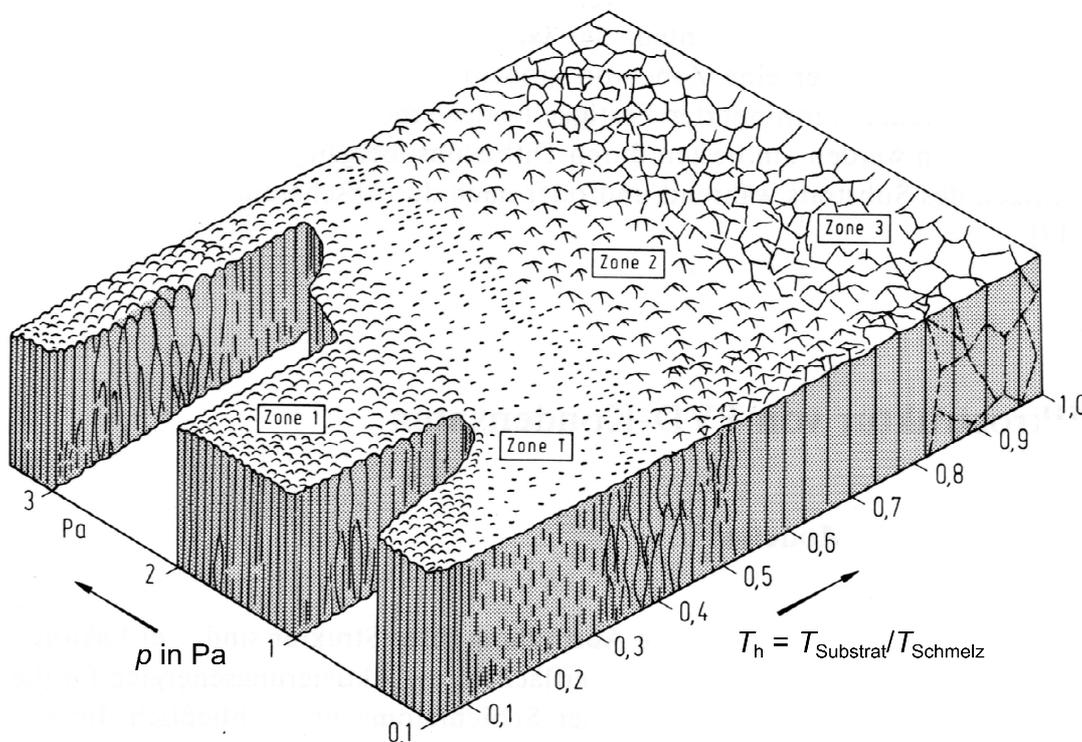


Abb. 1-10 Strukturzonenmodell nach Thornton ([51, 53], entnommen aus [54]). Die Wachstumszonen sind in Abhängigkeit vom Prozessgasdruck p und von der homologen Temperatur T_h schematisch dargestellt.

Ausgehend von den genannten Strukturzonenmodellen wurden erweiterte Modelle unter Beachtung weiterer und generalisierter Parameter vorgestellt [50, 55], in denen beispielsweise eine verwendete Substratvorspannung oder abstrakter die kinetische Energie ankommender Teilchen berücksichtigt wurden.

Die vorgestellten Modelle unterliegen Einschränkungen. So wurde beispielsweise das von Thornton publizierte Modell auf Grundlage von empirischen Beobachtungen an polykristallinen Metallschichten entwickelt und ist deshalb *à priori* nur für solche gültig. Dennoch sind die Modelle für ein erstes Verständnis des Schichtwachstums und dessen gezielter Beeinflussung hilfreich.

1.6 Stand der Forschung

1.6.1 Multifunktionale Dünnschichtsysteme mit sensorischen und Verschleißschutzeigenschaften

Es gibt wenige Veröffentlichungen zur Entwicklung multifunktionaler Dünnschichten, die neben einer Phase mit ferromagnetischen Eigenschaften auch Verschleißschutzeigenschaften aufweisen. So stellten Nie *et al.* [56] multifunktionale Nanokompositschichten vor, die aus in einer amorphen Kohlenstoffmatrix eingebetteten Kobalt-Nanopartikeln bestanden. Diese Schichten waren mit Koerzitivfeldstärken von wenigen mT weichmagnetisch und wiesen bei in einer relativen Luftfeuchtigkeit von $\approx 43\%$ durchgeführten Stift–Scheibe-Modellversuchen mit einem Gegenkörper aus Al_2O_3 (1 N Normallast, ungeschmierter Kontakt) bessere tribologische Eigenschaften auf als vergleichbare Kohlenstoff-Einlagenschichten. Die Autoren schlugen die Integration dieser Schichten in mikroelektronische Bauteile – zum Beispiel als Schreib-/Lesekopf – vor. Biehl *et al.* [57] nutzten die inhärente Multifunktionalität (Piezoresistivität und Anwendbarkeit als Verschleißschutzbeschichtungen) von amorphen diamantartigen Kohlenstoffschichten (a-C:H) aus, um die auf einen beschichteten Körper wirkende Kraft zu messen. Aleksandrov *et al.* [58] entwickelten Korrosionsschutzschichten, die aus mit Übergangsmetallatomen in Konzentrationen von wenigen At.-% angereichertem AlN bestanden. Es wurde nachgewiesen, dass diese Schichten ferromagnetische Eigenschaften aufwiesen. Die Autoren schlugen daher vor, diese Schichten in Verschleißschutzanwendungen zu verwenden. Dass mit zunehmender Bildung von Aluminiumoxiden eine sinkende Sättigungspolarisation einhergehe, ermögliche hierbei eine berührungslose Messung des Oxidationszustands.

1.6.2 Konzepte zur Echtzeiterfassung des Abtrags von Verschleißschutzschichten

Bei der Anwendung von Verschleißschutzschichten würde eine Echtzeiterfassung ihres aktuellen Abtrags Effizienzgewinne und folglich Kosteneinsparungen versprechen. In der Literatur fanden sich vor diesem Hintergrund entwickelte Lösungsansätze, für welche typische Verschleißschutzschichten um die Möglichkeit zur sensorischen Erfassung ihres Abtrags erweitert wurden. Bezüglich der hierfür nötigen Messtechnik wurde die Nutzung verschiedener optischer und elektronischer Verfahren diskutiert.

Ein von Rasmussen *et al.* [59] vorgestelltes Schichtsystem bestand aus mehreren Lagen, wobei die unterste Lage als „Signalschicht“ eine charakteristische Farbe aufwies. Wurde nach Abtrag der oberen Lagen die Signalschicht sichtbar, konnte sie mit geeigneten optischen Verfahren detektiert werden. Die Autoren stellten in ihrer Veröffentlichung das Testsystem einer auf einer TiN-Signalschicht abgeschiedenen TiAlN-Schicht vor. Es wurde dokumentiert, dass der partielle Abtrag der TiAlN-Schicht während eines Stift–Scheibe-Versuchs (mit einer Kugel aus dem Stahl 100Cr6 als Gegenkörper, 5 N Normallast, ungeschmierter Kontakt, Luftfeuchte nicht kontrolliert und angegeben) aufgrund der im Vergleich zur Farbe des TiAlN deutlich helleren Farbe des TiN mit einer konventionellen Digitalkamera mit nachgeschalteter rechnergestützter Farberkennung ermittelt werden konnte. Ein anderer Ansatz zur Nutzung der gleichen Grundidee wurde von zwei weiteren Gruppen verfolgt. Muratore *et al.* [6] extrahierten Information über den Verschleißzustand einer Wärmedämmschicht über eine eingebrachte Zwischenlage aus mit Erbium und Samarium dotiertem

und mit Yttrium stabilisiertem Zirkonoxid. Diese emittierte bei Anregung mit Laserstrahlung photolumineszente Strahlung, welche sodann detektiert wurde. Steenbakker *et al.* [5] untersuchten ebenfalls den Einsatz von Zwischenlagen, die mit einem geringen Anteil Seltener Erden dotiert waren. Sie konnten hierdurch den Verschleißzustand von Wärmedämmschichten für den Einsatz als Turbinenschaufelbeschichtung quantifizieren.

Bereits 1981 schlug Hahn Jr. [1] in einer Veröffentlichung ein Konzept zur Ermittlung des Verschleißes von in Datenträgern verwendeten Schreib-/Leseköpfen unter Nutzung eines in eine Verschleißschicht eingebrachten elektrischen Stromkreises vor. In dem beschriebenen Beispiel wurden Zwischenlagen aus einer Ni-Fe-Legierung in die ferritischen Funktionsschichten eingebracht und konnten dann aufgrund der Temperaturabhängigkeit ihres elektrischen Widerstands als Temperatursensor sowie bei verschleißbedingter Durchtrennung der Schicht und somit des Stromkreises als Verschleißsensor dienen. Ruff und Kreider [2] stellten ein auf dem gleichen Prinzip basierendes Viellagenschichtsystem aus isolierenden Al_2O_3 - bzw. Ta_2O_5 -Lagen für die Verschleißschutzfunktionalität und ebenfalls Ni-Fe-Lagen für die sensorische Funktionalität vor. Mit einem eingebrachten Schaltkreis aus Cu-Ni-Leitungen für die thermosensorische Funktionalität wurde ein vergleichbares Schichtsystem – ebenfalls mit Al_2O_3 als Isolatorwerkstoff – von Schönberg *et al.* [4] vorgestellt. Ein weiteres Verschleißschutzsensoren-system wurde von Lüthje *et al.* [3] auf den Seitenflächen von konventionellen Hartmetalleinsätzen für Zerspanungsanwendungen aufgebracht. Dieses Konzept nutzte in einer Al_2O_3 -Matrix eingebrachte TiN-Schaltkreise, deren verschleißbedingter Abtrag sowie temperaturabhängige elektrische Leitfähigkeit sensorisch genutzt werden konnten. Die genannten Schichtsysteme sind jedoch aufgrund der Nutzung elektrischer Stromkreise nur in solchen Einsatzgebieten für eine Nutzung geeignet, in denen eine elektrische Kontaktierung möglich ist.

1.6.3 Viellagenschichten mit einstellbaren magnetischen Eigenschaften

In einigen Veröffentlichungen wurde die Möglichkeit zur Einstellbarkeit der magnetischen Eigenschaften von FeCo/TaN-Viellagenschichten beschrieben. Für diese Studien wurden Schichten mittels reaktiver Magnetronkathodenzerstäubung für die Nutzung als Funktionsschicht in Leseköpfen für Datenspeicheranwendungen hergestellt. Vor dem Hintergrund dieses Anwendungspotentials war es Ziel, Materialien mit möglichst geringen Koerzitivfeldstärken herzustellen, um den Energiebedarf für einen Umschaltvorgang zu minimieren. Gleichzeitig wurden wegen des Ziels der Miniaturisierung möglichst hohe Sättigungspolarisationen angestrebt.

Li *et al.* [60, 61] variierten in Viellagenschichten aus fünf Doppellagen aus 320 nm dicken FeTaN-Lagen und TaN-Lagen variabler Dicke die TaN-Lagendicke zwischen 2,4 nm und 4,5 nm. Hierdurch konnten sie die Koerzitivfeldstärke nach einer Wärmebehandlung auf bis zu 0,05 mT reduzieren. Diese Werte waren im Vergleich zu ebenfalls geglähten FeTaN-Einlagenschichten um bis zu etwa 80 % reduziert. Als Ursache für diese Reduktion der Koerzitivfeldstärke führten die Autoren die aufgrund der eingebrachten TaN-Zwischenschichten sinkenden Korngrößen in den ferromagnetischen Lagen an. Der Effekt von mit steigender Zwischenlagendicke sinkender Koerzitivfeldstärke wurde ebenfalls von Nie *et al.* [62, 63] bei FeTaN/TaN/FeTaN-Dreifachschichtsystemen sowie bei FeTaN/TaN-Viellagenschichten beo-

bachtet. Nie *et al.* führten diese Abhängigkeit auf eine mit steigender Zwischenlagendicke sinkende Domänenwandkopplung zurück.

Über die magnetischen Eigenschaften von Viellagenschichten aus TiN und FeCo konnten nur wenige Veröffentlichungen gefunden werden. So untersuchten Kumar und Böni [64] für die Anwendung in der Röntgenoptik vorgesehene, mittels Magnetronkathodenzerstäubung hergestellte, $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{48}\text{V}_2/\text{TiN}$ -Viellagenschichten aus 10 bis 75 Doppellagen. Die Autoren konnten für dieses Materialsystem zeigen, dass die Verringerung der $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{48}\text{V}_2$ -Schichtdicke zu einer beträchtlichen Reduktion der Koerzitivfeldstärke um nahezu eine Größenordnung von über 10 mT auf nur wenige mT führte. Die Verringerung der Koerzitivfeldstärke mit sinkender Dicke der magnetischen Lagen konnten auch Lu *et al.* [65] bei in reaktiven Magnetronkathodenzerstäubungsprozessen abgeschiedenen Fe-N/Ti-N-Viellagenschichten nachweisen. Die Koerzitivfeldstärke konnte hierbei von etwa 2 mT im Fall einer Fe-N-Referenzschicht auf etwa die Hälfte bei einer Viellagenschicht mit nur wenigen Nanometer dicken Fe-N-Einzellagen reduziert werden. Zudem wurden mittels Nanoindentierung für die Viellagenschichten im Vergleich zu der Fe-N-Einlagenschicht höhere Werte der Härte gemessen, wofür als Begründung das Einbringen von Ti-N in die Schichten genannt wurde. Bei mittels reaktiver Magnetronkathodenzerstäubung hergestellten Fe-N/TiN-Viellagenschichten zeigten Wang *et al.* [66], dass die Sättigungsmagnetisierung wie auch die Form der Magnetisierungskurve empfindlich von der TiN-Zwischenlagendicke abhängig waren. Die Autoren führten diese Beobachtungen auf antiferromagnetische Kopplung der ferromagnetischen Lagen über die TiN-Zwischenlagen zurück.

1.6.4 Viellagenschichten mit einstellbaren mechanischen Eigenschaften

In den 1980er Jahren wurden mittels Magnetronkathodenzerstäubung hergestellte Dünnschichten aus Hartstoffen für Verschleißschutzanwendungen etabliert [67, 68]. Ein bedeutender Fortschritt gegenüber der empirischen Materialauswahl bestand hierbei in der Auswahl von Hartstoffen anhand ihrer Klassifizierung nach vorherrschenden Bindungstypen (kovalente, metallische und ionische Bindung), die wiederum charakteristisch für zu erwartende physikalische Eigenschaften sind [69-71]. Ein weiterer Meilenstein war die Entwicklung von Viellagenschichten. In diesen wurden Lagen verschiedener Materialien abwechselnd geschichtet, um deren Eigenschaften zu kombinieren sowie neuartige Eigenschaftskombinationen zu erreichen. Viellagenschichten können klassifiziert werden in Viellagenschichten mit geringer Lagenzahl mit dem Ziel der Renukulation jeder Lage und in der Folge verhinderten kolumnaren Wachstums, Viellagenschichten aus einer hohen Zahl von Lagen verschiedener Kristallstruktur, sowie Viellagenschichten mit vorhandenem Übergitter [10, 72]. Wenn in solchen Schichten bei geeigneter Materialauswahl das Verhältnis zwischen Grenzflächenzahl und Materialvolumen sehr groß wird, können Nichtgleichgewichtsphasen stabilisiert werden [10]. Solche Effekte können zu Veränderungen der Schichteigenschaften führen. Beispielsweise können Härten oder Elastizitätsmoduln über den Werten der entsprechenden schichtbildenden Materialien erreicht werden. In diesem Kontext wurde eine Vielzahl von Kombinationen von Hartstoffen untersucht [73-80].

Es wurden ebenfalls Anstrengungen unternommen, die Eigenschaftsprofile von Metallen und Hartstoffen miteinander zu kombinieren. Bezüglich der Kombination von TaN-Lagen mit Metall-Lagen konnte nur eine Literaturstelle gefunden werden. So gelang es Kang *et al.* [81],

mittels reaktiver Magnetronkathodenzerstäubungsprozesse im DC-Modus Ta/TaN-Viellagenschichtsysteme herzustellen, die nach einem nachgeschaltetem Vakuumglühen bei Temperaturen zwischen 200 und 700 °C beträchtliche Härtewerte von bis zu 2500 HV bei qualitativ nachgewiesener hoher Duktilität aufwiesen. Eine Analyse der Wachstumsbeziehungen zwischen den Lagen beider Materialien wurde nicht vorgestellt.

Deutlich umfangreicher sind Veröffentlichungen über die Kombination von TiN mit Metallen zu Viellagenschichten verfügbar. Ma *et al.* [82] stellten Ti/TiN-Viellagenschichtsysteme mittels reaktiver Magnetronkathodenzerstäubung im RF-Modus her. An diesen konnten sie nachweisen, dass, wie erwartet, bei nicht zu dünnen Ti-Zwischenlagen durch Rissausbreitung verursachtes Schichtversagen aufgrund von Rissablenkung in den Metallschichten vermieden werden konnte. Diesen Effekt konnten Major und Morgiel [83] an Viellagenschichten mit der gleichen Materialkombination explizit durch TEM-Hellfeldaufnahmen zeigen. Bromark *et al.* [84] schlossen aus ihren Verschleißtests an Ti/TiN-Viellagenschichten mit unterschiedlichen Einzellagendicken, dass der Verschleißwiderstand der Schichten von dem individuell gewählten Schichtaufbau abhängig und durch die Abhängigkeit der Eigenspannung von den Einzellagendicken charakterisiert war. Ti/TiN-Viellagenschichten mit ähnlichem Schichtaufbau wurden von Bemporad *et al.* [85] entwickelt. Ihnen gelang es, Viellagenschichten mit bis zu 16 µm Gesamtschichtdicke herzustellen, wobei in allen Fällen vergleichsweise moderate Eigenspannungen mit einem Betrag von weniger als 1,6 GPa gemessen wurden. Als weiterer möglicher Vorteil von Metall/Hartstoff-Viellagenschichten gegenüber den entsprechenden Einlagenschichten wurde von Herranen *et al.* [86] sowie Wiklund *et al.* [87] anhand des Beispiels von auf Werkzeugstahl (ASP2030) bzw. auf Zirkalloy-Legierungen aufgebrauchten Ti/TiN-Viellagenschichten aufgezeigt, dass bei geeignetem Viellagenaufbau die Oxidation der Substrate deutlich verringert werden konnte. Als Grund für diesen Effekt wurde die Unterbrechung des säulenförmigen Wachstums der TiN-Lagen identifiziert, als deren Folge die Grenzflächendiffusion von Sauerstoff bis zur Substratoberfläche deutlich verringert wurde. Die Härte von Ti/TiN-Viellagenschichten entsprach bei den von Li *et al.* [88] hergestellten Schichten dem nach der Linearen Mischungsregel berechneten Wert. In weiteren Studien, wie beispielsweise der von Zhang *et al.* [89] und der von Ben Daia *et al.* [90], wurde gezeigt, dass Viellagenschichten dieser Materialkombination bei geringen Doppellagendicken deutlich erhöhte Härten aufweisen konnten, was auf verschiedene Effekte zurückgeführt wurde. Hierzu gehören der Hall-Petch-Effekt, die aufgrund von Unterschieden im Schubmodul verhinderte Bewegung von durch Frank-Read-Quellen erzeugten Versetzungen („Koehler-Modell“) sowie die mit zunehmender Lagenzahl wachsende Defektdichte mit resultierender Verhinderung von Versetzungsbewegungen. Durch exemplarisch durchgeführte tribologische Experimente (Stift–Scheibe-Versuch mit Al₂O₃-Kugeln als Gegenkörper bei 1 N Normallast ohne Schmierung) konnten Cheng *et al.* [91] demonstrieren, dass das Einbringen von Ti-Zwischenlagen in eine TiN-Schicht zu einer deutlichen Verringerung der Verschleißvolumina, sowohl der Schicht als auch des Gegenkörpers, führten.

Neben Titan sind auch andere Materialien für die Herstellung von Metall/TiN-Viellagenschichten verwendet worden. So wurde beispielsweise in Cu/TiN-Viellagenschichten mit Doppellagendicken von wenigen Nanometern kolumnares Wachstum nachgewiesen. Die einzelnen Lagen konnten hierbei kolumnar aufeinander aufwachsen, da eine heteroepitaktische Wachstumsbeziehung zwischen ihnen bestand [92]. In W/TiN-Viellagenschichten wurde bei Doppellagendicken von 2,7 nm ein Härteanstieg gegenüber einer bei gleichen

Wachstumsbedingungen hergestellten TiN-Referenzschicht nachgewiesen [93]. Bei Einbringung von Cu-Zn in TiN-Schichten zur Herstellung von Cu-Zn/TiN-Viellagenschichten konnte bei Doppellagendicken von mehreren 10 nm hingegen keine Erhöhung der Härte erreicht werden [94]. Durch das Zufügen von Cu und Zn konnte jedoch in Stift–Scheibe-Versuchen mit GCr15-Stahlkugeln als Gegenkörper (bei 0,5 N Normallast) eine beträchtliche Reduktion der Reibung und der Verschleißvolumina von Schicht und Gegenkörper demonstriert werden [94].

1.7 Zielsetzung und Vorgehensweise

Ziel dieser Arbeit war es, ein materialwissenschaftliches Konzept zur Herstellung von Verschleißschutzschichten mit integrierter Sensorfunktionalität auszuarbeiten. Das Sensorsignal sollte hierbei fernabfragbar sein.

Für die Sensorfunktionalität wurde der ferromagnetische Werkstoff $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ ausgewählt, der in FeCo/TaN- und FeCo/TiN- Viellagenschichten mit den metallischen Hartstoffen TaN und TiN kombiniert wurde. Hierfür wurden mittels Magnetronkathodenzerstäubung FeCo- und TaN- sowie FeCo- und TiN-Lagen jeweils abwechselnd aufeinander abgeschieden. Das Ziel dieser Arbeit und die Vorgehensweise sind in Abb. 1-11 dargestellt.

Die Auswahl von $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ erfolgte unter dem Gesichtspunkt der Nutzung des Frequenzmischungsverfahrens, das in Kapitel 1.3 beispielhaft als etabliertes Verfahren zur berührungslosen Ermittlung von Eigenschaften ferromagnetischer Werkstoffe vorgestellt wurde. Aus der Funktionsweise des Frequenzmischungsverfahrens ergaben sich die Anforderungen an die magnetischen Eigenschaften der in dieser Arbeit entwickelten Viellagenschichtsysteme:

- Magnetostriktion für die Ermöglichung der Detektion von Gitterdehnung,
- geringe Koerzitivfeldstärke,
- hohe Sättigungspolarisation als Voraussetzung für ein möglichst gutes Signal-zu-Rausch-Verhältnis,
- für den Einsatz möglichst hoher Frequenzen (im GHz-Bereich) eine Grenzfrequenz oberhalb dieser.

$\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ weist sowohl eine hohe ferromagnetische Sättigungspolarisation von 2,35 T als auch eine hohe Sättigungsmagnetostruktionskonstante von $\lambda_s \approx 70 \times 10^{-6}$ auf. Gleichzeitig ist $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ bei nanokristallinem Gefüge weichmagnetisch. Die mit 985 °C vergleichsweise hohe Curie-Temperatur ist Voraussetzung für das Einprägen einer uniaxialen ferromagnetischen Anisotropie in der Schichtebene durch Glühen im statischen Magnetfeld. Der verwendete Hartstoff TiN ist einer der bekanntesten und besterforschten metallischen Hartstoffe, der in der Zusammensetzung $\text{Ti}_{50}\text{N}_{50}$ und in einem weiten Bereich um diese Zusammensetzung einphasig ist und sich daher als Modellsystem anbietet. Aufgrund der im Vergleich zu Ti-Atomen deutlich größeren Radien von Ta-Atomen wurden für den ebenfalls untersuchten Hartstoff $\text{Ta}_{50}\text{N}_{50}$ unterschiedliche Wachstumsbedingungen erwartet als für das TiN. Zudem ist die Zahl der im System Ta-N stabilen Phasen höher, was unterschiedliche Ergebnisse in der Mikrostruktur der TaN-Lagen und der TiN-Lagen erwarten ließ. Bei der Abscheidung von TaN mittels Magnetronkathodenzerstäubung kann durch die größere Zahl möglicher stabiler Phasen die Zusammensetzung durch Zugabe des Reaktivgases N_2 in die Prozessgasatmosphäre verändert werden. Die Herstellung von Viellagenschichten mit den beiden verschie-

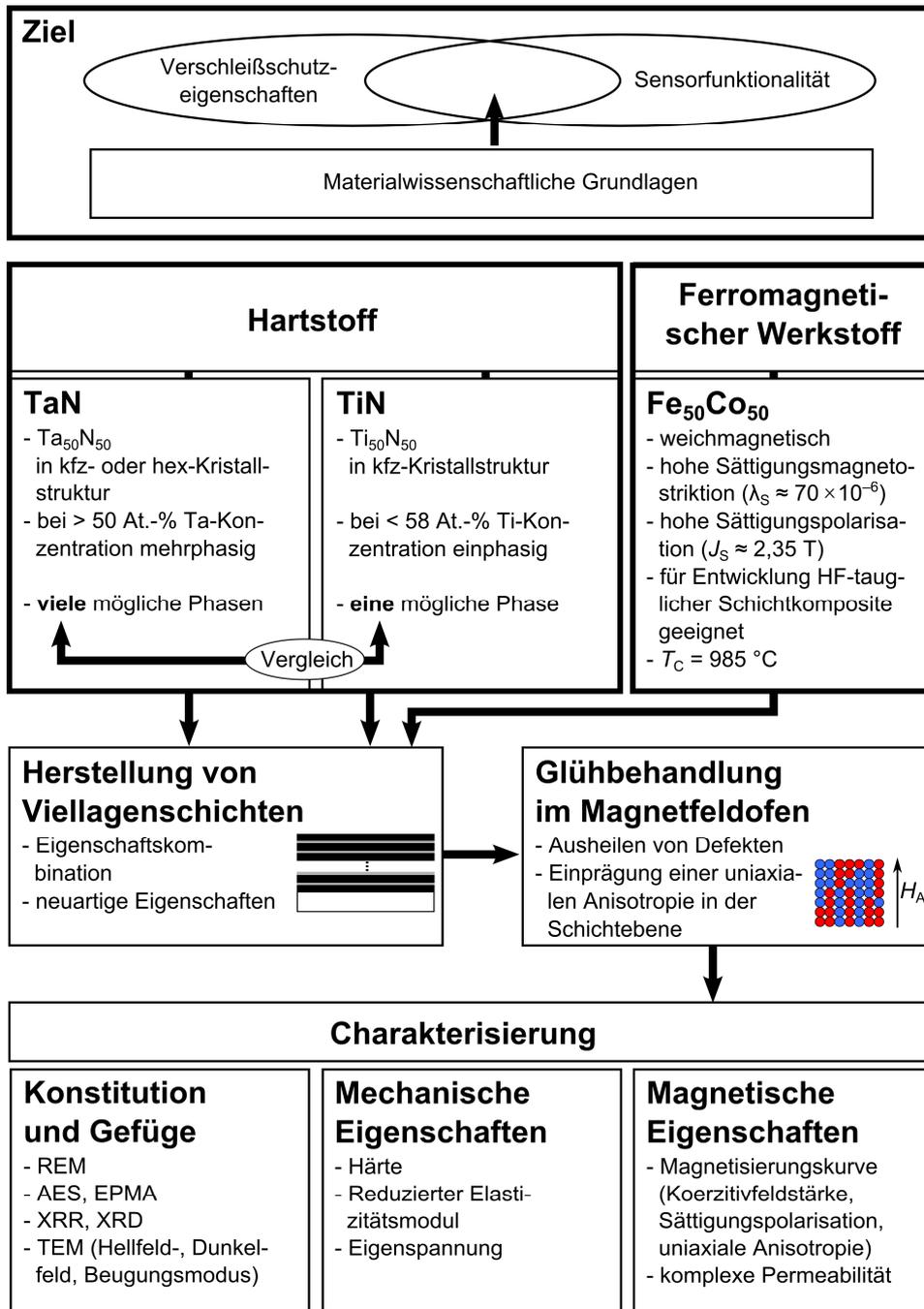


Abb. 1-11 Ziel und Vorgehensweise in dieser Arbeit.

denen Hartstoffen verspricht daher Rückschlüsse auf den Einfluss der Materialauswahl auf die Eigenschaften der hergestellten Schichtsysteme.

Wie bei Auswertung der in Kapitel 1.6 zusammengefassten Literatur deutlich wurde, bietet die Nutzung von FeCo als Bestandteil von Viellagenschichten die Möglichkeit, weichmagnetisches und Hochfrequenzverhalten gegenüber von Einlagenschichten zu verbessern. Ebenso fanden sich in der Literatur Beispiele für den Ansatz, die beiden betrachteten Hartstoffe in Viellagenschichtsystemen mit Metallen zu kombinieren. In vielen Fällen wurden hierdurch im Vergleich zu Einlagenschichten verbesserte mechanische Eigenschaften erhalten.

Nach der Abscheidung der Viellagenschichtsysteme wurden Exemplare aller Schichtsysteme im Vakuum bei gleichzeitig angelegtem Magnetfeld gegläht. Ziel der Glühprozesse war zum einen die Ausheilung von Defekten und zum anderen eine Einprägung einer uniaxialen ferromagnetischen Anisotropie in der Schichtebene.

Die Oberflächenbeschaffenheit, die chemische Zusammensetzung, die Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus, die Mikrostruktur und die Textur der hergestellten Proben wurden untersucht. Mit Nanoindentierung wurden die Härte und der Reduzierte Elastizitätsmodul von ungeglühten und von geglähten Schichtsystemen als wichtige Indikatoren für die Einsetzbarkeit als Verschleißschicht gemessen. Außerdem wurde die Eigenspannung dieser Schichtsysteme mit der Biegebalkenmethode ermittelt, um weitere Hinweise auf das technische Anwendungspotential zu erlangen. Die statischen und die dynamischen ferromagnetischen Eigenschaften aller Schichtsysteme wurden für die Beurteilung des Potentials zur sensorischen Nutzbarkeit ermittelt.

Die Ergebnisse wurden genutzt, um grundlegende materialwissenschaftliche Erkenntnisse über die Herstellung fernabfragbarer, sensorisch nutzbarer, Verschleißschichtsysteme zu gewinnen.

2 Materialien und experimentelle Methoden

2.1 Herstellung der Proben

2.1.1 Konfiguration der verwendeten Beschichtungsanlage

Für die Herstellung der Proben wurde eine Beschichtungsanlage vom Typ Z550 der Firma LEYBOLD HERAEUS verwendet. Der Rezipient dieser Anlage ist in Abb. 2-1 schematisch dargestellt. Der Betrieb von zwei Targets mit Gleichspannung („DC-Modus“) und von zwei weiteren Targets mit hochfrequenter Wechselspannung („RF-Modus“) war gleichzeitig möglich. Für die Herstellung von Viellagenschichten konnten die Verbleibedauer der Substrate unter jedem Target bei Rotation des Substrattellers im Uhrzeigersinn und die gewünschte Anzahl von Umdrehungen mit Hilfe einer entsprechend programmierten SPS eingestellt werden. Die Haltezeit an jeder Substratposition war sekundengenau möglich. Der Prozessgasfluss wurde mittels eines Gasflusssystems vom Typ 647B der Firma MKS INSTRUMENTS gesteuert, wobei der gewünschte Prozessgasdruck sowie der Gasfluss verschiedener Prozessgase unabhängig oder abhängig voneinander eingestellt werden konnten.

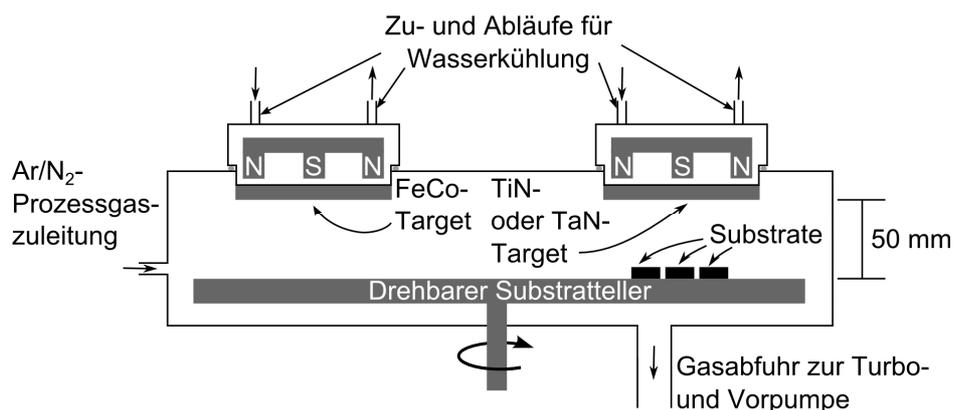


Abb. 2-1 Anordnung von Substraten und Targets in der Beschichtungsanlage.

2.1.2 Target- und Substratmaterialien, Substratvorbehandlung

Als Ausgangsmaterialien für die Herstellung der Viellagenschichtsysteme wurden scheibenförmige Targets mit einem Durchmesser von 15 cm verwendet. Die Targets aus TaN und TiN waren jeweils 6 mm dick, das metallische Fe₅₀Co₅₀-Target war 3 mm dick. Alle Targets waren zum Einbau in die Prozesskammer mit Silberleitkleber auf Träger aus Kupfer geklebt.

Es wurden während jedes Beschichtungsvorgangs Substrate geeigneten Materials und geeigneter Abmessungen für die unterschiedlichen angewendeten Messmethoden beschichtet. Für die Bestimmung der Eigenspannung wurden alle Schichtsysteme auf Substratstücken aus einkristallinem Silizium mit (100)-Orientierung und den Abmessungen 225 × 12 × 2 mm³ abgeschieden. Für die Herstellung von Querschnittpräparaten für TEM-Untersuchungen wurden polierte Streifen der Geometrie 12 × 1,7 × 0,4 mm³ aus Hartmetall vom Typ P601 beschichtet. Für alle übrigen Messmethoden wurden einkristalline Siliziumwafer mit (100)-Orientierung und einer Dicke von 0,375 mm als Substratmaterial verwendet, die bis zu einer

Tiefe von etwa 1 μm thermisch oxidiert waren. Die Wafer waren einseitig poliert. Während jedes Beschichtungsvorgangs wurden gleichzeitig Substrate verschiedener, für die jeweiligen Messmethoden geeigneter, Abmessungen beschichtet. Die für die Bestimmung der magnetischen Eigenschaften vorgesehenen Schichtsysteme wurden auf Substratstücke der Abmessungen $5 \times 5 \times 0,375 \text{ mm}^3$ abgeschieden. Weitere Proben wurden unter Verwendung von Substratstücken der Abmessungen $10 \times 10 \times 0,375 \text{ mm}^3$ hergestellt. Vor der Beschichtung wurden alle Substrate für 15 min in Aceton im Ultraschallbad gereinigt.

2.1.3 Probenherstellung

Während aller für diese Arbeit durchgeführten Beschichtungsprozesse wurden zwei Targets gleichzeitig betrieben. Dies galt auch für die Herstellung der Einlagenschichten, um eine Veränderung der Prozessparameter zu vermeiden. In allen Fällen befanden sich das $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ -Target sowie das TaN- bzw. das TiN-Target auf gegenüberliegenden Positionen in der Beschichtungsanlage, so wie es in Abb. 2-1 dargestellt ist. Die Beschichtungen wurden mittels Magnetronkathodenerstäubung durchgeführt. Da das von dem hinter dem $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ -Target platzierten Magnetron erzeugte Magnetfeld aufgrund der ferromagnetischen Eigenschaften des Targets stark abgeschwächt wurde, und in der Folge bei Nutzung von Gleichstromspannung geringere Ionisationswahrscheinlichkeiten in Nähe der Targetoberfläche sehr hohe Targetspannungen notwendig machen würden, wurde das Zerstäubungsplasma vor der $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ -Targetoberfläche im RF-Modus betrieben. Die TaN- und TiN-Targets erwiesen sich als ausreichend leitfähig für einen Betrieb des Zerstäubungsplasmas im DC-Modus.

Tab. 2-1 Prozessparameter während des Plasmaätzprozesses zur Substratreinigung.

Plasmaätzleistung (RF), W	500
Gleichgewichtsspannung (DC) am Substratteller, V	-300
Gesamtdruck im Rezipienten, Pa	0,5
Reflektierter Teil der eingekoppelten Targetleistung (RF), W	35

Nach dem Einlegen der Substrate auf den Substratteller wurde der Rezipient auf einen Restgasdruck $< 1 \text{ mPa}$ evakuiert. Im Anschluss wurden die Substrate für 20 min durch Plasmaätzen in Argon-Atmosphäre von Adsorbaten befreit. Die Prozessparameter während des Plasmaätzprozesses sind Tab. 2-1 zu entnehmen. Im Anschluss an das Plasmaätzen wurden – unter Beibehaltung der Substratposition – die Oberflächen der Targets von Verunreinigungen gesäubert, indem für eine Zeitdauer von fünf Minuten bei beiden Targets gleichzeitig Kathodenerstäubungsprozesse unter Verwendung moderater elektrischer Leistungsdichten durchgeführt wurden. Die Prozessdaten während dieses Säuberungsprozesses sind für die gleichzeitige Verwendung des $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ -Targets mit dem TiN-Target wie mit dem TaN-Target in Tab. 2-2 aufgeführt. Unmittelbar im Anschluss an die Targetsäuberung wurde der jeweilige Beschichtungsprozess gestartet. Hierfür wurde der gewünschte Arbeitsgasdruck durch Einlassen von Argon (99,9999 % Reinheit) in den Rezipienten eingestellt. Im Anschluss wurden die Zerstäubungsprozesse an beiden Targets mit der gewünschten elektrischen Leistung gestartet. Der Arbeitsgasdruck betrug im Allgemeinen 0,2 Pa, da sich bei nichtreaktiver Ab-

scheidung der verwendeten Hartstoffmaterialien die resultierenden hohen Depositionsraten positiv auf die Schichtqualität auswirkten. Eine Ausnahme hiervon waren Experimente zur Herstellung von FeCo/TiN-Viellagenschichten unter gezielter Variation des Prozessgasdrucks. Die elektrische Leistung am TaN- und am TiN-Target betrug während aller Beschichtungsprozesse 700 W im DC-Modus, die elektrische Leistung am Fe₅₀Co₅₀-Target betrug im Allgemeinen 250 W im RF-Modus, wobei Experimente zur gezielten Variation der RF-Leistung im Bereich 50–300 W die Ausnahme hiervon darstellten. Bei keinem der Prozesse wurde eine zusätzliche Substratvorspannung verwendet, um das Maß der Lagendurchmischung während des Schichtwachstums nicht zu erhöhen. Da die Substrate nicht extern beheizt wurden, wurde ihre Temperatur während der Beschichtung nur von auftreffenden Prozessgas- und vom Target stammenden Atomen erhöht und betrug etwa 100 °C–200 °C. Für Beschichtungen unter Hinzugabe von N₂ als Reaktivgas wurde, ausgehend von einem nicht-reaktiven Prozess, der Stickstofffluss langsam auf den gewünschten Wert erhöht, um die bei reaktiver Kathodenzerstäubung erwarteten, bereits in Kapitel 1.5.1 oben erwähnten, Hystereseeffekte zu vermeiden [47, 48]. Gleichzeitig wurde der Argonfluss derart geregelt, dass der Prozessgasdruck konstant blieb.

Tab. 2-2 Prozessparameter bei gleichzeitiger Targetsäuberung von Fe₅₀Co₅₀- und Hartstofftarget.

	Hartstoff	
	TaN	TiN
Targetleistung P_{FeCo} (RF), W	250	250
Gleichgewichtsspannung (DC) am Fe ₅₀ Co ₅₀ -Target, V	– 1330	– 1380
Reflektierter Teil der eingekoppelten Targetleistung (RF), W	8	6
Targetleistung P_{TaN} (DC) bzw. P_{TaN} (DC), W	500	500
Gleichgewichtsspannung (DC) am Hartstofftarget, V	– 380	– 510
Gesamtdruck im Rezipienten, Pa	0,5	0,5

Fünf Minuten nach Einstellung eines stabilen Prozesses wurde die Beschichtung durch Platzierung der Substrate unter das entsprechende Target gestartet. Bei der Herstellung von Viellagenschichten wurde der Wechsel der Probenposition automatisch durch die SPS vorgenommen.

2.1.4 Prozessbedingungen und Viellagenaufbau

Das in dieser Arbeit verwendete Konzept zum Aufbau der hergestellten Viellagenschichtsysteme sowie die verwendete Nomenklatur sind in Abb. 2–2 dargestellt.

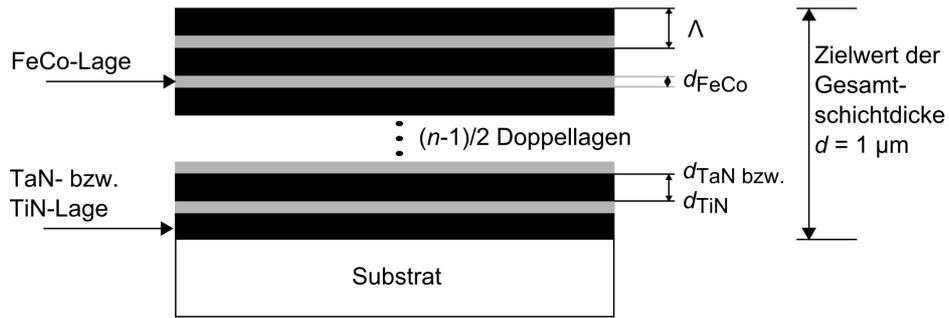


Abb. 2-2 Konzept zum Aufbau der Viellagenschichtsysteme sowie die verwendete Nomenklatur. Die Symbole sind n : Anzahl der Lagen, d_{FeCo} , d_{TaN} und d_{TiN} : Lagendicke des jeweiligen Materials, Λ : Doppellagendicke, d : Gesamtschichtdicke. Soweit nicht anders angegeben, waren die Prozessparameter wie folgt: Der Prozessgasdruck betrug $p = 0,2 \text{ Pa}$, die Targetleistungen betragen $P_{FeCo} = 250 \text{ W (RF)}$ und $P_{TaN} = P_{TiN} = 700 \text{ W (DC)}$.

Gemäß diesem Konzept wurde zunächst $Fe_{50}Co_{50}$ mit TaN bzw. TiN zu FeCo/Hartstoff-Viellagenschichtsystemen mit einer nominellen Gesamtschichtdicke von $1 \mu\text{m}$ kombiniert. Hierbei wurde bei ansonsten unveränderten Prozessparametern der Viellagenaufbau verändert. Eine Übersichtsdarstellung über die abgeschiedenen Viellagenschichtsysteme ist in Abb. 2–3 zu sehen.

		N-Anteil an Prozessgasatmosphäre →		
		Ar-Inertgasatmosphäre N-Anteil $\approx 0 \text{ Vol.-%}$	Ar/N ₂ -Reaktivgasatmosphäre N-Anteil $\approx 10 \text{ Vol.-%}$	N- Anteil $\approx 20 \text{ Vol.-%}$
FeCo/TaN- Viellagenschichtsysteme	$x = d_{TaN}/\Lambda$ konstant	 $x = 0,13$ $n = 55..391$ $\Lambda = 42 \text{ nm}$ $..6,1 \text{ nm}$	 $x = 0,15$ $n = 295..391$ $\Lambda = 11,3 \text{ nm}$ $..5,1 \text{ nm}$	 $x = 0,16$ $n = 295..391$ $\Lambda = 9,3 \text{ nm}$ $..4,5 \text{ nm}$
	d_{TaN} konstant		 $x = 0,15..0,30$ $n = 391$ $\Lambda = 6,0 \text{ nm}$ $..5,1 \text{ nm}$	 $x = 0,16..0,36$ $n = 391$ $\Lambda = 5,9 \text{ nm}$ $..4,5 \text{ nm}$
FeCo/TiN- Viellagenschichtsysteme	$x = d_{TiN}/\Lambda$ konstant	 $x = 0,25$ $n = 19..781$ $\Lambda = 88 \text{ nm}$ $..2,6 \text{ nm}$		
	d_{TiN} konstant	 $x = 0,25..0,39$ $n = 781$ $\Lambda = 3,3 \text{ nm}$ $..2,6 \text{ nm}$		

Abb. 2-3 Übersichtsdarstellung über die Variation des Viellagenaufbaus der FeCo/TaN- und FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme. Der Prozessgasdruck betrug $p = 0,2 \text{ Pa}$, die Targetleistungen betragen $P_{FeCo} = 250 \text{ W (RF)}$ und $P_{TaN} = P_{TiN} = 700 \text{ W (DC)}$. Der Zielwert der Gesamtschichtdicke betrug in allen Fällen $1 \mu\text{m}$. Die jeweils variierten Parameter sind durch Fettdruck gekennzeichnet.

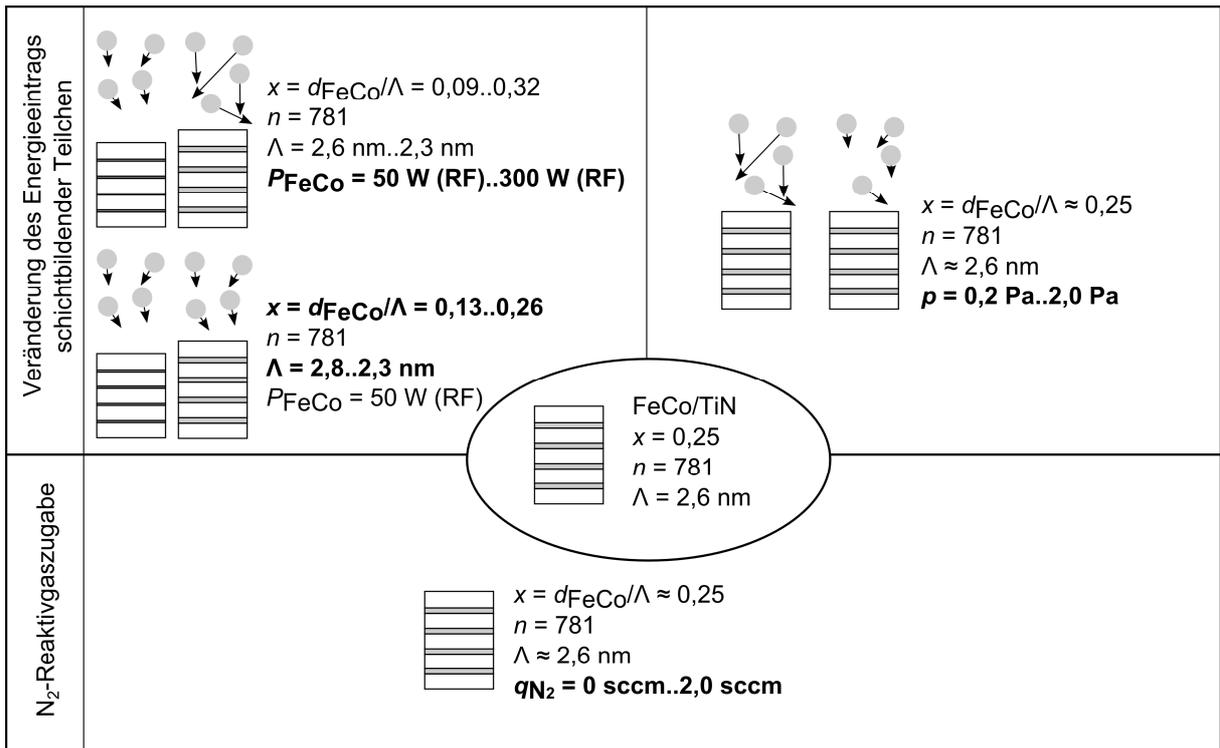


Abb. 2-4 Übersichtsdarstellung über die Variation der Prozessparameter zur Herstellung von FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen. Sofern nicht anders angegeben, betragen der Prozessgasdruck $p = 0,2 \text{ Pa}$, die Targetleistungen $P_{\text{FeCo}} = 250 \text{ W (RF)}$ und $P_{\text{TiN}} = 700 \text{ W (DC)}$. Der Zielwert der Gesamtschichtdicke betrug in allen Fällen $1 \mu\text{m}$. Die jeweils variierten Parameter sind durch Fettdruck gekennzeichnet.

Ausgehend von dem FeCo/TiN-Viellagenschichtsystem mit dem geringsten Λ von $2,6 \text{ nm}$ wurden zusätzlich Viellagenschichten mit dem gleichen Viellagenaufbau unter Veränderung der Prozessparameter hergestellt. Eine Übersichtsdarstellung der hergestellten Schichten ist in Abb. 2-4 gezeigt.

2.1.5 Glühbehandlung im Magnetfeldofen

Nach ihrer Herstellung wurden die Dünnschichten zur Einprägung einer uniaxialen Anisotropie in der Schichtebene in einem von der Firma CREATEC hergestellten Magnetfeldofen unter Vakuum geblüht. Eine Prinzipskizze zur Platzierung der Proben innerhalb des Glühofens ist in Abb. 2-5 gezeigt.

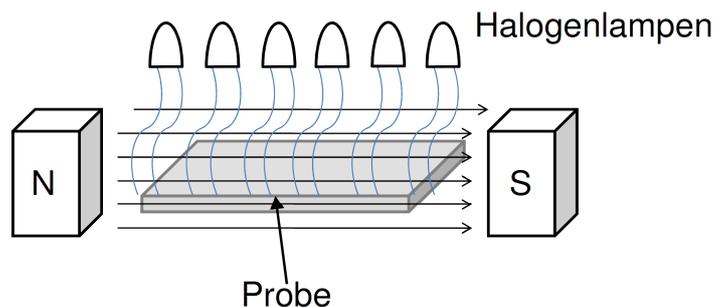


Abb. 2-5 Prinzipskizze zur Platzierung der Proben innerhalb des Magnetfeldofens.

Der Magnetfeldofen bestand aus einer Lade- und einer Heizkammer, die unabhängig voneinander jeweils mit Hilfe einer Vorpumpe und einer Turbopumpe evakuiert werden konnten. In der Heizkammer waren zwölf Halogenlampen installiert, um durch Wärmestrahlung die Temperatur von in der Heizkammer positionierten Proben zu erhöhen. Außerhalb der Heizkammer war ein Pyrometer installiert, das durch eine durchsichtige Scheibe Wärmestrahlung detektieren konnte. Die elektrische Leistung an den Quartzlampen konnte über einen Mess- und Regelkreis automatisch eingestellt werden, um vorher definierte Heiz- und Abkühlprofile gewährleisten zu können. An die Heizkammer war ein Elektromagnet in Hufeisenform auf solche Weise montiert, dass die Proben genau zwischen dessen Polen positioniert werden konnten. Auf ihrer Glühposition befanden sich die Proben bei eingeschaltetem Elektromagneten in einem näherungsweise homogenen Magnetfeld. Die Proben wurden mit Hilfe einer Maske auf einer Halteplatte aus Titan positioniert und über die Ladekammer nach deren Evakuierung in die Heizkammer gegeben. Sobald ein Druck von $p < 10^{-4}$ Pa erreicht war, wurde der Elektromagnet eingeschaltet. Der Elektromagnet wurde mit 10 A Spulenstrom betrieben, wodurch eine magnetische Flussdichte von 50 mT erzeugt wurde. Diese Feldstärke war ausreichend, um alle für diese Arbeit hergestellten ferromagnetischen Dünnschichten während des Glühprozesses in ferromagnetischer Sättigung zu halten, was die notwendige Bedingung zur Einprägung einer uniaxialen Anisotropie ist. Nach Einschalten des Elektromagneten wurde der Glühprozess gestartet. Hierfür wurde die Temperatur mit einer Heizrate von 20 °C/min auf den gewünschten Wert erhöht und anschließend für 60 Minuten konstant gehalten. Nach Ablauf der Glühzeit wurden die Quartzlampen abgeschaltet, so dass eine Abkühlung auf Raumtemperatur innerhalb von einigen Stunden möglich war. Erst nach Abkühlen der Proben auf Raumtemperatur wurde der Elektromagnet ausgeschaltet, und die Proben wurden aus der Kammer entfernt.

Bei nanokristallinen FeCoTaN- und FeCoAlN-Einlagenschichten wurden von Bekker *et al.* [95] 400 °C bzw. 500 °C als geeignete Glühtemperaturen ermittelt, um eine nanokristalline Mikrostruktur und weichmagnetisches Verhalten zu gewährleisten. Analog dazu wurden die in dieser Arbeit hergestellten Viellagenschichtsysteme bei 400 °C und 500 °C im Magnetfeld und unter Vakuum geglüht. Um zusätzlich die Stabilität des Aufbaus der hergestellten Schichtsysteme bei höheren Temperaturen untersuchen zu können, wurden die Proben zusätzlich noch bei 600 °C im Magnetfeld und unter Vakuum geglüht. Von der Verwendung noch höherer Temperaturen wurde abgesehen, um die Stabilität der SiO₂-Schicht der Substrate als Diffusionsbarriere nicht zu gefährden.

2.2 Methoden zur Analyse von chemischer Zusammensetzung, Viellagenaufbau, Mikrostruktur und Textur

2.2.1 Elektronenstrahlmikrosondenuntersuchung und Augerelektronenspektroskopie

Die chemische Zusammensetzung der Schichten wurde mit Elektronenstrahlmikrosonde (engl.: *Electron probe microanalysis*, EPMA) und Augerelektronenspektroskopie (AES) ermittelt. Für beide Verfahren wird eine zu untersuchende Probe mit einem Elektronenstrahl beschossen. Als Folge können Elektronen durch Elektronenstoßionisation aus inneren Atomschalen entfernt werden. Wird die freigewordene Atomposition durch ein Elektron aus einer höheren Schale besetzt, kann ein Photon mit der Wellenlänge entsprechend der Energiedifferenz des abgebenden und des aufnehmenden Energieniveaus emittiert werden. Die EPMA

basiert auf der Auswertung des Energiespektrums dieser charakteristischen Röntgenstrahlung. Ein weiterer möglicher physikalischer Prozess als Folge der Wiederauffüllung der inneren Schalen ist die Abgabe der freigewordenen Energie an ein in einer noch höheren Atomschale befindliches weiteres Elektron. Wenn dieses Elektron den Festkörper verlassen kann, entspricht seine kinetische Energie der Energiedifferenz von abgebender und aufnehmender Elektronenposition reduziert um die Austrittsarbeit (Auger-Effekt) [46].

Für die EPMA wurde ein Gerät des Typs *Camebax Microbeam* der Firma CAMECA verwendet. Die zu untersuchende Probe wurde mit einem Elektronenstrahl mit der Energie 10 keV beschossen. Im Anschluss wurde die Energie der entstehenden Röntgenstrahlung durch Beugung an einem geeigneten Einkristall ermittelt. Zur quantitativen Ermittlung der elementaren Zusammensetzung der untersuchten Proben wurden die Röntgenintensitäten unter Verwendung von Standardproben bekannter Zusammensetzung kalibriert. Die Elementzusammensetzung der Schichten konnte mit $< 1\%$ Genauigkeit ermittelt werden. Da die Tiefenauflösung und die laterale Auflösung $> 1\ \mu\text{m}$ betragen, wurde EPMA nur für Einzellagenschichten durchgeführt, deren Mindestdicke mindestens $1\ \mu\text{m}$ betrug [46].

Für die AES wurde ein Gerät vom Typ *PHI 680 Scanning Auger Nanoprobe* der Firma PHYSICAL ELECTRONICS verwendet. Die zu untersuchende Probe wurde mit einem Elektronenstrahl beschossen und die ausgelösten Augerelektronen mit einem Zylinderspiegelanalytator detektiert. Analog zu dem Vorgehen bei der EPMA ist auch bei der AES die Kalibrierung des erfassten Signals an Standardproben notwendig. Für die verschiedenen Schichtserien wurden dazu je nach Bedarf $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ -, TaN-, TaC- und TaO_x -, oder aber $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ -, TiN-, TiC- und TiO_x -Standardproben verwendet. Aufgrund des im Vergleich zu Photonen deutlich höheren Stoßquerschnitts von Elektronen mit den Schichtatomen war die Tiefenauflösung mit einer (je nach Element) typischen freien Weglänge von $0,3\text{--}3,0\ \text{nm}$ deutlich geringer. Ebenso konnte das laterale Auflösungsvermögen auf bis zu wenige Nanometer erhöht werden und war damit deutlich größer als bei der EPMA. Durch sukzessives Abtragen der untersuchten Schicht mit einem Ionenstrahl und der Durchführung von AES wurden Tiefenprofile erstellt. Der abtragende Elektronenstrahl wurde hierfür unter einem Winkel von 45° auf die Probenoberfläche gerichtet. Die Energie des Elektronenstrahls wurde mit $250\ \text{eV}$ sehr gering gewählt, um eine durch den Primärstrahl verursachte Durchmischung an Lagengrenzflächen zu minimieren, und die Erstellung von Tiefenprofilen von Viellagenschichten mit geringen Einzellagendicken zu ermöglichen [46]. Die Abtragsrate betrug bei dieser Energie $\approx 1\ \text{nm/min}$.

2.2.2 Röntgendiffraktometrie und -reflektometrie

Röntgendiffraktometrie bezeichnet die Detektion der Intensität von an Materie gestreuter Röntgenstrahlung. Unter der vereinfachenden Annahme, dass pro eintreffendem Photon genau ein Streuprozess stattfindet („kinematische Approximation“), kann die Beugung der auf einem Kristall auftreffenden Röntgenstrahlung als Spiegelung an den im Festkörperkristall vorhandenen parallelen Netzebenen verstanden werden. Aufgrund des Wellencharakters der Röntgenstrahlung können die an den verschiedenen Ebenen gebeugten Strahlen konstruktiv interferieren [46]. Hierfür muss notwendigerweise die Braggsche Bedingung

$$2d_{hkl} \sin \Theta = m\lambda \quad (2.1)$$

erfüllt sein. In Gl. (2.1) sind d_{hkl} der Abstand der Netzebenenschar hkl , Θ der Beugungswinkel, λ die Wellenlänge der verwendeten Röntgenstrahlung und m eine Ordnungszahl (siehe auch Abb. 2-6). Die Intensität der nach Gl. (2.1) auftretenden Beugungsmaxima wird vor allem durch den Aufbau der Einheitszelle bestimmt und kann bei entsprechender Anordnung der Atome auch 0 werden [46].

Ein Standardverfahren zur Ermittlung der in einem Festkörper vorhandenen Phasen ist die Röntgenbeugung in der sogenannten Bragg-Brentano-Geometrie. In dieser Konfiguration sind Ein- und Ausfallswinkel zu jedem Zeitpunkt gleich (Θ - 2Θ -Konfiguration, siehe auch Abb. 2-6). Bei Verwendung dieser Versuchsanordnung werden nur Reflexe von parallel zur Probenoberfläche orientierten Netzebenen erfasst.

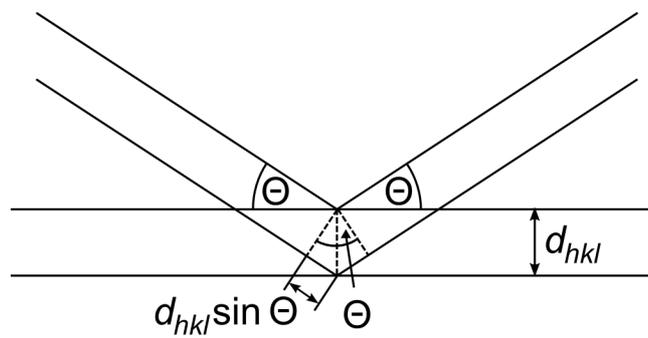


Abb. 2-6 Zur Veranschaulichung der in der Bragg'schen Bedingung verwendeten Größen, nach [46].

Die für diese Arbeit hergestellten Schichten wurden mit einem Röntgendiffraktometer des Typs *PAD II* der Firma SEIFERT unter Verwendung der Bragg-Brentano-Geometrie und von $\text{Cu-K}\alpha$ -Strahlung untersucht. Die verwendete Strahlung setzte sich vor allem aus Strahlung der beiden Wellenlängen $\lambda_{\text{K}\alpha,1} = 0,15406 \text{ nm}$ ($\text{Cu-K}\alpha,1$ -Linie) und $\lambda_{\text{K}\alpha,2} = 0,15444 \text{ nm}$ ($\text{Cu-K}\alpha,2$ -Linie) zusammen, deren Intensitätsverhältnis etwa 2:1 betrug. Als beträchtlich schwächerer Bestandteil war außerdem Strahlung vorhanden, die der $\text{Cu-K}\beta$ -Linie zuzuordnen war. Als Artefakt der Röntgenröhre waren außerdem die $\text{L}_{\alpha,1}$ - und $\text{L}_{\alpha,2}$ -Linien von Wolfram nachweisbar. Die drei letztgenannten trugen nur geringfügig zu der Gesamtintensität bei, weswegen sie für die eigentliche Phasenanalyse nicht berücksichtigt wurden. Die Identifizierung der Beugungsreflexe erfolgte durch Abgleich mit einer Referenzdatenbank („PDF“) des INTERNATIONAL CENTRE FOR DIFFRACTION DATA. Für die Auswertung der Röntgenbeugungsdiagramme wurden die Referenzkarteikarten für $\text{krz-Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ vom Typ CsCl [96], $\text{kfz-Ti}_{50}\text{N}_{50}$ vom Typ NaCl [97], $\text{hex-Ta}_2\text{N}$ [98], $\text{hex-Ta}_{50}\text{N}_{50}$ [99], sowie $\text{kfz-Ta}_{50}\text{N}_{50}$ vom Typ NaCl [100] verwendet.

Wird das oben beschriebene Verfahren an planen Festkörperoberflächen mit kleinen Beugungswinkeln ($2\Theta \lesssim 10^\circ$) durchgeführt, wird es als Röntgenreflektometrie (engl.: *X-ray reflection*, XRR) bezeichnet [101, 102]. In den gemessenen Diagrammen sind zwei Bereiche zu unterscheiden [102], wie im Folgenden aufgeführt wird.

Bereich 1: Im Winkelbereich unterhalb eines kritischen Winkels Θ_{krit} findet Totalreflektion statt, da der Brechungsindex von Festkörpern für Röntgenstrahlung im Allgemeinen kleiner als 1 ist.

Bereich 2: Oberhalb des kritischen Winkels Θ_{krit} sind bei Untersuchung von Dünnschichten im Allgemeinen Intensitätsoszillationen zu beobachten. Deren Ursache sind Interferenzen von jeweils an der Oberfläche und der Schicht–Substrat-Grenzfläche reflektierter sowie im Schichtmaterial absorbierter und abgelenkter Röntgenstrahlung. Anhand von Reflektivitätsdiagrammen von Einzellagen lässt sich aus dem Abstand der Maxima die Schichtdicke bestimmen. Im Grenzfall von Viellagenschichten dominiert hingegen destruktive Interferenz, und nur noch aus vielfach wiederholten Mehrlagenstrukturen resultierende Interferenzmaxima bleiben vorhanden. Aus deren Existenz lässt sich qualitativ die starke Regelmäßigkeit der jeweiligen Wiederholungslänge (bei zwei jeweils abwechselnden Materialien die Doppellagendicke) ableiten. Die übergeordneten Intensitätsmaxima entstehen aus der konstruktiven Interferenz von an den Grenzflächen rückgestreuter Röntgenstrahlung, so dass analog zu dem in Abb. 2-6 gezeigten Modell die Wiederholungslänge aus der modifizierten Bragg-Gleichung [103]

$$\Lambda = \frac{\lambda(m - q)}{2 (\sin \Theta_m - \sin \Theta_q)} \quad (2.2)$$

ermittelt werden kann. In Gl. (2.2) sind Λ die Doppellagendicke und m sowie q die Ordnungszahlen zweier aufeinander folgender Intensitätsmaxima. Die übrigen Symbole bezeichnen die Wellenlänge λ der verwendeten Röntgenstrahlung sowie den Beugungswinkel Θ .

Die Goniometergeometrie während der Messung des eigentlichen XRR-Diagramms entspricht der oben beschriebenen Bragg-Brentano-Anordnung. Die aufgrund der geringen Beugungswinkel höheren Anforderungen an die Positionierung der Probe im Strahlengang machen jedoch eine exakte Probenpositionierung erforderlich, für die ein Gerät mit einer hohen Zahl von Freiheitsgraden genutzt werden muss. Für die Messung der Röntgenreflektivität wurde daher ein Diffraktometer des Typs *ID3003* der Firma SEIFERT verwendet, das über ein Vierachsgoniometer verfügte. Alle Messungen wurden im Messbereich von 2Θ zwischen $0,05^\circ$ und, je nach Doppellagendicke und folglich zu erwartender Position der Übergitterreflexe, 6° bis 10° bei einer Schrittweite von $0,005^\circ$ durchgeführt. Die Messdauer pro Schritt betrug je nach der Maximalintensität 10–45 s.

2.2.3 Transmissionselektronenmikroskopie

Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) im Hellfeld- und Dunkelfeldmodus wurde in dieser Arbeit für die Abbildung von Querschnittpräparaten genutzt. Außerdem wurden an denselben Querschnittpräparaten Beugungsabbildungen zur Ermittlung von Strukturinformationen aufgenommen. Für beide Abbildungsmodi ist eine hohe Durchlässigkeit von Elektronen durch den Schichtquerschnitt notwendig. Die Querschnittpräparate müssen deshalb zumindest lokal dünner als 100 nm sein. Für diese Arbeit wurden Proben mit zwei verschiedenen Methoden präpariert: Für die Präparation von Schichtquerschnitten wurden Schichten auf polierte Hartmetallstreifen abgeschieden, die aus WC-Co-Wendeschnidplatten vom Typ P 601 ausgeschnitten worden waren. Zwei gleiche Hartmetallstreifen wurden, mit der Schichtober-

fläche zueinander positioniert, im Querschnitt zu Scheiben gesägt und anschließend mit einer Ionenätze vom Typ *PIPS Model 691* der Firma GATAN ausgedünnt und plasmageätzt. Andere Querschnittpräparate wurden mittels *Focused ion beam* (FIB) direkt ausgeschnitten und im Anschluss bis auf möglichst geringe verbleibende Querschnittsbreiten weiter ausgedünnt. Hierfür wurde ein Gerät vom Typ *Quanta 200 3D* der Firma FEI verwendet. Die Ionenströme betragen während der Querschnittpräparation zwischen 50 pA und 7 nA. Die Beschleunigungsspannung wurde zu 30 kV eingestellt.

Es wurden Elektronenmikroskope vom Typ *CM30* der Firma PHILIPS und vom Typ *Tecnai F20* der Firma FEI verwendet. Bei Aufnahmen mit dem Mikroskop *CM30* betrug die Beschleunigungsspannung 300 keV. Bei Aufnahmen mit dem Mikroskop vom Typ *Tecnai F20* betrug die Beschleunigungsspannung 200 keV. Die Auswertung der Beugungsabbildungen wurde mit Hilfe des Rechnerprogramms *ProcessDiffraction V_6.2.0 Q* durchgeführt [104-106].

2.2.4 Rasterelektronenmikroskopie

Die Rasterelektronenmikroskopie (REM) wurde verwendet, um die Bruch- und Oberflächen von ausgewählten Proben abzubilden. Das Messprinzip der REM beruht auf der Abtastung der Probenoberfläche mit einem fokussierten Elektronenstrahl und der Detektion der ausgelösten Sekundärelektronen. Es wurden Rasterelektronenmikroskope des Typs *JSM-840* der Firma JEOL (Elektronenemission aus einer Wolframkathode) und des Typs *XL30S* der Firma FEI (Elektronenstrahlerzeugung mittels Feldemissionskathode) verwendet. Die verwendete Beschleunigungsspannung betrug 15 kV, der maximal genutzte Vergrößerungsfaktor war 50000.

2.3 Bestimmung der Gesamtschichtdicken

Für die Messung von Gesamtschichtdicken zur Ermittlung der Abscheideraten wurde in dieser Arbeit taktile Oberflächenprofilometrie verwendet. Die hierfür notwendige Messmethodik ist schematisch in Abb. 2-7 gezeigt. Zunächst wurde ein Bereich des Substrats mit einem Polyimid-Klebestreifen abgeschirmt (1). Durch Plasmaätzen (2) wurden für eine Dauer des Ätzprozesses t_e Substrat- und Klebestreifenmaterial entfernt (3). Anschließend wurden das Substrat und der aufgeklebte Klebestreifen beschichtet (4, 5). Schließlich konnte die Messgröße d_{Mess} nach Entfernung des beschichteten Klebestreifens mit einem Tastschnittgerät bestimmt werden (6). Im Anschluss konnte die Schichtdicke mit

$$d = d_{\text{Mess}} + r_e t_e \quad (2.3)$$

bestimmt werden. In Gl. (2.3) sind d die Schichtdicke, r_e die Ätzrate als pro Zeit entfernte Schichtdicke und t_e die Dauer des Ätzprozesses.

Es wurde ein Tastschnittgerät vom Typ *P-10* der Firma KLA-TENCOR verwendet. Hierbei betrug die laterale Geschwindigkeit der Messspitze während aller Messungen 10 $\mu\text{m/s}$ bei einer Datenerfassungsrate (*Sampling Rate*) von 200 Hz.

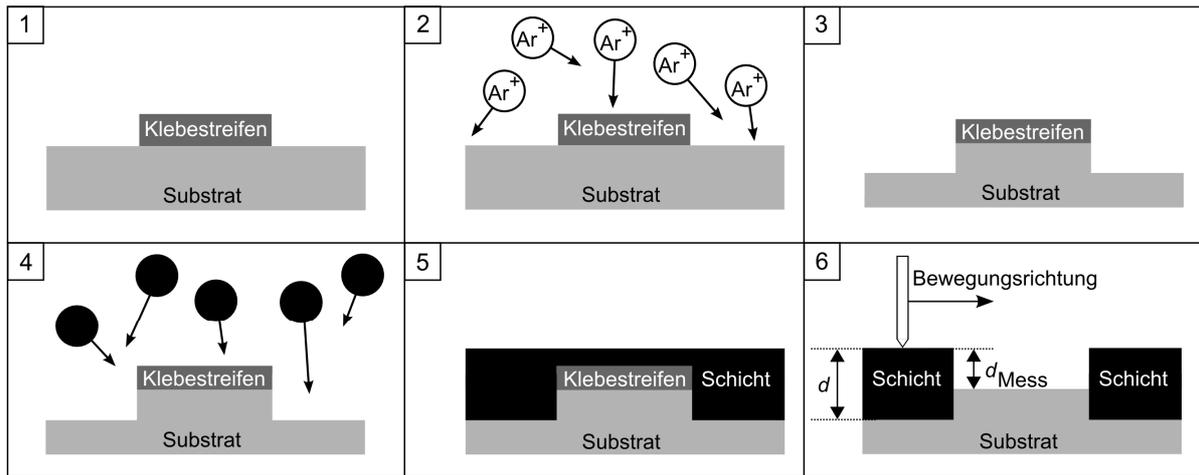


Abb. 2-7 Schematische Darstellung der Schichtdickenbestimmung mittels taktiler Oberflächenprofilometrie.

2.4 Messung mechanischer Eigenschaften

2.4.1 Härte und Elastizitätsmodul

Die Härte eines Festkörpers ist definiert als sein Widerstand gegen Eindringen eines härteren Gegenkörpers. Die Messung der Härte von Beschichtungen stellt eine Herausforderung dar. Für diese Arbeit wurde hierfür die Nanoindentierung verwendet [107]. Als weitere mechanische Kenngröße wurde mit diesem Verfahren zudem der Reduzierte Elastizitätsmodul bestimmt. Für die Nanoindentierung an einer Schicht wird eine Diamantpyramide mit einem Öffnungswinkel von $142,3^\circ$ (Berkovich-Geometrie) auf die Schichtoberfläche gesetzt und die Last von 0 beginnend erhöht. In der Folge dringt die Diamantpyramide in die Schicht ein. Nach Erreichen einer zuvor definierten Maximallast wird die Last wieder schrittweise auf 0 reduziert. Das Aussehen einer Last – Eindringtiefe-Kurve ist schematisch in Abb. 2-8 gezeigt.

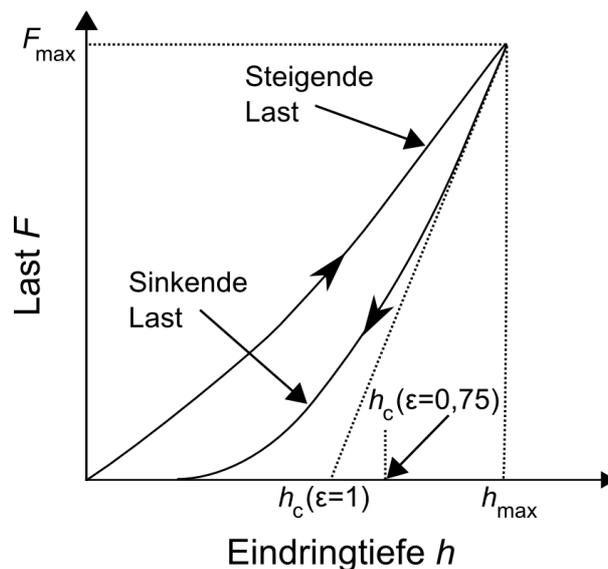


Abb. 2-8 Schematische Darstellung einer Last – Eindringtiefe-Kurve bei der Nanoindentierung, nach [107].

Aus einer an die Entlastungskurve angelegten Tangente lässt sich die Steifigkeit S mit

$$S = \frac{dF}{dh} \quad (2.4)$$

ermitteln [107]. In Gl. (2.4) sind F die Last und h die Eindringtiefe. Der Quotient der infinitesimalen Werte dF und dh wird als Steigung einer an den oberen Teil der Last–Eindringtiefe-Kurve angelegten Gerade verstanden. Unter Verwendung von Gl. (2.4) kann die Entlastungseindringtiefe h_C des Eindringkörpers mit

$$h_C = h_{\max} - \varepsilon \frac{F_{\max}}{S} \quad (2.5)$$

berechnet werden, wobei h_{\max} die Eindringtiefe unter maximaler Last, ε eine geometrieabhängige Konstante ($\varepsilon = 0,75$ bei in dieser Arbeit verwendeter Berkovich-Pyramide) und F_{\max} die maximale Prüflast sind. Mit der in Gl. (2.5) berechneten bleibenden Eindringtiefe h_C lässt sich die Querschnittsfläche A_C des bleibenden Eindrucks bei vollständiger Entlastung berechnen, die für die Berechnung des unkorrigierten Reduzierten Elastizitätsmoduls benötigt wird.

Der unkorrigierte Reduzierte Elastizitätsmodul ergibt sich aus

$$E_r^* = \frac{\sqrt{\pi} S}{2\beta\sqrt{A_c}} \quad (2.6)$$

mit dem geometrieabhängigen Faktor β . Der Faktor β beträgt 1,034 bei Verwendung einer dreiseitigen Pyramide mit dem Öffnungswinkel $142,3^\circ$ (Berkovich-Indenter). Der unkorrigierte Reduzierte Elastizitätsmodul der Probe steht in der Relation

$$\frac{1}{E_r^*} = \frac{1 - \nu^2}{E} + \frac{1 - \nu_{EK}^2}{E_{EK}} \quad (2.7)$$

zum Elastizitätsmodul E und der Poissonzahl ν der Probe. In Gl. (2.7) sind E_{EK} und ν_{EK} der Elastizitätsmodul und die Poissonzahl des Eindringkörpers. Für einen Eindringkörper aus Diamant gilt $(1 - \nu_{EK}^2)/E_{EK} = 9,951 \times 10^{-4} \text{ GPa}^{-1}$ [108]. Die Größe $E/(1 - \nu^2)$ wird als Reduzierter Elastizitätsmodul bezeichnet. Die Härte der Probe wird mit

$$H = \frac{F_{\max}}{A_c} \quad (2.8)$$

berechnet [107].

Für diese Arbeit wurden Härte und Reduzierter Elastizitätsmodul von Schichten mit einem *Ultra-Micro Indentation System 2000* (UMIS 2000) der Firma CSIRO gemessen. Die Auswertung der Messkurven erfolgte mit dem proprietären Computerprogramm *Indent Analyser*. Für die Messung wurde zunächst mittels eines Lichtmikroskops eine geeignete Stelle auf der Probenoberfläche ausgewählt. Dort erfolgte dann bei aufgesetztem Eindringkörper die Erhöhung der Last in 50 äquidistanten Schritten von 0 bis zu der Maximallast. Die Maximallast

wurde hierbei so gewählt, dass die Gesamteindringtiefe möglichst gering blieb, eine zu geringe Eindringtiefe aber nicht in zu großer statistischer Streuung der Messkurven resultierte. Bei den Schichtsystemen mit TaN-Hartstofflagen wurde die Maximallast zu 5 mN gewählt, bei den Schichtsystemen mit TiN-Hartstofflagen zu 10 mN, wobei für erstere eine Prüfspitze mit geringerer Spitzenabrundung genutzt wurde. Die maximale Eindringtiefe betrug so in allen Fällen < 15 % der Gesamtschichtdicke. Nach Erreichen der Maximallast wurde diese für einen Zeitraum von 10 s konstant gehalten, um das Einsinken des Prüfkörpers aufgrund von Fließprozessen zu ermitteln, und die Last–Eindring-Kurven dann vor der eigentlichen Auswertung um dieses Einsinken korrigieren zu können. Im Anschluss wurde die Last in 30 äquidistanten Schritten wieder auf 0 reduziert. Diese Messung wurde an verschiedenen Stellen derselben Probe 15-mal durchgeführt. Aus den Einzelmessungen wurde im Anschluss mit dem Computerprogramm *Indent Analyser* für jede Probe jeweils eine gemittelte Kurve ermittelt, aus der schließlich nach dem oben beschriebenen Verfahren Härte und Reduzierter Elastizitätsmodul ermittelt wurden. Dabei wurden für die Angleichung der Tangente an die Entlastungskurve die ersten 60 % der Entlastungskurve betrachtet. Nach jeder Messserie wurden Kontrollmessungen an Referenzproben (Saphir und Quartz) durchgeführt und bei auffälligen Abweichungen von den erwarteten Werten eine Korrektur der Spitzenabrundung zur Kalibrierung durchgeführt.

Um einen Vergleich der mechanischen Eigenschaften der Viellagenschichten mit den Werten der Einlagenmaterialien zu ermöglichen, wurden mit der Linearen Mischungsregel die nach Volumenanteilen gewichteten Mittelwerte H_{LMR} und E_{LMR} berechnet:

$$H_{LMR} = \frac{V_1 \cdot H_1 + V_2 \cdot H_2}{V_{ges}} \quad (2.9)$$

und

$$E_{LMR} = \frac{V_1 \cdot E_1 + V_2 \cdot E_2}{V_{ges}} \quad (2.10)$$

In Gl. (2.9) und Gl. (2.10) sind H_1 , H_2 die Härten zweier Materialien, E_1 , E_2 ihre Elastizitätsmoduln, sowie V_1/V_{ges} , V_2/V_{ges} die von diesen Materialien eingenommenen Anteile des Gesamtvolumens $V_{ges} = V_1 + V_2$.

2.4.2 Eigenspannung der Schichtsysteme

Die Auswirkungen der Eigenspannung auf die geometrische Krümmung der Probe sind in Abb. 2-9 schematisch dargestellt.

Zur Bestimmung der Schichteigenspannung wurden die Schichten auf einkristallinen Si(100)-Balken mit den Abmessungen $20 \times 2 \times 0,2 \text{ mm}^3$ abgeschieden. Die Durchbiegung der Balken vor und nach der Schichtabscheidung wurde jeweils mittels taktiler Oberflächenprofilometrie gemessen. Unter der vereinfachenden Annahme von radialer Durchbiegung sowie bei für im Vergleich zur Substratdicke dünnen Schichtdicken konnte die Eigenspannung der aufgetragenen Schicht mit

$$\sigma = \frac{d_s^2}{6(s_{11}^{\text{Si}} + s_{12}^{\text{Si}})R \cdot d} \quad (2.11)$$

bestimmt werden, wobei σ die Schichteigenspannung, d_s die Dicke des verwendeten Substrats, $1/(s_{11}^{\text{Si}} + s_{12}^{\text{Si}}) = 1,803 \times 10^{11}$ Pa der biaxiale Elastizitätsmodul von einkristallinem Silizium mit dem Oberflächennormalenvektor in [001]-Orientierung, R der Krümmungsradius des Schicht-Substrat-Verbunds und d die Schichtdicke sind [109]. Gl. (2.11) ist hierbei eine modifizierte Version der Stoney-Gleichung [110]. In dieser Arbeit wurde die Konvention verwendet, dass Druckeigenspannung mit negativem Vorzeichen versehen war.

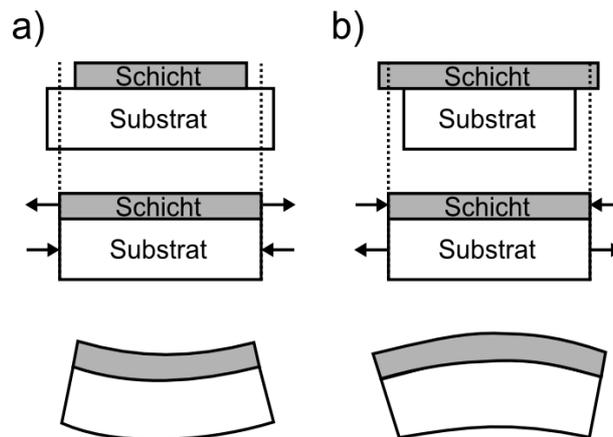


Abb. 2-9 Schematische Darstellung der Auswirkungen der Eigenspannung eines Schicht-Substrat-Verbunds auf die Probenkrümmung, nach [46].

2.5 Charakterisierung der magnetischen Eigenschaften

2.5.1 Statische magnetische Eigenschaften

Statische magnetische Eigenschaften der hergestellten Schichten wurden aus ihren Magnetisierungskurven entnommen, die mit einem Vibrationsmagnetometer (engl.: *Vibrating sample magnetometer*, VSM) gemessen wurden [111, 112].

Der Aufbau eines Vibrationsmagnetometers ist anhand einer schematischen Darstellung des in dieser Arbeit verwendeten VSMs in Abb. 2-10 gezeigt. Ein VSM besteht aus zwei Elektromagneten, die genügend groß sind, um ein näherungsweise homogenes Magnetfeld an der Probenposition zu erzeugen. Während einer Messung vibriert die Probe mit der Probennormalen senkrecht zur Rotationsachse der Magnetpole. Durch den aufgrund der Bewegung sich ändernden magnetischen Fluss innerhalb der Proben wird in zwei Messspulenpaaren (*Pick-up-Spulenpaare*) ein zum magnetischen Fluss proportionaler elektrischer Strom induziert, welcher die eigentliche Messgröße ist. Das äußere magnetische Feld wird schrittweise verändert. Für jeden Wert des externen magnetischen Felds wird der elektrische Strom in den Messspulenpaaren erfasst und in den entsprechenden Wert der magnetischen Polarisation der Probe umgerechnet. Der jeweils aktuelle Wert des äußeren Magnetfelds wird hierbei durch eine geeignet platzierte Hall-Sonde gemessen.

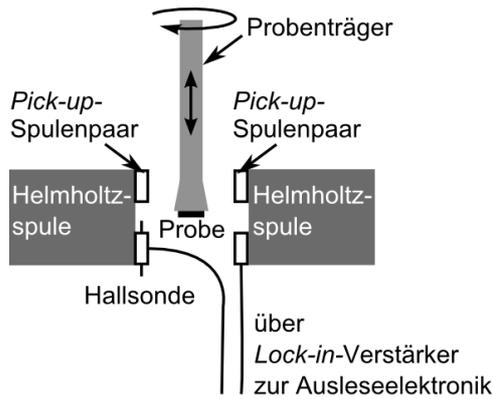


Abb. 2-10 Schematische Darstellung des Aufbaus des verwendeten Vibrationsmagneto-meters.

Für die Messung der magnetischen Eigenschaften wurden die auf Si/SiO₂-Substraten der Abmessungen $5 \times 5 \times 0,380 \text{ mm}^3$ abgeschiedenen Schichten an einem stabartigen Probenträger befestigt und an der Messposition platziert. Während einer Messung betrug die Vibrationsfrequenz der Probe 380 Hz und die Vibrationsamplitude 3 mm. Das äußere Magnetfeld wurde ausgehend von 0 in Schrittweiten von 0,02 mT wie folgt verändert: $0 \rightarrow 4 \text{ mT} \rightarrow -4 \text{ mT} \rightarrow 0$. Hierbei wurde für jeden Wert der externen Magnetisierung die Messgröße über eine Zeitdauer von drei Sekunden gemittelt. Mit dieser Vorgehensweise wurde für jede Probe eine vollständige Magnetisierungskurve gemessen, aus der die Sättigungspolarisation und die Koerzitivfeldstärke abgelesen werden konnten. Die beschriebene Prozedur wurde an jeder Probe mit der Richtung der während der Glühbehandlung induzierten uniaxialen Anisotropie (leichte Richtung der Magnetisierung) sowie senkrecht zu ihr durchgeführt.

Für Fälle, in denen die Polarisierungen als spezifische Größen bei Schichtsystemen mit unterschiedlichem FeCo–Hartstoff-Verhältnis miteinander verglichen werden sollten, oder die Polarisation des FeCo-Anteils in Viellagenschichten mit derjenigen einer FeCo-Einlagenschicht verglichen werden sollte, wurde hierfür die Netto-Polarisation

$$J_{\text{netto}} = J \cdot \frac{\Lambda}{d_{\text{FeCo}}} \quad (2.12)$$

berechnet. In Gl. (2.12) sind J die Polarisation, Λ die Doppellagendicke und d_{FeCo} die FeCo-Lagendicke.

2.5.2 Dynamische magnetische Eigenschaften

Zur Charakterisierung der dynamischen magnetischen Eigenschaften der Schichten wurde die komplexe frequenzabhängige Permeabilität mit einem von Bekker *et al.* [113] entwickelten Messverfahren ermittelt. Hierfür kam eine kurzgeschlossene Streifenleitung in Verbindung mit einem Netzwerkanalysator des Typs 8753 ES der Firma AGILENT zur Verwendung. Für die Messung eines frequenzabhängigen Permeabilitätsspektrums wurde die entsprechende Schicht (in gleicher Größe, Geometrie und auf gleichem Substrat wie für die Messungen der statischen magnetischen Eigenschaften) mit ihrer leichten Richtung senkrecht zu den magnetischen Feldlinien in der Streifenleitung platziert. Im Anschluss wurde die Frequenz des elektromagnetischen Wechselfeldes in 201 äquidistanten Schritten zwischen

30 MHz und 5 GHz verändert. Für jeden der eingestellten Frequenzschritte wurde der Wert des Streuparameters S_{11} als Maß für die Veränderung von Amplitude und Phase von emittierter und reflektierter Welle ermittelt. Zur Verbesserung des Signal–Rausch-Verhältnisses wurde diese Messung 25-mal durchgeführt und der arithmetische Mittelwert der entsprechenden Werte von S_{11} gebildet. Im Anschluss an jede Messreihe wurde das Verfahren auch mit der leeren Streifenleitung sowie mit einem unbeschichteten Exemplar der verwendeten Substrate wiederholt. Schließlich konnten die effektiven Permittivitäten der leeren Streifenleitung sowie des unbeschichteten Substrates durch iterative Subtraktion eliminiert werden. Die effektive Permeabilität der Schicht alleine wurde sodann mit

$$\mu_{\text{eff}} = \left(\frac{i \cdot c_0 \cdot \ln(-S_{11}^{\text{Schicht}})}{2 \cdot \omega \cdot l_{\text{Substrat}} \cdot \sqrt{\epsilon_{\text{eff}}^{\text{Substrat}}}} - \frac{\sqrt{\epsilon_{\text{eff}}^{\text{leer}} \cdot l_{\text{leer}}}}{\sqrt{\epsilon_{\text{eff}}^{\text{Substrat}} \cdot l_{\text{Substrat}}}} \right) \quad (2.13)$$

berechnet. In Gl. (2.13) sind i die imaginäre Einheit, c_0 die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum, ω die Kreisfrequenz des elektromagnetischen Wechselfeldes, l_{leer} die Länge der Streifenleitung und l_{Substrat} die Seitenlänge des Substrats bzw. der Schicht. Die übrigen verwendeten Größen sind der S -Parameter S_{11}^{Schicht} des Substrats mit aufgebrachtener Schicht und die relativen effektiven Permittivitäten eines homogenen Ersatzmediums, jeweils ohne Substrat ($\epsilon_{\text{eff}}^{\text{leer}}$) und mit unbeschichtetem Substrat ($\epsilon_{\text{eff}}^{\text{Substrat}}$). Die effektive Permeabilität ließ sich dann aus μ_{eff} und den geometriebedingten Faktoren in die relative Permeabilität

$$\mu_r = \frac{\mu_{\text{eff}} - 1}{r \cdot \frac{d}{h_{\text{SL}}}} \quad (2.14)$$

umrechnen. In Gl. (2.14) sind μ_{eff} die effektive Permeabilität der Schicht, r ein Proportionalitätsfaktor, der mithilfe einer Probe mit bekannter Anfangspermeabilität kalibriert worden war, d die Gesamtschichtdicke und h_{SL} die Gesamthöhe des Streifenleiters [113].

In Fällen, in denen die Permeabilitäten als spezifische Größen bei Schichtsystemen mit unterschiedlichem FeCo–Hartstoff-Verhältnis miteinander verglichen werden sollten oder die Permeabilität des FeCo-Anteils in Viellagenschichten mit derjenigen einer FeCo-Einlagenschicht verglichen werden sollte, wurde die relative Netto-Permeabilität

$$\mu_{r, \text{netto}} = \mu_r \cdot \frac{\Lambda}{d_{\text{FeCo}}} \quad (2.15)$$

berechnet. In Gl. (2.15) sind μ_r die relative Permeabilität, Λ die Doppellagendicke und d_{FeCo} die FeCo-Lagendicke.

3 Versuchsergebnisse

3.1 FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme

3.1.1 Stark unterstöchiometrische Zusammensetzung in den Hartstofflagen

3.1.1.1 Schichtaufbau

Bruch- und Oberflächenbeschaffenheit

In Abb. 3-1 ist eine REM-Aufnahme von Bruch- und Oberfläche des 391-lagigen Schichtsystems mit der geringsten Doppellagendicke von 6,1 nm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum abgebildet. Das Aussehen der Bruchfläche wies auf ein sehr feinkörniges Gefüge hin. Dies ließ auf die überwiegende Renukleation der jeweiligen Einzellagen während des Schichtwachstums schließen. Die Oberfläche war sehr glatt, und auch die Wärmebehandlung führte nicht zur Entstehung von Ungleichmäßigkeiten auf der Oberfläche.

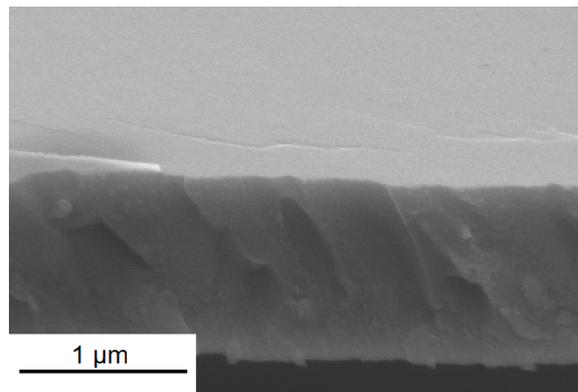


Abb. 3-1 REM-Aufnahme des 391-lagigen FeCo/TaN-Viellagenschichtsystems mit $\Lambda = 6,1$ nm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum.

Chemische Zusammensetzung und Viellagenaufbau

In Abb. 3-2 sind AES-Tiefenprofile der Elementzusammensetzung des 391-lagigen Viellagenschichtsystems mit $\Lambda = 6,1$ nm gezeigt. In Abb. 3-2 a sind die Elementkonzentrationen im ungeglühten, in Abb. 3-2 b im für 60 min bei 600 °C im Vakuum magnetfeldgeglühten Schichtsystem gezeigt. Das ungeglühte Schichtsystem wies eine regelmäßige Lagenstruktur auf, wobei in den Tiefenprofilen Positionen mit einem höheren gemessenen Anteil von Ta (≈ 60 At.-%) und N (≈ 35 At.-%) bei sehr geringem Anteil von Fe und Co mit Positionen abwechselten, an denen höhere Fe- und Co-Anteile (jeweils ≈ 15 At.-%) zusammen mit Ta (≈ 50 At.-%) und N (≈ 17 At.-%) detektiert wurden. Trotz Verwendung eines Targets der stöchiometrischen Zusammensetzung $Ta_{50}N_{50}$ wurde in den Hartstofflagen ein deutlicher Ta-Überschuss nachgewiesen. Das geglühte Viellagenschichtsystem wies in den etwa sieben oberen Lagen die gleiche Elementverteilung wie das ungeglühte Schichtsystem auf. Die durch das Glühen verursachte Veränderung der Elementkonzentration in den übrigen Lagen deutete auf eine Durchmischung an den Lagengrenzflächen hin. Hierbei ist jedoch zu beach-

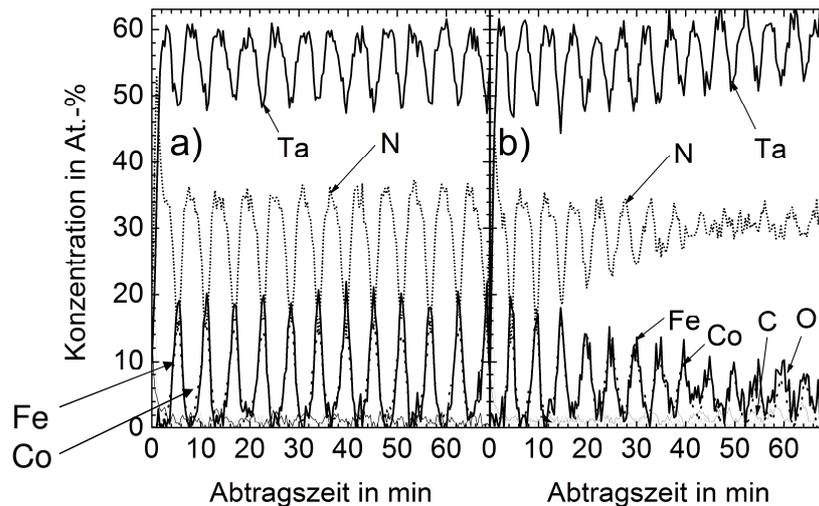


Abb. 3-2 AES-Tiefenprofile des 391-lagigen FeCo/TaN-Viellagenschichtsystems mit $\Lambda = 6,1 \text{ nm}$: a) wie abgeschieden und b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum.

ten, dass bei einer Doppellagendicke von $6,1 \text{ nm}$ das begrenzte Auflösungsvermögen der AES-Tiefenprofile zu einem Messartefakt geführt haben kann.

In Abb. 3-3 sind exemplarisch die XRR-Diagramme der drei Schichtsysteme mit Λ zwischen $6,1 \text{ nm}$ und $12,5 \text{ nm}$ im ungeglühten Zustand gezeigt. Das XRR-Diagramm des Schichtsystems mit der geringsten Doppellagendicke von $6,1 \text{ nm}$ ist zusätzlich nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum gezeigt. Diese Diagramme wurden zum einen zur Ermittlung der Doppellagendicke verwendet. Zum anderen konnte durch Ausbildung von Übergitterreflexen das Vorliegen eines regelmäßigen Viellagenaufbaus auch bei den Viellagenschichten mit der geringsten Doppellagendicke bestätigt werden. In dem Diagramm des geglühten Schichtsystems mit $\Lambda = 6,1 \text{ nm}$ war die Anzahl der Übergitterreflexe gegenüber

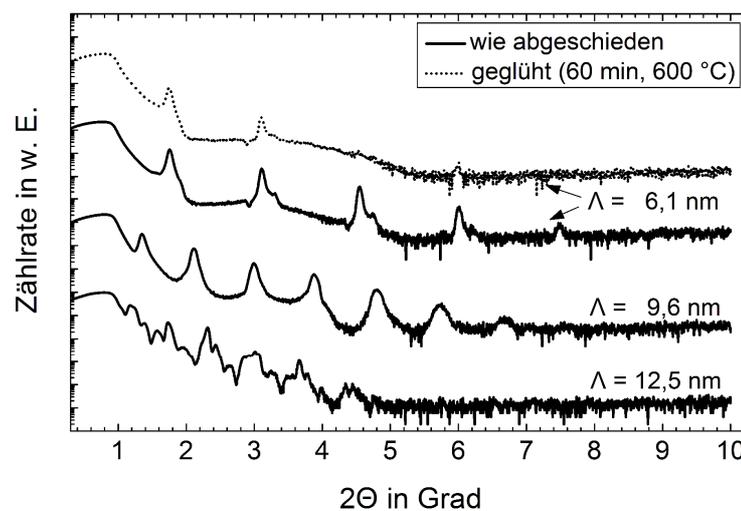


Abb. 3-3 XRR-Diagramme der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme mit Doppellagendicken zwischen $6,1 \text{ nm}$ und $12,5 \text{ nm}$, wie abgeschieden und, im Fall des Viellagenschichtsystems mit der geringsten Doppellagendicke von $6,1 \text{ nm}$, außerdem nach 60 min Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum.

dem ungeglühten Schichtsystem verringert. Außerdem war die Intensität der nach dem Glühen noch vorhandenen Reflexe geringer als vor dem Glühen. Diese beiden Beobachtungen bestätigten die Ergebnisse der AES-Tiefenprofile, dass in diesem Schichtsystem die Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus durch das Glühen reduziert wurde.

Mikrostruktur und Textur

In Abb. 3-4 a sind die Röntgenbeugungsdiagramme der ungeglühten Viellagenschichtsysteme sowie einer 1 μm dicken TaN-Referenzschicht in Abhängigkeit von dem Beugungswinkel 2Θ gezeigt. In Abb. 3-4 b sind die Röntgenbeugungsdiagramme derselben Schichten nach dem 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum gezeigt.

Wie den in Abb. 3-4 a gezeigten Röntgenbeugungsdiagrammen zu entnehmen war, konnten die Viellagenschichtsysteme gemäß ihrer Mikrostruktur und Textur zufolge in drei Gruppen eingeteilt werden. Bei $\Lambda = 42 \text{ nm}$ war eine Überlagerung von Reflexen zu erkennen, deren

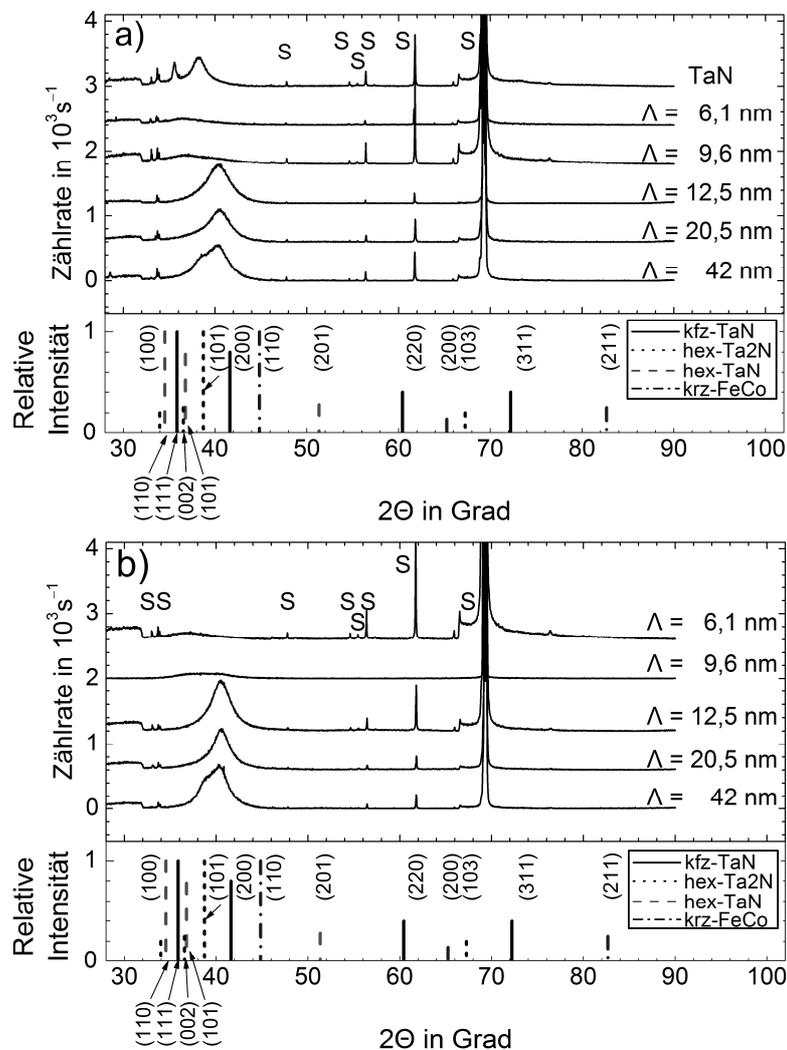


Abb. 3-4 Röntgenbeugungsdiagramme der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme sowie einer 1 μm dicken TaN-Einlagenschicht: a) wie abgeschieden und b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Die mit „S“ gekennzeichneten Reflexe entstanden durch Beugung am Substrat.

Zentren mit dem (101)-Reflex von hex-Ta₂N und mit dem (200)-Reflex von kfz-TaN übereinstimmten. Die Schwerpunkte der Reflexe waren mit ihren Positionen bei 38,6° und bei 40,2° jedoch um 0,1° und um 1,4° in Richtung geringerer Beugungswinkel verschoben, was im Vergleich zu den entsprechenden Literaturwerten auf vergrößerte Netzebenenabstände hindeutete. Bei den beiden an den Viellagenschichten mit den Doppellagendicken 20,5 nm und 12,5 nm ermittelten Röntgenbeugungsdiagrammen war nur noch der auf kfz-TaN hinweisende (200)-Reflex vorhanden, der bei abnehmender Doppellagendicke aufgrund der abnehmenden Korngrößen breiter wurde. Bei Doppellagendicken von 9,6 nm und weniger war nur noch ein Reflex mit großer Halbwertsbreite zu sehen, dessen Schwerpunkt zwischen der nominellen Position des (111)-Reflexes von kfz-TaN und des (101)-Reflexes von hex-TaN lag. Die große Halbwertsbreite deutete auf das Vorliegen sehr kleiner Kristallite hin. Das 60-minütige Magnetfeldglühen der Schichtsysteme bei 600 °C im Vakuum führte bei allen Proben zu einer geringfügigen Reduktion der Halbwertsbreite sowie zu einer leichten Reflexverschiebung in Richtung höherer Winkel. Das Glühen führte also zu einem Kornwachstum und zu einer Reduktion der Netzebenenabstände, welche auf einen erfolgten Abbau von Gitterverspannungen hindeutete.

3.1.1.2 Mechanische Eigenschaften

In Abb. 3-5 sind Härte, Reduzierter Elastizitätsmodul und Eigenspannung der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme in Abhängigkeit von der Doppellagendicke gezeigt. Als Referenz sind die entsprechenden jeweils an einer 1 µm dicken TaN- und FeCo-Einlagenschicht ermittelten Werte sowie die mittels der Linearen Mischungsregel berechneten Werte in die Diagramme eingetragen. Während aller Indentierungsversuche für die in Abb. 3-5 a und b gezeigten Ergebnisse betrug die Maximallast 5 mN.

In Abb. 3-5 a ist die Härte in Abhängigkeit von der Doppellagendicke gezeigt. Bei dem höchsten Wert von $\Lambda = 42$ nm entsprach die Härte im ungeglühten Zustand mit $(22,8 \pm 2,3)$ GPa nahezu dem mit der Linearen Mischungsregel berechneten Wert von $(22,6 \pm 2,5)$ GPa. Mit abnehmender Doppellagendicke stieg die Härte kontinuierlich bis zu ihrem Maximalwert bei $\Lambda = 9,2$ nm, um bei noch geringerer Doppellagendicke von 6,1 nm ihren minimalen Wert von $(22,1 \pm 2,3)$ GPa zu erreichen. Bei den für 60 min bei 600 °C im Vakuum magnetfeldgeglühten Schichtsystemen war die Härte in allen Fällen höher, als es bei den ungeglühten Schichtsystemen der Fall war. Die Abhängigkeit der Härte von der Doppellagendicke war bei den ungeglühten und den geglühten Schichten ähnlich. Es wurde also auch an den geglühten Proben die maximale Härte bei $\Lambda = 9,2$ nm gemessen, die $(34,5 \pm 5,6)$ GPa betrug.

In Abb. 3-5 b ist der Reduzierte Elastizitätsmodul in Abhängigkeit von der Doppellagendicke gezeigt. Das Schichtsystem mit der höchsten Härte wies bei den ungeglühten Schichtsystemen auch den höchsten Wert des Reduzierten Elastizitätsmoduls auf, der (423 ± 10) GPa betrug. Der Reduzierte Elastizitätsmodul aller Schichten war höher als der mit der Linearen Mischungsregel berechnete Wert von (256 ± 20) GPa. Nach dem Glühen befanden sich die Reduzierten Elastizitätsmoduln in einem schmalen Wertekorridor zwischen (326 ± 20) GPa bei $\Lambda = 6,1$ nm und (364 ± 34) GPa bei $\Lambda = 42$ nm. Der deutlich höhere Wert von (599 ± 47) GPa bei $\Lambda = 12,5$ nm wird als Ausreißer bewertet.

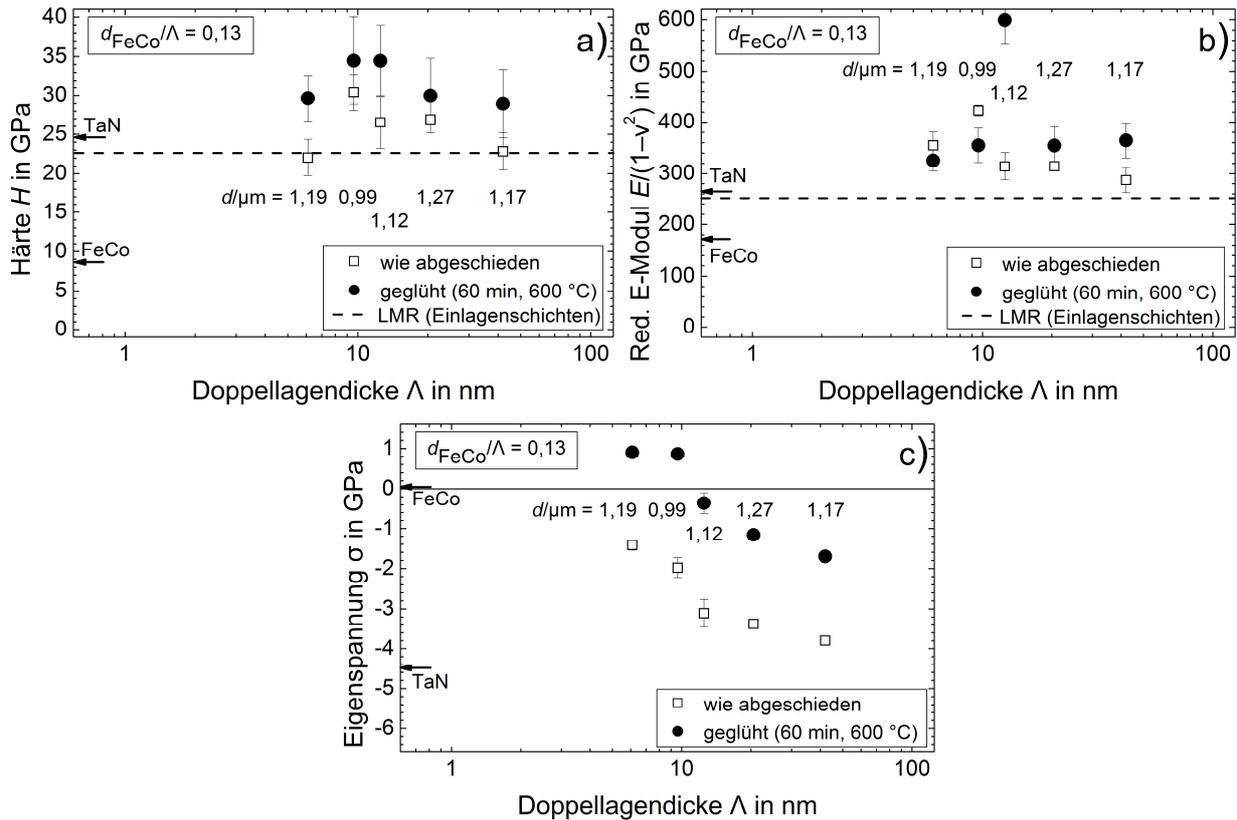


Abb. 3-5 Mechanische Eigenschaften der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum in Abhängigkeit von der Doppellagendicke: a) Härte, b) Reduzierter Elastizitätsmodul und c) Eigenspannung. LMR: Lineare Mischungsregel.

In Abb. 3-5 c ist die Eigenspannung der Viellagenschichten in Abhängigkeit von der Doppellagendicke sowie die Eigenspannung einer jeweils 1 μm dicken FeCo- und TaN-Einlagenschicht gezeigt. Die TaN-Einlagenschicht wies mit $-(4,49 \pm 0,23)$ GPa den betragsmäßig höchsten der gezeigten Werte auf. Alle ungeglühten Schichtsysteme wiesen Druckeigenstressungen auf, die im Betrag ausgehend von $-3,97$ GPa bei $\Lambda = 42$ nm mit abnehmender Doppellagendicke kontinuierlich sanken, bis bei der minimalen Doppellagendicke von 6,1 nm ein Wert von $-(1,42 \pm 0,13)$ GPa erreicht wurde. Das 60-minütige Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum führte zu einer Verschiebung aller Werte in Richtung geringerer Druckeigenstressung bzw. in Richtung von Zugeigenstressung. Die Werte der Eigenspannung der geglühten Schichtsysteme lagen in einem Bereich zwischen $-1,70$ GPa und $(0,90 \pm 0,04)$ GPa.

3.1.1.3 Magnetische Eigenschaften

In Abb. 3-6 a sind die Koerzitivfeldstärken der Viellagenschichtsysteme mit den Doppellagendicken zwischen 12,5 nm und 42 nm in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke gezeigt. Die Schichtsysteme mit Doppellagen unterhalb dieses Bereichs wiesen keine mit dem verwendeten VSM nachweisbare Magnetisierbarkeit auf, weswegen ihre Koerzitivfeldstärken bei Zusammenstellung des Diagramms nicht berücksichtigt werden konnten. Alle ermittelten Koerzitivfeldstärken befanden sich in einem Bereich zwischen 0,44 mT und 3,25 mT, wobei

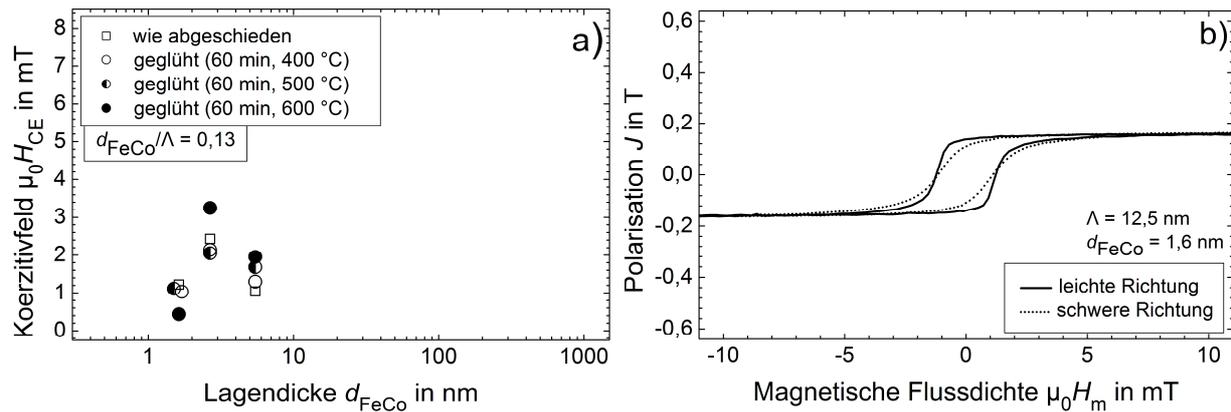


Abb. 3-6 a) Koerzitivfeldstärken der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 400, 500 und 600 °C im Vakuum in Abhängigkeit von d_{FeCo} ; b) Magnetisierungskurven des 179-lagigen Viellagenschichtsystems mit $\Lambda = 12,5$ nm und $d_{FeCo} = 1,6$ nm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 500 °C im Vakuum in leichter und in schwerer Richtung.

keine kontinuierlichen Tendenzen identifiziert werden konnten. Die geringsten Koerzitivfeldstärken wurden bei dem 179-lagigen Schichtsystem mit $d_{FeCo} = 1,3$ nm und $\Lambda = 12,5$ nm gemessen. Die Sättigungspolarisation betrug bei diesem Schichtsystem im ungeglühten Zustand 0,18 T, nach jeweils 60-minütigem Magnetfeldglühen im Vakuum bei 400 °C dann 0,17 T, und bei 500 °C 0,16 T, um nach Glühen bei 600 °C mit 0,05 T deutlich geringere Werte anzunehmen. Die nach dem Glühen bei 500 °C erhaltene Sättigungspolarisation von 0,16 T entspricht bei Normierung auf den Anteil des ferromagnetischen Materials im Schichtsystem einer Sättigungspolarisation von 1,23 T, was wesentlich unter dem an der entsprechenden FeCo-Einlagenschicht ermittelten Wert von 2,20 T liegt. Zusammen mit der nicht nachweisbaren Magnetisierbarkeit bei den Schichten mit geringerer Doppellagendicke und folglich höherer Anzahl von Lagengrenzflächen sowie der weiteren Reduktion der Sättigungspolarisation durch die Glühbehandlung deutete dies auf ein hohes Maß an Durchmischung an den Lagengrenzflächen hin, das schon unmittelbar nach der Schichtabscheidung vorhanden war und durch die Glühprozesse zunahm.

In Abb. 3-6 b sind exemplarisch die Magnetisierungskurven des Viellagenschichtsystems mit der FeCo-Lagendicke 1,3 nm nach 60 min Magnetfeldglühen bei 500 °C im Vakuum in leichter und schwerer Richtung gezeigt. Neben den bereits gezeigten Kenngrößen ist an der Orientierungsabhängigkeit der Sättigungsfeldstärke zu erkennen, dass in dem Schichtsystem eine uniaxiale Anisotropie in der Schichtebene eingepreßt werden konnte.

3.1.2 Leicht unterstöchiometrische Zusammensetzung in den Hartstofflagen

In diesem Kapitel werden die Eigenschaften von FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen bei Variation der Doppellagendicke sowie bei Variation der Dicke der ferromagnetischen Funktionsschichten vorgestellt. Um das bei den in Kapitel 3.1 vorgestellten Schichtsystemen beobachtete hohe Stickstoffdefizit in den Hartstofflagen zu reduzieren, wurden die in diesem Kapitel vorgestellten Viellagenschichtsysteme in Ar/N₂-Prozessgasatmosphäre unter einem N₂-Fluss von 3,0 sccm (≈ 10 Vol.-% der Prozessgasatmosphäre) hergestellt.

3.1.2.1 Schichtaufbau

Bruch- und Oberflächenbeschaffenheit

In Abb. 3-7 a–d sind REM-Aufnahmen von Bruch- und Oberfläche des 391-lagigen Schichtsystems mit $\Lambda = 5,1$ nm wie abgeschieden und jeweils nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C und 500 °C im Vakuum sowie des 339-lagigen Schichtsystems mit $\Lambda = 8,3$ nm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum abgebildet. Das Aussehen der Bruchfläche des in Abb. 3-7 d gezeigten Schichtsystems deutete auf eine sehr feinkörnige Mikrostruktur hin. Die Oberfläche war sehr glatt. Nach dem Glühen bei 600 °C im Vakuum waren hingegen gleichmäßig verteilte, etwa halbkugelförmige, Objekte auf der Oberfläche zu erkennen. Diese Veränderung der Oberfläche war bei der Bewertung der Ergebnisse der Indentierungsexperimente zu beachten. Eine Verringerung der Glüh­temperatur auf 500 °C sowie eine Erhöhung der Doppellagendicke auf 8,3 nm verhinderte jedoch die Ausbildung dieser Oberflächenstrukturen, wie durch die in Abb. 3-7 b gezeigte REM-Aufnahme bestätigt wurde.

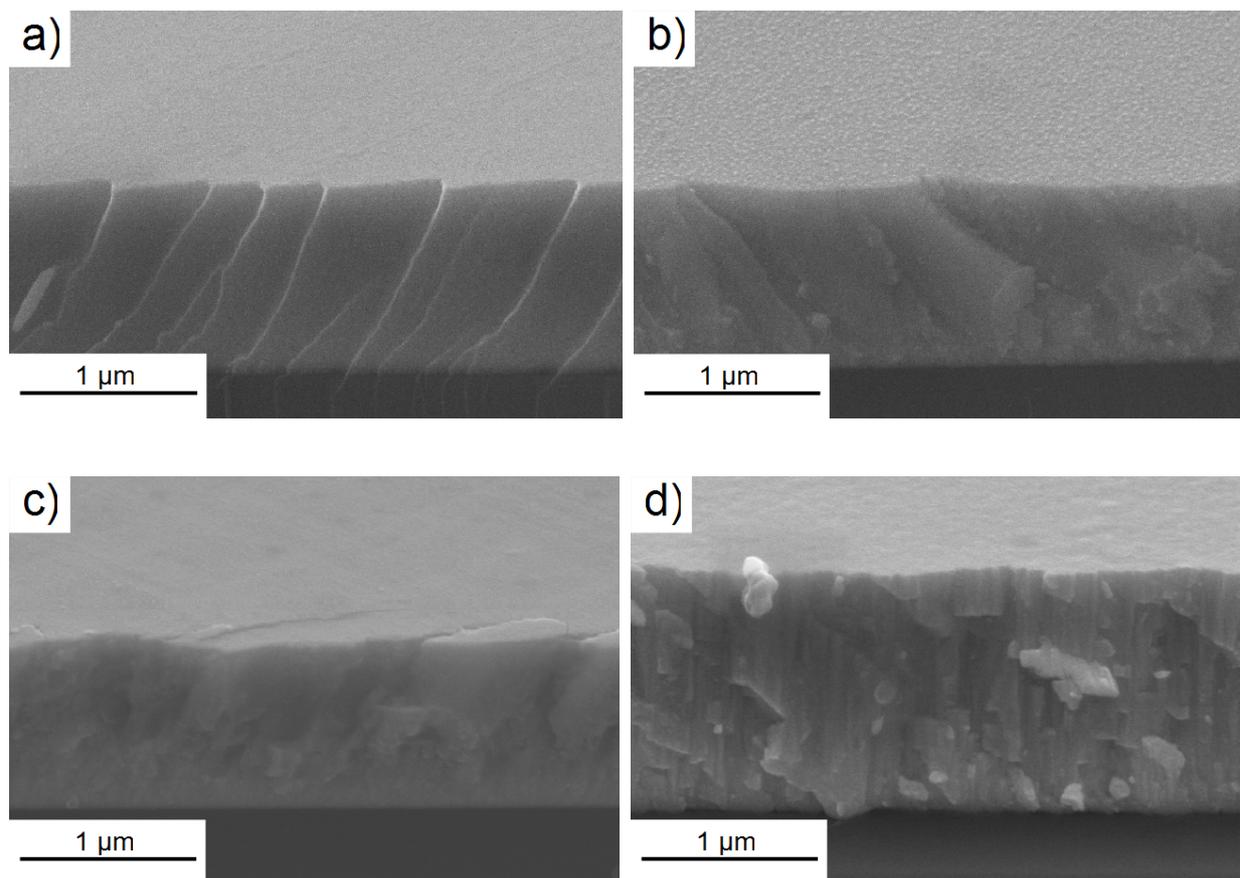


Abb. 3-7 REM-Aufnahmen von FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen: a) 391-lagiges Viellagenschichtsystem mit $\Lambda = 5,1$ nm wie abgeschieden, nach 60-minütigem Magnetfeldglühen im Vakuum bei b) 600 °C und c) 500 °C, sowie d) 339-lagiges FeCo/TaN-Viellagenschichtsystem mit $\Lambda = 8,3$ nm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum.

Chemische Zusammensetzung und Viellagenaufbau

In Abb. 3-8 a sind die exemplarischen XRR-Diagramme der Viellagenschichtsysteme mit Doppellagendicken zwischen 5,1 nm und 11,3 nm im ungeglühten Zustand gezeigt. Die Ausbildung von Übergitterreflexen deutete auf einen regelmäßigen Viellagenaufbau hin. Im XRR-Diagramm des Schichtsystems mit $\Lambda = 5,1$ nm waren jedoch zusätzliche Nebenreflexe vorhanden, deren Ursprung in der Mikrostruktur der Grenzflächen liegen könnte. Wie in Abb. 3-8 b gezeigt ist, war das XRR-Diagramm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 400 °C im Vakuum nahezu unverändert, während noch höhere Glühtemperaturen zu einer deutlichen Abnahme der Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus führten.

Die signifikante Abnahme der Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus durch den 60-minütigen Glühprozess bei 600 °C im Vakuum konnte sehr deutlich durch das in Abb. 3-9 dargestellte

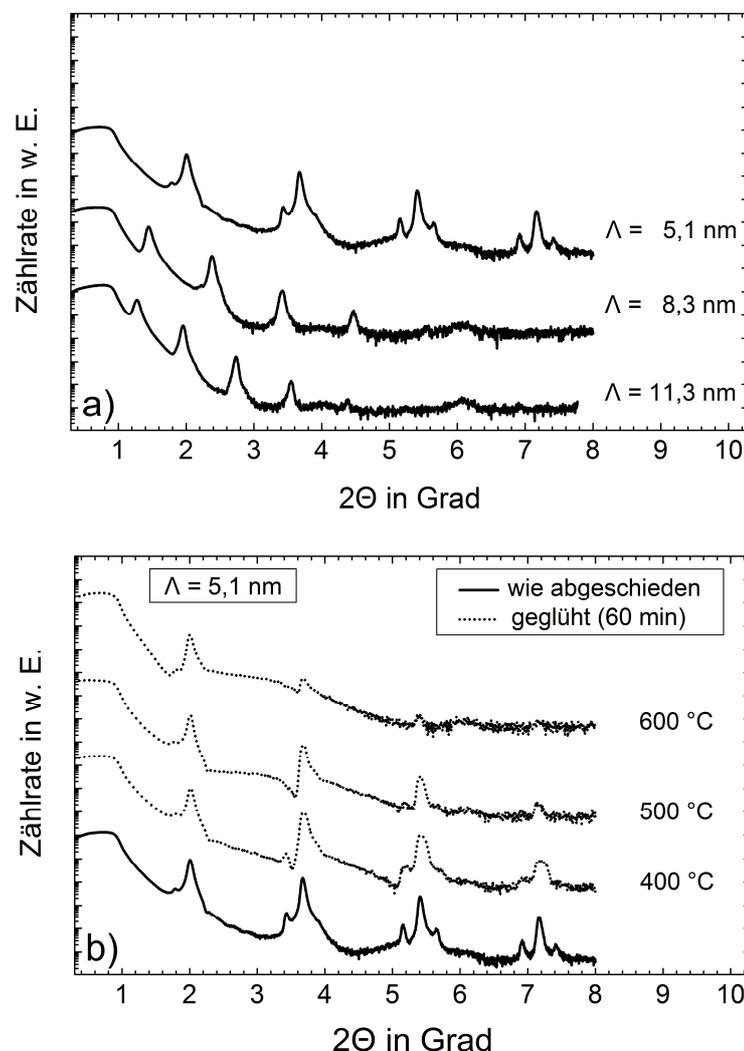


Abb. 3-8 XRR-Diagramme von FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen: a) Schichtsysteme wie abgeschieden und b) Schichtsystem mit $\Lambda = 5,1$ nm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 400, 500 bzw. 600 °C im Vakuum sowie noch einmal wie abgeschieden als Referenz.

Tiefenprofil der Elementkonzentration nachgewiesen werden. Wie in dem in Abb. 3-9 a gezeigten AES-Tiefenprofil zu sehen, wechselten in den ungeglühten Schichtsystemen Lagen mit hoher Ta- und N-Konzentration (≈ 52 At.-% und ≈ 42 At.-%) und nahezu ohne Fe- und Co-Konzentration mit Lagen geringeren Ta- und N-Gehalts (≈ 40 At.-% und ≈ 20 At.-%) ab, die mit Fe- und Co-Atomen angereichert waren (≈ 20 At.-% und ≈ 18 At.-%). Wie in Abb. 3-9 b zu sehen, waren die ursprünglich in dem Schichtsystem enthaltenden Lagen nach dem Glühen stark durchmischt.

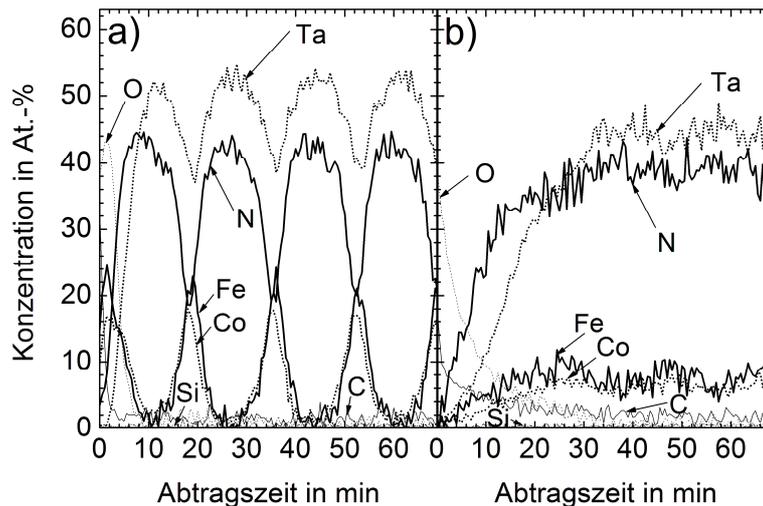


Abb. 3-9 AES-Tiefenprofile des 391-lagigen FeCo/TaN-Viellagenschichtsystems mit $\Lambda = 5,1$ nm: a) wie abgeschieden und b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum.

Mikrostruktur und Textur

In Abb. 3-10 a und b sind die Röntgenbeugungsdiagramme der FeCo/TaN-Viellagenschichten mit konstantem $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,15$ in Abhängigkeit von dem Beugungswinkel 2Θ gezeigt. Die Diagramme der beiden ungeglühten Viellagenschichtsysteme mit den Doppellagendicken 11,3 nm und 8,3 nm wiesen jeweils einen breiten Reflex auf, dessen Schwerpunkt mit der Position bei $40,2^\circ$ bzw. bei $40,3^\circ$ zwischen den Literaturwerten der Positionen des (101)-Reflexes von hex-Ta₂N und des (200)-Reflexes von kfz-TaN lag. Bei weiterer Reduktion der Doppellagendicke auf 5,1 nm war anstelle dieses Reflexes eine breite Überlagerung von Reflexen zu sehen, deren Schwerpunkt sich bei $35,8^\circ$ und damit nahe des Literaturwerts des (111)-Reflexes von kfz-TaN befand. Das 60-minütige Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum führte zu einer Reduktion der Halbwertsbreite bei den Schichtsystemen mit $\Lambda = 8,3$ nm und $\Lambda = 11,3$ nm von jeweils $3,0^\circ$ auf $2,7^\circ$ und $2,5^\circ$ sowie zu einer Verschiebung der Reflexe um $1,2^\circ$ bzw. $2,5^\circ$ in Richtung größerer Beugungswinkel. Bei dem Schichtsystem mit $\Lambda = 5,1$ nm verschob sich der oben erwähnte Reflex um $0,6^\circ$ in Richtung größerer Beugungswinkel. Außerdem bildete sich ein zweiter Reflex bei $41,3^\circ$ und damit nahe des (200)-Reflexes von kfz-TaN aus. Die in Abb. 3-10 c gezeigten Beugungsdiagramme ließen keinen Einfluss der FeCo-Lagendicke erkennen.

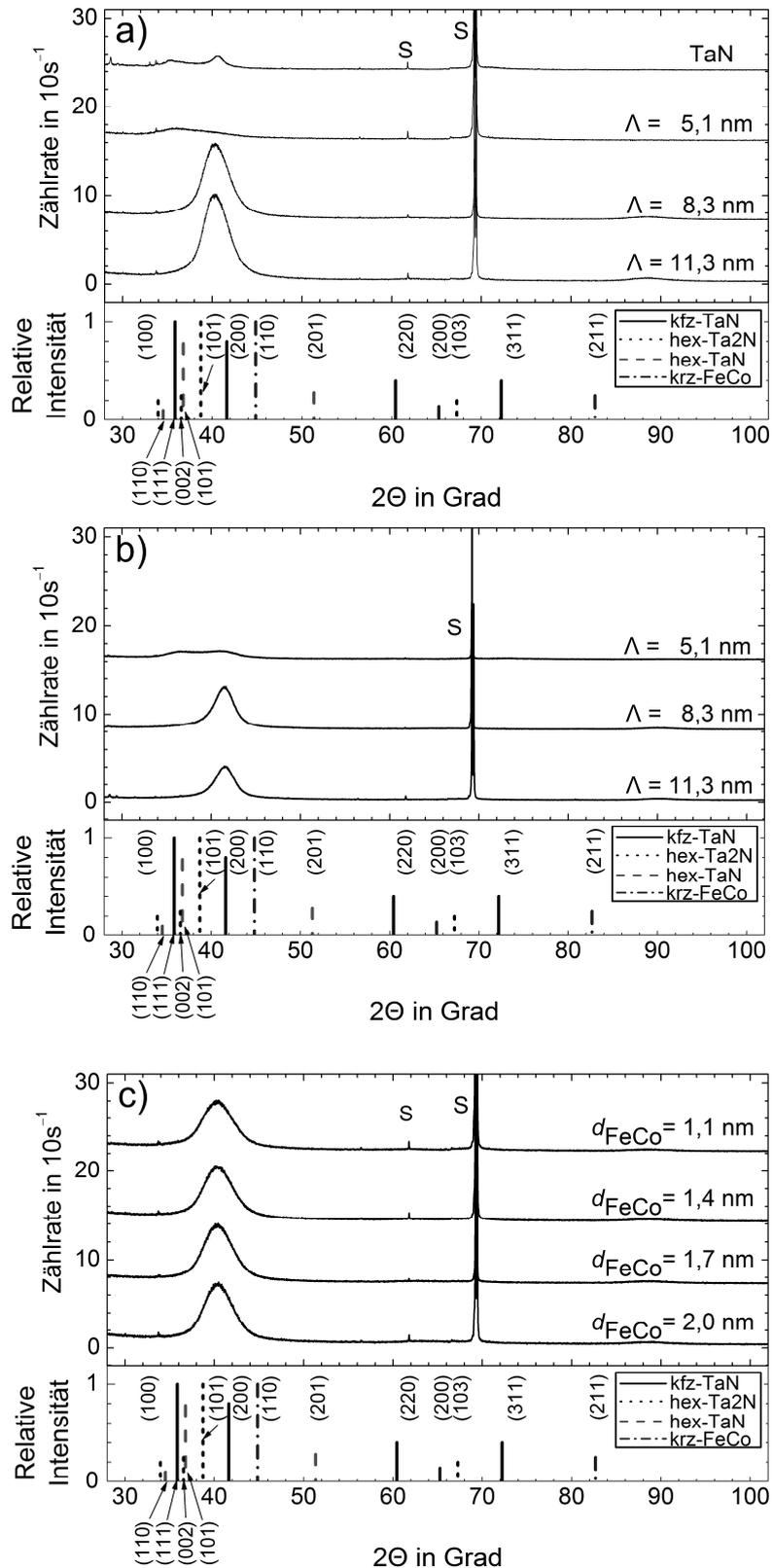


Abb. 3-10 Röntgenbeugungsdiagramme der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme sowie einer 1 μm dicken TaN-Einlagenschicht: a) Schichtsysteme mit konstantem $d_{FeCo}/\Lambda = 0,15$ wie abgeschieden und b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei $600^\circ C$ im Vakuum, c) Schichtsysteme mit konstanter TaN-Lagendicke $d_{TaN} = 4,3$ nm wie abgeschieden. Die mit „S“ gekennzeichneten Reflexe entstanden durch Beugung am Substrat.

In Abb. 3-11 a ist eine TEM-Hellfeldabbildung eines Querschnitts aus dem FeCo/TaN-Viellagenschichtsystem mit $\Lambda = 5,1$ nm gezeigt. Es waren Lagen unterschiedlicher Dicke eindeutig zu identifizieren, die sich mit hoher Regelmäßigkeit abwechselten. Bei den dickeren Lagen handelte es sich um TaN-Lagen, die im Vergleich zu den dünneren FeCo-Lagen einen höheren Elektronenabsorptionsquerschnitt aufwiesen und deshalb dunkler erschienen. In Abb. 3-11 b ist eine Dunkelfeldabbildung des identischen Bildausschnitts gezeigt. Diese Abbildung implizierte deutlich, dass die Schicht mit feinkörniger Mikrostruktur ohne dominante Textur aufwuchs.

Auch nach dem 60-minütigen Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum war noch ein regelmäßiger Viellagenaufbau des Schichtsystems nachzuweisen. Dies wurde bereits anhand der XRR-Diagramme gezeigt und auch durch die in Abb. 3-11 c gezeigte TEM-Hellfeldabbildung bestätigt. Auf der in Abb. 3-11 d gezeigten Hellfeldabbildung des gleichen Schichtsystems, jedoch bei höherer Vergrößerung, waren hingegen keine individuellen Lagen mehr voneinander zu unterscheiden. In dieser Abbildung war erkennbar, dass das Schichtsystem nanokristallin vorlag und keine erkennbare Textur aufwies.

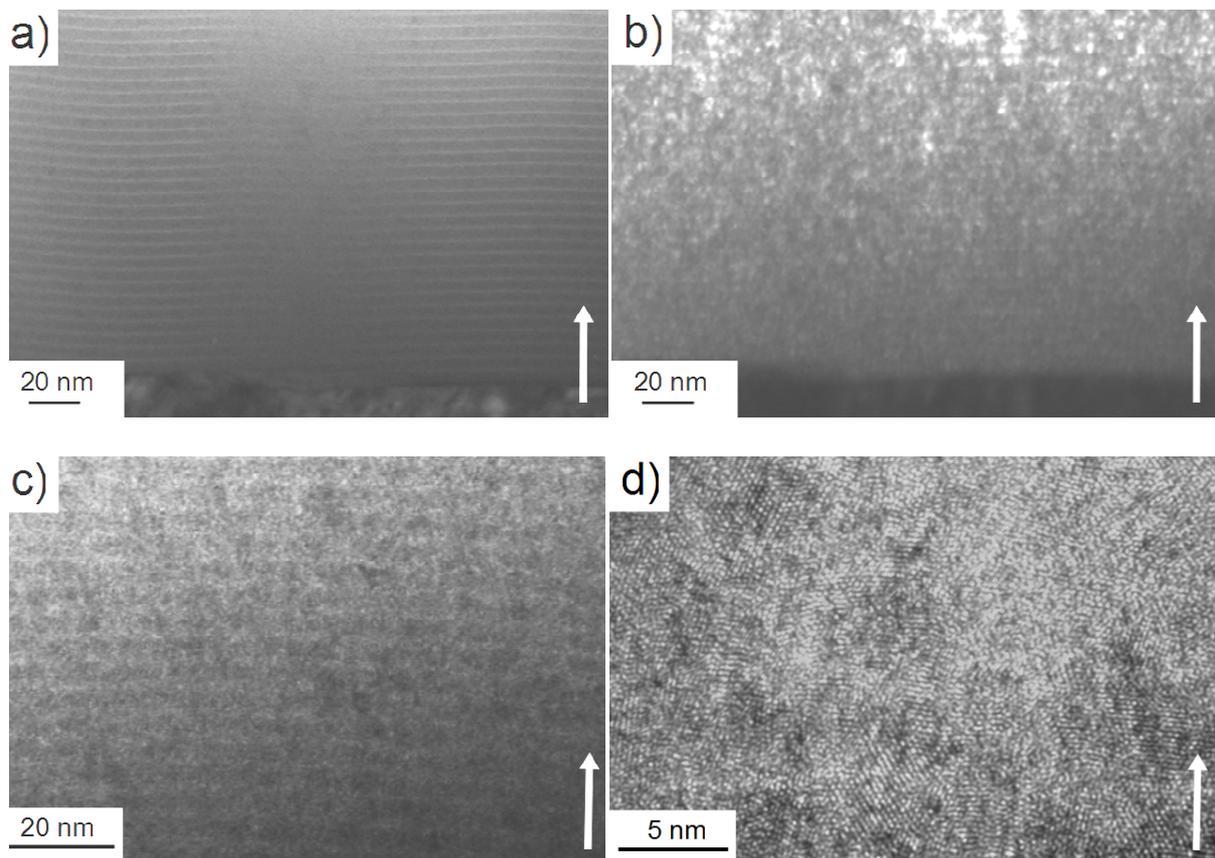


Abb. 3-11 TEM-Aufnahmen des FeCo/TaN-Viellagenschichtsystems mit $\Lambda = 5,1$ nm: wie abgeschlossen in a) Hellfeldabbildung und b) Dunkelfeldabbildung, sowie c), d) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum bei verschiedenen Vergrößerungen. Die Richtung des Schichtwachstums ist jeweils durch einen Pfeil gekennzeichnet.

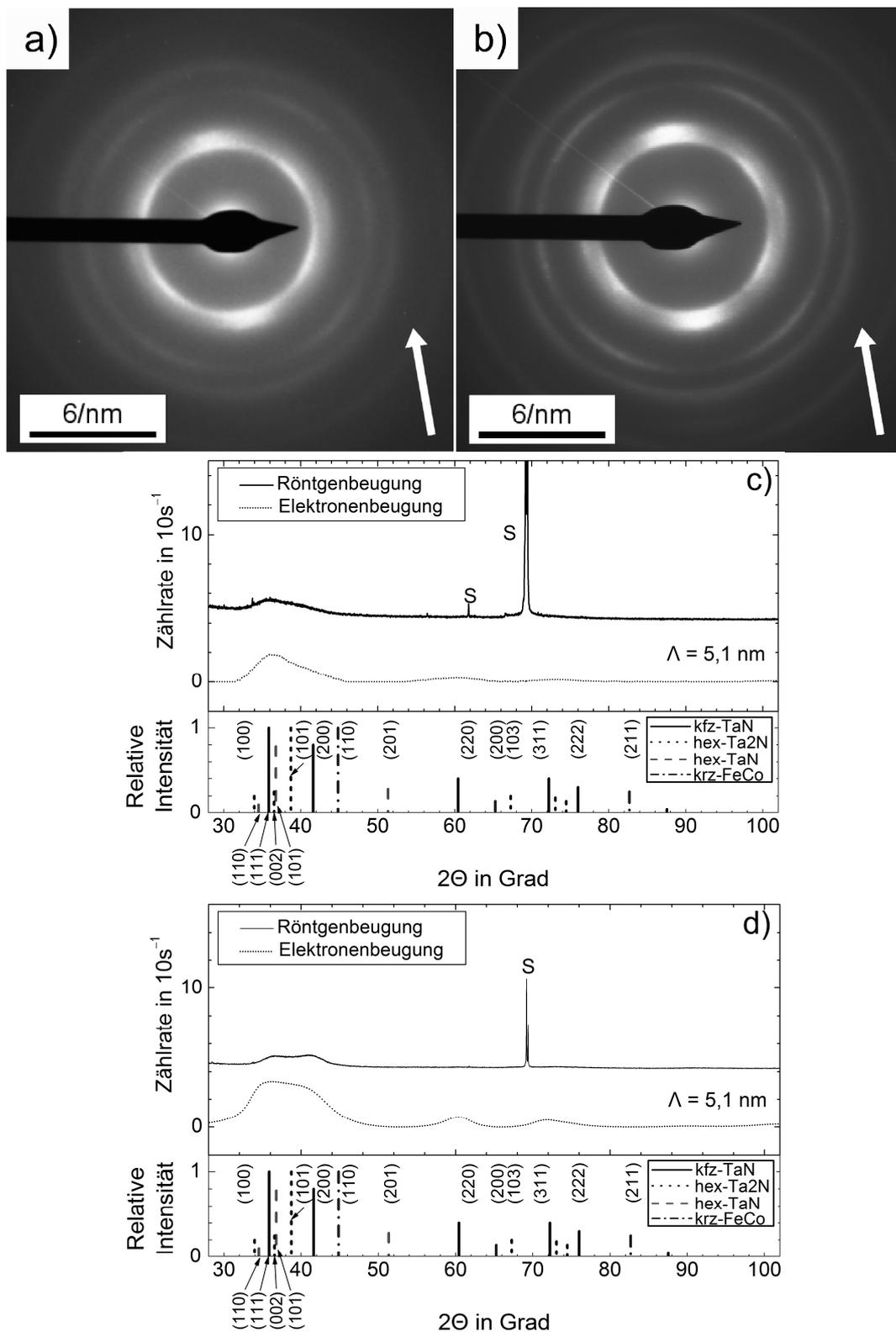


Abb. 3-12 Elektronenbeugungsaufnahme an dem FeCo/TaN-Viellagenschichtsystem mit $\Lambda = 5,1$ nm: a) wie abgeschieden und b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Die durch den Pfeil gezeigte Richtung entspricht der Wachstumsrichtung. Vergleich der integrierten Intensität in der Elektronenbeugungsaufnahme mit dem entsprechenden Röntgenbeugungsdiagramm: c) wie abgeschieden und d) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Die mit „S“ gekennzeichneten Reflexe entstanden durch Beugung am Substrat.

Das in Abb. 3-12 a gezeigte Elektronenbeugungsdiagramm desselben Schichtsystems bestätigte das Vorliegen einer nanokristallinen Mikrostruktur ohne vorherrschende Textur. Es deutete sich jedoch eine anfängliche Entwicklung einer Textur an. Diese manifestierte sich in der anfänglichen Ausbildung von Intensitätsmaxima in sechszähliger Symmetrie, die sich auf dem innersten Beugungsring befanden. In Abb. 3-12 b ist die Elektronenbeugungsaufnahme eines Querschnittpräparats einer gleichen Schicht nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum gezeigt. Die Grundcharakteristika der Beugungsringe waren in dieser Abbildung ähnlich, jedoch waren die Beugungsringe aufgrund des durch die Glühprozesse verursachten Kornwachstums in radialer Richtung weniger ausgedehnt. In Abb. 3-12 c und d sind die Kreisintegrale der Intensität dieser Elektronenbeugungsaufnahmen zu sehen, wobei die Diagramme in Abhängigkeit von den im Analogfall der Beugung von Cu-K α -Röntgenstrahlung gültigen Beugungswinkeln gezeigt sind. Ein Vergleich des Elektronenbeugungsdiagramms mit den Literaturdaten legte die Zusammensetzung der TaN-Lagen vornehmlich aus Nanokristalliten in kubisch-flächenzentrierter Kristallstruktur nahe, da die Elektronenbeugungsaufnahme an den Positionen hierfür erwarteter dominanter Reflexe ((111), (200), (220), (311), (222)) ebenfalls Intensitätsmaxima aufwies. Für die beiden betrachteten hexagonalen Phasen (TaN, Ta₂N) war dies hingegen nicht der Fall. Beim ungeglühten Schichtsystem legte das Elektronenbeugungsdiagramm deutlicher als das Röntgenbeugungsdiagramm das Vorliegen einer (111)-Textur in der Substratebene nahe. Nach dem Glühprozess war diese dann nicht mehr vorhanden und die Intensitätsverteilung des in Abb. 3-12 d gezeigten Kreisintegrals entsprach bezüglich der Reflexschwerpunkte und der Reflexintensitätsverteilung den Erwartungen der für Röntgenbeugung an Pulverproben von kfz-TaN bekannten Literaturwerte.

3.1.2.2 Mechanische Eigenschaften

In Abb. 3-13 a ist die Härte der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme mit geringem Stickstoffdefizit in den Hartstofflagen bei konstantem $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,15$ in Abhängigkeit von der Doppella-

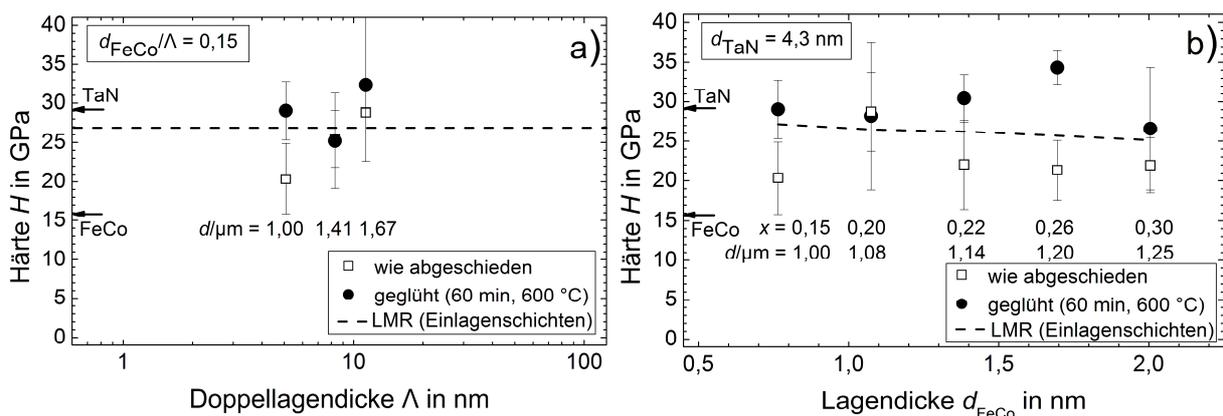


Abb. 3-13 Härte der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum: a) Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ in Abhängigkeit von der Doppellagendicke und b) Schichtsysteme mit konstanter TaN-Lagendicke in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke. LMR: Lineare Mischungsregel, $x = d_{\text{FeCo}}/\Lambda$: Verhältnis von der FeCo-Lagendicke zur Doppellagendicke.

gendicke gezeigt. In Abb. 3-13 b ist entsprechend die Härte bei konstanter TaN-Lagendicke von 4,3 nm bei Variation der FeCo-Lagendicke in deren Abhängigkeit aufgetragen. Als Referenz sind zudem die entsprechenden, jeweils an einer 1 μm dicken TaN- und FeCo-Einlagenschicht ermittelten, Werte sowie die mittels der Linearen Mischungsregel berechneten gewichteten Mittelwerte in den Diagrammen eingetragen. Während der für diese Ergebnisse durchgeführten Indentierungsversuche betrug die verwendete Maximallast 5 mN.

Bei konstantem d_{FeCo}/Λ sank die Härte ausgehend von $(28,8 \pm 0,5)$ GPa bei $\Lambda = 11,3$ nm mit sinkender Doppellagendicke kontinuierlich auf $(20,4 \pm 4,5)$ GPa bei $\Lambda = 5,1$ nm. Hierbei entsprachen alle Werte im Rahmen der Streuung der Messwerte dem mit der Linearen Mischungsregel berechneten Wert von $(27,2 \pm 8,5)$ GPa. Das Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum führte bei dem Schichtsystem mit der minimalen Doppellagendicke von 5,1 nm zu einer Erhöhung der Härte auf $(29,0 \pm 3,7)$ GPa, während bei den übrigen beiden Schichtsystemen keine signifikante Veränderung der Härte verursacht wurde. Bei konstant gehaltener TaN-Lagendicke von 4,3 nm war die Härte der ungeglühten Schichten bei Variation der FeCo-Lagendicke mit einer Ausnahme bei $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,26$ bei allen Schichten geringer als der mit der Linearen Mischungsregel berechnete Wert. Erwartungsgemäß sank die Härte mit steigendem FeCo-Volumenanteil. Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum führte bei nahezu allen Schichtsystemen zu einer Erhöhung der Härte, wobei nun keine kontinuierliche Tendenz in der Abhängigkeit der Härte von der FeCo-Lagendicke mehr festgestellt werden konnte. Die Werte der Härte betragen zwischen $(26,6 \pm 7,8)$ GPa und $(34,3 \pm 2,1)$ GPa.

Der Reduzierte Elastizitätsmodul der Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ ist in Abb. 3-14 a in Abhängigkeit von der Doppellagendicke aufgetragen. Bei der geringsten Doppellagendicke $\Lambda = 5,1$ nm betrug er vor dem Glühen (230 ± 26) GPa. Dies entsprach etwa dem mit der Linearen Mischungsregel berechneten Wert. Die Reduzierten Elastizitätsmoduln der an-

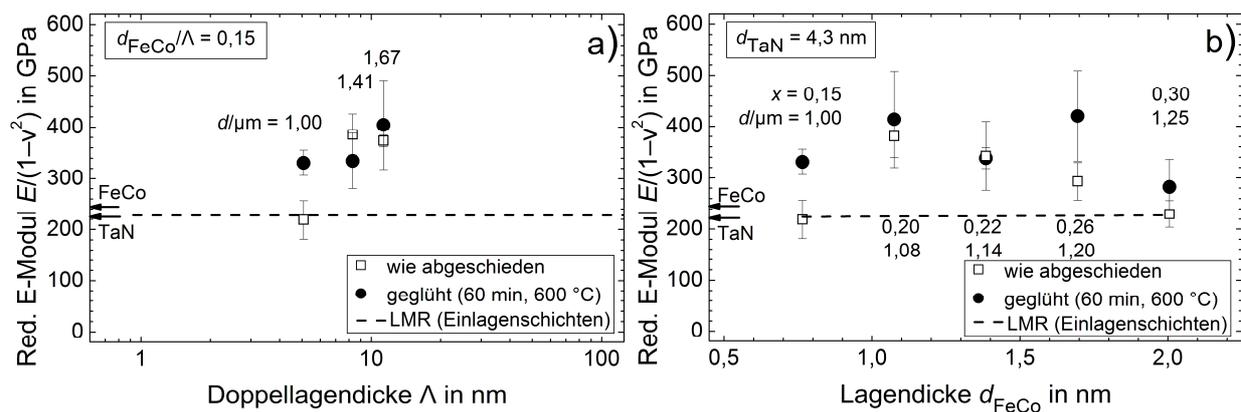


Abb. 3-14 Reduzierter Elastizitätsmodul der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum: a) Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ in Abhängigkeit von der Doppellagendicke und b) Schichtsysteme mit konstanter TaN-Lagendicke in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke. LMR: Lineare Mischungsregel, $x = d_{\text{FeCo}}/\Lambda$: Verhältnis von der FeCo-Lagendicke zur Doppellagendicke.

deren ungeglühten sowie aller geglühten Schichtsysteme befanden sich mit Werten zwischen (331 ± 24) GPa und (404 ± 86) GPa in einem schmalen Wertebereich. Wie in Abb. 3-14 b zu sehen, führte die Erhöhung der FeCo-Lagendicke in den ungeglühten Schichtsystemen mit konstanter TaN-Lagendicke zunächst zu einem Anstieg der Reduzierten Elastizitätsmoduln auf (381 ± 41) GPa bei einem FeCo-Volumenanteil von 0,20, um mit weiter steigendem FeCo-Volumenanteil kontinuierlich abzusinken um schließlich bei einem FeCo-Volumenanteil von 0,30 einen Wert von (230 ± 26) GPa anzunehmen. Der Glühprozess führte bei einem FeCo-Volumenanteil $> 0,20$ nur unwesentlich zu einer Erhöhung der Reduzierten Elastizitätsmoduln. Das Erreichen des maximalen Wertes von (420 ± 88) GPa bei $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,26$ ist eine Ausnahme hiervon, fügt sich im Rahmen der Streuung der Messwerte aber in das zuvor beschriebene Bild ein.

In Abb. 3-15 a sind die Eigenspannungen der Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ in Abhängigkeit von der Doppellagendicke, jeweils ungeglüht und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum, gezeigt. In Abb. 3-15 b sind die Eigenspannungen der Schichtsysteme mit konstanter TaN-Lagendicke in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke aufgetragen. Die Schichthaftung der TaN-Einlagenschicht auf dem einkristallinen Silizium-Substrat war nicht ausreichend, weswegen ein entsprechender Referenzwert nicht in den Diagrammen eingetragen ist. Bei allen ungeglühten Schichtsystemen wurden Druckeigenspannungen mit Werten zwischen $-(2,67 \pm 0,58)$ GPa und $-(1,55 \pm 0,20)$ GPa gemessen. Es konnte jedoch kein kontinuierlicher Verlauf in Abhängigkeit von der Doppellagendicke oder der FeCo-Lagendicke ausgemacht werden. Nach dem Glühen waren die Eigenspannungswerte jeweils um etwa 2 bis 3 GPa in Richtung von Zugeigenspannung verschoben. Eine Ausnahme war das Schichtsystem aus der Serie mit konstantem d_{FeCo}/Λ von 0,15 mit einer Doppellagendicke von 11,3 nm, dessen Eigenspannung nach dem Glühen im Betrag nur um etwas mehr als 1 GPa reduziert war.

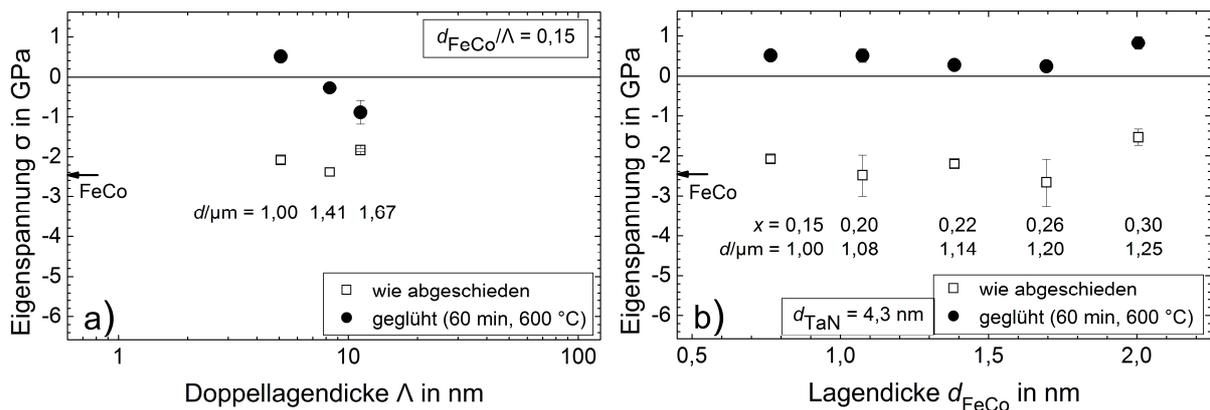


Abb. 3-15 Eigenspannung der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum: a) Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ in Abhängigkeit von der Doppellagendicke und b) Schichtsysteme mit konstanter TaN-Lagendicke in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke. $x = d_{\text{FeCo}}/\Lambda$: Verhältnis von der FeCo-Lagendicke zur Doppellagendicke.

3.1.2.3 Magnetische Eigenschaften

In Abb. 3-16 a sind die Koerzitivfeldstärken der Viellagenschichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke gezeigt. Die Schichtsysteme mit der minimalen FeCo-Lagendicke von 0,8 nm delaminierten während des Glühens, weswegen keine Koerzitivfeldstärken für sie in das Diagramm eingetragen sind. Die Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke von d_{FeCo} lässt sich mit zwei Aussagen beschreiben. Zum einen führte eine sinkende FeCo-Lagendicke zum Sinken der Koerzitivfeldstärke. Zum anderen führte das 60-minütige Magnetfeldglühen im Vakuum zu umso höheren Koerzitivfeldstärken, je höher die Glühtemperatur war. Während die Koerzitivfeldstärken der ungeglühten Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ bei einer FeCo-Lagendicke von 0,8 nm ihren minimalen Wert von 0,24 mT erreichten, stieg die Koerzitivfeldstärke auf einen Wert von 1,68 mT bei einer FeCo-

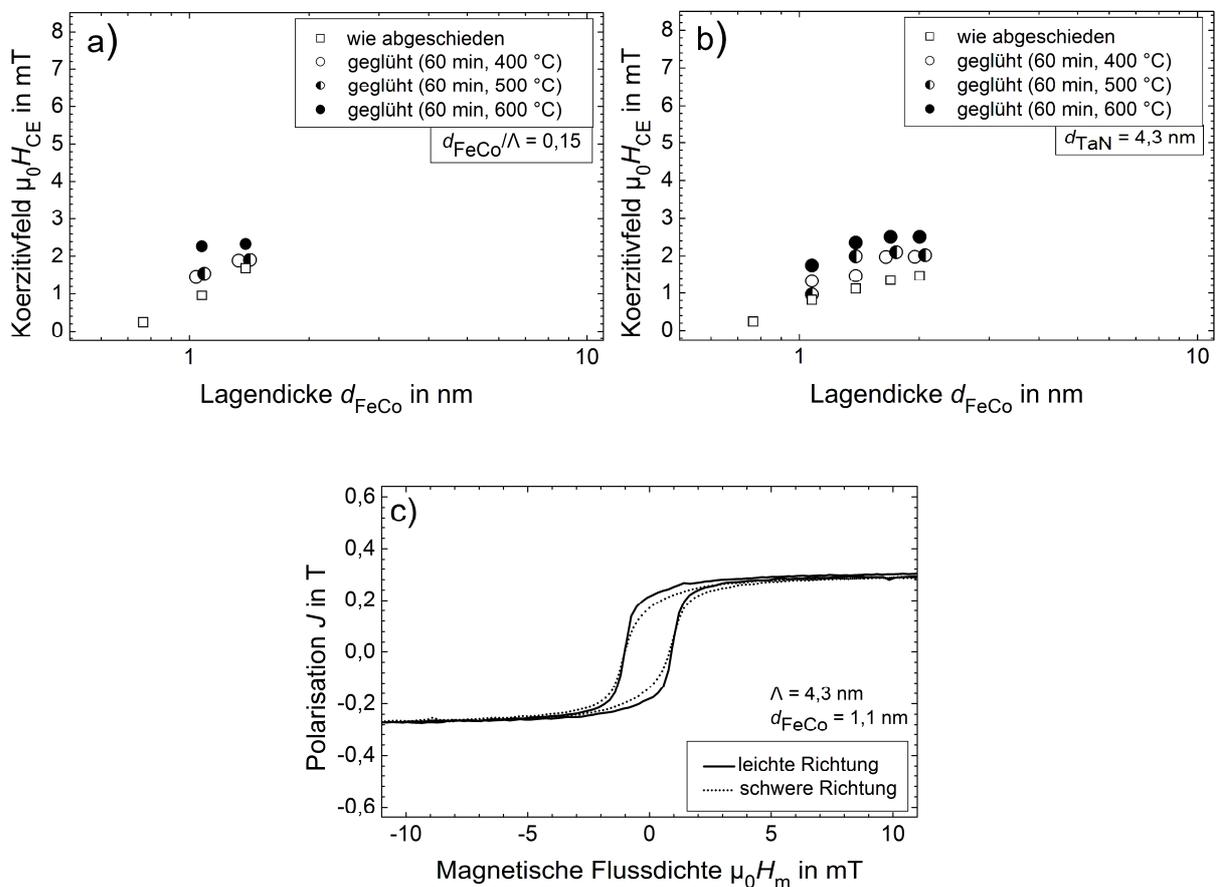


Abb. 3-16 Magnetische Eigenschaften der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme: a) Koerzitivfeldstärken der Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ und b) der Schichtsysteme mit konstanter TaN-Lagendicke, jeweils in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 400, 500 und 600 °C im Vakuum; c) Magnetisierungskurven des Viellagenschichtsystems mit einer Doppellagendicke von 4,3 nm und einer FeCo-Lagendicke von 1,1 nm in leichter und schwerer Richtung nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 500 °C im Vakuum. $x = d_{\text{FeCo}}/\Lambda$: Verhältnis von der FeCo-Lagendicke zur Doppellagendicke.

Lagendicke von 1,4 nm an. Der Glühprozess führte in der Folge zu einem Anstieg, so dass nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum die Koerzitivfeldstärke 2,28 mT und 2,34 mT bei einer FeCo-Lagendicke von 1,1 nm und 1,4 nm betrug. Bei konstanter TaN-Lagendicke und Variation der FeCo-Lagendicke lagen ähnliche Verhältnisse vor, wie in Abb. 3-16 b gezeigt ist. Der Maximalwert der Koerzitivfeldstärke betrug 2,51 mT bei der größten FeCo-Lagendicke von 2,0 nm und bei einer Glühtemperatur von 600 °C, der geringste Wert war der bereits oben erwähnte Wert von 0,24 mT bei einer FeCo-Lagendicke von 0,8 nm in dem ungeglühten Schichtsystem.

Für die Ermittlung des Einflusses der Grenzflächenzahl auf die Sättigungspolarisation wurde das Schichtsystem mit der geringsten FeCo-Lagendicke betrachtet, bei welcher die Magnetisierungskurven der geglühten Schichten noch gemessen werden konnten. Bei einer TaN-Lagendicke von 4,3 nm und einer FeCo-Lagendicke von 1,1 nm betrug die Sättigungspolarisation sowohl im ungeglühten Zustand als auch nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 400 °C, 500 °C und 600 °C im Magnetfeld jeweils 0,29 T. Bei Normierung auf Basis des Anteils der ferromagnetischen Funktionsphase an dem Viellagenschichtsystem entspricht dies einer Sättigungspolarisation von 1,45 T. Dieser Wert lag damit nur etwa 52 % unter dem von einer FeCo-Einlagenschicht erreichten Wert, was auf ein beträchtliches Maß an Durchmischung der Lagen während des Herstellungsprozesses hindeutete. Allerdings wirkten sich die Glühprozesse trotz der durch die AES-Tiefenprofile nachgewiesenen Diffusionsprozesse nicht nachteilig auf die Sättigungspolarisationen aus. Für die Schichtsysteme mit geringem Stickstoffdefizit in den Hartstofflagen ist in Abb. 3-16 c exemplarisch das Schichtsystem mit $\Lambda = 4,3$ nm und mit $d_{\text{FeCo}} = 1,1$ nm in leichter und schwerer Richtung der Magnetisierung gezeigt als das Schichtsystem mit der geringsten Koerzitivfeldstärke. Diese wurde nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 500 °C im Vakuum erreicht. Wie ersichtlich war, wurde durch das Glühen im Magnetfeld eine uniaxiale Anisotropie in der Schichtebene eingepreßt.

3.1.3 Leicht überstöchiometrische Zusammensetzung in den Hartstofflagen

Die in Kapitel 3.1.2 vorgestellten Schichtsysteme wiesen, wie insbesondere in Abb. 3-9 ersichtlich, einen Überschuss der Ta-Elementkonzentration gegenüber der N-Konzentration auf. Mit der Hypothese, dass ein weiteres Einfügen von N₂ in die Prozessgasatmosphäre zur vermehrten Bildung von Ta-N-Verbindungen in den Schichtsystemen führt, wurde eine weitere Serie von FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen hergestellt. Während der Herstellung dieser Serie wurde, unter Beibehaltung aller übrigen Prozessparameter, der N-Anteil in der Prozessgasatmosphäre mit 7 sccm N₂-Fluss auf etwa 20 Vol.-% erhöht. Der erhöhte Anteil von Ta-N-Bindungen sollte hierbei die Diffusion von Ta-Atomen in die FeCo-Lagen reduzieren. Die in der Konsequenz verringerte Durchmischung sollte die ferromagnetischen Eigenschaften verbessern.

3.1.3.1 Schichtaufbau

Bruch- und Oberflächenbeschaffenheit

In Abb. 3-17 a ist eine REM-Aufnahme der Bruch- und der Oberfläche des FeCo/TaN-Viellagenschichtsystems mit der minimalen Doppellagendicke von 4,5 nm im ungeglühten Zustand zu sehen. Die Oberfläche erschien sehr glatt, das Aussehen der Bruchfläche deutete

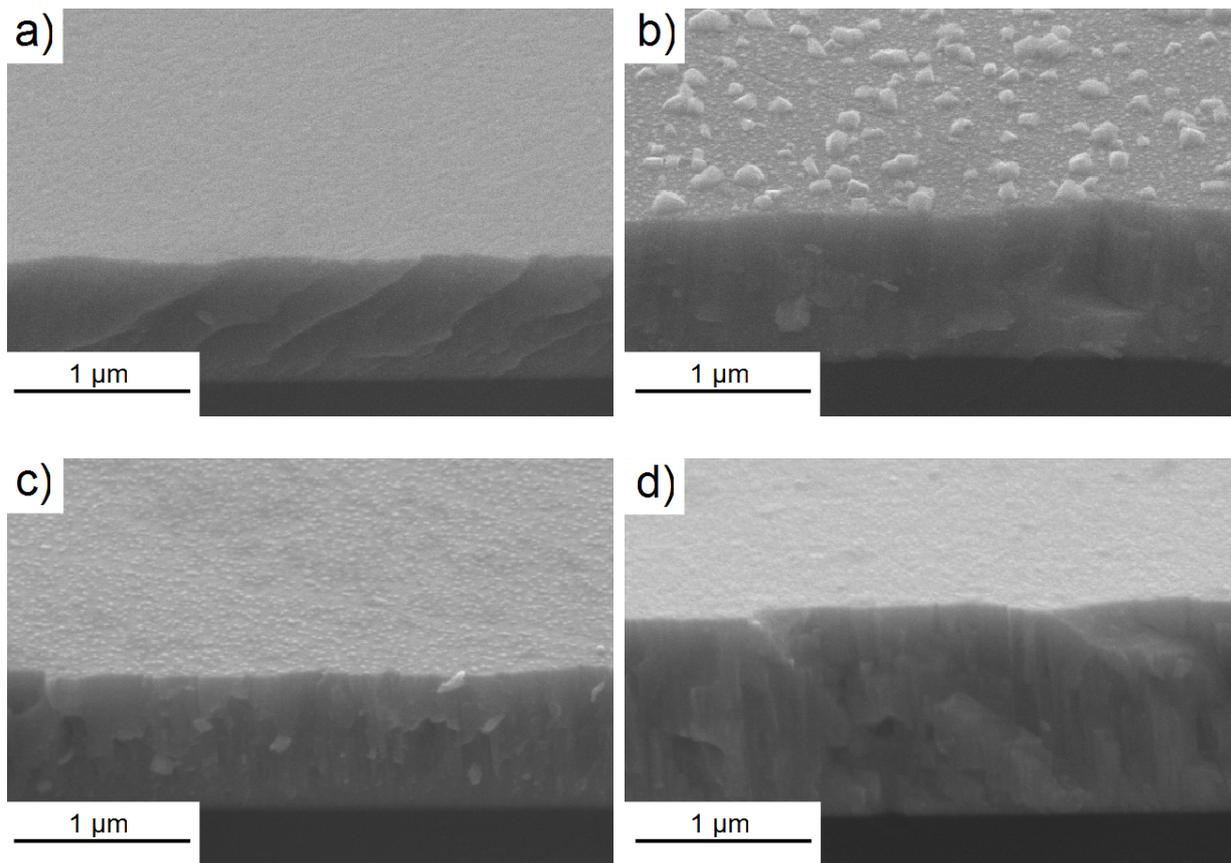


Abb. 3-17 REM-Aufnahmen von FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen: a) 391-lagiges Viellagenschichtsystem mit $\Lambda = 4,5$ nm wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen im Vakuum bei b) 600 °C sowie c) 500 °C; d) 339-lagiges Viellagenschichtsystem mit $\Lambda = 7,0$ nm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum.

te auf eine feinkörnige Mikrostruktur hin. Nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum waren auf der Oberfläche ausgebildete Strukturen zu erkennen (Abb. 3-17 b). Durch lateral aufgelöste AES wurde nachgewiesen, dass diese Strukturen mit Fe- und Co-Atomen angereichert waren. Dies ließ auf eine Ausdiffusion von Fe und Co während des Glühprozesses schließen. Wie in Abb. 3-17 c zu sehen, war dieses Phänomen bei Anwendung einer geringeren Glühtemperatur von 500 °C deutlich weniger ausgeprägt. Insbesondere verhinderte auch bei einer Glühtemperatur von 600 °C eine Erhöhung der Doppellagendicke von 4,5 nm auf 7,0 nm die Ausbildung dieser Oberflächenstrukturen, wie anhand der in Abb. 3-17 d gezeigten REM-Aufnahme des Schichtsystems mit der höheren Doppellagendicke von $\Lambda = 7,0$ nm nachgewiesen wurde.

Chemische Zusammensetzung und Viellagenaufbau

In Abb. 3-18 sind exemplarische XRR-Diagramme gezeigt, wobei in Abb. 3-18 a die Diagramme der Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ im ungeglühten Zustand und in Abb. 3-18 b diejenigen des Schichtsystems mit der minimalen Doppellagendicke von 4,5 nm, jeweils nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 400 °C, 500 °C und 600 °C im Vakuum, gezeigt sind. Es war zu erkennen, dass sich auch bei geringen Doppellagendicken mit FeCo-

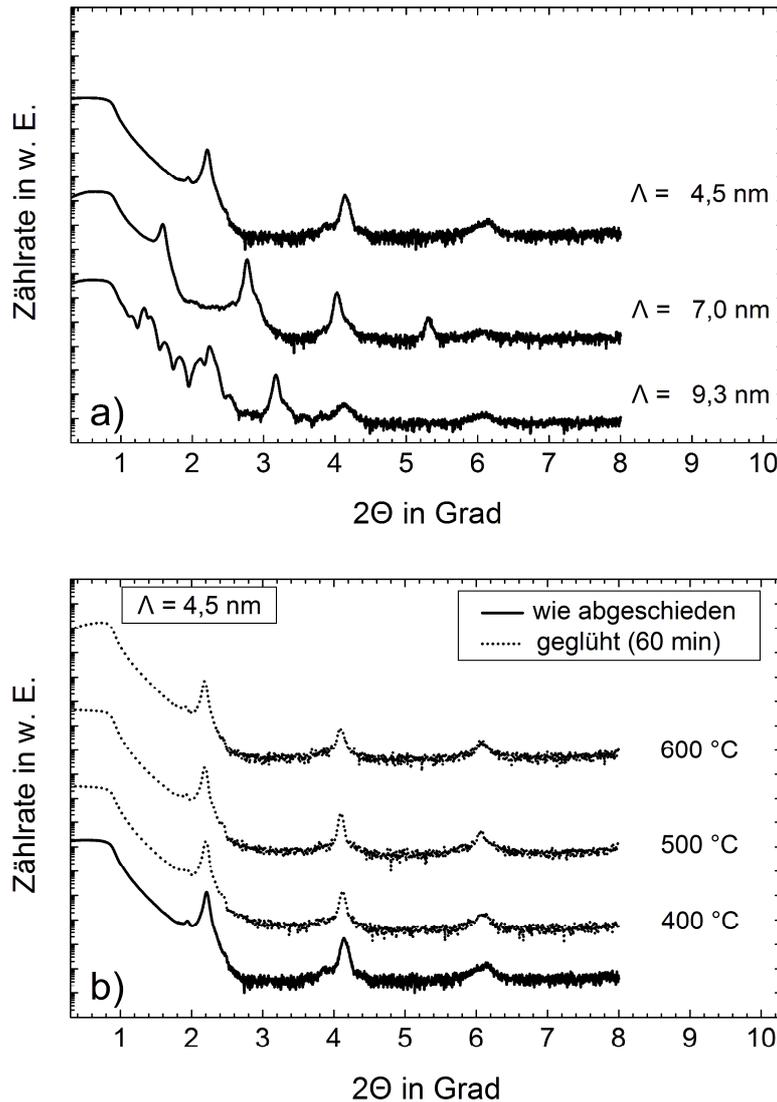


Abb. 3-18 XRR-Diagramme von FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen: a) Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ wie abgeschieden und b) Schichtsystem mit der minimalen Doppellagendicke $\Lambda = 4,5 \text{ nm}$ nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 400, 500 bzw. 600 °C im Vakuum sowie, als Referenz, noch einmal wie abgeschieden.

Lagendicken von weniger als 1,0 nm ein regelmäßiger Viellagenaufbau ausbildete. Nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei bis zu 500 °C im Vakuum blieb dieser Aufbau erhalten. Auch nach Glühen bei 600 °C war noch ein regelmäßiger Viellagenaufbau nachweisbar. Die nach Glühen mit höherer Temperatur verringerte Intensität der Übergitterreflexe zeigte jedoch, dass die Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus durch das Glühen beeinträchtigt wurde.

In Abb. 3-19 a ist ein AES-Tiefenprofil der Elementkonzentration des Schichtsystems mit der minimalen Doppellagendicke von 4,5 nm im ungeglühten Zustand gezeigt. In Abb. 3-19 b ist das analoge Tiefenprofil nach 60-minütigem Magnetfeldglühen des Schichtsystems bei 600 °C im Vakuum abgebildet. In den ungeglühten Schichten wechselten sich TaN-Lagen ($\approx 44 \text{ At.-% Ta}$, $\approx 48 \text{ At.-% N}$) ohne nennenswerten nachweisbaren Anteil von Fe- und Co-

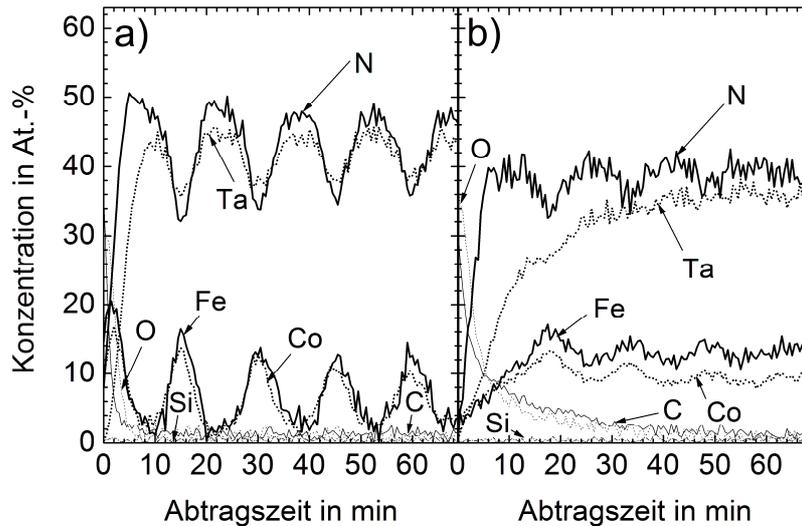


Abb. 3-19 AES-Tiefenprofile der Elementkonzentration des 391-lagigen FeCo/TaN-Viellagenschichtsystems mit der minimalen Doppellagendicke von $\Lambda = 4,5$ nm: a) wie abgetrennt und b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum.

Atomen mit Lagen ab, in denen ebenfalls vorwiegend Ta- und N-Atome nachgewiesen wurden (≈ 38 At.-% Ta, ≈ 34 At.-% N), zusätzlich jedoch Fe- und Co-Atome in einer Elementkonzentration von ≈ 16 At.-% und ≈ 13 At.-% vorhanden waren. Nach dem Glühprozess war eine Durchmischung der Lagen miteinander zu erkennen, die sich in einer deutlichen Verringerung der Konzentrationsunterschiede einer jeweils betrachteten Atomsorte zwischen den verschiedenen Lagen auswirkte. Auch in dem bei 600 °C geglühten Schichtsystem war jedoch noch ein regelmäßiger Viellagenaufbau zu erkennen, innerhalb dessen allerdings deutlich unschärfere Grenzflächen als im ungeglühten Schichtsystem vorlagen.

Mikrostruktur und Textur

In Abb. 3-20 a sind die Röntgenbeugungsdiagramme der Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ in Abhängigkeit von dem Beugungswinkel 2θ für die Doppellagendicken 9,3 nm, 7,0 nm sowie 4,5 nm gezeigt. Bei allen drei Schichtsystemen befand sich im Winkelbereich zwischen 33° und 47° ein breiter Reflex mit zwei Schwerpunkten. Einer dieser Schwerpunkte befand sich jeweils nahe des Literaturwerts des (200)-Reflexes von kfz-TaN bei $41,604^\circ$. Der Maximalwert eines weiteren Reflexes befand sich bei der Schicht mit der größten Doppellagendicke bei $37,5^\circ$ und damit im Vergleich zu dem Literaturwert des (101)-Reflexes von hex-TaN um etwa $0,7^\circ$ in Richtung kleinerer Beugungswinkel verschoben. Bei sinkender Doppellagendicke war eine Verschiebung dieses Reflexes von seiner ursprünglichen Position aus um etwa $0,3^\circ$ in Richtung größerer Beugungswinkel zu beobachten, bevor er bei einer Doppellagendicke von 4,5 nm durch zwei Reflexe bei $35,1^\circ$ und bei $38,6^\circ$ ersetzt wurde. Einer dieser Reflexe befand sich hierbei mittig zwischen dem (110)-Reflex von hex-TaN und dem (111)-Reflex von kfz-TaN.

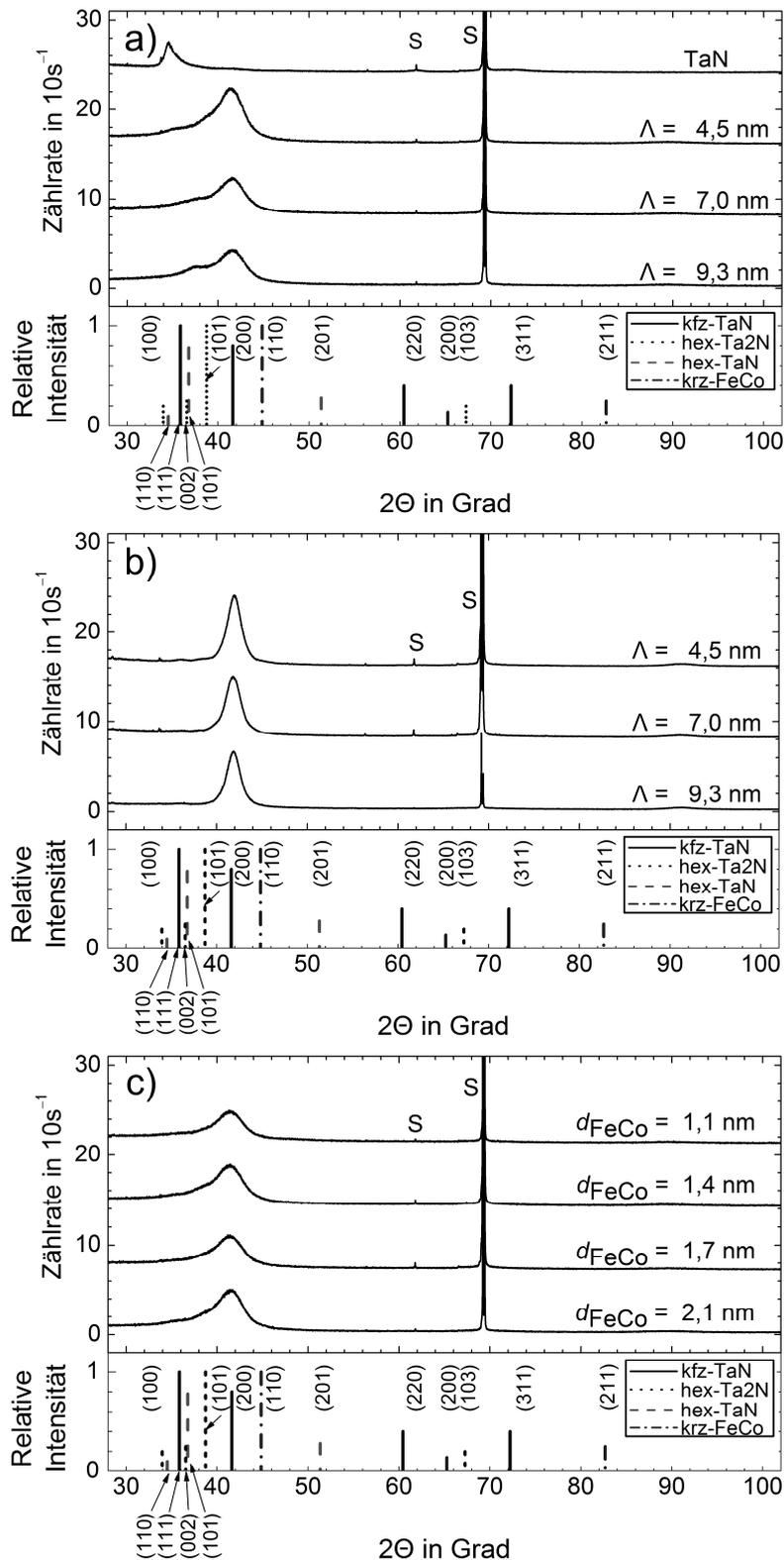


Abb. 3-20 Röntgenbeugungsdiagramme der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme mit geringem Stickstoffüberschuss in den Hartstofflagen sowie einer 1 μm dicken TaN-Einlagenschicht: a) Schichtsysteme mit konstantem $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,16$ wie abgeschieden und b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 $^{\circ}\text{C}$ im Vakuum, c) Schichtsysteme mit konstanter TaN-Lagendicke $d_{\text{TaN}} = 3,8$ nm wie abgeschieden. Die mit „S“ gekennzeichneten Reflexe wurden durch Beugung am Substrat verursacht.

In Abb. 3-20 b sind die Röntgenbeugungsdiagramme nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum gezeigt. Im Gegensatz zu den an den ungeglühten Schichtsystemen ermittelten Röntgenbeugungsdiagrammen trat nur noch jeweils ein Reflex auf, der sich mit Positionen bei 41,8° nahe dem Literaturwert des (200)-Reflexes von kfz-TaN bei 41,604° befand. Wie in Abb. 3-20 c zu sehen, führte eine Zunahme der FeCo-Lagendicke bei Beibehaltung der TaN-Lagendicke zu keiner offensichtlichen Veränderung des in Abb. 3-20 a gezeigten Röntgenbeugungsdiagramms des Schichtsystems mit der minimalen Doppellagendicke 4,5 nm. Insbesondere war keine Ausbildung eines dem FeCo zuzuordnenden Reflexes zu beobachten.

In Abb. 3-21 sind TEM-Aufnahmen des FeCo/TaN-Schichtsystems mit der minimalen Doppellagendicke 4,5 nm gezeigt. In Abb. 3-21 a ist eine Dunkelfeldabbildung des ungeglühten Schichtsystems gezeigt. In Abb. 3-21 b ist die analoge Abbildung eines gleichen Schichtsystems nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum zu sehen. Es war in beiden Abbildungen ein Viellagenaufbau zu erkennen, in dem sich partiell säulenförmiges Wachstum abzeichnete, was in Abb. 3-21 b deutlicher ausgeprägt der Fall war als in Abb. 3-21 a. In Abb. 3-21 c ist eine hochaufgelöste Abbildung eines Ausschnittes des in Abb. 3-21 a gezeigten Schichtsystems gezeigt. Neben dem auch bei dieser Vergrößerung in Ansätzen noch zu erkennenden Viellagenaufbau war insbesondere die an einigen Stellen stattfindende Ausbildung von über die Lagengrenzen hinweg verlaufenden Netzebenen auffällig. Zur Verdeutlichung sind zwei Beispiele hierfür in die TEM-Aufnahme eingezeichnet.

In Abb. 3-22 a ist das Elektronenbeugungsdiagramm des Schichtsystems mit der minimalen Doppellagendicke 4,5 nm im ungeglühten Zustand gezeigt. In Abb. 3-22 b ist das entsprechende Diagramm des gleichen Schichtsystems nach 60-minütigem Glühen bei 600 °C im Vakuum zu sehen. Beide Diagramme deuteten auf das Vorliegen einer ausgeprägten Textur in den Schichtsystemen hin. Ein qualitativer Vergleich der beiden Beugungsabbildungen zeigte, dass durch das Glühen ein Kornwachstum stattgefunden hat, das durch die geringere Ausdehnung der Beugungsreflexe in radialer Richtung gekennzeichnet war. Zudem war die Textur nach dem Glühen ausgeprägter, was sich in einer geringeren angularen Ausdehnung der Reflexe manifestierte. In Abb. 3-22 c und Abb. 3-22 d sind die zugehörigen Rotationsintegrale der Intensitäten abgebildet und in Abhängigkeit von den für den Analogfall der Beugung von Cu-K_α-Röntgenstrahlung gültigen Beugungswinkeln aufgetragen. Hierdurch wird ein Vergleich mit den ebenfalls in den Diagrammen eingetragenen entsprechenden Röntgenbeugungsdiagrammen sowie mit den für Beugung von Cu-K_α-Röntgenstrahlung bekannten Literaturdaten ermöglicht. Die Positionen der Beugungsreflexe stimmten mit den für den Fall der Beugung an kubisch-flächenzentriertem TaN erwarteten Winkelpositionen überein. Bei dem geglühten Schichtsystem war eine deutliche Zunahme der Textur mit der Vorzugsebene (200) zu verzeichnen.

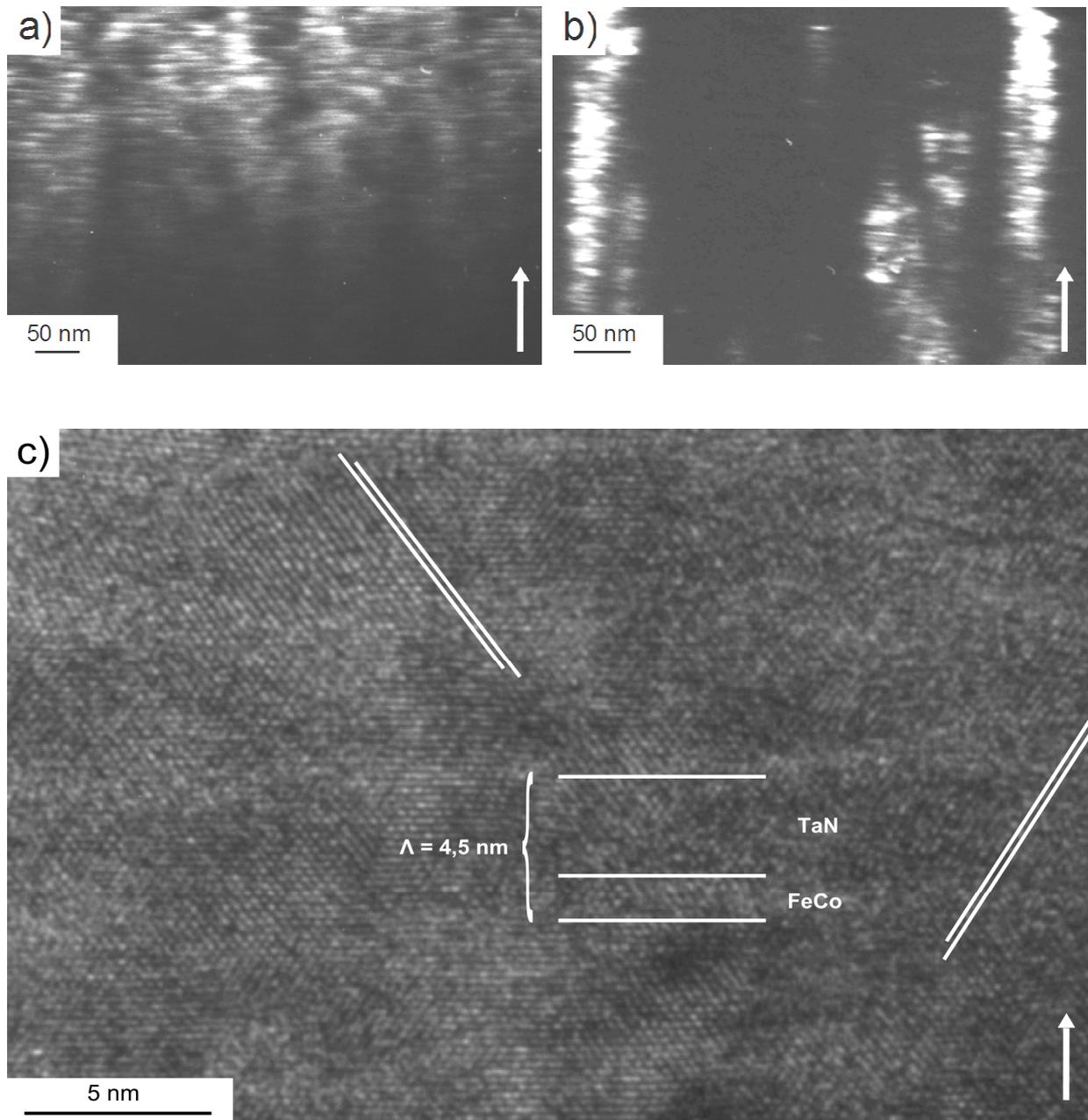


Abb. 3-21 TEM-Aufnahmen des FeCo/TaN-Viellagenschichtsystems mit der minimalen Doppellagendicke $\Lambda = 4,5 \text{ nm}$: a) Dunkelfeldabbildung des Schichtsystems wie abgeschieden, b) Dunkelfeldabbildung nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum und c) hochaufgelöste Abbildung des Schichtsystems wie abgeschieden. Die Richtung des Schichtwachstums ist jeweils durch den Pfeil gekennzeichnet.

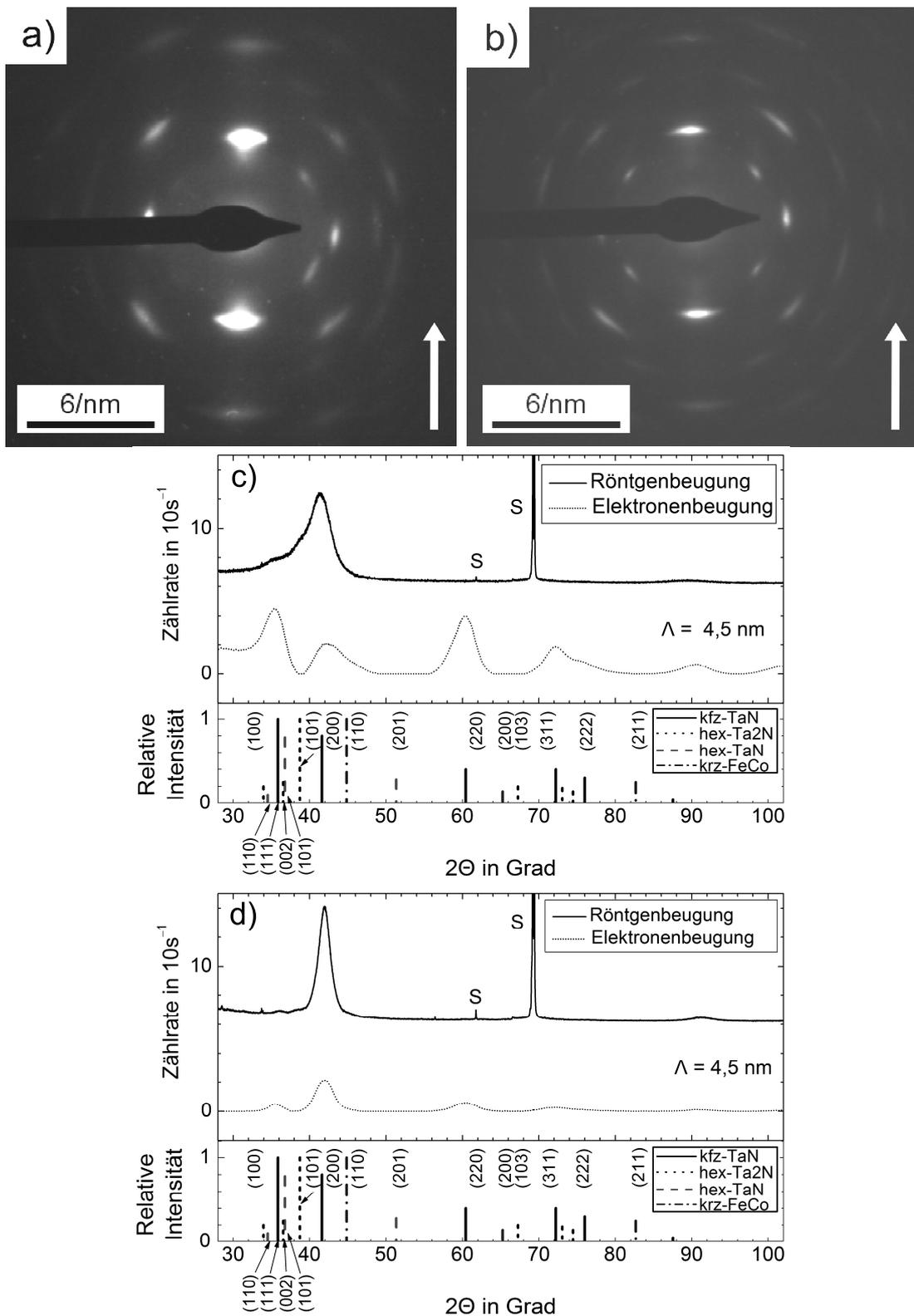


Abb. 3-22 Elektronenbeugungsaufnahme an dem FeCo/TaN-Viellagenschichtsystem mit der minimalen Doppellagendicke von 4,5 nm: a) wie abgeschieden und b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Die durch den Pfeil gezeigte Richtung entspricht der Wachstumsrichtung. Vergleich der integrierten Elektronenbeugungsintensitäten jeweils mit dem entsprechenden Röntgenbeugungsdiagramm: c) wie abgeschieden und d) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Die mit „S“ gekennzeichneten Reflexe entstanden durch Beugung am Substrat.

3.1.3.2 Mechanische Eigenschaften

In Abb. 3-23 sind mechanische Eigenschaften der Viellagenschichtsysteme zusammengefasst. Die in Abb. 3-23 a–d dargestellten Ergebnisse wurden mit Indentierungsexperimenten mit einer Maximallast von 5 mN ermittelt.

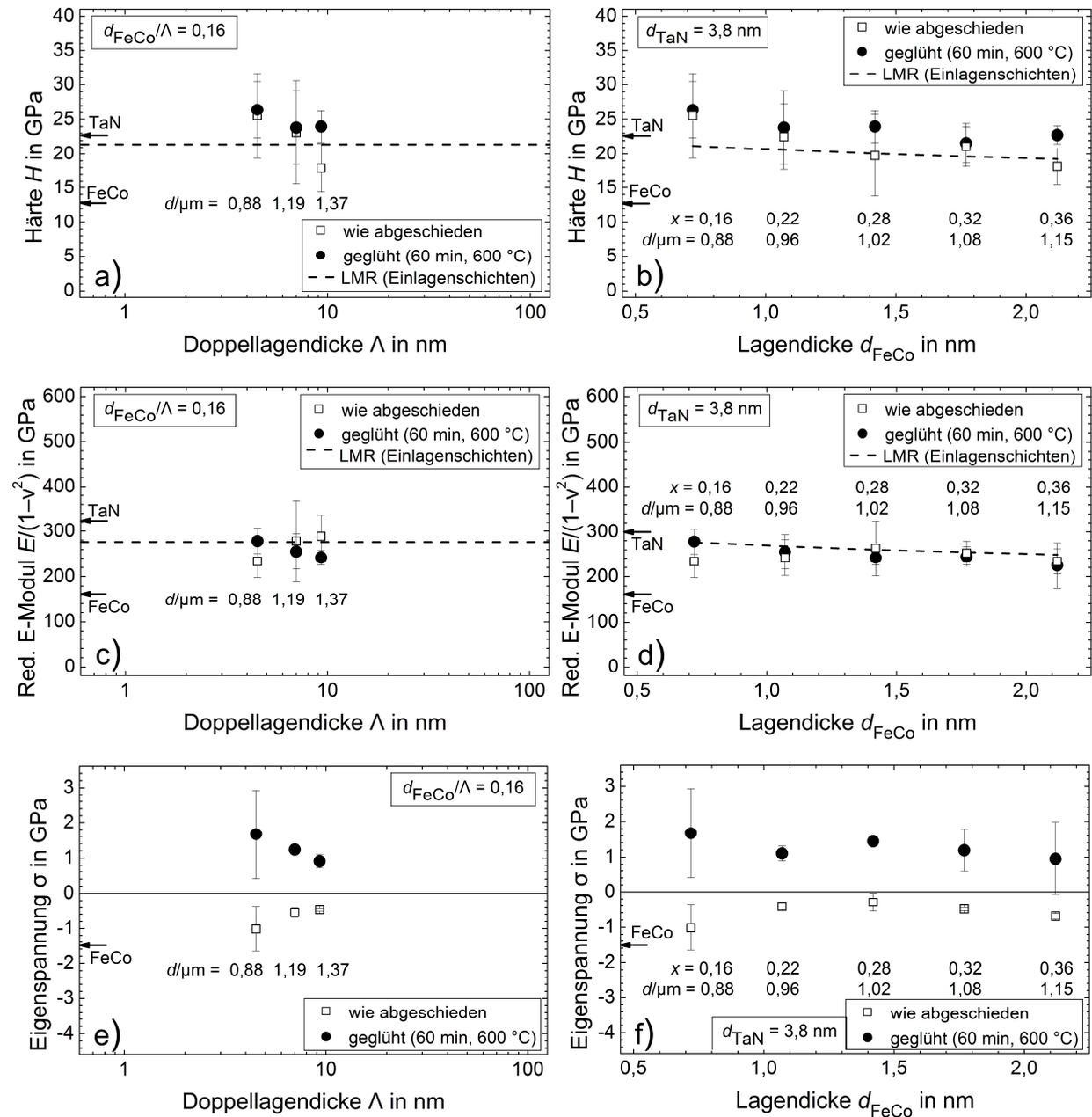


Abb. 3-23 Mechanische Eigenschaften der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme, jeweils wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum: a) Härte, c) Reduzierter Elastizitätsmodul und e) Eigenspannung der Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ in Abhängigkeit von der Doppellagendicke, sowie b) Härte, d) Reduzierter Elastizitätsmodul und f) Eigenspannung der Schichtsysteme mit konstanter TaN-Lagendicke in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke. LMR: Lineare Mischungsregel, $x = d_{\text{FeCo}}/\Lambda$: Verhältnis von der FeCo-Lagendicke zur Doppellagendicke.

Wie in Abb. 3-23 a zu sehen, wurden bei den Schichtsystemen mit konstantem FeCo-Anteil von 0,16 im ungeglühten Zustand Härtewerte ermittelt, die mit sinkender Doppellagendicke ausgehend von $(24,0 \pm 2,4)$ GPa kontinuierlich auf $(26,4 \pm 4,1)$ GPa anstiegen und damit im Rahmen der Streuung der mit der Linearen Mischungsregel berechneten Härte von $(21,2 \pm 4,4)$ GPa entsprachen. Bei einer konstanten TaN-Lagendicke von 3,8 nm führte eine Erhöhung der FeCo-Lagendicke zu einer Härtereduktion, wobei die gemessenen Werte dem entsprechenden Verlauf der Linearen Mischungsregel folgten, wie in Abb. 3-23 b gezeigt ist. Bei einem maximalen FeCo-Volumenanteil von 0,36 in dem Schichtsystem resultierte dies in eine Härte von $(18,2 \pm 2,7)$ GPa. Nach der Glühbehandlung unterschied sich die Härte der Schichtsysteme nicht signifikant von den Werten der ungeglühten Schichtsysteme.

Die Reduzierten Elastizitätsmoduln der Schichtsysteme sind in Abb. 3-23 c und d gezeigt. Ähnlich wie die Härte befanden sich die Reduzierten Elastizitätsmoduln bei Änderung der Doppellagendicke und konstantem d_{FeCo}/Λ wie auch bei Erhöhung der FeCo-Lagendicke bei gleichbleibender TaN-Lagendicke in einem schmalen Wertekorridor nahe den mit der Linearen Mischungsregel berechneten Werten. Wie auch die Härte, erwies sich der Reduzierte Elastizitätsmodul nach der Glühbehandlung als nahezu unverändert.

In Abb. 3-23 e ist die Veränderung der Eigenspannung in Abhängigkeit von der Doppellagendicke bei konstantem d_{FeCo}/Λ gezeigt. Im ungeglühten Zustand lag Druckeigenspannung vor, deren Betrag mit Werten zwischen $-(1,02 \pm 0,63)$ GPa und $-(0,47 \pm 0,05)$ GPa geringer war als der an der FeCo-Einlagenschicht ermittelte Wert $-(1,47 \pm 0,46)$ GPa. Nach dem Glühen wies das Schichtsystem mit der höchsten Doppellagendicke von 11,3 nm Druckeigenspannung von $-(0,89 \pm 0,29)$ GPa auf. Mit sinkender Doppellagendicke veränderte sich die Eigenspannung kontinuierlich in Richtung von Zugeigenspannung, bis bei der geringsten Doppellagendicke von 5,1 nm ein Wert von $(0,50 \pm 0,07)$ GPa erreicht wurde. Bei konstanter Dicke der TaN-Lage und Variation der Materialverhältnisse wurde im ungeglühten Zustand Druckeigenspannung nachgewiesen, wobei die entsprechenden Werte in einem schmalen Wertekorridor zwischen $-(2,67 \pm 0,58)$ GPa und $-(1,55 \pm 0,20)$ GPa angesiedelt waren und keine tendenzielle Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke aufwiesen. Nach dem Glühen wiesen alle Schichtsysteme Zugeigenspannung auf, wobei die entsprechenden Werte unter 1 GPa lagen und somit gering waren.

3.1.3.3 Magnetische Eigenschaften

In Abb. 3-24 a sind die Koerzitivfeldstärken der Viellagenschichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ im ungeglühten Zustand sowie nach 60-minütigem Magnetfeldglühen im Vakuum bei 400 °C, 500 °C und 600 °C in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke gezeigt. Die Koerzitivfeldstärken der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme mit konstanter TaN-Lagendicke von 3,8 nm sind in Abb. 3-24 b zu sehen. Bei den ungeglühten Schichtsystemen mit konstantem FeCo-Volumenanteil stiegen die Koerzitivfeldstärken von 0,21 mT bei $d_{\text{FeCo}} = 0,7$ nm kontinuierlich auf 0,88 mT bei $d_{\text{FeCo}} = 1,5$ nm. Bei konstanter TaN-Lagendicke stieg die Koerzitivfeldstärke der ungeglühten Schichtsysteme von 0,21 mT bei einer FeCo-Lagendicke von 0,7 nm mit steigender FeCo-Lagendicke kontinuierlich bis zu einem Wert von 1,31 mT bei $d_{\text{FeCo}} = 1,8$ nm. Bei Erhöhung der FeCo-Lagendicke über diesen Wert hinaus bis auf 2,1 nm sank die Koerzitivfeldstärke schließlich wieder auf 0,9 mT. Das 60-minütige Glühen im Vakuum und im Magnetfeld führte zu einer umso höheren Koerzitivfeldstärke, desto höher die

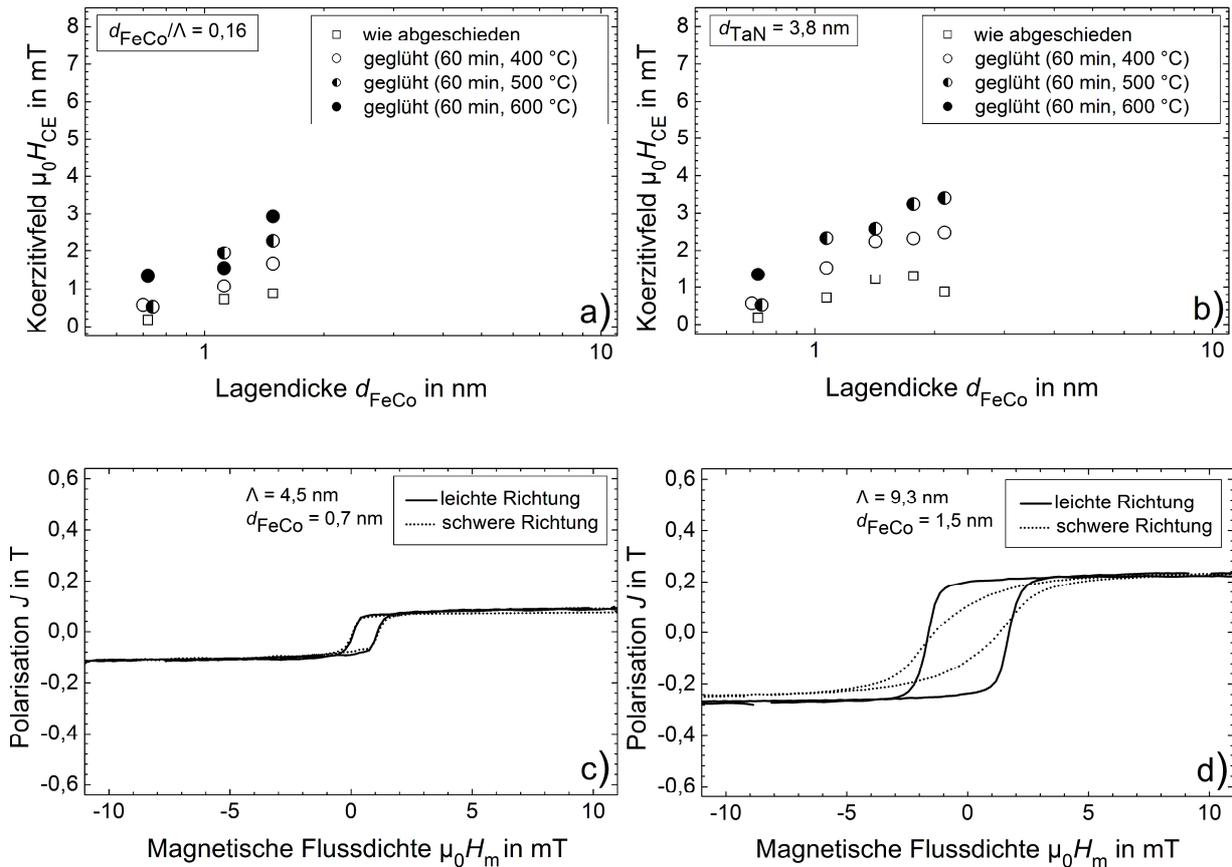


Abb. 3-24 Magnetische Eigenschaften der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme: a) Koerzitivfeldstärken der Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ und b) der Schichtsysteme mit konstanter TaN-Lagendicke, in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke, jeweils wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 400, 500 und 600 °C im Vakuum, Magnetisierungskurven in leichter und schwerer Richtung nach 60-minütigem Magnetfeldglühen im Vakuum: c) Schichtsystem mit der minimalen Doppellagendicke 4,5 nm, Glühtemperatur 500 °C, d) Schichtsystem mit $d_{FeCo}/\Lambda = 0,16$ und der maximalen Doppellagendicke 9,3 nm, Glühtemperatur 400 °C.

Glühtemperatur gewählt wurde. Gleichzeitig führten höhere FeCo-Lagendicken bei den ge-
glühten Schichtsystemen zu höheren Koerzitivfeldstärken. Eine Ausnahme stellte das Ver-
halten des Viellagenschichtsystems mit einer TaN-Lagendicke von 3,8 nm und einer FeCo-
Lagendicke von 1,1 nm dar. Dessen Koerzitivfeldstärke war nach dem Magnetfeldglühen bei
600 °C mit 1,54 mT geringer als mit 1,95 mT nach dem Magnetfeldglühen bei 500 °C. Die
Schichtsysteme mit konstanter TaN-Lagendicke waren bei FeCo-Lagendicken von $> 1,1$ nm
während des Glühens bei 600 °C delaminiert, weswegen für diese Werte keine Eintragungen
im Diagramm vorhanden sind.

Bei den ungeglühten Schichtsystemen mit konstantem d_{FeCo}/Λ führte die Erhöhung der Fe-
Co-Lagendicke zu einer Erhöhung der Sättigungspolarisation von 0,10 T bei der minimalen
Doppellagendicke $\Lambda = 4,5$ nm über 0,17 T auf 0,23 T bei der maximalen Doppellagendicke

$\Lambda = 9,3$ nm. Diese Werte entsprechen bei Normierung auf Basis des Volumenanteils der magnetischen Funktionslagen in den Schichtsystemen Netto-Sättigungspolarisationen von 0,63 T, 1,06 T und 1,44 T. Im Vergleich zu dem an einer 1 μm dicken FeCo-Einlagenschicht ermittelten Wert von 2,2 T wurden also deutlich geringere Netto-Sättigungspolarisationen (Gl. (2.12)) erreicht. Das Glühen der Schichtsysteme führte zu keiner Veränderung dieser Werte. Dies ist ein Hinweis darauf, dass die Reduktion der Sättigungspolarisation vorwiegend eine Folge der Grenzflächenbildung während des Schichtwachstums war, und diffusionsbedingte Lagendurchmischung während der Glühbehandlung eine nachrangige Rolle spielte.

In Abb. 3-24 c ist das Viellagenschichtsystem mit der geringsten Doppellagendicke von 4,5 nm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 500 °C im Vakuum gezeigt. Es ist ersichtlich, dass neben der geringen Magnetisierung auch kaum eine uniaxiale Anisotropie ausgeprägt war. Bei den in Abb. 3-24 d beispielhaft gezeigten Magnetisierungskurven der Viellagenschichten mit $\Lambda = 9,3$ nm in leichter und in schwerer Richtung nach Magnetfeldglühen bei 400 °C im Vakuum war hingegen eine uniaxiale Anisotropie in der Schichtebene zu erkennen.

3.2 FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme

3.2.1 Leicht unterstöchiometrische Zusammensetzung in den Hartstofflagen

Als weiterer Hartstoff für die Herstellung von FeCo/Hartstoff-Viellagenschichtsystemen wurde TiN ausgewählt. Der wichtigste Grund hierfür war die hohe Akzeptanz von TiN als Verschleißschutzbeschichtung, weswegen es sich für modellhafte Experimente anbot. Ein weiterer wichtiger Grund war die Tatsache, dass TiN in einem weiten Zusammensetzungsbereich um die Stöchiometrie der $\text{Ti}_{50}\text{N}_{50}$ -Zusammensetzung einphasig in kfz-Kristallstruktur aufwächst (siehe Phasendiagramm des Stoffsystems Ti-N in Abb. 1-7). So wird kein Wachstum von Phasengemischen erwartet, solange die Ti-Konzentration nicht 58 At.-% überschreitet.

3.2.1.1 Schichtaufbau

Bruch- und Oberflächenbeschaffenheit

In Abb. 3-25 a–e sind exemplarische REM-Aufnahmen von Bruch- und Oberfläche von FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen, jeweils unter einem Winkel von 60° zur Oberflächennormale, gezeigt. In der in Abb. 3-25 a gezeigten Aufnahme des ungeglühten Viellagenschichtsystems mit einer Doppellagendicke von 47 nm waren die helleren schmalen FeCo- und dunkleren breiteren TiN-Lagen zu erkennen, die alternierend geschichtet waren. Weiterhin schien das kolumnare Wachstum der TiN-Lagen durch die FeCo-Lagen unterbrochen worden zu sein. Bei den übrigen Bruchflächen waren die Einzellagen, aufgrund ihrer geringen Dicke, bei der zur Verfügung stehenden Vergrößerung nicht mehr zu erkennen. Alle gezeigten Oberflächen waren sehr glatt, wobei die Oberflächenrauheit mit abnehmender Doppellagendicke tendenziell abnahm.

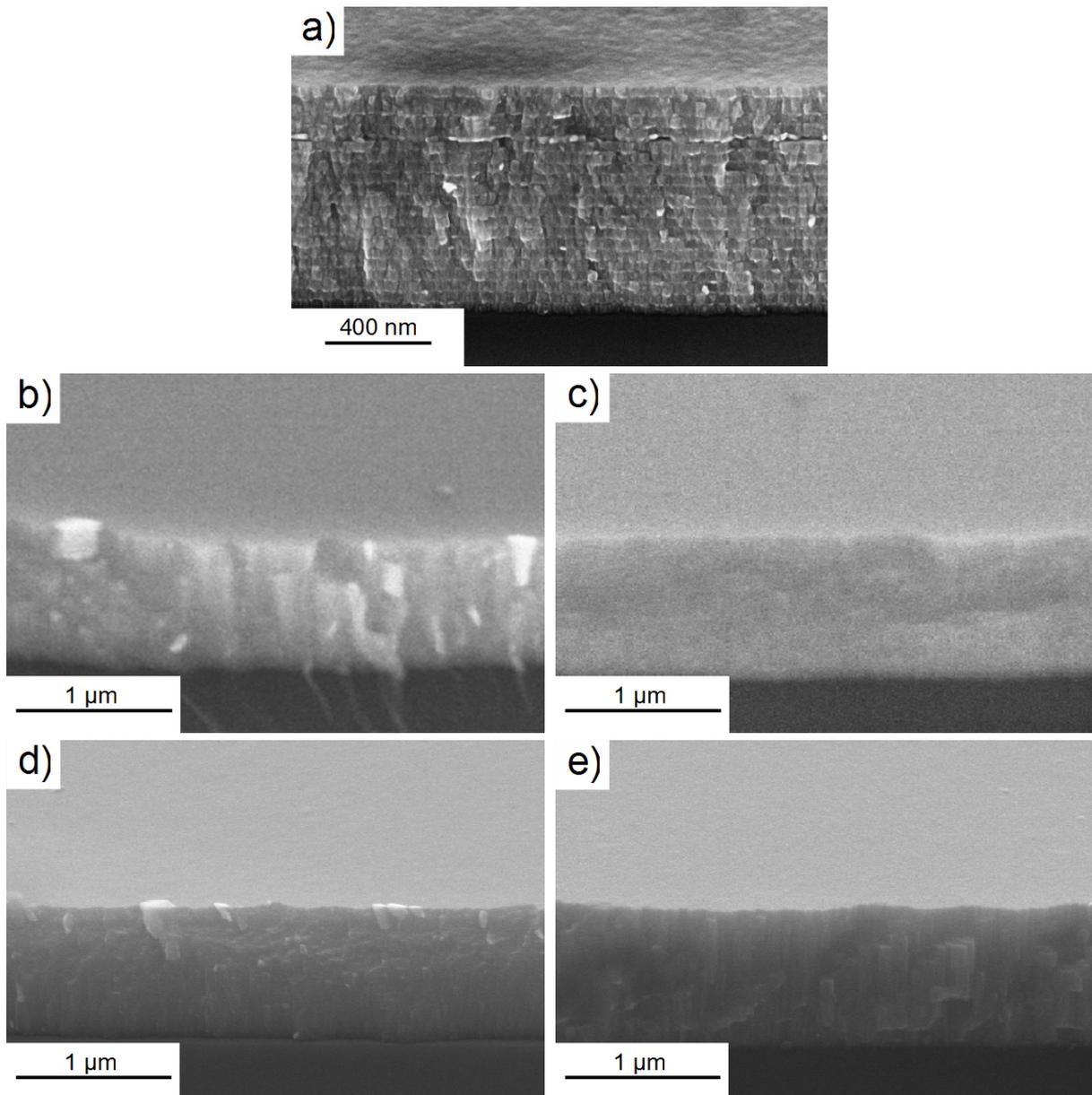


Abb. 3-25 REM-Aufnahmen von FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen: a) 39-lagig mit $\Lambda = 47 \text{ nm}$ nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum, b) 357-lagig mit $\Lambda = 5,5 \text{ nm}$ wie abgeschieden und c) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum, sowie d) 781-lagig mit $\Lambda = 2,6 \text{ nm}$ wie abgeschieden und e) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum.

Viellagenaufbau

In Abb. 3-26 sind exemplarisch XRR-Diagramme der drei Schichtsysteme mit $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,25$ gezeigt, deren Doppellagendicken $5,5 \text{ nm}$ und weniger betragen. Im Fall des Schichtsystems mit der geringsten Doppellagendicke von $2,6 \text{ nm}$ ist zusätzlich das XRR-Diagramm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum gezeigt. In allen Diagrammen waren Übergitterreflexe mehrerer Ordnungen zu sehen, wodurch eine hohe Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus und der Doppellagendicke bestätigt wurde. Weiterhin deutete das nach dem Glühen unveränderte XRR-Diagramm auf die Stabilität dieser Regelmäßigkeit des Viel-

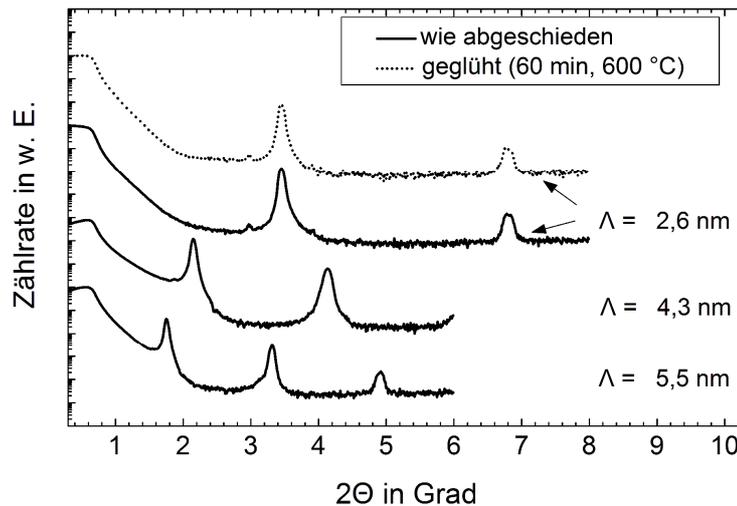


Abb. 3-26 XRR-Diagramme der drei FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme mit den Doppellagendicken 2,6 nm, 4,3 nm und 5,5 nm wie abgeschieden und, im Fall des Viellagenschichtsystems mit der Doppellagendicke 2,6 nm, nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Nach [114].

lagenaufbaus gegenüber dem verwendeten Glühprozess hin. Aus der Position der Übergitterreflexe wurden mit der modifizierten Bragg-Gleichung (2.2) die Doppellagendicken aller vorgestellten Schichten ermittelt.

Chemische Zusammensetzung

Die mittels EPMA gemessene chemische Zusammensetzung einer jeweils 1 μm dicken TiN- und FeCo-Einlagenschicht wurde in Tab. 3-1 gezeigt. Es wurde nachgewiesen, dass der Elementanteil von Atomen, die vom jeweils gegenüberliegenden Target stammten, in keinem Fall mehr als wenige 1/10 Promille betrug. Trotz des für die Ermöglichung eines stabilen Prozesses notwendigen Verzichts auf eine Blende und der aufgrund des geringen Prozessgasdrucks zu erwartenden vergleichsweise hohen freien Weglängen der Atome war somit die Herstellung von unkontaminierten Lagen möglich. Darüber hinaus stellte sich die TiN-Einlagenschicht als leicht unterstöchiometrisch heraus, was mit der Entfernung von in der Gasphase befindlichen N₂-Molekülen über das Pumpsystem erklärt wurde und bei nichtreaktiven Kathodenzerstäubungsprozessen nitridischer Materialien ein übliches Phänomen ist. Die FeCo-Einlagenschicht wies einen geringen Überschuss von Co-Atomen auf, der eine Folge von präferentiellen Zerstäubungsprozessen war.

Tab. 3-1 Mittels EPMA gemessene elementare Zusammensetzung einer jeweils 1 μm dicken TiN- und FeCo-Einlagenschicht.

Probe	C At.-%	N At.-%	O At.-%	Si At.-%	Ar At.-%	Ti At.-%	Fe At.-%	Co At.-%
TiN	0,02	45,04	0,04	0,02	0,02	54,78	0,06	0,03
FeCo	0,02	0,00	0,00	0,00	0,01	0,04	48,38	51,55

In Abb. 3-27 a und b sind AES-Tiefenprofile der Elementkonzentrationen des 781-lagigen Viellagenschichtsystems mit der geringsten Doppellagendicke von 2,6 nm im ungeglühten Zustand sowie nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum gezeigt. Durch die Modulation der Messsignale wurde nachgewiesen, dass das Schichtsystem sowohl vor als auch nach dem Glühen aus verschiedenartigen Lagen aufgebaut war. Hierbei überwogen unabhängig von der Entfernung von der Schichtoberfläche die Konzentrationen von Ti und N über denjenigen von Fe und Co. Trotz der hier vorliegenden geringen Abmessungen (Doppellagendicke 2,6 nm, FeCo-Lagendicke 0,65 nm) und des prinzipbedingt begrenzten Auflösungsvermögens der Augerelektronenspektroskopie konnte aber das Vorliegen einer gleichmäßigen Konzentrationsmodulation nachgewiesen werden, die auch während des Glühprozesses nicht abnahm.

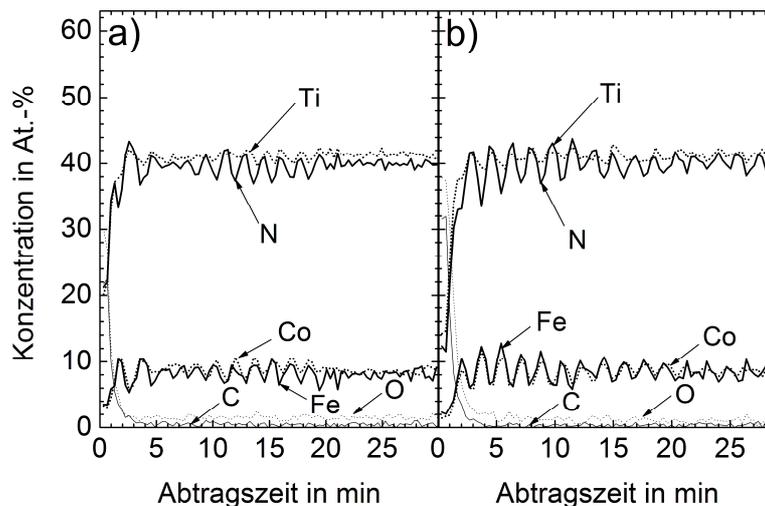


Abb. 3-27 AES-Tiefenprofile der Elementkonzentration des FeCo/TiN-Viellagenschichtsystems mit der geringsten Doppellagendicke von 2,6 nm: a) wie abgeschieden und b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Nach [114].

Mikrostruktur und Textur

In Abb. 3-28 a und b sind die Röntgenbeugungsdiagramme der Viellagenschichtsysteme im ungeglühten Zustand und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C abgebildet. Als Referenz ist zudem jeweils ein Diagramm einer unter identischen Bedingungen hergestellten 1 µm dicken TiN- und FeCo-Einlagerschicht gezeigt. Für den Fall der ungeglühten Viellagenschichtsysteme war festzustellen, dass nur ein dominanter Reflex bei etwa 42,6° zu erkennen war, der dem TiN als (200)-Reflex des NaCl-Kristalltyps zuzuordnen war. Bei $\Lambda = 88$ nm und $d_{\text{TiN}} = 66$ nm betrug die Halbwertsbreite dieses Reflexes etwa 0,6°. Bei Reduktion der Doppellagendicke deutete die Zunahme der Halbwertsbreite auf bis zu 1,8° bei $\Lambda = 5,5$ nm auf eine Reduktion der auf die Substratebene projizierten mittleren Korngröße hin. Weiterhin war die bei sinkender Doppellagendicke zu beobachtende Zunahme der Reflexintensität ein Indikator für eine Texturbildung in den Viellagenschichtsystemen mit einer zunehmenden Ausrichtung der beugenden Ebenen senkrecht zur Wachstumsrichtung. Bei einer Doppellagendicke von 4,3 nm und weniger schien der dominante (200)-Reflex in zwei Reflexe aufzuspalten, die ihn sodann ersetzen. Der Abstand der beiden Reflexmaxima betrug 1,7° bei $\Lambda = 4,3$ nm und wuchs auf 3,4° bei dem Viellagenschichtsystem mit $\Lambda = 2,6$ nm an.

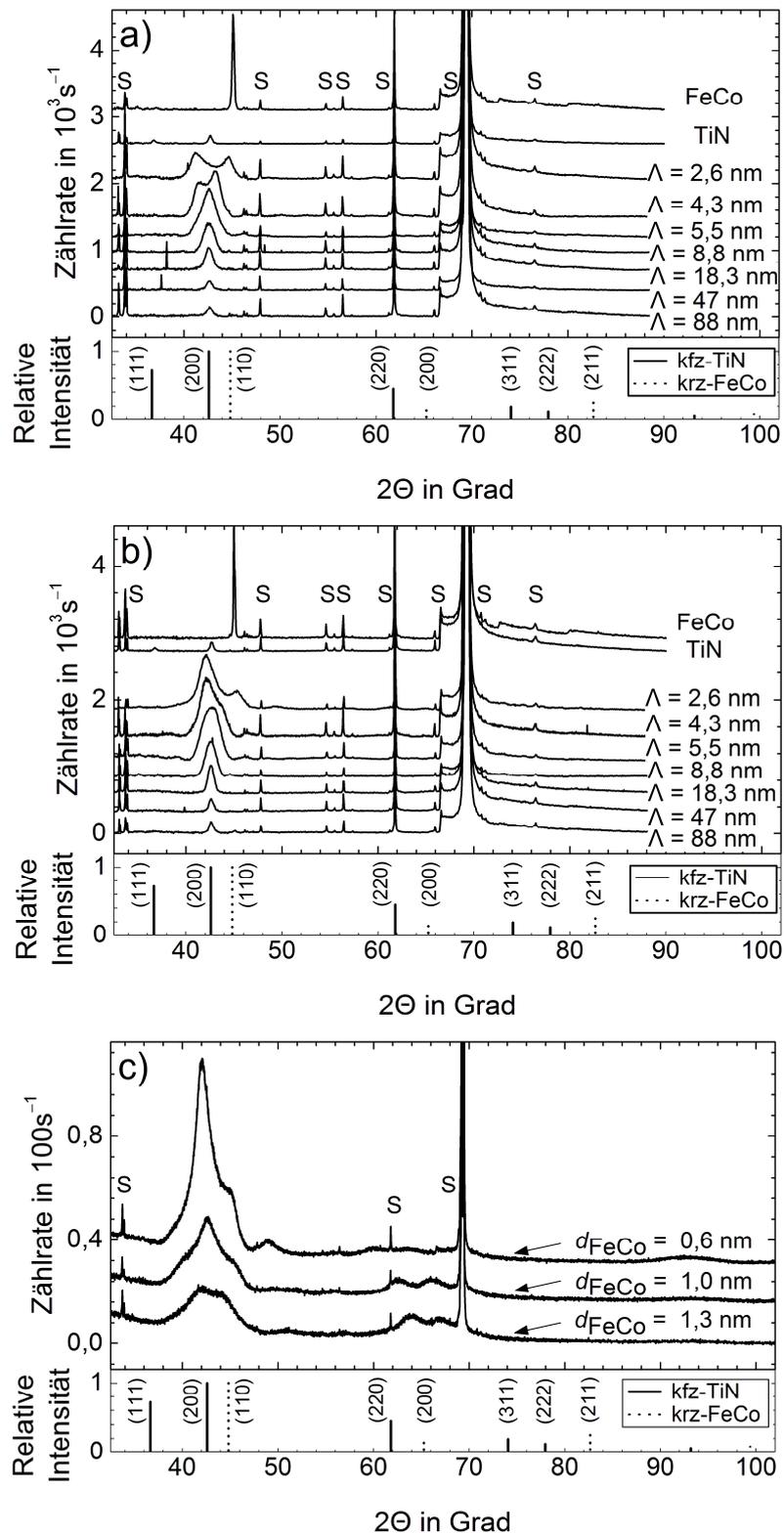


Abb. 3-28 Röntgenbeugungsdiagramme der nichtreaktiv abgeschiedenen FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme sowie von 1 μm dicken FeCo- und TaN-Einlagenschichten als Referenz: a) bei konstantem $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,25$ wie abgeschieden, b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum und c) bei konstanter TiN-Lagendicke von 2,0 nm wie abgeschieden. Die mit „S“ gekennzeichneten Reflexe entstanden durch Beugung am Substrat.

Nach dem Glühen konnte bei den Schichtsystemen mit Doppellagendicken $\geq 8,8$ nm eine Reduktion der Halbwertsbreite des (200)-Reflexes beobachtet werden, was auf eine Vergrößerung der auf die Substratebene projizierten mittleren Korngröße hindeutete. Bei geringeren Doppellagendicken wurde der Doppelreflex ebenfalls beobachtet, jedoch waren beide Maxima zu größeren Winkeln verschoben. Zudem waren in Abb. 3-28 b bei den Beugungsdiagrammen der Viellagenschichtsysteme mit geringen Doppellagendicken von $\leq 5,5$ nm weitere Reflexe zu erkennen, die erst nach dem Glühprozess derart ausgeprägt waren. Im Diagramm des Schichtsystems mit $\Lambda = 2,6$ nm waren diese Reflexe am deutlichsten sichtbar und wiesen ihren Schwerpunkt bei $49,3^\circ$, $61,6^\circ$ und $65,1^\circ$ auf. Bei einer Doppellagendicke von $4,3^\circ$ war insbesondere ein weiterer Reflex mit dem Schwerpunkt bei $46,3^\circ$ auffällig, bei der Doppellagendicke von $5,5$ nm trat dieser zusätzlich auftretende Reflex bei einem Beugungswinkel von $46,2^\circ$ auf.

Mit TEM-Untersuchungen wurde die Kristallstruktur der Viellagenschichtsysteme mit den Doppellagendicken 47 nm, $8,8$ nm und $2,6$ nm als Vertreter für die Schichtsysteme mit hoher, moderater und geringer Doppellagendicke analysiert. Die Untersuchungen wurden jeweils an den ungeglühten und an den 60 min bei 600°C im Vakuum geglühten Schichtsystemen vorgenommen.

In Abb. 3-29 a ist eine TEM-Hellfeldabbildung des 39-lagigen FeCo/TiN-Viellagenschichtsystems mit der Doppellagendicke 47 nm im ungeglühten Zustand gezeigt, welche die Lagendickenverhältnisse der beiden Materialien und die Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus illustriert. In der TEM-Hellfeldabbildung sind die dünneren FeCo-Lagen aufgrund der höheren Elektronenabsorption dunkler als die TiN-Lagen. Der in Abb. 3-29 b gezeigte Ausschnitt desselben Schichtsystems ließ bei höherer Vergrößerung den nanokristallinen Charakter der TiN-Lagen und der FeCo-Lagen deutlich werden. Beide Materialien lagen nanokristallin vor. Eine Wachstumsbeziehung zwischen den TiN- und den FeCo-Lagen war hingegen nicht zu beobachten. Stattdessen waren die FeCo- und die TiN-Lagen durch inkohärente Grenzflächen voneinander getrennt.

In Abb. 3-30 a ist das Elektronenbeugungsdiagramm des 39-lagigen FeCo/TiN-Schichtsystems mit $\Lambda = 47$ nm im ungeglühten Zustand gezeigt. Die integrierte Intensität der Beugungsringe ist in Abb. 3-30 c gezeigt. Für einen Vergleich mit den entsprechenden Röntgenbeugungsdiagrammen wurde die Elektronenbeugungsintensität in Abhängigkeit von demjenigen Beugungswinkel aufgetragen, der bei Röntgenbeugung mit Cu-K_α -Strahlung gemessen worden wäre. Hierdurch wurde ein Vergleich der bei beiden Verfahren gemessenen Beugungswinkel mit den für Röntgenbeugung bekannten Literaturdaten ermöglicht. Anders, als es bei den röntgenographisch gemessenen Beugungsspektren der Fall war, waren bei den Elektronenbeugungsspektren sowohl der ungeglühten, als auch der für 60 min bei 600°C magnetfeldgeglühten, Schichtsysteme jeweils alle für polykristallines krz-FeCo und kfz-TiN erwarteten Reflexe identifizierbar. Alle in Abb. 3-30 a erkennbaren Beugungsringe konnten eindeutig identifiziert werden und wurden in der Abbildung entsprechend gekennzeichnet. Analog wurde für die Auswertung des in Abb. 3-30 b gezeigten Diagramms des für 60 min bei 600°C im Vakuum magnetfeldgeglühten Schichtsystems verfahren. Der Vergleich der bei Elektronenbeugung gemessenen Intensitäten mit den bei Röntgenbeugung gemessenen Intensitäten ist für das geglühte Schichtsystem in Abb. 3-30 d gezeigt. Die hierbei auf-

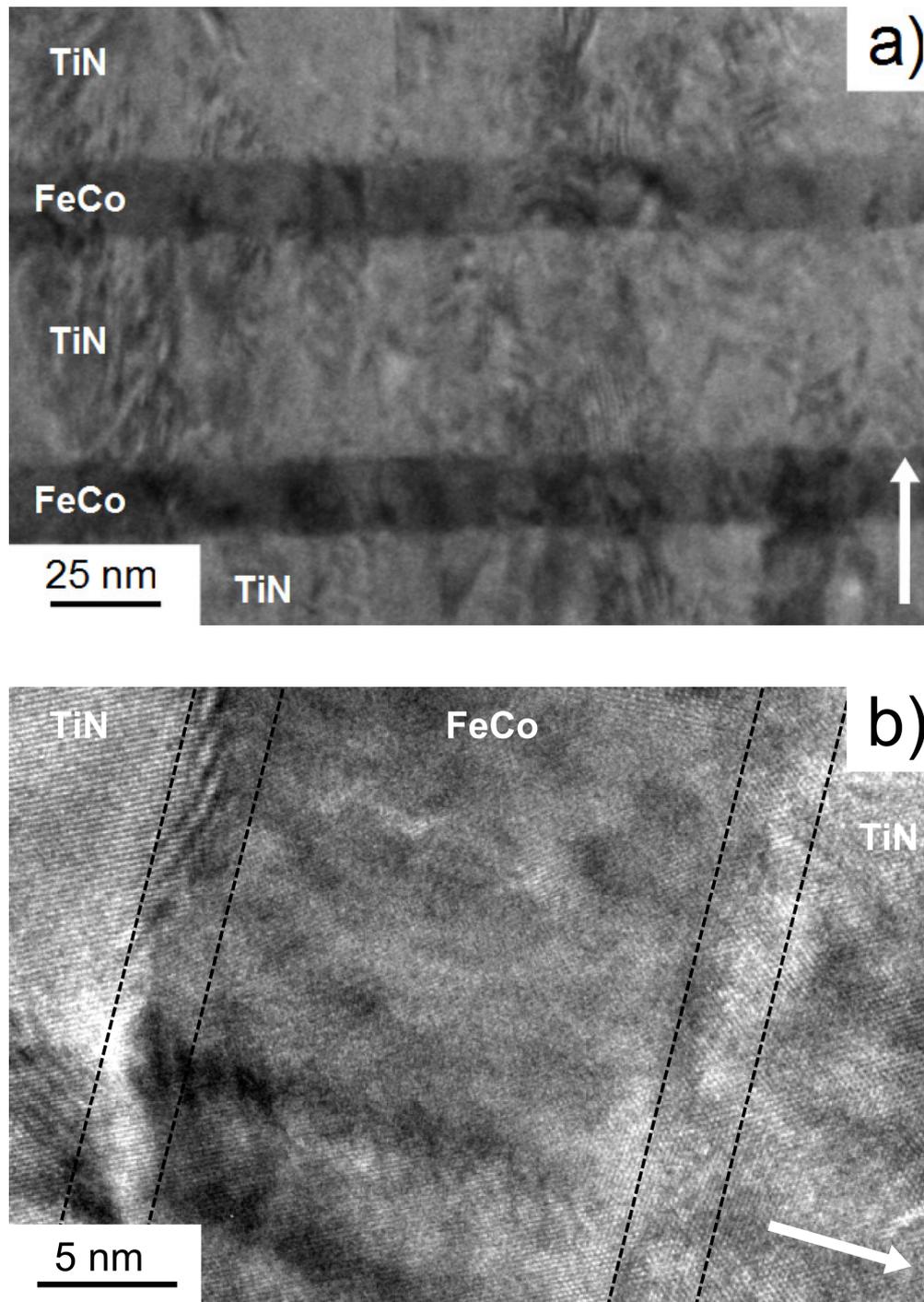


Abb. 3-29 a, b) TEM-Hellfeldaufnahmen des 39-lagigen FeCo/TiN-Viellagenschichtsystems mit $\Lambda = 47 \text{ nm}$ im ungeglühten Zustand bei unterschiedlichen Vergrößerungen. Die Richtung des Schichtwachstums ist jeweils durch den Pfeil gekennzeichnet.

fällige, im Vergleich geringere, Intensität der Beugungsringe ist wahrscheinlich auf eine höhere Dicke der präparierten Probe zurückzuführen.

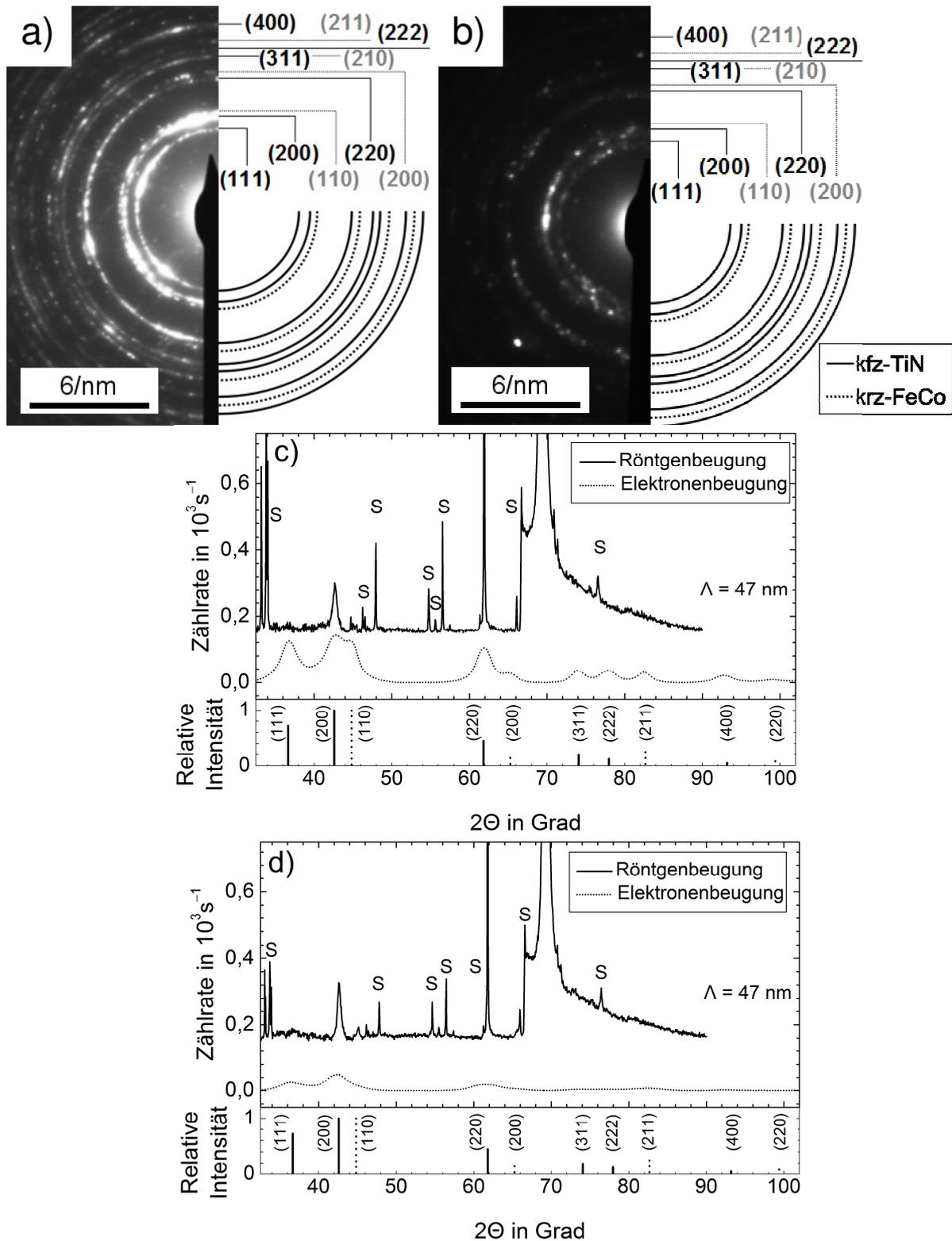


Abb. 3-30 Elektronenbeugungsaufnahmen an dem 39-lagigen FeCo/TiN-Viellagenschichtsystem mit $\Lambda = 47$ nm: a) wie abgeschlossen (nach [115]), b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Vergleich der integrierten Intensitäten der in a) und b) gezeigten Beugungsabbildungen mit den entsprechenden Röntgenbeugungsdiagrammen: c) wie abgeschlossen, d) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Die mit „S“ gekennzeichneten Reflexe entstanden durch Beugung am Substrat.

In Abb. 3-31 a und b sind TEM-Aufnahmen des ungeglühten Viellagenschichtsystems mit $\Lambda = 8,8 \text{ nm}$ im Hellfeldmodus gezeigt. In Abb. 3-31 a war die alternierende Schichtung von FeCo- und TiN-Lagen deutlich zu erkennen. Hierbei waren die dünneren FeCo-Lagen aufgrund ihrer höheren Elektronenabsorption dunkler als die helleren TiN-Lagen. Auch in Abb. 3-31 b waren die unterschiedlichen Lagenarten gut voneinander zu unterscheiden. In dem gezeigten Ausschnitt waren durchgängig nahezu senkrecht zu der Wachstumsrichtung verlaufende Netzebenen zu identifizieren. Im Gegensatz zu der regelmäßigen und ausgeprägt orientierten Ausrichtung der Kristallite in den TiN-Lagen war die Mikrostruktur der FeCo-Lagen nicht eindeutig festzustellen. Dies kann ein Hinweis auf eine gestörte Kristallordnung oder aber eine Folge von durch höhere Absorption bedingten schlechteren Abbildungsbedingungen sein. Die Beugung der Elektronen durch den Schichtquerschnitt ist in Abb. 3-31 c zu sehen. Die hohe Symmetrie des Beugungsmusters deutete auf eine ausgeprägte Textur der Schicht hin.

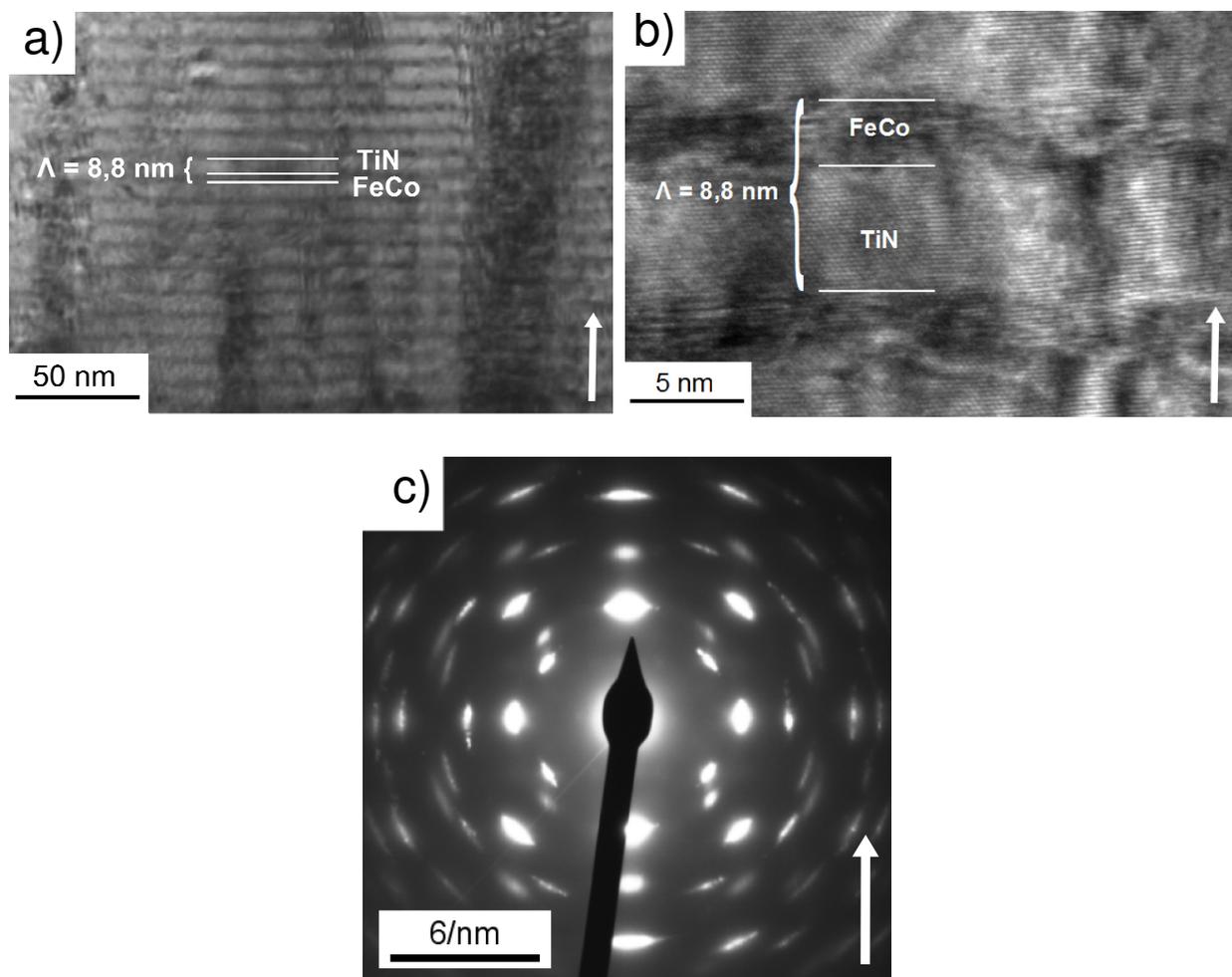


Abb. 3-31 TEM-Aufnahmen des 199-lagigen FeCo/TiN-Viellagenschichtsystems mit der Doppellagendicke $\Lambda = 8,8 \text{ nm}$ wie abgeschieden: a), b) Abbildungen im Hellfeldmodus und c) Abbildung im Beugungsmodus. Die jeweils durch den Pfeil gezeigte Richtung entspricht der Wachstumsrichtung.

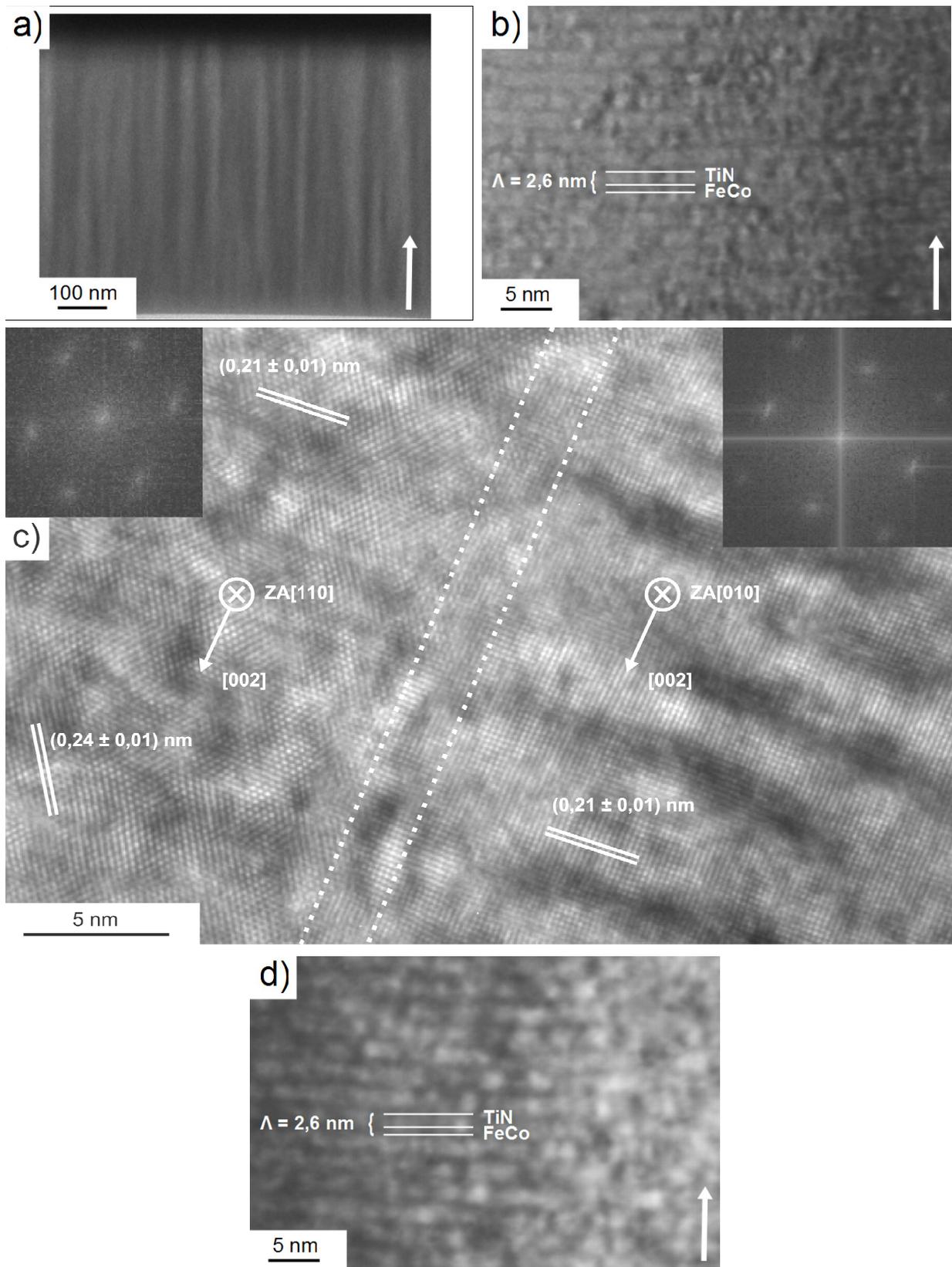


Abb. 3-32 TEM-Aufnahmen des 781-lagigen FeCo/TiN-Viellagenschichtsystems mit der minimalen Doppellagendicke von 2,6 nm: a), b) Hellfeldabbildungen, c) hochaufgelöste Abbildung des Schichtsystems wie abgeschieden (nach [115]) und d) Hellfeldabbildung nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Die Wachstumsrichtung ist jeweils durch einen Pfeil angezeigt.

In Abb. 3-32 a–d sind TEM-Aufnahmen der bei weiterer Reduzierung der Doppellagendicke auf 2,6 nm entstehenden Mikrostruktur gezeigt. In Abb. 3-32 a ist eine Hellfeldaufnahme des ungeglühten Schichtsystems zu sehen. Es war zu erkennen, dass Säulenwachstum stattgefunden hat. Bei geringen Doppellagendicken fand also bei sequentiellem Wachstum der Lagen aufeinander keine Ausbildung der Lagen in der jeweiligen Gleichgewichtsstruktur statt. Stattdessen entstanden Körner mit etwa 20 nm auf die Substratebene projiziertem Durchmesser und einer der Gesamtschichtdicke entsprechenden Kornlänge. Gleichzeitig waren bei höherer Vergrößerung des ungeglühten Schichtsystems (Abb. 3-32 b) und des für 60 min bei 600 °C magnetfeldgeglühten Schichtsystems (Abb. 3-32 d) regelmäßig alternierende Lagen unterscheidbar. Bei noch stärkerer Vergrößerung war eine eindeutige Unterscheidung der Lagen nicht mehr möglich, wie in Abb. 3-32 c am Beispiel des ungeglühten Schichtsystems zu sehen war. Vielmehr waren in dieser Abbildung zwei Kristallite zu erkennen, innerhalb derer Netzebenen über die Lagengrenzen hinweg verliefen. Die gemessenen Netzebenenabstände sind in die Abbildungen eingetragen. Diese Abstände stimmen mit den für in NaCl-Kristallstruktur vorliegendem TiN bekannten Werten überein, die 2,12 nm für die Netzebenenabstände der {200}- und 2,45 nm für diejenigen der {111}-Netzebenenscharen betragen. Die beiden zu unterscheidenden Körner waren in dem durch die parallelen gestrichelten Linien angedeuteten Bereich durch eine vorwiegend inkohärente Korngrenzfläche voneinander getrennt, in der jedoch auch partiell kohärente Bereiche zu erkennen waren. Abb. 3-33 a zeigt die Aufnahme der Elektronenbeugung an demselben Schichtsystem. In der Beugungsabbildung waren Übergitterreflexe zu erkennen, die – analog zu den röntgenreflektometrisch erfassten Übergitterreflexen – die hohe Regelmäßigkeit der Doppellagendicke bestätigten. Das Beugungsmuster war konsistent zu indizieren, wenn von dem Vorliegen kubisch-flächenzentrierter Kristallite mit Orientierung der [002]-Richtung entlang des Schichtwachstums ausgegangen wurde. Die Orientierungen der Kristallite konnten um die Wachstumsrichtung beliebig rotiert sein. Eine hiernach entwickelte Indizierung ist in Abb. 3-33 b gezeigt, wobei die Symbole wie folgt gewählt sind:

- Schwarze gefüllte Kreise: Reflexe aufgrund der Beugung mit der Zonenachse [010],
- blaue gefüllte Quadrate: Reflexe aufgrund der Beugung mit der Zonenachse [110],
- rote, ungefüllte Quadrate: Reflexe aufgrund der Beugung mit der Zonenachse [210] sowie
- grüne, ungefüllte Kreise: Reflexe aufgrund der Beugung mit der Zonenachse [310].

Mit dieser Indizierung konnten fast alle Beugungsreflexe indiziert werden. Als einzige Ausnahme befand sich in der Mitte zwischen dem (002)- und dem (004)-Reflex ein weiterer Reflex, der auch in Abb. 3-31 c zu erkennen ist. Neben diesem Nachweis eines kfz-Kristallgitters schloss das in Abb. 3-33 a gezeigte Beugungsmuster das Vorliegen eines krz-Kristallgitters aus, da sich in den hochaufgelösten Hellfeldabbildungen in Abb. 3-32 c alle Bereiche des Schichtquerschnitts als kristallin erwiesen. Ein gegebenenfalls ebenfalls vorliegendes krz-Kristallgitter hätte deshalb bei Erstellung der Elektronenbeugungsaufnahme über den gesamten Schichtquerschnitt somit in der Beugungsabbildung nachweisbar sein müssen.

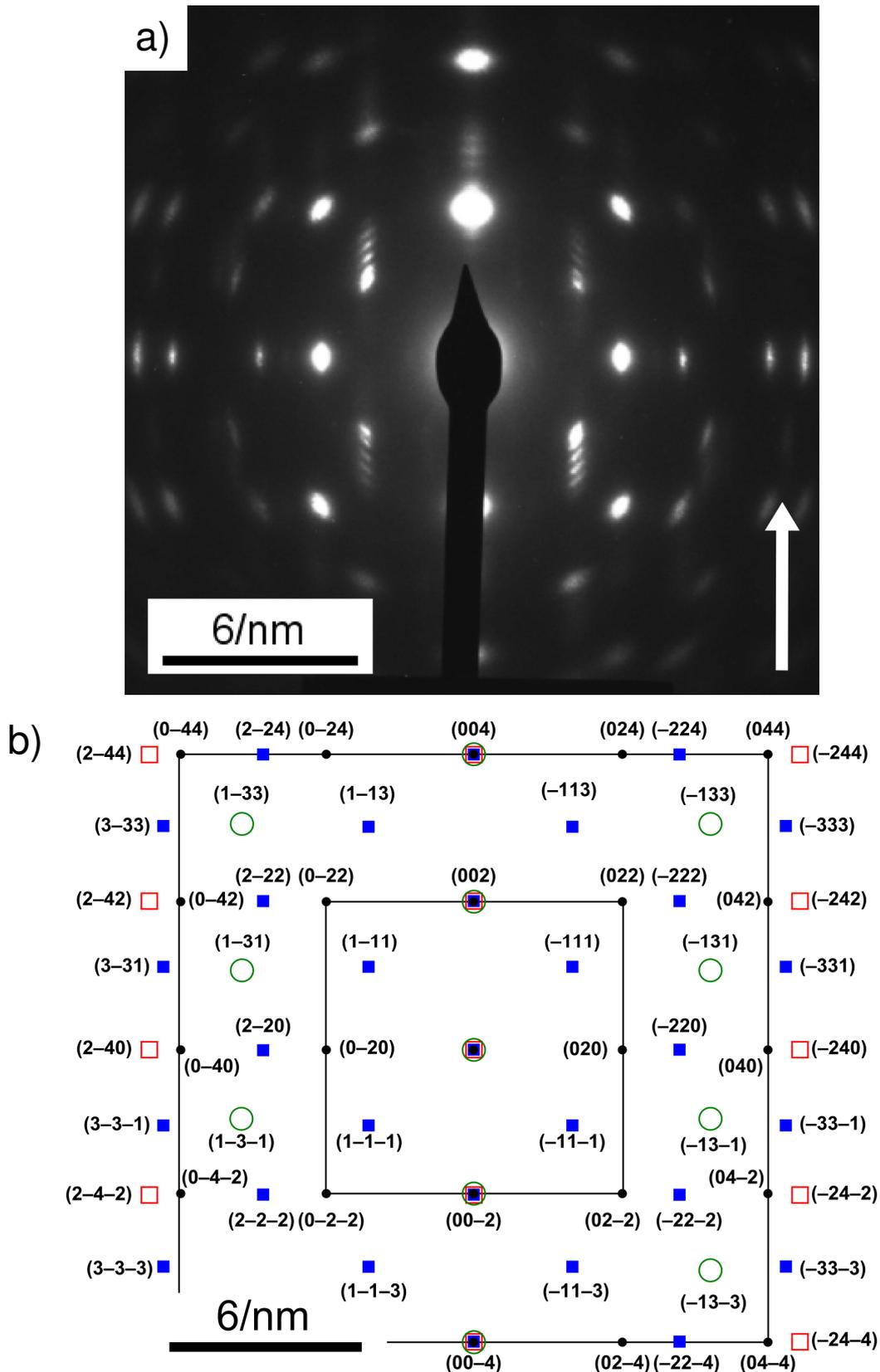


Abb. 3-33 a) Elektronenbeugungsaufnahme des FeCo/TiN-Viellagenschichtsystems mit der geringsten Doppellagendicke von 2,6 nm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum und b) Übersicht über die Indizierungen der Beugungsreflexe. Die durch den Pfeil gezeigte Richtung entspricht der Wachstumsrichtung. Siehe Text zur Erklärung der Symbole. Nach [115].

3.2.1.2 Mechanische Eigenschaften

In Abb. 3-34 sind mechanische Eigenschaften der FeCo/TiN-Viellagenschichten zusammengefasst. Die Ergebnisse wurden mit Indentierungsversuchen bei Verwendung einer Maximallast von 10 mN gemessen, was bei allen Messungen in Eindringtiefen von weniger als 15 % der Gesamtdicke von etwa 1 μm resultierte. Auch bei dem betrachteten Schichtsystem mit der geringsten Lagenzahl von 19 und der Doppellagendicke 88 nm war so die Penetrierung von zwei Grenzflächen gewährleistet.

In Abb. 3-34 a ist die Härte der Schichtsysteme mit konstantem $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,25$, jeweils wie abgeschieden sowie nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum, in Abhängigkeit von der Doppellagendicke gezeigt. Als Referenz sind außerdem die entsprechenden Werte jeweils einer bei identischen Bedingungen hergestellten 1 μm dicken TiN- und FeCo-Einlagenschicht sowie der auf Basis der Linearen Mischungsregel ermittelte Wert eingetragen. Die Härte der ungeglühten Schichten variierte kaum mit der Doppellagendicke und entsprach mit Werten zwischen $(17,2 \pm 0,9)$ GPa und $(19,2 \pm 2,2)$ GPa im Rahmen der Messungenauigkeit dem mit der Linearen Mischungsregel berechneten Wert. Im Gegensatz dazu war ein deutlicher Anstieg der Härte der geglühten Schichten mit sinkender Doppellagendicke zu erkennen. Der maximale Wert wurde hierbei bei $\Lambda = 2,6$ nm erreicht und betrug $(25,2 \pm 4,4)$ GPa, womit der nach der Linearen Mischungsregel ermittelte Wert um 36 % übertroffen wurde. In Abb. 3-34 b ist die Härte der Schichtsysteme mit der konstanten TiN-Lagendicke von 2,0 nm in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke gezeigt. Die in Abb. 3-34 b und d gezeigten Messungen sind zu einem späteren Zeitpunkt nach zwischenzeitlichem Austausch der Prüfspitze und Neukalibrierung des Messgeräts entstanden. Die absoluten Werte sind deshalb nicht uneingeschränkt mit denen aus Abb. 3-34 a und c vergleichbar. Bei diesen Schichtsystemen änderte sich die Härte sowohl im ungeglühten als auch im geglühten Zustand mit der FeCo-Lagendicke gemäß der Linearen Mischungsregel. Eine Erhöhung der Härte als Folge des Glühprozesses war bei FeCo-Anteilen von 0,25 und 0,33 an dem Schichtsystem festzustellen, jedoch nicht mehr bei einem noch höheren FeCo-Anteil von 0,39. Die Reduzierten Elastizitätsmoduln aller ungeglühten Schichtsysteme lagen nahe des jeweiligen mittels der Linearen Mischungsregel ermittelten Wertes. Die an den geglühten Schichtsystemen mit konstantem $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,25$ gemessenen Reduzierten Elastizitätsmoduln erwiesen sich als um 9–32 % höher als die vor dem Glühen gemessenen Werte, während bei den Schichtsystemen mit konstanter TiN-Lagendicke keine signifikante systematische Änderung der Reduzierten Elastizitätsmoduln aufgrund des Glühens zu erkennen war.

Der Verlauf der Eigenspannung in Abhängigkeit von der Doppellagendicke ist in Abb. 3-34 e für die Schichtsysteme mit konstantem $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,25$ gezeigt. Alle Viellagenschichtsysteme wiesen Druckeigenspannungen auf, die im ungeglühten Zustand ausgehend von einem Wert von $-2,7$ GPa bei $\Lambda = 88$ nm mit sinkender Doppellagendicke auf $-5,5$ GPa bei $\Lambda = 4,4$ nm sanken, um dann bei $\Lambda = 2,6$ nm $-4,4$ GPa zu betragen. Nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum lagen ebenfalls Druckeigenspannungen vor, die im Betrag gegenüber den ungeglühten Schichtsystemen jeweils um etwa 2 GPa reduziert waren. Im Vergleich zu den entsprechenden, an den 1 μm dicken Einlagenschichten ermittelten, Eigenspannungen $\sigma_{\text{TiN}} = -(1,0 \pm 0,5)$ GPa und $\sigma_{\text{FeCo}} = (0,06 \pm 0,42)$ GPa führte die Kombination der beiden Materialien zu Viellagenschichten also zu beträchtlicher Druckeigenspannung. In Abb. 3-34 e ist die Eigenspannung in den Schichtsystemen mit konstanter TiN-Lagendicke

von 2,0 nm in Abhängigkeit von der variierten FeCo-Lagendicke gezeigt. Es war zu erkennen, dass die Druckeigenspannung in den ungeglühten Viellagenschichten mit konstanter TiN-Lagendicke bei steigender FeCo-Lagendicke kontinuierlich im Betrag abnahm. Auch bei diesen Schichtsystemen wurde Druckeigenspannung durch das Glühen abgebaut.

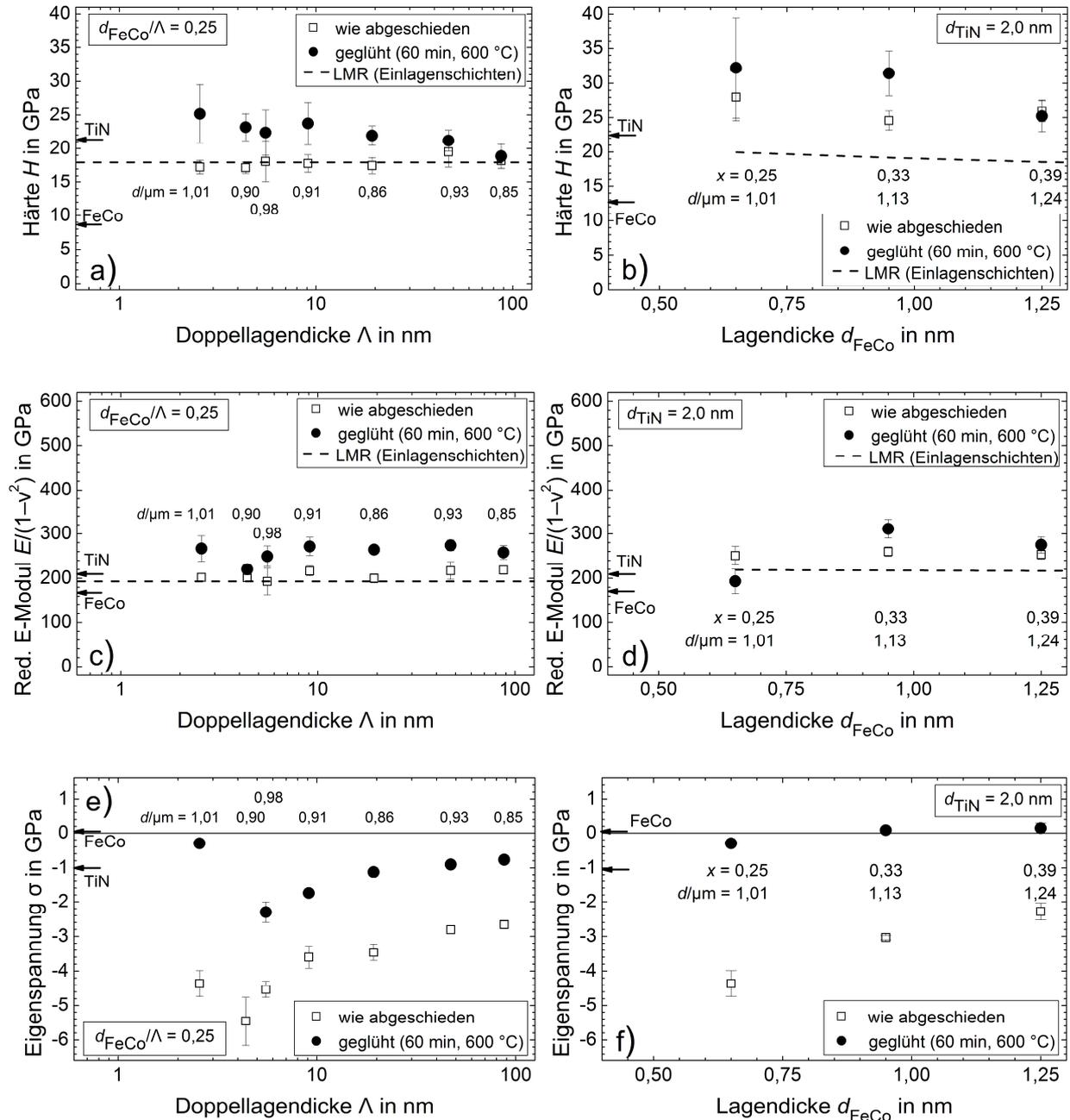


Abb. 3-34 Mechanische Eigenschaften der FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme, jeweils wie abgeschieden und nach 60-minütigem Glühen bei 600 °C im Vakuum: a) Härte, c) Reduzierter Elastizitätsmodul und e) Eigenspannung der Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ in Abhängigkeit von der Doppellagendicke sowie b) Härte, d) Reduzierter Elastizitätsmodul und f) Eigenspannung der Schichtsysteme mit konstanter TiN-Lagendicke in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke. LMR: Lineare Mischungsregel, $x = d_{\text{FeCo}}/\Lambda$: Verhältnis von der FeCo-Lagendicke zur Doppellagendicke.

3.2.1.3 Magnetische Eigenschaften

In Abb. 3-35 a sind die Koerzitivfeldstärken der FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme mit konstantem $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,25$ jeweils ungeglüht sowie nach 60-minütigem Glühen bei 400 °C, 500 °C und 600 °C als Funktion der FeCo-Lagendicke aufgetragen. Alle Werte befanden sich in einem Korridor zwischen 0,22 mT und 5,04 mT. Die ermittelten Werte ließen sich in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke in zwei Bereiche einteilen. Bei dem Viellagenschichtsystem mit der FeCo-Lagendicke von 20,9 nm befand sich die Koerzitivfeldstärke sowohl im ungeglühten als auch im geglühten Zustand im Wertebereich der Einlagenschicht. Bei Reduzierung der FeCo-Lagendicke auf 4,4 nm stieg die Koerzitivfeldstärke im ungeglühten Zustand kontinuierlich und im geglühten Zustand zumindest tendenziell. In diesem Bereich der FeCo-Lagendicke führte die Glühbehandlung in allen Fällen, auch bei einer Glühtemperatur von 600 °C, zu einer Reduktion der Koerzitivfeldstärke. In einem zweiten Bereich mit der Lagendicke $d_{\text{FeCo}} < 4,4$ nm sank die Koerzitivfeldstärke der geglühten Schichtsysteme tendenziell mit weiter sinkender FeCo-Lagendicke, um bei dem Schichtsystem mit der minimalen FeCo-Lagendicke von 0,6 nm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C ihr Minimum von 0,22 mT zu erreichen. In Abb. 3-35 b sind die Koerzitivfeldstärken der Schichtsysteme mit konstanter TiN-Lagendicke in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke gezeigt. Es ist ersichtlich, dass alle Koerzitivfeldstärken geringer als 0,98 mT waren und auch bei einer FeCo-Lagendicke von 1,25 nm die Koerzitivfeldstärke nach 60-minütigem Magnetfeldglühen im Vakuum bei 600 °C lediglich 0,38 mT betrug.

In Abb. 3-35 c sind die Magnetisierungskurven des Schichtsystems mit der geringsten Doppellagendicke von 2,6 nm und somit der geringsten FeCo-Lagendicke von 0,6 nm in leichter und schwerer Richtung der Magnetisierung gezeigt. Es handelte sich hierbei um das FeCo/TiN-Viellagenschichtsystem mit der geringsten Koerzitivfeldstärke dieser Serie. Es war deutlich, dass durch die Glühbehandlung im Magnetfeld eine uniaxiale Anisotropie in der Schichtebene eingepreßt wurde, wobei das entsprechende Anisotropiefeld hier etwa 2 mT betrug. Die Sättigungspolarisation betrug bei diesem Schichtsystem etwa 0,50 T, was aufgrund des FeCo-Anteils am Gesamtvolumen des Schichtsystems von etwa 0,25 einem Wert einer Einlagenschicht von 2,00 T entsprach. Dieser Wert lag somit trotz der hohen Anzahl von Lagengrenzflächen nur etwa 10 % unter dem an einer 1 µm dicken FeCo-Einlagenschicht ermittelten Wert von 2,20 T.

In Abb. 3-36 a–c sind Permeabilitätsspektren der Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ mit $\Lambda \leq 5,5$ nm bzw. mit $d_{\text{FeCo}} \leq 1,3$ nm gezeigt. Bei einer FeCo-Lagendicke von 1,3 nm (Abb. 3-36 c) war neben dem Rauschen im betrachteten Frequenzbereich kein definiertes Hochfrequenzverhalten identifizierbar. Ein ähnliches Verhalten war bei höheren FeCo-Lagendicken zu beobachten. Im Gegensatz hierzu zeigten die Schichten mit FeCo-Lagendicken von 1,0 nm (Abb. 3-36 b) und 0,6 nm (Abb. 3-36 c) definierte Permeabilitätsspektren. Bei geringen Frequenzen betrugen die Anfangspermeabilitäten etwa 100 und 140, und die Imaginärteile der komplexen Permeabilität wiesen eindeutige Maxima bei 1,42 GHz und 1,40 GHz auf. Es ist zu beachten, dass die Permeabilität unter Berücksichtigung des Gesamtvolumens des Schichtsystems berechnet wurde. Die Netto-Anfangspermeabilitäten (Gl. (2.15)) betrugen entsprechend des FeCo-Anteils an dem Schichtvolumen 400 und 520.

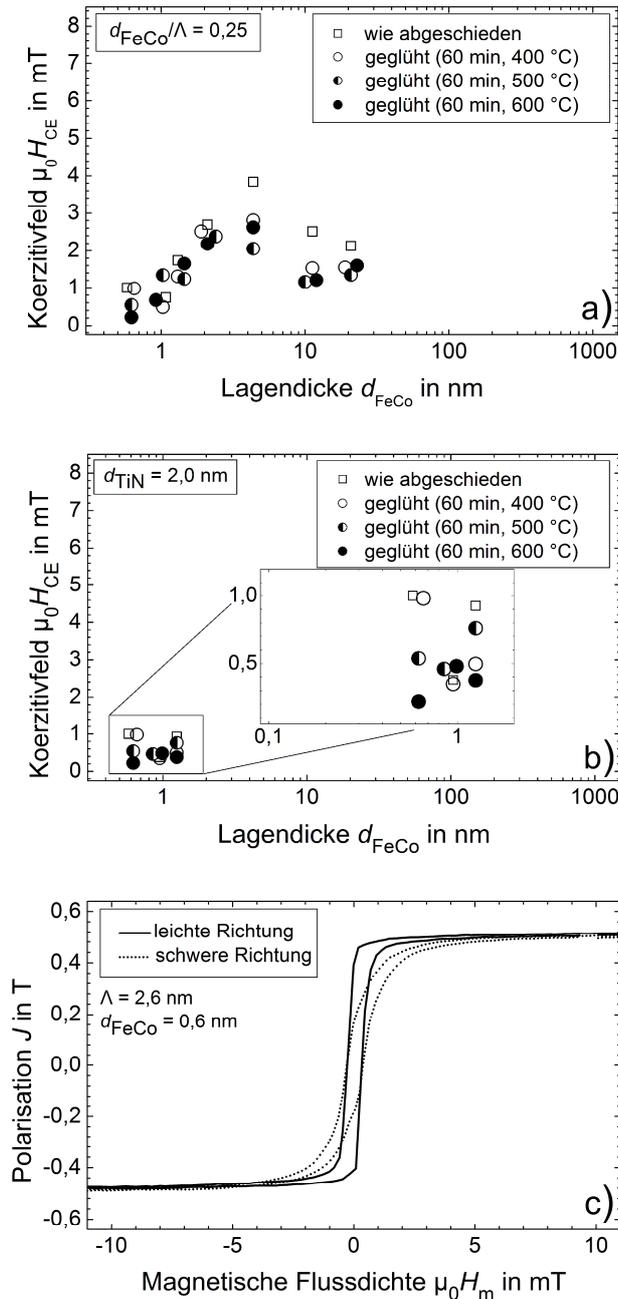


Abb. 3-35 Magnetische Eigenschaften der FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme: a) Koerzitivfeldstärken der Schichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ und b) der Schichtsysteme mit konstanter TiN-Lagendicke in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke, jeweils wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 400, 500 und 600 °C im Vakuum, c) Magnetisierungskurven des Viellagenschichtsystems mit der geringsten Doppellagendicke von 2,6 nm in leichter und schwerer Richtung nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. $x = d_{FeCo}/\Lambda$: Verhältnis von der FeCo-Lagendicke zur Doppellagendicke.

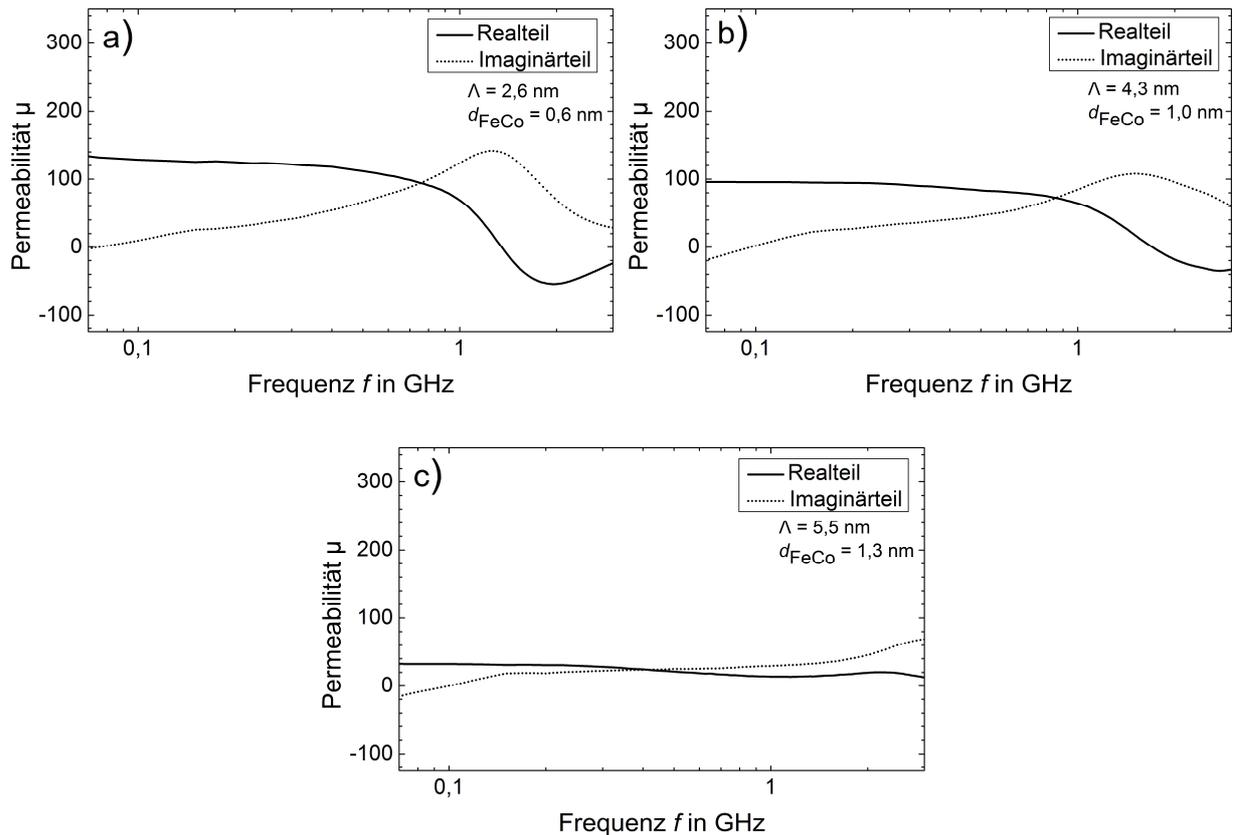


Abb. 3-36 Frequenzabhängige komplexe Permeabilität der FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme mit konstantem d_{FeCo}/Λ und a) $\Lambda = 2,6 \text{ nm}$, b) $\Lambda = 4,3 \text{ nm}$ und c) $\Lambda = 5,5 \text{ nm}$ nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei $600 \text{ }^\circ\text{C}$ im Vakuum. Die Werte der Permeabilität wurden unter Berücksichtigung des Gesamtvolumens der Viellagenschichtsysteme inklusive der nichtmagnetischen Phase ermittelt.

3.2.2 Einfluss der Erhöhung des Stickstoffanteils

Wie in Kapitel 3.2.1 dargelegt, führte die nichtreaktive Abscheidung von TiN bei Benutzung eines TiN-Targets in den abgeschiedenen Schichten zu einem geringen Ti-Überschuss gegenüber dem N-Gehalt. Die Arbeitshypothese zur Herstellung der in diesem Kapitel vorgestellten Schichtsysteme war, dass eine Zugabe von $0,0\text{--}2,0 \text{ sccm N}_2$ ($\approx 0\text{--}5\%$ der Prozessgasatmosphäre) zu einer zusätzlichen Bindung von Ti-Atomen mit N-Atomen in den Schichtsystemen führen würde, und dadurch die Diffusion von Ti-Atomen in die FeCo-Lagen reduziert würde. Es wurde von dem im vorigen Kapitel beschriebenen Viellagenschichtsystem mit 781 Lagen und der geringsten Doppellagendicke von $2,6 \text{ nm}$ ausgegangen, welches die besten magnetischen Eigenschaften von den Schichtsystemen dieser Serie aufwies. Der Einfluss der Zugabe von N_2 bei Herstellung von Schichtsystemen gleichen Schichtaufbaus auf Konstitution und Gefüge und insbesondere die Möglichkeit zur Verbesserung der magnetischen Eigenschaften wurden in den Experimenten untersucht, deren Ergebnisse in diesem Kapitel präsentiert werden.

3.2.2.1 Schichtaufbau

Bruch- und Oberflächenbeschaffenheit

In Abb. 3-37 a und b sind REM-Aufnahmen von Bruch- und Oberfläche der beiden FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme mit dem höchsten N-Anteil unter einem Winkel von 60° zur Oberflächennormale nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600°C im Vakuum gezeigt. An den Bruchflächen beider Schichtsysteme deutete sich stängelförmiges Wachstum an. Die Oberfläche des in Abb. 3-37 a gezeigten Schichtsystems (mit einer Doppellagendicke von $2,1\text{ nm}$, Reaktivgasfluss während der Schichtabscheidung $q_{\text{N}_2} = 1,5\text{ sccm}$) war sehr glatt, hingegen waren auf der Oberfläche des in Abb. 3-37 b gezeigten Schichtsystems (mit einer Doppellagendicke von $2,1\text{ nm}$, Reaktivgasfluss während der Schichtabscheidung $q_{\text{N}_2} = 2,0\text{ sccm}$) Unebenheiten zu erkennen, die möglicherweise als Folge von Ausscheidungen oder aber Blasenbildung entstanden. Dies ist bei der Bewertung der Aussagekraft von Eindringversuchen an dem bei dem Reaktivgasfluss von $q_{\text{N}_2} = 2,0\text{ sccm}$ hergestellten Schichtsystem zu beachten.

Viellagenaufbau

Alle Schichtsysteme wiesen einen regelmäßigen Viellagenaufbau mit hoher Regelmäßigkeit der Doppellagendicke auf. Aufgrund von Änderungen in der Depositionsrate in Abhängigkeit von dem Reaktivgasfluss sanken die Doppellagendicken mit steigender N_2 -Zugabe während der Schichtherstellung kontinuierlich von $2,6\text{ nm}$ auf $2,0\text{ nm}$. Da die XRR-Diagramme den in Abb. 3-26 gezeigten Diagrammen qualitativ stark ähnelten, wurde auf ihre Abbildung hier verzichtet.

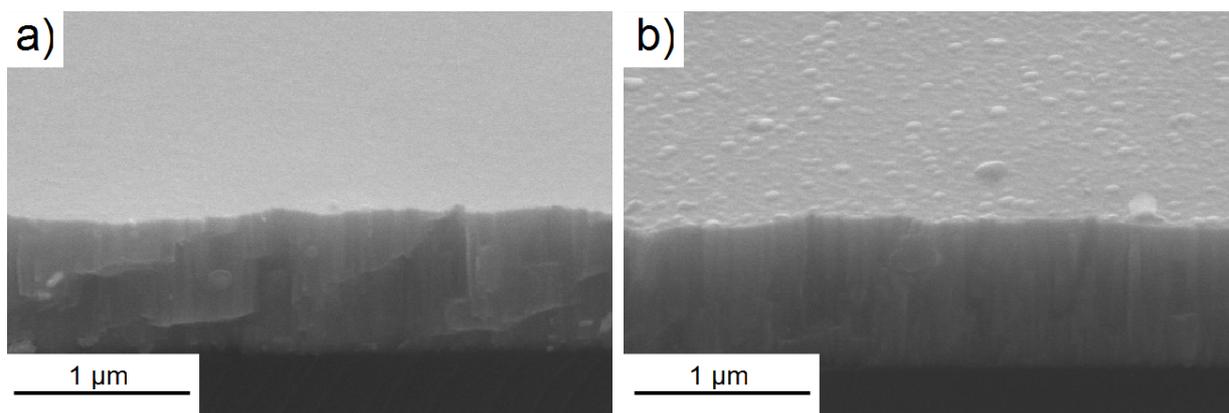


Abb. 3-37 REM-Aufnahmen von 781-lagigen FeCo/TiN-Viellagensystemen nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600°C im Vakuum: a) bei Reaktivgasfluss von $q_{\text{N}_2} = 1,5\text{ sccm}$ und b) bei Reaktivgasfluss von $q_{\text{N}_2} = 1,5\text{ sccm}$.

Mikrostruktur und Textur

In Abb. 3-38 a sind die Röntgenbeugungsdiagramme der ungeglühten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme abgebildet, die bei unterschiedlicher Stickstoffzugabe in die Prozessgasatmosphäre abgeschieden wurden. Alle gezeigten Beugungsdiagramme wiesen den Doppelreflex auf, der auch bei den ohne Stickstoffzugabe in die Prozessgasatmosphäre hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen bei geringen Doppellagendicken auftrat und in Kapitel 3.2.1.1 beschrieben ist. Mit zunehmendem Stickstofffluss und demzufolge erwarteten zunehmendem Stickstoffgehalt in den Schichtsystemen tendierten beide Reflexe zu einer Verschiebung in Richtung kleinerer Beugungswinkel, was auf das Vorliegen größerer Netzebenenabstände hinwies. Wie ein Vergleich von Abb. 3-38 a mit Abb. 3-38 b zeigte, führte das 60-minütige Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum zu einer Verschiebung der Reflexe in Richtung höherer Beugungswinkel, was auf eine Verringerung der Netzebenenabstände schließen ließ.

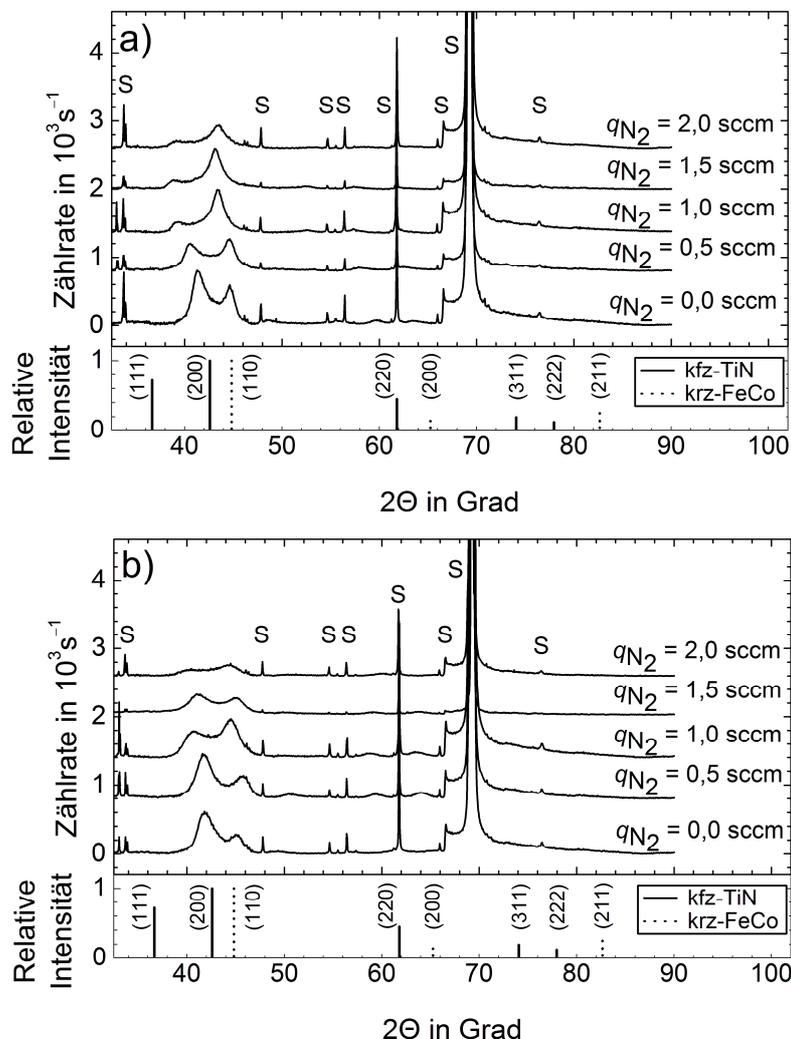


Abb. 3-38 Röntgenbeugungsdiagramme der bei unterschiedlicher Stickstoffzugabe in die Prozessgasatmosphäre hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme: a) wie abgeschieden und b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Die mit „S“ gekennzeichneten Reflexe entstanden durch Beugung am Substrat.

3.2.2.2 Mechanische Eigenschaften

In Abb. 3-39 a und Abb. 3-39 b sind die Härte- und Reduzierten Elastizitätsmoduln der bei unterschiedlicher Stickstoffzugabe in die Prozessgasatmosphäre hergestellten Viellagenschichtsysteme in Abhängigkeit von dem Reaktivgasfluss q_{N_2} aufgetragen. Als Referenz sind die entsprechenden Werte für eine jeweils 1 μm dicke TiN- und FeCo-Einlagenschicht gezeigt, deren Herstellung ohne N_2 -Zugabe zu der Prozessgasatmosphäre erfolgte. Außerdem ist jeweils der aus diesen Werten mit Hilfe der Linearen Mischungsregel berechnete gewichtete Mittelwert eingetragen. Alle Werte wurden mit Indentierungsexperimenten gemessen, während deren die verwendete Maximallast 10 mN betrug.

Die Härte fast aller ungeglühten Schichtsysteme der bei unterschiedlicher Stickstoffzugabe in die Prozessgasatmosphäre hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme nahm Werte innerhalb eines schmalen Korridors zwischen $(16,1 \pm 0,8)$ GPa und $(17,4 \pm 1,3)$ GPa ein. Das

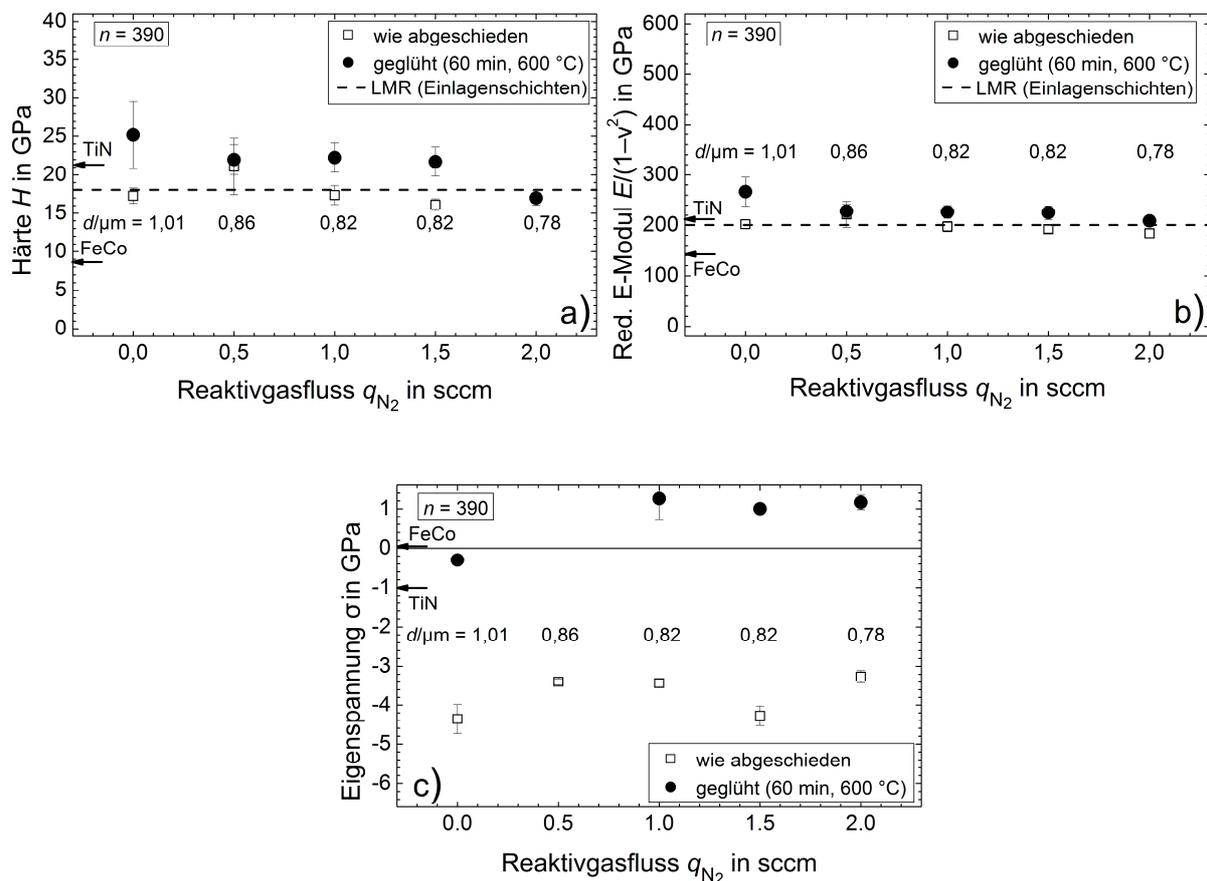


Abb. 3-39 Mechanische Eigenschaften der bei unterschiedlicher Stickstoffzugabe in die Prozessgasatmosphäre hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme in Abhängigkeit von dem Reaktivgasfluss q_{N_2} , jeweils wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum: a) Härte, b) Reduzierter Elastizitätsmodul und c) Eigenspannung. LMR: Lineare Mischungsregel.

bei einem Reaktivgasfluss von 0,5 sccm hergestellte Schichtsystem stellte mit einer Härte von $(21,1 \pm 3,7)$ GPa die einzige Ausnahme dar. Nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum betrug die Härte des in reiner Argon-Atmosphäre abgeschiedenen Schichtsystems $(25,2 \pm 4,4)$ GPa. Ein höherer Reaktivgasfluss führte bei den geglühten Viellagenschichten zu kontinuierlich sinkenden Härten bis zu dem minimalen Wert von $(21,7 \pm 1,9)$ GPa bei einem Reaktivgasfluss von 1,5 sccm. Da das bei einem N₂-Fluss von 2,0 sccm hergestellte Schichtsystem während des Glühens delaminierte, ist für dieses keine Härte im Diagramm eingetragen. Der Reduzierte Elastizitätsmodul der ungeglühten Schichtsysteme nahm Werte zwischen (184 ± 8) GPa und (222 ± 26) GPa ein, ohne dass hierbei eine tendenzielle Abhängigkeit von dem N₂-Fluss erkennbar wurde. Die Reduzierten Elastizitätsmoduln der geglühten Schichtsysteme waren mit Werten zwischen (209 ± 9) GPa und (267 ± 29) GPa geringfügig höher als die der ungeglühten Schichtsysteme.

In Abb. 3-39 c sind die Eigenspannungen der FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme in Abhängigkeit von dem N₂-Reaktivgasfluss gezeigt. Die ungeglühten Schichtsysteme wiesen Druckeigenspannung auf. Diese waren nicht kontinuierlich von dem Reaktivgasfluss abhängig und betrugen zwischen $-(4,36 \pm 0,37)$ GPa und $-(3,39 \pm 0,08)$ GPa. Durch das Glühen veränderten sich alle Werte um 4,06 GPa bis 5,28 GPa in Richtung von Zugeigenspannung, so dass schließlich moderate Druck- und Zugeigenspannung zwischen $-(0,30 \pm 0,04)$ GPa und $(1,26 \pm 0,54)$ GPa in den Schichtsystemen nachzuweisen war.

3.2.2.3 Magnetische Eigenschaften

In Abb. 3-40 a sind die Koerzitivfeldstärken der bei unterschiedlicher N₂-Zugabe in die Prozessgasatmosphäre hergestellten Viellagenschichtsysteme in Abhängigkeit von dem Reaktivgasfluss gezeigt. Eine Bestimmung der Koerzitivfeldstärke war bei den ungeglühten Schichtsystemen nur bei N₂-Flüssen $\leq 0,5$ sccm möglich. Bei dem unter Zugabe von 2,0 sccm N₂-Fluss hergestellten Schichtsystem war sogar eine Glühtemperatur von > 400 °C notwendig, bis eine auswertbare Magnetisierungskurve gemessen werden konnte. Nach dem 60-minütigen Magnetfeldglühen im Vakuum wiesen alle Schichtsysteme sehr schmale Hysterese曲ven auf, die eine hohe Remanenz sowie insbesondere in der leichten Richtung um den Wertebereich der Koerzitivfeldstärke eine sehr hohe Steigung aufwiesen. Von wenigen Ausnahmen abgesehen ließ sich die Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke von dem Reaktivgasfluss dahingehend zusammenfassen, dass eine Erhöhung des Reaktivgasflusses sowie eine Erhöhung der Glühtemperatur jeweils zu einer Reduktion der Koerzitivfeldstärke führten. Ein Reaktivgasfluss $\geq 1,0$ sccm führte bei den geglühten Schichtsystemen mit dem Ausreißer des bei 1,5 sccm N₂-Fluss hergestellten Schichtsystems nach Magnetfeldglühen bei 400 °C in allen Fällen zu Koerzitivfeldstärken $\leq 0,21$ mT. Bei Normierung auf den FeCo-Volumenanteil der in reiner Argon-Atmosphäre abgeschiedenen FeCo/TiN-Viellagenschicht ergaben sich Werte für die Sättigungspolarisationen zwischen 0,48 T und 0,50 T. Ein Vergleich mit den Sättigungspolarisationen der ohne N₂-Zugabe hergestellten Viellagenschicht mit der minimalen Doppellagendicke von 2,6 nm zeigte, dass die Sättigungspolarisation also durch das Hinzufügen von N₂ in die Prozessgasatmosphäre nahezu nicht beeinflusst wurde.

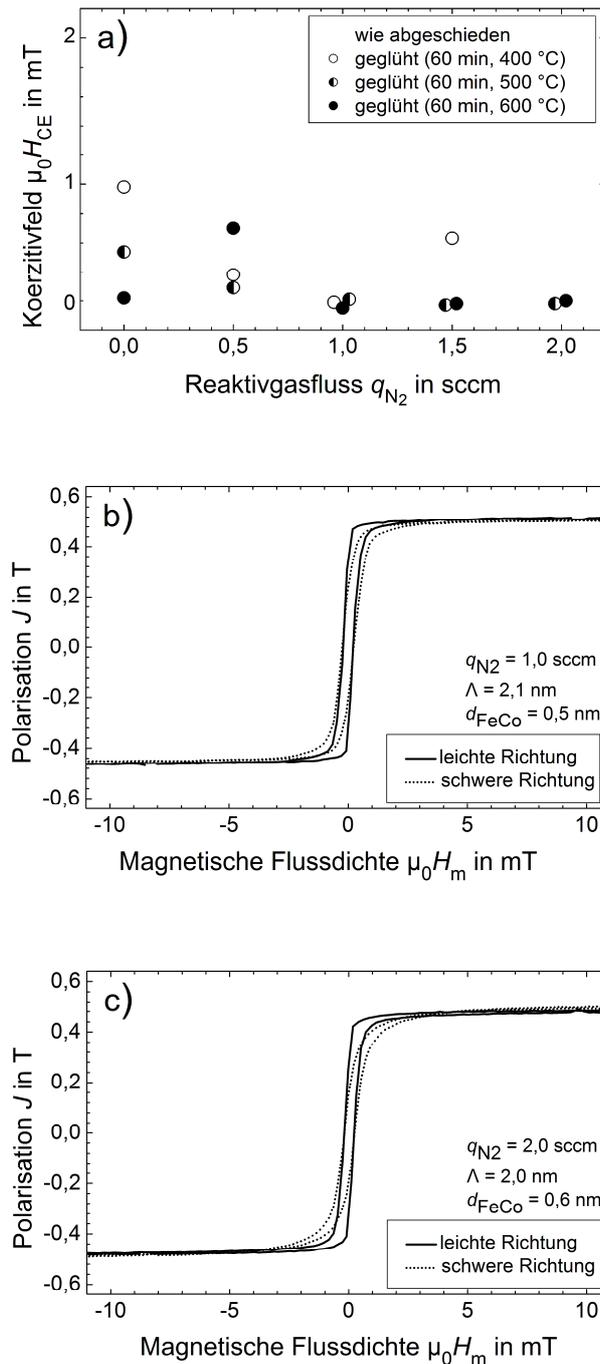


Abb. 3-40 Magnetische Eigenschaften der bei unterschiedlicher Stickstoffzugabe in die Prozessgasatmosphäre hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme: a) Koerzitivfeldstärken in Abhängigkeit von dem N_2 -Fluss, jeweils wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 400, 500 und 600 °C im Vakuum. Magnetisierungskurven der bei einem Reaktivgasfluss von b) 1,0 sccm und c) 2,0 sccm hergestellten Viellagenschichtsysteme in leichter und schwerer Richtung nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum.

In Abb. 3-41 a–d sind die komplexen Permeabilitätsspektren der für 60 min bei 600 °C im Vakuum magnetfeldgeglühten in Ar/N₂-Atmosphäre hergestellten FeCo/TiN-Schichtsysteme im Frequenzbereich 0,07 GHz–3,00 GHz gezeigt. Die Permeabilität wurde hierbei analog zu der bereits für Abb. 3-40 durchgeführten Normierung berechnet. Es war zu sehen, dass die Anfangspermeabilität ausgehend von 140 bei nichtreaktiver Prozessgasatmosphäre kontinuierlich auf über 300 bei einem Reaktivgasfluss von 2,0 sccm anstieg. Der Schnitt des Imaginärteils mit der Abszisse, der bei dem nichtreaktiv hergestellten Schichtsystem noch 1,36 GHz betrug, befand sich bei den übrigen Schichtsystemen bei Werten zwischen 0,78 GHz und 0,84 GHz. Gleichzeitig sank die Halbwertsbreite des Imaginärteils der Permeabilitäten von 1,46 GHz bei 0,0 sccm N₂-Fluss kontinuierlich auf 0,78 GHz bei 1,5 sccm N₂-Fluss, um bei auf 2,0 sccm erhöhtem Reaktivgasfluss schließlich wieder auf 1,03 GHz zu steigen.

Es lässt sich zusammenfassen, dass selbst die geringste Koerzitivfeldstärke der ungeglühten FeCo/TiN-Schichtsysteme durch die Zugabe von N₂ in die Prozessgasatmosphäre um noch einmal bis zu 32 % reduziert werden konnte. Gleichzeitig konnte die Permeabilität bei geringen Frequenzen mit Werten von bis zu über 300 mehr als verdoppelt werden.

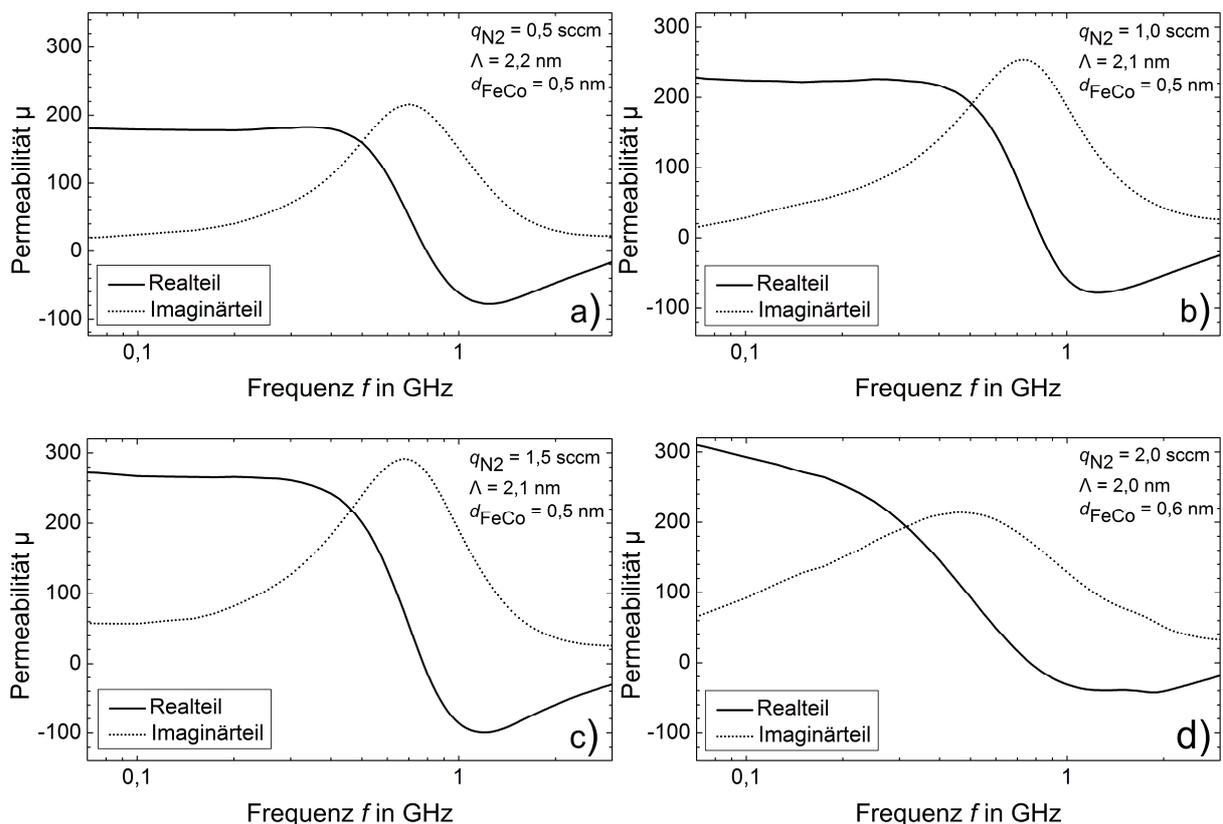


Abb. 3-41 Frequenzabhängige komplexe Permeabilität der bei einem N₂-Reaktivgasfluss von a) 0,5 sccm, b) 1,0 sccm, c) 1,5 sccm und d) 2,0 sccm hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Die Werte der Permeabilität sind unter Berücksichtigung des Gesamtvolumens der Viellagenschichtsysteme inklusive der nichtmagnetischen Phase ermittelt.

3.3 Beeinflussung von Mikrostruktur und Eigenschaften von FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen

3.3.1 Einfluss der FeCo-Targetleistung

Die in Kapitel 3.2 vorgestellten Ergebnisse legten einen entscheidenden Einfluss der Grenzflächen auf Mikrostruktur und Textur der Viellagenschichtsysteme sowie in der Folge auf ihre Eigenschaften nahe. Hierbei war insbesondere die Ursache für die Ausbildung des Doppelreflexes von Interesse, der sich in den Röntgenbeugungsdiagrammen von FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen bei geringer Doppellagendicke bildete, da dieser mit den besten erreichten Schichteigenschaften einherging. Mit der Arbeitshypothese, dass die kinetische Energie der ankommenden Fe- und Co-Atome eine entscheidende Rolle für die Entwicklung der beobachteten Mikrostruktur und Textur spielte, wurden weitere Viellagenschichtsysteme unter Variation der FeCo-Targetleistung hergestellt. Ausgehend von dem 781-lagigen FeCo/TiN-Viellagenschichtsystem mit $\Lambda = 2,6$ nm wurde bei gleichbleibenden Beschichtungszeiten zunächst die FeCo-Targetleistung in dem Bereich zwischen 50 W und 300 W variiert, innerhalb dessen sich ein stabiler Prozess ausbildete. Weiterhin wurde bei einer FeCo-Targetleistung von 50 W die FeCo-Lagendicke durch eine entsprechende Variation der Beschichtungszeiten zwischen 0,3 nm–0,7 nm variiert, um den Einfluss der bei geringen FeCo-Targetleistungen ebenfalls geringen Abscheideraten zu beseitigen und einen unmittelbaren Vergleich der bei großer und kleiner FeCo-Targetleistung abgeschiedenen Schichten zu ermöglichen.

3.3.1.1 Schichtaufbau

Viellagenaufbau

In Abb. 3-42 sind XRR-Diagramme der bei variiertem FeCo-Targetleistung hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme gezeigt. In Abb. 3-42 a war zu erkennen, dass sich bei einer FeCo-Targetleistung von 50 W kein röntgenreflektometrisch nachweisbarer Viellagenaufbau ausbildete. Die FeCo-Targetleistung von 100 W hingegen war hierfür dann bereits ausreichend, wie an dem entsprechenden Diagramm zu sehen war. Ein Vergleich der in Abb. 3-42 b gegenübergestellten XRR-Diagramme des ungeglühten und des für 60 min bei 600 °C im Vakuum magnetfeldgeglühten Schichtsystems wies die Stabilität des Viellagenaufbaus gegenüber dem Glühprozess auch bereits für eine FeCo-Targetleistung von 100 W nach.

In Abb. 3-42 c sind die XRR-Diagramme der Schichten gezeigt, die bei einer FeCo-Targetleistung von 50 W hergestellt wurden. Hinsichtlich der absoluten Materialvolumina war das Schichtsystem mit einer FeCo-Lagendicke von 0,7 nm mit dem in Kapitel 3.1.2 vorgestellten Schichtsystem mit $\Lambda = 2,6$ nm vergleichbar. Der Unterschied zwischen den beiden Schichtsystemen bestand in der deutlich geringeren FeCo-Targetleistung, die zur Herstellung der hier vorgestellten Viellagenschicht verwendet wurde. Die geringere FeCo-Targetleistung resultierte jedoch in einem weniger gleichmäßigen Viellagenaufbau, was sich in einer qualitativen Änderung der Diagramme und in der Verschiebung der Übergitterreflexe in Richtung größerer Winkel nach dem Glühen manifestierte.

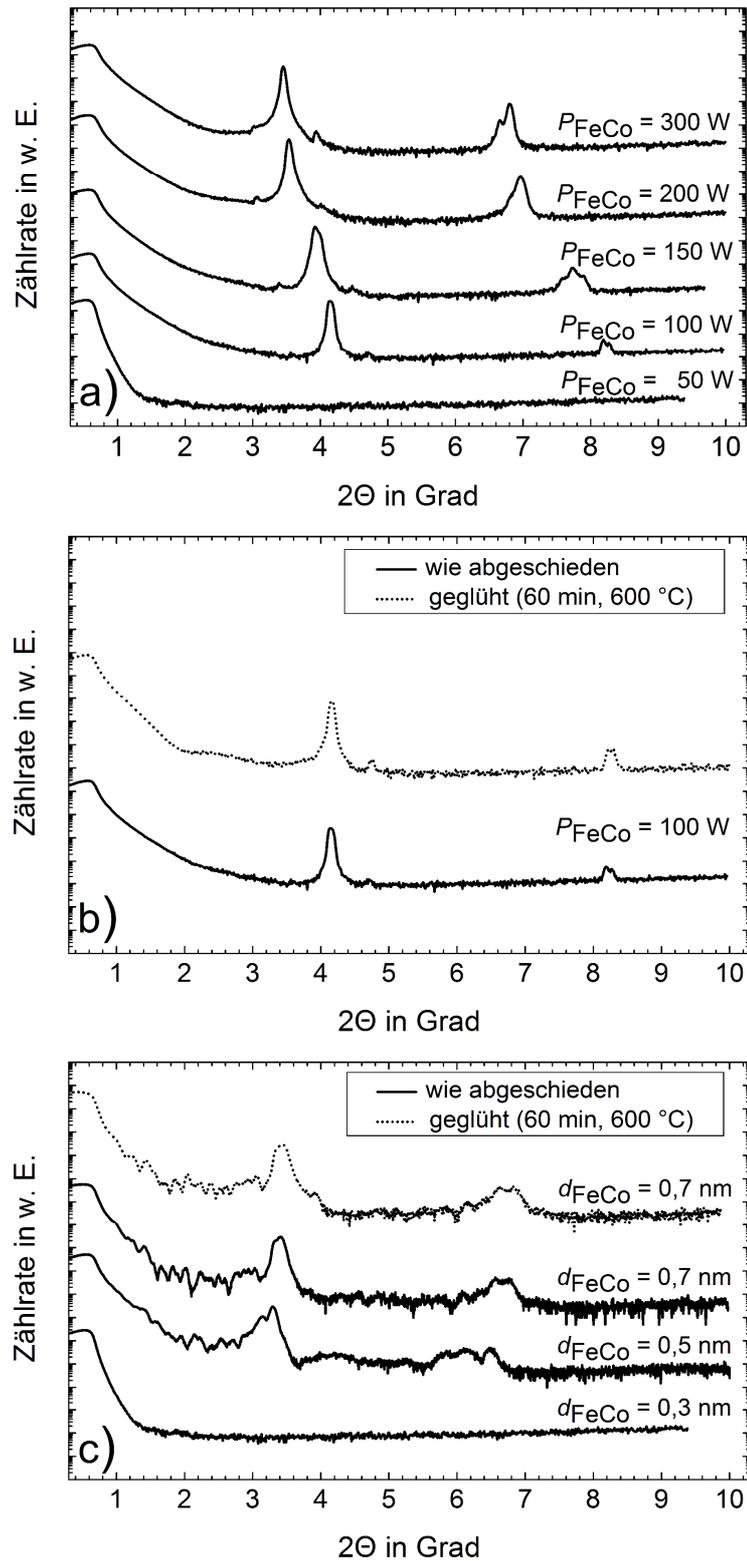


Abb. 3-42 XRR-Diagramme der FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme: a) bei unterschiedlichen FeCo-Targetleistungen hergestellte Schichtsysteme, b) bei 100 W FeCo-Targetleistung hergestelltes Schichtsystem wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum und c) bei 50 W FeCo-Targetleistung hergestellte Schichtsysteme mit unterschiedlichen FeCo-Lagendicken wie abgeschieden sowie das Schichtsystem mit der maximalen FeCo-Lagendicke von 0,7 nm nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum.

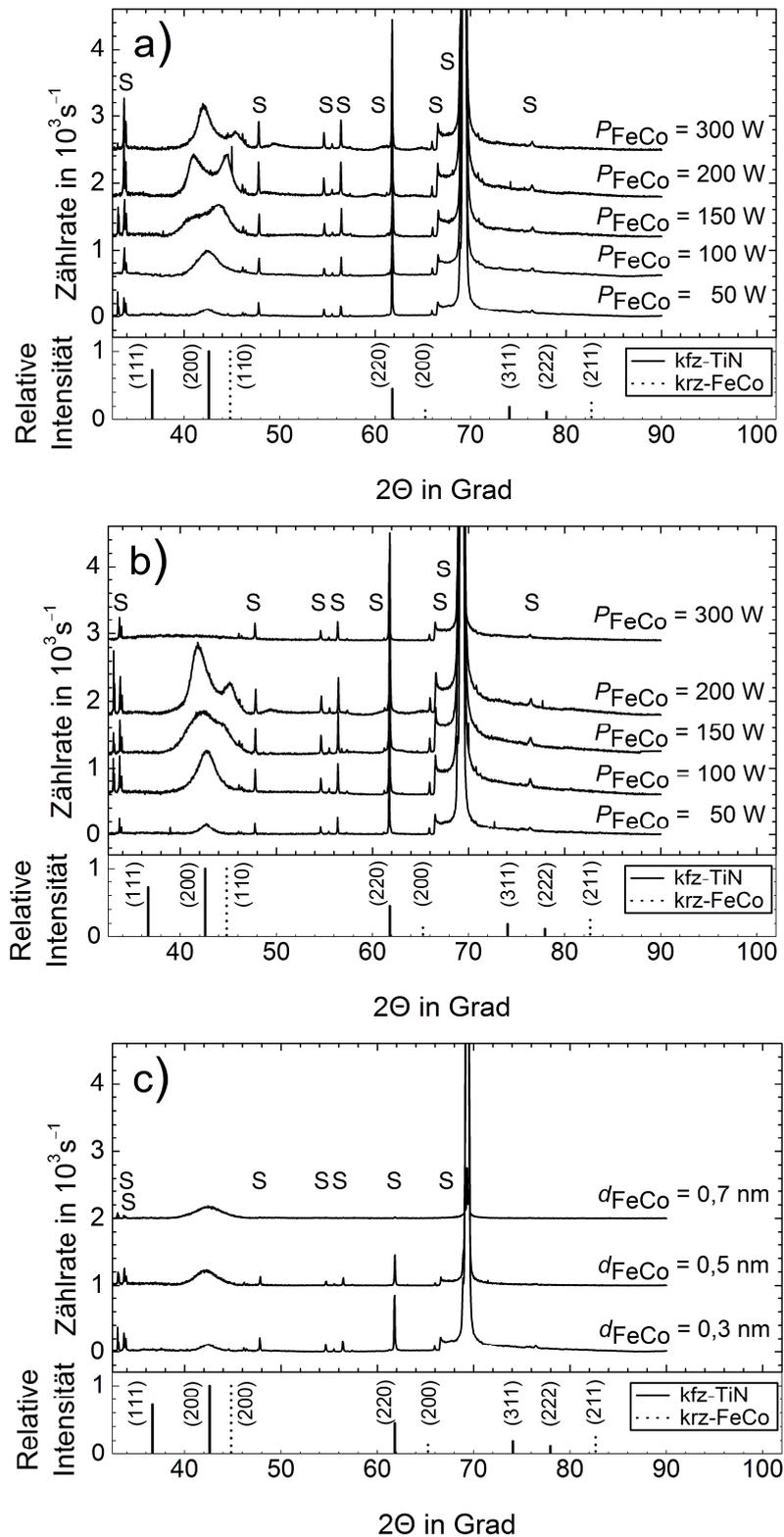


Abb. 3-43 Röntgenbeugungsdiagramme von FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen: a) bei Variation der FeCo-Targetleistung wie abgeschieden, b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum und c) bei konstanter FeCo-Targetleistung von 50 W unter Variation der FeCo-Lagendicke wie abgeschieden. Die mit „S“ gekennzeichneten Reflexe entstanden durch Beugung am Substrat.

Mikrostruktur und Textur

In Abb. 3-43 a sind die Röntgenbeugungsdiagramme der ungeglühten Schichtsysteme gezeigt, die unter Variation der FeCo-Targetleistung zwischen 50 W und 300 W hergestellt wurden. Bei FeCo-Targetleistungen von 50 W und 100 W war jeweils als einziger ein Beugungsreflex mit dem Schwerpunkt an der Position des Literaturwerts des (200)-Reflexes von kfz-TiN vom NaCl-Typ identifizierbar. Bei einer Targetleistung von 150 W und höher wurde dieser Reflex wieder durch zwei Reflexe ersetzt, wie es bereits in Kapitel 3.2.1.1 beschrieben wurde. In Abb. 3-43 b sind die Röntgenbeugungsdiagramme der für 60 min bei 600 °C im Vakuum magnetfeldgeglühten Schichten gezeigt. Bei diesen Diagrammen war eine Reduzierung der Halbwertsbreite aller Reflexe zu vermerken, in denen sich Korngrößenwachstum widerspiegelte. Das bei einer FeCo-Targetleistung von 300 W hergestellte Viellagenschichtsystem delaminierte während des Glühprozesses, weswegen ein entsprechendes Diagramm nicht gezeigt ist. In Abb. 3-43 c ist anhand der Röntgenbeugungsdiagramme der bei konstanter FeCo-Targetleistung von 50 W hergestellten Viellagenschichtsysteme erkennbar, inwiefern bei geringer Targetleistung von 50 W die Variation der FeCo-Lagendicke zwischen 0,3 nm und 0,7 nm einen Einfluss auf die Mikrostruktur hatte. Bei allen drei Schichtsystemen war der (200)-Reflex des TiN in kfz-Kristallstruktur vom NaCl-Typ zu identifizieren. Dessen Halbwertsbreite stieg von $1,4^\circ$ bei einer FeCo-Lagendicke von 0,3 nm auf schließlich $3,1^\circ$ bei einer FeCo-Lagendicke von 0,7 nm kontinuierlich an.

3.3.1.2 Mechanische Eigenschaften

In Abb. 3-44 a, c und e sind mechanische Eigenschaften als Funktion der Targetleistung abgebildet. Mechanische Eigenschaften der bei einer Targetleistung von 50 W hergestellten Viellagenschichtsysteme sind in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke in Abb. 3-44 b und d gezeigt. Die Härte und der Reduzierte Elastizitätsmodul wurden mit Indentierungsexperimenten bei Verwendung einer Maximallast von 10 mN ermittelt.

In Abb. 3-44 a ist zu sehen, dass die Härte der ungeglühten Schichtsysteme von $(24,5 \pm 3,6)$ GPa bei einer FeCo-Targetleistung von 50 W kontinuierlich auf $(19,3 \pm 1,0)$ GPa bei einer FeCo-Targetleistung von 200 W sank. Sie folgte damit dem Verlauf der mit der Linearen Mischungsregel berechneten Ergebnisse. Bei den noch höheren FeCo-Targetleistungen von 250 W und 300 W war die Härte der ungeglühten Schichtsysteme mit $(21,5 \pm 2,3)$ GPa und $(28,7 \pm 4,7)$ GPa dann trotz des weiter erhöhten FeCo-Anteils wieder deutlich höher. Bei den geglühten Schichtsystemen war keine tendenzielle Abhängigkeit der Härte von der FeCo-Targetleistung erkennbar. Die ermittelten Werte lagen in einem Korridor zwischen $(24,6 \pm 6,6)$ GPa und $(28,1 \pm 4,4)$ GPa, ohne der mit der Linearen Mischungsregel berechneten Tendenz von mit wachsender FeCo-Targetleistung sinkender Härte zu folgen.

Die in Abb. 3-44 c gezeigten Werte des Reduzierten Elastizitätsmoduls befanden sich im ungeglühten wie im geglühten Zustand in einem schmalen Korridor wenig oberhalb der mit der Linearen Mischungsregel berechneten Werte. Nach dem Glühen unterschieden sie sich kaum merklich von den vor dem Glühen gemessenen Werten.

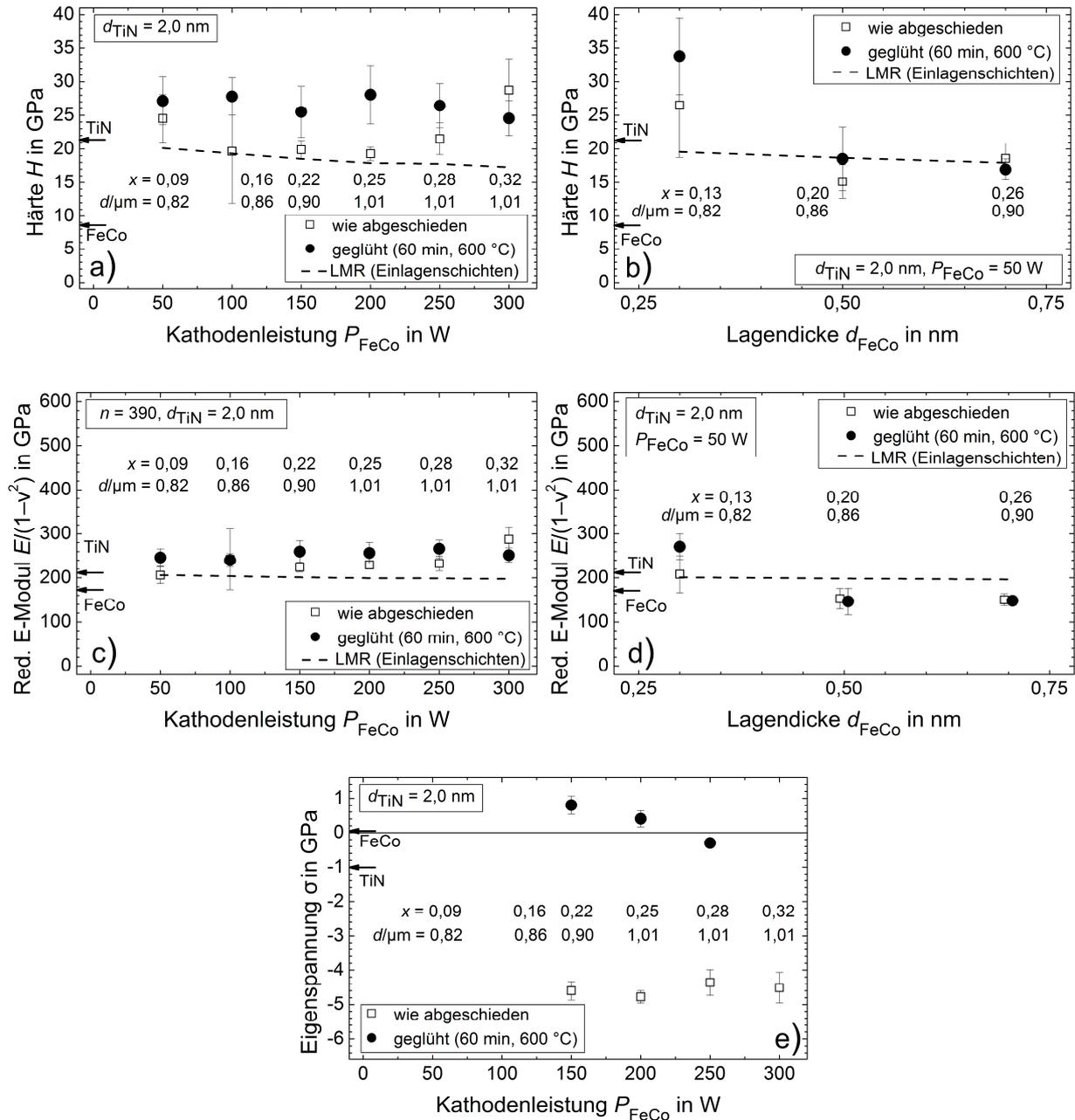


Abb. 3-44 Mechanische Eigenschaften von FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen, jeweils wie abgeschieden sowie nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum: a) Härte, c) Reduzierter Elastizitätsmodul und e) Eigenspannung der Schichtsysteme bei Variation der FeCo-Targetleistung sowie b) Härte, d) Reduzierter Elastizitätsmodul bei konstanter FeCo-Targetleistung von 50 W in Abhängigkeit von der FeCo-Lagendicke. LMR: Lineare Mischungsregel, $x = d_{\text{FeCo}}/\Lambda$: Verhältnis von der FeCo-Lagendicke zur Doppellagendicke.

In Abb. 3-44 b und Abb. 3-44 d sind die Härte und der Reduzierte Elastizitätsmodul bei Variation der FeCo-Lagendicke unter Beibehaltung der FeCo-Targetleistung bei 50 W gezeigt. Das Schichtsystem mit der geringsten FeCo-Lagendicke von 0,3 nm war im ungeglühten Zustand mit $(26,5 \pm 7,8)$ GPa härter als nach Linearer Mischungsregel berechnet, wobei Magnetfeldglühen für 60 min bei 600 °C im Vakuum zu einer deutlichen Erhöhung auf $(33,8 \pm 5,7)$ GPa führte. Mit zunehmender Haltezeit unter dem FeCo-Target und somit ent-

sprechend erhöhter FeCo-Lagendicke sank die Härte der ungeglühten Schichtsysteme beträchtlich, und es wurden Werte gemessen, die den Ergebnissen der Linearen Mischungsregel entsprachen. Der Reduzierte Elastizitätsmodul betrug bei dem Schichtsystem mit dem geringsten FeCo-Anteil (208 ± 42) GPa, um bei steigender FeCo-Lagendicke kontinuierlich auf (150 ± 14) GPa zu sinken und damit jeweils Werte von einigen 10 GPa unterhalb der mit der Linearen Mischungsregel berechneten Werte einzunehmen. Der Glühprozess beeinflusste die Reduzierten Elastizitätsmoduln nicht signifikant.

In Abb. 3-44 e sind die Eigenspannungen der Schichtsysteme in Abhängigkeit von der FeCo-Targetleistung gezeigt. Im ungeglühten Zustand wurde Druckeigenspannung zwischen $-(4,36 \pm 0,37)$ GPa und $-(4,78 \pm 0,18)$ GPa ermittelt, die nicht kontinuierlich von der FeCo-Targetleistung oder dem FeCo-Volumenanteil am Schichtsystem abhängig war. Nach dem Glühen waren die Eigenspannungswerte in Richtung von Zugeigenspannung verschoben. Im Gegensatz zu den bei den ungeglühten Schichtsystemen gemessenen Verhältnissen ließ sich hierbei eine kontinuierliche Veränderung ausgehend von $(0,80 \pm 0,27)$ GPa bei einer FeCo-Targetleistung von 150 W hin zu $-(0,30 \pm 0,04)$ GPa bei einer FeCo-Targetleistung von 250 W feststellen. Die Werte für $P_{\text{FeCo}} = 50$ W und $P_{\text{FeCo}} = 100$ W bei den ungeglühten Proben sowie für $P_{\text{FeCo}} = 300$ W bei den geblühten Proben konnten nicht ermittelt werden, da die Schichten vom Substrat delaminierten. Aus dem gleichen Grund ist kein Diagramm für die Abhängigkeit der Schichteigenspannung von der FeCo-Lagendicke bei einer FeCo-Targetleistung von 50 W gezeigt.

3.3.1.3 Magnetische Eigenschaften

In Abb. 3-45 sind die Koerzitivfeldstärken der bei unterschiedlichen FeCo-Targetleistungen hergestellten Viellagenschichtsysteme gezeigt. Bei FeCo-Targetleistungen von 50 W und 100 W führte die geringere Depositionsrate von FeCo zu einem entsprechend geringeren FeCo-Anteil im Schichtsystem. Mit dem vorhandenen VSM konnte keine Magnetisierbarkeit dieser Proben nachgewiesen werden. Ebenfalls konnte keine Magnetisierbarkeit des ungeglühten, bei einer FeCo-Targetleistung von 150 W hergestellten, Schichtsystems nachgewiesen werden. Bei diesen Schichten führte erst das Glühen zur Ausbildung von für ferromagnetisches Verhalten typischen Magnetisierungskurven. Die Schichtsysteme waren hierbei mit Koerzitivfeldstärken von $< 0,95$ mT weichmagnetisch, wobei der geringste Wert von 0,28 mT nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum erreicht wurde. Nach dem Glühen bei 400 °C betrug die Sättigungspolarisation 0,19 T, die Netto-Sättigungspolarisation (Gl. (2.12)) entsprach etwa 40 % der Sättigungspolarisation einer FeCo-Einlagenschicht. Eine Glüh Temperatur von 600 °C führte zu einer Erhöhung der Sättigungspolarisation auf 0,24 T. Bei hohen FeCo-Targetleistungen von 200 W und 250 W waren bereits die ungeglühten Schichtsysteme ferro- und weichmagnetisch. Bei diesen Proben führte das Glühen zu einer Reduzierung der Koerzitivfeldstärken, und die Sättigungspolarisation war etwa doppelt so hoch wie bei den mit geringerer FeCo-Targetleistung hergestellten Schichtsystemen. Bei einer Targetleistung von 300 W wies erst das bei 600 °C geblühte Schichtsystem ferromagnetisches Verhalten auf, und die Koerzitivfeldstärke betrug 0,71 mT. Die Sättigungspolarisation dieses Schichtsystems war mit 0,23 T gegenüber dem Referenzwert einer 1 µm dicken FeCo-Einlagenschicht wieder deutlich reduziert.

In weiteren Versuchen wurde die FeCo-Lagendicke bei einer FeCo-Targetleistung von 50 W durch eine entsprechende Verlängerung der Haltezeiten erhöht, um die absoluten Materialmengen in den Proben mit den bei 250 W FeCo-Targetleistung hergestellten Schichtsystemen vergleichen zu können. Die FeCo-Lagendicke war mit 0,5 nm und 0,7 nm jeweils geringfügig geringer bzw. größer als bei dem in Kapitel 3.2.1 vorgestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsystem mit der geringsten Doppellagendicke von 2,6 nm. Beide bei einer FeCo-Targetleistung von 50 W hergestellten Schichten wiesen vor und nach dem Glühen ferromagnetisches Verhalten mit sehr geringer Koerzitivfeldstärke auf. Im Vergleich mit dem bei 250 W Targetleistung hergestellten Schichtsystem waren die Sättigungspolarisationen jedoch deutlich geringer und betragen nur etwa 0,02 T. Erst bei einer FeCo-Lagendicke von 0,7 nm wurde, allerdings erst nach dem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum, mit 0,06 T eine etwas höhere Sättigungspolarisation erreicht, deren Betrag im Gesamtvergleich jedoch immer noch sehr gering war. Eine Ausbildung von uniaxialer Anisotropie in der Schichtebene war nicht zu beobachten.

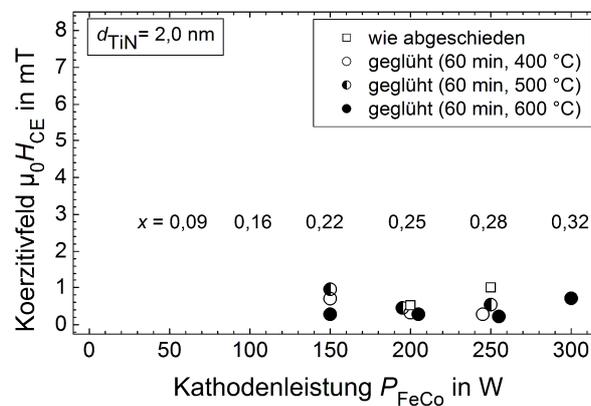


Abb. 3-45 Koerzitivfeldstärken der bei unterschiedlicher FeCo-Targetleistung hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 400 °C, 500 °C und 600 °C im Vakuum in Abhängigkeit von der FeCo-Targetleistung. $x = d_{\text{FeCo}}/\Lambda$: Verhältnis von der FeCo-Lagendicke zur Doppellagendicke.

3.3.2 Einfluss des Prozessgasdrucks während der Schichtherstellung

In Kapitel 3.3.1 wurden die Beschichtungsrate und die kinetische Energie der Fe- und Co-Atome durch Variation der FeCo-Targetleistung variiert. Eine weitere Methode zur Beeinflussung der Teilchenenergie ist die Erhöhung des Prozessgasdrucks. Um das Prozessfenster zu benennen, innerhalb dessen die in Kapitel 3.2.1 beschriebene für die magnetischen und mechanischen Eigenschaften vorteilhafte Mikrostruktur und Textur sich ausbilden kann, wurden ausgehend von dem 781-lagigen FeCo/TiN-Viellagenschichtsystem mit $\Lambda = 2,6$ nm Viellagenschichten unter Variation des Prozessgasdrucks zwischen 0,2 Pa und 2,0 Pa hergestellt. Alle anderen Prozessparameter und Depositionszeiten blieben unverändert. Hierdurch wurde die kinetische Energie der an der Substratposition ankommenden Teilchen mit zunehmendem Prozessgasdruck reduziert.

3.3.2.1 Schichtaufbau

Viellagenaufbau

In Abb. 3-46 a sind XRR-Diagramme von FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen gezeigt, die bei unterschiedlichen Prozessgasdrücken hergestellt wurden. Bei Prozessgasdrücken $\geq 0,5$ Pa waren keine Übergitterreflexe zweiter Ordnung mehr zu identifizieren. Ein Prozessgasdruck von 2,0 Pa resultierte sogar in einem Schichtaufbau, der nicht einmal mehr zu einer deutlichen Ausprägung eines Reflexes erster Ordnung führte. Die Abscheidung der Schichten bei Prozessgasdrücken $\geq 0,5$ Pa führte also zu der Ausbildung weniger gleichmäßig aufgebauter Viellagenschichten. In Abb. 3-46 b ist exemplarisch das XRR-Diagramm des bei einem Prozessgasdruck von 0,5 Pa hergestellten Viellagenschichtsystems sowohl im ungeglühten Zustand als auch nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum abgebildet. Es ist ersichtlich, dass auch der Viellagenaufbau des bei einem Prozessgasdruck von 0,5 Pa hergestellten Schichtsystems gegen 60-minütiges Glühen bei 600 °C im Vakuum

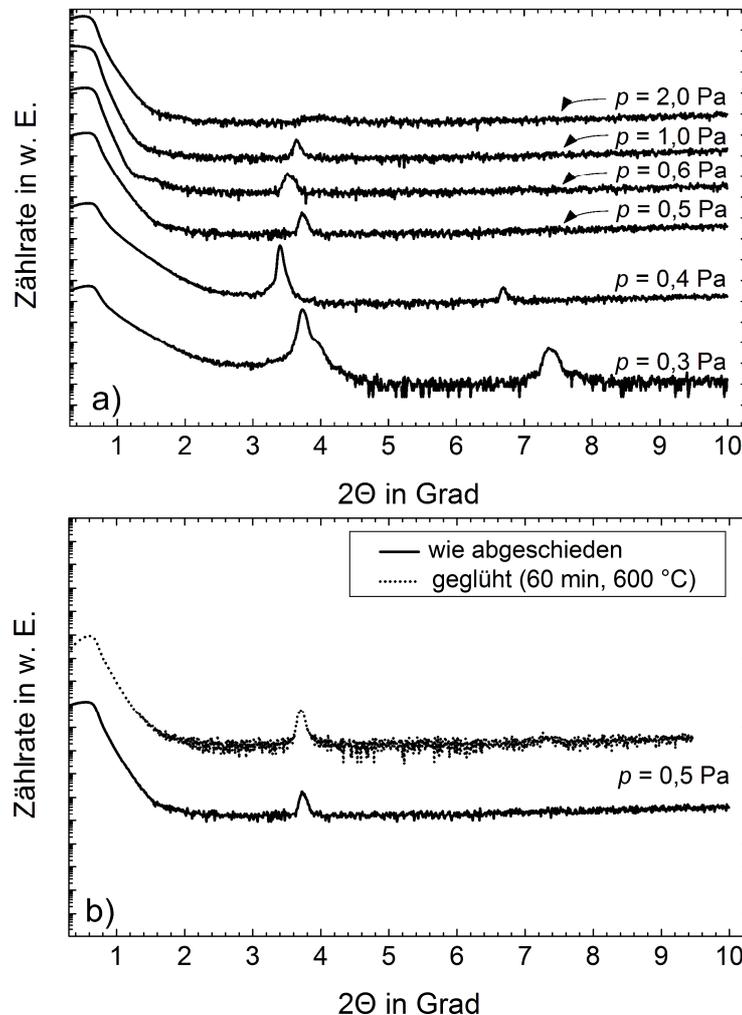


Abb. 3-46 XRR-Diagramme der bei verschiedenen Prozessgasdrücken zwischen 0,3 Pa und 2,0 Pa hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme: a) wie abgeschieden und b) bei einem Prozessgasdruck von 0,5 Pa hergestelltes Schichtsystem nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum sowie noch einmal wie abgeschieden als Referenz.

stabil war. Noch höhere Prozessgasdrücke führten hingegen zur Abscheidung von Schichtsystemen, die während des Glühens bei 600 °C im Vakuum delaminierten.

Mikrostruktur und Textur

In Abb. 3-47 a sind die Röntgenbeugungsdiagramme der bei unterschiedlichen Prozessgasdrücken hergestellten Viellagenschichten im ungeglühten Zustand dargestellt. In Abb. 3-47 b sind die Röntgenbeugungsdiagramme derselben Schichtsysteme nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum gezeigt. Bei den Prozessgasdrücken 0,3 Pa und 0,4 Pa waren, wie es ähnlich bereits anhand der in Kapitel 3.2.1.1 vorgestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme gezeigt wurde, anstelle eines (200)-Reflexes des TiN in kfz-Kristallstruktur drei Reflexe präsent. Keiner dieser Reflexe konnte den Gleichgewichtsphasen von FeCo und TiN zugeordnet werden. Im Winkelbereich zwischen 50° und 51° erschien jeweils ein weiterer Reflex, der nicht identifiziert werden konnte. Auch diese Beobachtung wur-

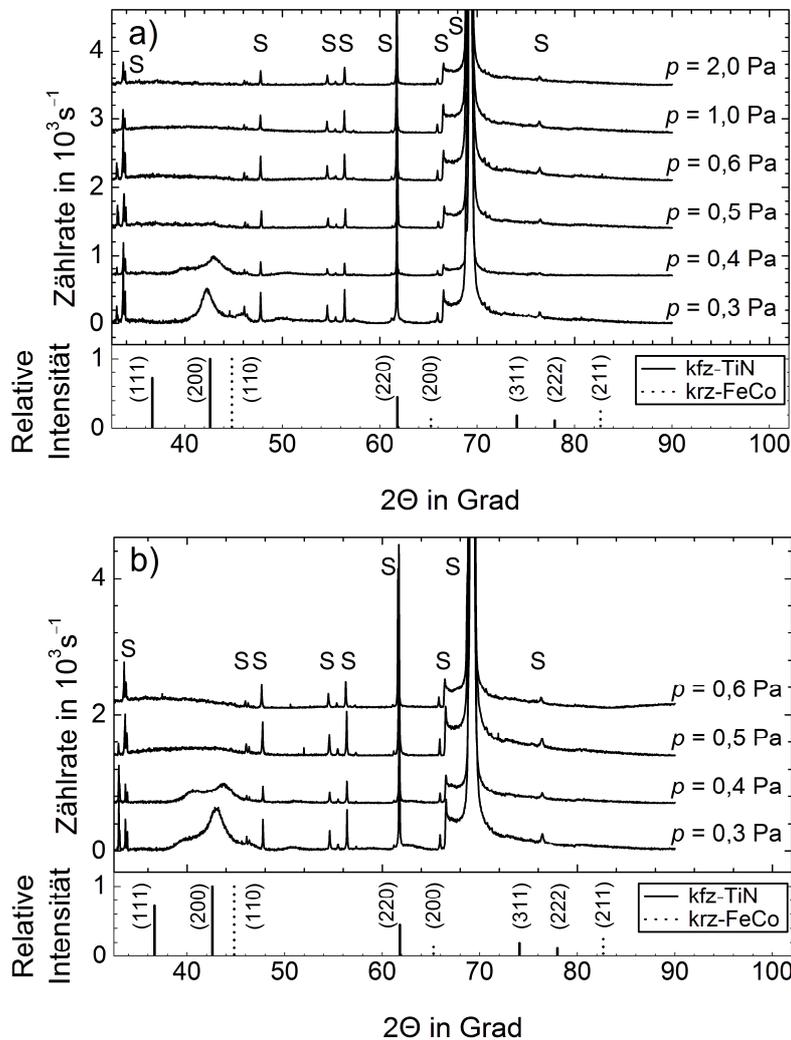


Abb. 3-47 Röntgenbeugungsdiagramme der bei verschiedenen Prozessgasdrücken abgeschiedenen FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme: a) wie abgeschieden und b) nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum. Die mit „S“ gekennzeichneten Reflexe entstanden durch Beugung am Substrat.

de bereits an den Röntgenbeugungsdiagrammen der in Kapitel 3.2.1.1 vorgestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme gemacht. Die Röntgenbeugungsdiagramme der bei Prozessgasdrücken von 0,5 Pa und mehr hergestellten Schichtsysteme wiesen hingegen keine deutlich identifizierbaren Reflexe mehr auf, sondern sie waren röntgenamorph. Bei den ge-
glühten Schichtsystemen waren die Ergebnisse vergleichbar, allerdings waren die bei 1,0 Pa und 2,0 Pa hergestellten Viellagenschichten während des Glühprozesses delaminiert.

3.3.2.2 Mechanische Eigenschaften

In Abb. 3-48 sind mechanische Eigenschaften der FeCo/TiN-Schichtsysteme in Abhängigkeit von dem Prozessgasdruck aufgetragen. Eine kontinuierliche Abhängigkeit der Härte vom Prozessgasdruck war nicht zu erkennen. Die Härtewerte der bei Prozessgasdrücken zwischen 0,2 Pa und 1,0 Pa hergestellten Schichten befanden sich vor dem Glühen in einem Wertebereich zwischen $(19,2 \pm 1,7)$ GPa und $(25,3 \pm 2,0)$ GPa. Diese Härtewerte waren höher als die jeweils aufgrund der Linearen Mischungsregel berechneten Referenzwerte. Bei dem bei 2,0 Pa Prozessgasdruck hergestellten Schichtsystem wurde im Gegensatz dazu eine deutlich geringere Härte von $(15,3 \pm 1,1)$ GPa gemessen. Nach dem 60-minütigen Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum betrug die Härte des bei 0,2 Pa Prozessgasdruck her-

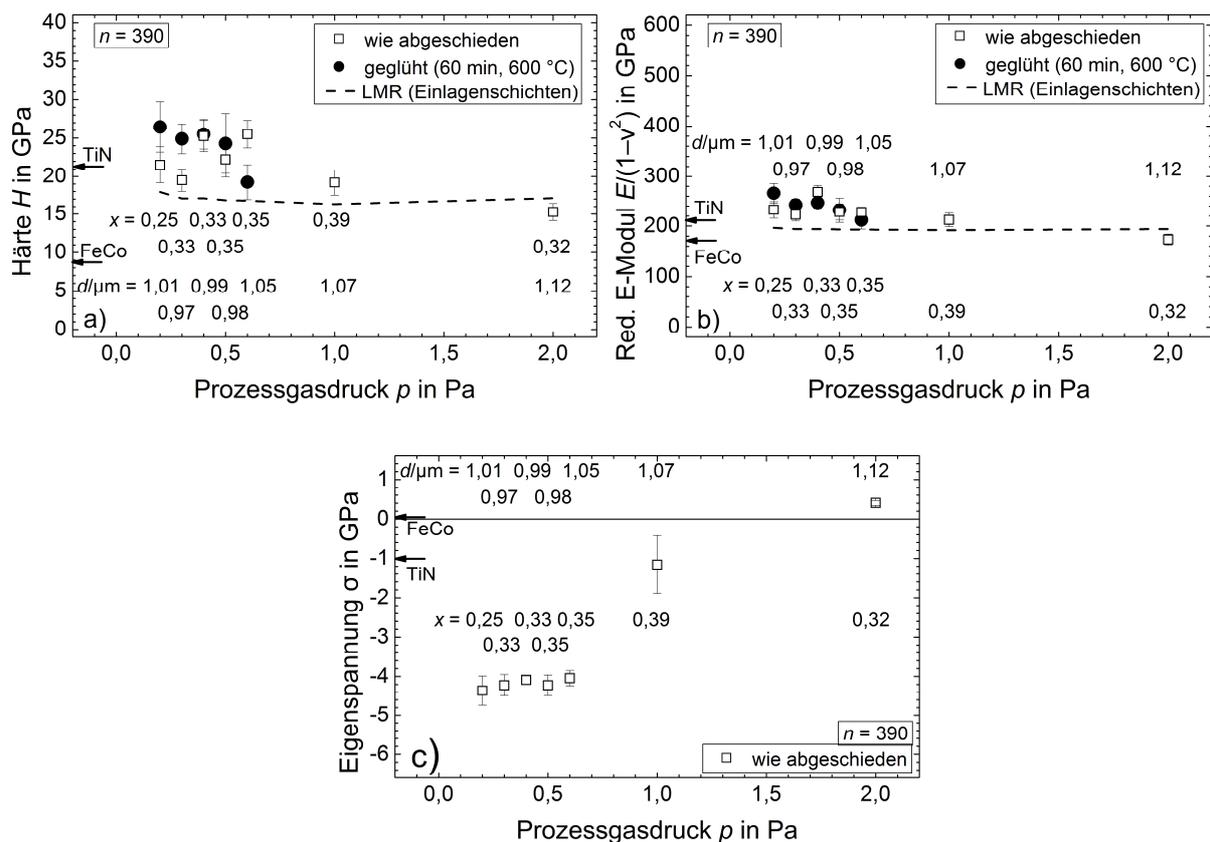


Abb. 3-48 Mechanische Eigenschaften der bei verschiedenen Prozessgasdrücken hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme wie abgeschieden und nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum: a) Härte, b) Reduzierter Elastizitätsmodul und c) Eigenspannung. LMR: Lineare Mischungsregel, $x = d_{\text{FeCo}}/\Lambda$: Verhältnis von der FeCo-Lagendicke zur Doppellagendicke.

gestellten Schichtsystems ($26,5 \pm 3,3$) GPa. Steigende Prozessgasdrücke führten bis zu einem Wert von 0,6 Pa zu kontinuierlich sinkenden Härtewerten von schließlich ($19,2 \pm 2,3$) GPa. Der Einfluss des Prozessgasdrucks auf die Reduzierten Elastizitätsmoduln war dem auf die Härte ähnlich. Bei den ungeglühten Schichtsystemen wurden Elastizitätsmoduln zwischen (173 ± 11) GPa und (269 ± 13) GPa gemessen. Bei den geglähten Schichten wurden mit zunehmendem Prozessgasdruck kleinere Reduzierte Elastizitätsmoduln gemessen, die von (266 ± 20) GPa bei $p = 0,2$ Pa auf (212 ± 18) GPa bei $p = 0,6$ Pa sanken.

In Abb. 3-48 c sind die Eigenspannungen der bei den verschiedenen Prozessgasdrücken hergestellten FeCo/TiN-Schichtsysteme gezeigt. Da die bei Prozessgasdrücken oberhalb von 0,3 Pa hergestellten Viellagenschichten während des Glühens delaminierten, und die Ergebnisse für $p = 0,2$ Pa bereits in Abb. 3-34 e gezeigt sind, wurden nur die Eigenspannungswerte der ungeglühten Schichtsysteme in das Diagramm eingetragen. Bis zu einem Prozessgasdruck von 0,6 Pa wurde Druckeigenspannung gemessen, die mit Werten zwischen $-(4,04 \pm 0,19)$ GPa und $-(4,36 \pm 0,37)$ GPa weitgehend unabhängig vom Prozessgasdruck war. Vom Betrag waren die Eigenspannungswerte der Viellagenschichten deutlich höher als die an den Einlagenschichten gemessenen Werte. Höhere Prozessgasdrücke von 1,0 Pa und 2,0 Pa führten hingegen mit $-(1,16 \pm 0,73)$ GPa bzw. $(0,37 \pm 0,32)$ GPa zu Eigenspannungswerten deutlich geringeren Betrags.

4 Diskussion

In diesem Teil der Arbeit werden die Ergebnisse in ihrer Gesamtheit zusammengefasst, verglichen und bewertet. Hierzu wird zunächst in Kapitel 4.1 auf den Einfluss des Viellagenaufbaus und der Prozessführung auf Mikrostruktur und Textur der Viellagenschichtsysteme eingegangen. Auf Basis dieser Grundlagen werden dann in den Kapiteln 4.2 und 4.3 die wesentlichen mechanischen und magnetischen Eigenschaften der Schichtsysteme diskutiert. Anschließend werden die Schichtsysteme im Kapitel 4.4 miteinander bezüglich ihrer Anwendungstauglichkeit verglichen. Abschließend werden in Kapitel 4.5 Ergebnisse von Versuchen zur fernabfragbaren Temperaturbestimmung eines der Schichtsysteme dargestellt.

4.1 Mikrostruktur und Textur der Viellagenschichtsysteme

4.1.1 Übersicht

Bei den FeCo/TaN- und FeCo/TiN-Viellagenschichten mit einer nominellen Gesamtschichtdicke von 1 μm wurden der Viellagenaufbau und die Prozessführung variiert. Doppellagen- und Einzellagendicken wurden durch die Anpassung der Haltezeiten unter dem jeweiligen Target während der Schichtherstellung variiert. Hierdurch wurde bei konstanter Gesamtschichtdicke gleichzeitig die Zahl der Lagengrenzflächen verändert. Die bei Abscheidung jeder neuen Lage erzwungene Renukreation und der mit wachsender Anzahl von Lagengrenzflächen zunehmende Einfluss von Grenzflächenenergien konnten neben der Korngrößenverteilung sowohl die Phasenzusammensetzung der Lagen als auch die Textur verändern.

Eine schematische Darstellung der bei konstanten Targetleistungen und konstantem Druck hergestellten Viellagenschichten ist in Abb. 4-1 gezeigt. Die Schichten sind entsprechend ihrer Doppellagendicken, dem Hartstoffmaterial und dem N-Gehalt in den Hartstofflagen klassifiziert. Zudem sind die nachgewiesenen Phasen und, wenn vorhanden, die Textur eingetragen. Es wurden insbesondere die folgenden Ergebnisse deutlich:

- Die FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme bestanden aus krz-FeCo-Lagen, die alternierend mit TaN-Lagen geschichtet waren. Die TaN-Lagen bestanden aus kfz-TaN mit zusätzlichen Anteilen von Ta₂N bei den Schichtsystemen mit hohem N-Defizit und mit zusätzlichen Anteilen von hex-TaN bei den Schichtsystemen mit N-Überschuss.
- Die Reduktion der Doppellagendicke führte bei den TaN-Lagen mit N-Defizit zu einem Texturwechsel von (200) zu (111).
- Die Reduktion der Doppellagendicke führte bei den TaN-Lagen mit N-Überschuss nicht zu einem Texturwechsel. Stattdessen bildeten sich teilkohärente Grenzflächen zwischen den TaN- und den FeCo-Lagen aus.
- Die Reduktion der Doppellagendicke führte, wie in Kapitel 4.1.3 gezeigt wird, bei den FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen zu einer alternierenden Schichtung von metastabilen kfz-(Fe,Co,Ti)N-Lagen und TiN-Lagen in einer heteroepitaktischen Wachstumsbeziehung und stark ausgeprägter (200)-Textur. Eine Folge dieses Wachstums war die Ausbildung säulenförmiger Kristallite.

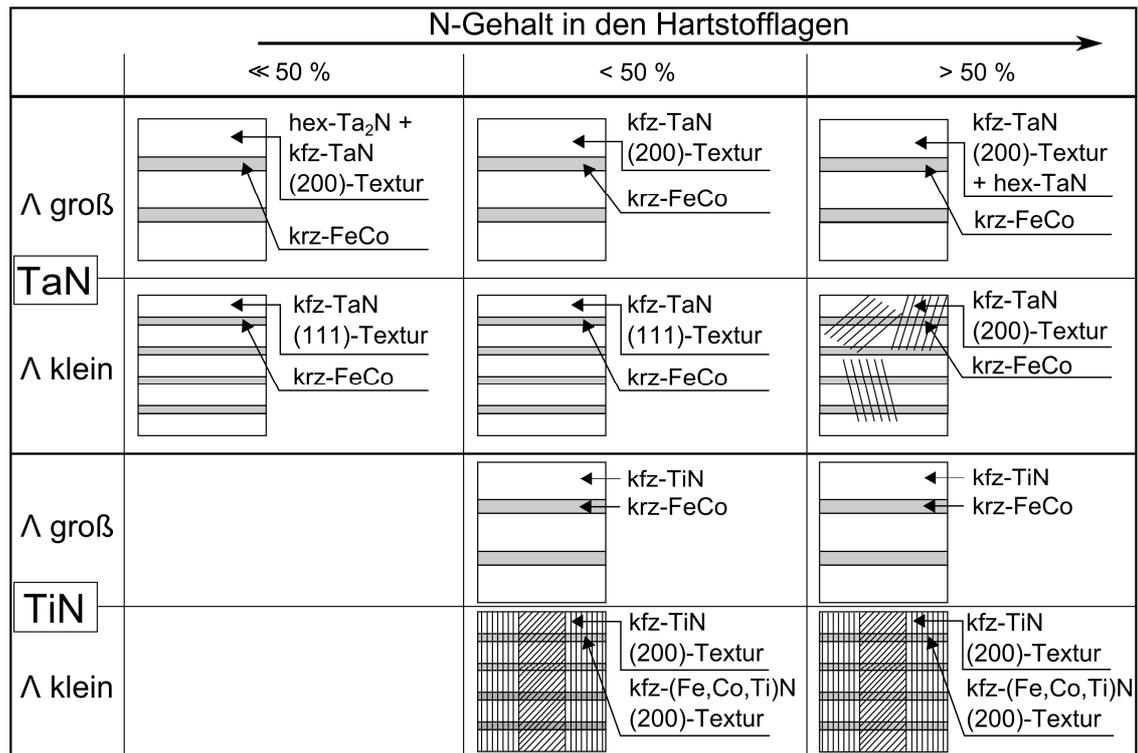


Abb. 4-1 Klassifikation der Schichtsysteme gemäß ihrem Viellagenaufbau, ihrer Mikrostruktur und ihrer Textur im ungeglühten Zustand. Über Lagengrenzen hinauslaufende Schraffierungen kennzeichnen: : teilkohärente Lagengrenzflächen, : kohärente Lagengrenzflächen.

4.1.2 Einfluss des Viellagenaufbaus und des Stickstoffgehalts in den TaN-Hartstofflagen

Ohne Zugabe von N₂ in die Prozessgasatmosphäre bildeten sich stark unterstöchiometrische TaN-Lagen aus, wie aus den AES-Tiefenprofilen hervorging (Abb. 3-2). In den TaN-Lagen wurde eine Elementkonzentration von Ta von ≈ 50 At.-% sowie von N von ≈ 17 At.-% nachgewiesen. Hierbei muss allerdings berücksichtigt werden, dass die in dem Diagramm gezeigten absoluten Werte durch systematische Messartefakte beeinflusst worden sein können, die bei den in dieser Arbeit vorliegenden geringen Lagendicken in der prinzipbedingt begrenzte Auflösung der AES bedingt sind. Dennoch konnte mit den AES-Tiefenprofilen die Ausbildung eines regelmäßigen Viellagenaufbaus während der Schichtherstellung nachgewiesen werden. Die Röntgenbeugungsdiagramme der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme mit hohem Stickstoffdefizit wiesen bei Doppellagendicken $> 12,5$ nm einen dominanten Reflex auf, dessen Schwerpunkt zwischen den Literaturwerten des (200)-Reflexes von kfz-TaN und des (101)-Reflexes von hex-Ta₂N lag (Abb. 3-4 a, b). Bei dem Schichtsystem mit der maximalen Doppellagendicke von 42 nm war eine sich an diesem Reflex entwickelnde Schulter ein weiteres Indiz für das Vorliegen eines signifikanten Anteils von hex-Ta₂N (Abb. 3-4 a, b). Dies kann seinen Grund in der bei geringerer Doppellagendicke höheren Anzahl von Lagengrenzflächen gehabt haben, als deren Folge ein höherer Anteil von Ta-Atomen in die FeCo-Lagen diffundiert ist, der in der Folge nicht mehr für die Bildung einer Ta₂N-Phase zur Verfügung stand. Diese Überlegung ist konsistent mit der Tatsache, dass der Betrag der Standardbildungsenthalpie des kfz-TaN um etwa 18 % größer ist als der von Ta₂N. So bestimmte

Frisk [116] die entsprechenden Werte in Berechnungen zu $-107,6 \text{ kJ mol}^{-1}$ (kfz-TaN) und -91 kJ mol^{-1} (Ta_2N). Bei Doppellagendicken von 9,6 nm und weniger war nur noch ein sehr breiter Reflex vorhanden, der auf das Vorliegen von nanokristallinen TaN-Lagen sehr geringer Korngröße hinwies. Dem Schwerpunkt des Reflexes am nächsten lagen die Literaturwerte für den (111)-Reflex von kfz-TaN, den (002)-Reflex von hex-Ta₂N, und den (101)-Reflex von hex-TaN (Abb. 3-4 a, b).

Auf Grundlage der in Abb. 3-4 a und Abb. 3-4 b gezeigten Röntgenbeugungsdiagramme war wegen der hohen Reflexbreiten keine eindeutige Phasenidentifizierung möglich. Aufgrund der bereits diskutierten thermodynamischen Überlegungen war jedoch von einer bevorzugten Bildung von stöchiometrischen kfz-TaN-Kristalliten auszugehen. Die Veränderung der Röntgenbeugungsdiagramme bei Verringerung der Lagendicken konnte durch eine Änderung in der Textur erklärt werden. Die Abhängigkeit der Textur von der Lagendicke ist ein bei der Abscheidung kolumnar wachsender nitridischer Verbindungen regelmäßig beobachtetes Phänomen [117-119]. Der Grund für diese Texturänderung ist die in vielen Fällen orientierungsabhängige Wachstumsgeschwindigkeit der Kristallite. Bei mit reaktiver Magnetronkathodenzerstäubung hergestelltem kfz-TaN wurde von Noda *et al.* [117] bei moderatem Reaktivgasanteil von 4–7 Vol.-% in der Prozessgasatmosphäre eine (111)-Textur bei dünnen und eine (200)-Textur bei dicken Schichten beobachtet. Bei Reaktivgasanteilen $< 4 \text{ At.-%}$ und $> 7 \text{ At.-%}$ wurde hingegen das gegensätzliche Verhalten beobachtet. Shin *et al.* [118] konnten die Textur bei einem gegebenen Reaktivgasanteil über die Ionisierung der im Prozessgasplasma befindlichen Teilchen einstellen und dadurch die entscheidende Rolle der Wachstumskinetik für die Texturbildung unmittelbar nachweisen. Nach Kajikawa *et al.* [119] führte bei Abscheidung von nitridischen Materialien in Kathodenzerstäubungsprozessen eine Minimierung der Oberflächenenergie zu einer (200)-Textur. Diese Erkenntnis steht im Widerspruch zu den in dieser Arbeit gemachten Beobachtungen. Daraus ließ sich schließen, dass während des Wachstums der für diese Arbeit hergestellten FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme bei hohem Stickstoffdefizit weitere Effekte einen wichtigen Einfluss bei der Texturbildung gespielt haben müssen. Im Gegensatz zu den in den beiden vorgenannten Publikationen beschriebenen Beobachtungen, dass zumindest einige 10 nm dicke Schichten für einen solchen Texturwechsel aufgewachsen sein müssen, erfolgte er bei den in dieser Arbeit hergestellten Schichtsystemen schon bei deutlich geringeren Lagendicken. Dies war ein Hinweis auf einen entscheidenden Einfluss des Energieeintrags durch die Fe- und Co-Atome während des Wachstums einer FeCo-Lage auf einer TaN-Lage, was wiederum konsistent mit den oben beschriebenen Beobachtungen von Shin *et al.* [118] ist. Magnetfeldglühen für 60 min bei 600 °C im Vakuum führte zu keiner signifikanten Veränderung der Mikrostruktur, die sich auf das Aussehen der Röntgenbeugungsdiagramme ausgewirkt hätte. Es war kein der Fe₅₀Co₅₀-Phase zuzuordnender Reflex identifizierbar, was auf sehr geringe Kristallitgrößen oder das Vorliegen als amorphes Netzwerk hindeutete.

Die Herstellung der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme in Ar/N₂-Atmosphäre mit einem Stickstoffanteil von $\approx 10 \text{ Vol.-%}$ führte ebenfalls zu einer alternierenden Ausbildung von FeCo- und TaN-Lagen. Im AES-Tiefenprofil der Viellagenschicht mit $\Lambda = 5,1 \text{ nm}$ wiesen die TaN-Lagen mit einer Ta-Elementkonzentration von $\approx 52 \text{ At.-%}$ und einer N-Elementkonzentration von $\approx 42 \text{ At.-%}$ ein geringes Stickstoffdefizit auf (Abb. 3-9). Bei einer Doppellagendicke von 8,3 nm oder mehr deutete ein breiter Reflex im Röntgenbeugungsdiagramm auf überwiegendes Vorliegen von kfz-TaN mit (200)-Textur hin (Abb. 3-10 a, b). Der

Überschuss von Ta-Atomen gegenüber N-Atomen machte aufgrund des hohen Betrags der Standardbildungsenthalpie der Ta₂N-Phase deren Koexistenz mit kfz-TaN wahrscheinlich, obwohl sie durch die Röntgenbeugungsdiagramme nicht hinreichend bestätigt werden konnte. Der Glühprozess führte zu einer Verschiebung des dominanten Reflexes auf eine Position nahe dem Literaturwert des (200)-Reflexes von kfz-TaN. Neben dem Abbau von Gitterverspannungen deutete diese Verschiebung ebenfalls auf überwiegendes Vorliegen von kfz-TaN hin, welches die im thermodynamischen Gleichgewicht favorisierte Phase ist. Hierbei war bei Wachstum der kfz-Kristallite aufgrund der Reaktion



die Entstehung von einer zusätzlichen rein metallischen Ta-Phase möglich, wobei für einen direkten röntgenographischen Nachweis ausreichende Korngrößen nicht erreicht wurden. Bei dem ungeglühten Schichtsystem mit geringer Doppellagendicke von 5,1 nm deuteten sowohl das Röntgenbeugungsdiagramm als auch das Elektronenbeugungsdiagramm (Abb. 3-12 c) auf das überwiegende Vorliegen von TaN in kubisch-flächenzentrierter Kristallstruktur hin. Zwei Beugungsringe an den für hex-Ta₂N erwarteten Positionen im Beugungswinkelbereich von 70–80° deuteten darüber hinaus auf einen zusätzlich vorhandenen Anteil dieser Phase hin. Wie auch bei hohem Stickstoffdefizit führte die Reduktion der Doppellagendicke, hier auf 5,1 nm, zu einem Wechsel in der kristallinen Vorzugsorientierung der kubisch-flächenzentrierten Phase von (200) auf (111). Das Glühen führte neben dem Wachstum der Körner zu einer weitgehenden Beseitigung der Textur. Wie bei den Schichtsystemen mit hohem Stickstoffdefizit deutete die nachgewiesene Textur auf einen entscheidenden Einfluss des Energieeintrags während des Schichtwachstums auf Mikrostruktur und Textur hin. Außerdem bestätigten die Ergebnisse der Elektronenbeugungsuntersuchungen, auch bei der geringen Doppellagendicke von 5,1 nm, eine Umwandlung der Ta₂N-Phase, die nach dem Glühen nicht mehr nachzuweisen war (Abb. 3-12 d). Dies ließ sich nach Gl. (4.1) als Folge der Bildung der thermodynamisch stabilen TaN-Phase erklären.

Ein N₂-Anteil in der Prozessgasatmosphäre von ≈ 20 Vol.-% führte erwartungsgemäß zu einem höheren Stickstoffanteil in den Schichtsystemen. Mit AES-Tiefenprofilen an dem Schichtsystem mit der geringsten Doppellagendicke von 4,5 nm wurde in den TaN-Lagen eine Ta-Konzentration von 44 At.-% bei einer N-Konzentration von 48 At.-% nachgewiesen (Abb. 3-19). Bei dem Viellagenschichtsystem mit einer Doppellagendicke von 9,3 nm bestätigte das Röntgenbeugungsdiagramm die Koexistenz von kfz-TaN und hex-TaN (Abb. 3-20 a, b). Die TEM-Beugungsabbildungen der Viellagenschichtsysteme mit der geringsten Doppellagendicke von 4,5 nm wiesen das Vorliegen von hochtexturiertem kfz-TaN mit der Vorzugsorientierung der (200)-Ebene parallel zur Substratebene nach (Abb. 3-22 c). Hinweise auf das partielle Vorliegen von hex-TaN waren hier nicht mehr gegeben. Die mit steigendem Stickstoffgehalt zunehmende Bevorzugung einer (200)-Textur bei Wachstum von kfz-TaN entsprach den bereits oben beschriebenen Beobachtungen von Noda *et al.* [117]. Der bei Vergleich mit den Viellagenschichtsystemen mit Stickstoffdefizit beobachtete Unterschied in der Textur kann ein Hinweis auf einen verringerten Energieeintrag während des Schichtwachstums gewesen sein. Dies ist konsistent mit der Erwartung, dass mit zunehmendem N₂-Anteil in der Prozessgasatmosphäre die beiden Targets mit nitridischen Verbindungsprodukten bedeckt wurden. Der in der Folge notwendige zusätzliche Energieaufwand zur Zerstäu-

bung dieser Schichten an den Targetoberflächen stand nicht mehr für die Beschleunigung zerstäubten Targetmaterials zur Verfügung.

Das Glühen des Schichtsystems mit der geringsten Doppellagendicke von 4,5 nm führte zu Durchmischung an den Lagengrenzflächen, wie durch die XRR-Diagramme (Abb. 3-18 b) und das entsprechende AES-Tiefenprofil (Abb. 3-19 b) nachgewiesen wurde. Diese Abnahme der Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus war allerdings erst bei einer Glühtemperatur von 600 °C nachweisbar und weniger ausgeprägt als bei den Viellagenschichtsystemen mit geringem Stickstoffdefizit in den TaN-Lagen. Ein Grund für die erhöhte Temperaturstabilität gegenüber Glühen bis zu Temperaturen von 600 °C im Vakuum kann darin bestanden haben, dass genügend N-Atome für Bindungen mit Ta-Atomen zur Verfügung standen und mit diesen Verbindungen eingingen mit der Folge, dass die für Diffusionsprozesse aufzubringenden Aktivierungsenergien stiegen.

4.1.3 Heteroepitaktisches Säulenwachstum mit TiN-Hartstofflagen

In den in Abb. 3-28 gezeigten Röntgenbeugungsdiagrammen waren bei geringen Doppellagendicken $< 4,3$ nm zwei Reflexe um die Position des Literaturwerts des (200)-Reflexes von TiN in kubisch-flächenzentrierter Kristallstruktur vom NaCl-Typ zu erkennen. Bereits bei $\Lambda = 8,8$ nm deutete die Elektronenbeugungsaufnahme auf eine Mikrostruktur mit stark ausgeprägter Textur hin, wie in Abb. 3-31 c zu sehen war. Ein ähnliches Beugungsmuster trat bei der Elektronenbeugung am Querschnitt des Viellagenschichtsystems mit der geringsten Doppellagendicke von 2,6 nm auf (Abb. 3-33 a). Im Vergleich dieser beiden Beugungsabbildungen war bei $\Lambda = 2,6$ nm die Ausdehnung der Reflexe geringer, was auf eine stärker ausgeprägte Textur und eine geringere Schwankungsbreite der Gitterparameter hindeutete. Außerdem hatten sich zusätzliche Übergitterreflexe ausgebildet, die eine Folge der hohen Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus waren. Die Indizierung der Beugungsmuster war bei Annahme des Vorliegens von Kristalliten in kfz-Kristallstruktur verschiedener Orientierung möglich. Die Kristallite waren hierbei sehr stark (002)-texturiert, wobei für die hier durchgeführte Indizierung die Wachstumsrichtung als die [002]-Richtung gewählt wurde. Eine Vorzugsorientierung der (200)- und der (020)-Ebenen lag hingegen nicht vor. Die entsprechende Indizierung ist in Abb. 3-33 b ausgeführt. Die stark ausgeprägte Textur im Viellagenschichtsystem mit $\Lambda = 8,8$ nm war in der in Abb. 3-31 b gezeigten hochaufgelösten TEM-Aufnahme zu erkennen. Noch deutlicher manifestierte sich diese stark ausgeprägte Textur in der in Abb. 3-32 c gezeigten hochaufgelösten TEM-Abbildung des Schichtsystems mit $\Lambda = 2,6$ nm. In dieser verliefen Gitternetzebenen über die Lagengrenzflächen hinweg. Das Viellagenschichtsystem wuchs also in einer lokal (hetero-)epitaktischen Beziehung auf. Sowohl der regelmäßige Viellagenaufbau als auch die Mikrostruktur blieben nach dem Glühen für 60 min bei 600 °C erhalten.

Gemäß dem in Abb. 1-5 gezeigten Phasendiagramm des Fe-Co-Stoffsystems existiert eine kfz-Kristallstruktur von $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$, die jedoch unter Atmosphärendruck nur bei Temperaturen oberhalb von etwa 980 °C stabil ist. Über die Stabilisierung von kubisch-flächenzentriertem $\text{Fe}_x\text{Co}_{1-x}$ bei Raumtemperatur wurde in der Literatur bereits berichtet. Es wurden sowohl pseudomorph gewachsenen Einlagen- [120, 121] und Viellagenschichten [122] hergestellt als auch Schichten, in denen $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ -Nanokristallite in einer amorphen Matrix eingebettet

waren [123]. Ein Vergleich der bereits in Tab. 1-1 und Tab. 1-3 aufgelisteten Gitterparameter a_{FeCo} von kfz- $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ und a_{TiN} von TiN in pseudo-kfz-Kristallstruktur vom NaCl-Typ ergibt mit

$$(a_{\text{TiN}} - a_{\text{FeCo}})/a_{\text{TiN}} = 0,151 \quad (4.2)$$

eine relative Abweichung der Gitterparameter um ca. 15 %. Eine solche Abweichung ist zu groß, um eine durch pseudomorphes Wachstum bedingte Stabilisierung der kubisch-flächenzentrierten Nichtgleichgewichtsstruktur von $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ zu ermöglichen.

Neben den FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen mit unterschiedlichem Viellagenaufbau wurden für diese Arbeit FeCo/TiN-Viellagen mit unverändertem Viellagenaufbau unter Variation der FeCo-Targetleistung und des Prozessgasdrucks abgeschieden. Die entsprechenden Ergebnisse wurden in Kapitel 3.3 vorgestellt. Die FeCo-Targetleistung und der Prozessgasdruck wurden hierbei mit dem Ziel variiert, den Einfluss der kinetischen Energie schichtbildender Teilchen auf die Mikrostruktur und die Textur der Viellagenschichtsysteme zu untersuchen. Wie auf dem in Abb. 3-43 a und b gezeigten Röntgenbeugungsdiagramm zu erkennen war, führte eine FeCo-Targetleistung von 100 W bei der Herstellung der Viellagenschichtsysteme zur Ausbildung eines Reflexes, der den (200)-Netzebenen von kfz-TiN vom NaCl-Typ zuzuordnen war. Bei weiterer Erhöhung der FeCo-Targetleistung wurde dieser Reflex durch zwei um dessen Position angeordnete Reflexe ersetzt. Neben der kinetischen Energie der auf der zuvor abgeschiedenen TiN-Lage auftreffenden Fe- und Co-Atome war auch deren Depositionsrates bei geringeren Leistungen geringer. Die in Abb. 3-43 c gezeigten Röntgenbeugungsdiagramme der bei einer FeCo-Targetleistung von 50 W bei entsprechender Verlängerung der Depositionszeiten hergestellten Viellagenschichtsysteme unterschieden sich von den Beugungsdiagrammen der bei FeCo-Targetleistungen von 250 W hergestellten Schichten auch bei gleichen Werten von d_{FeCo}/Λ . Hierdurch konnte implizit nachgewiesen werden, dass eine genügend hohe kinetische Energie und Depositionsrates der Fe- und Co-Atome notwendig für die oben beschriebene Phasenbildung waren.

Aus den genannten Ergebnissen wurde gefolgert, dass die hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme bei kleinen Werten für Λ sowie genügend hoher kinetischer Energie der schichtbildenden Teilchen aus alternierenden Schichtungen von kfz-(Fe,Co,Ti)N-Lagen und kfz-TiN-Lagen vom NaCl-Typ bestanden. Dies wird im Folgenden erläutert. Es ist bekannt, dass mit PVD-Verfahren hergestellte $\text{Ti}_{50+x}\text{N}_{50-x}$ -Einlagenschichten sich in einem weiten Bereich von x -Werten in kfz-Kristallstruktur ausbilden. Diese Kristallstruktur ist in diesem Bereich metastabil und nicht von dem Gleichgewichtsphasendiagramm für das Stoffsystem Ti-N [124] vorhergesagt. Gemäß den Phasendiagrammen der Stoffsysteme Fe-N [125] und Co-N [126] existieren in beiden Materialsystemen stickstoffarme Phasen in kfz-Kristallstruktur. Als weiteres Indiz für die Bildung einer kfz-(Fe,Co,Ti)N-Mischkristallphase können Experimente von Kirsten *et al.* [127] dienen. In diesen wurden Einlagenschichten einer (Ti,Fe)N-Mischkristallphase in kubisch-flächenzentrierter Kristallstruktur hergestellt, in deren Gittersystem $\approx 13\%$ der Ti-Atome durch Fe-Atome ersetzt wurden. Diese Überlegungen unterstützen die Hypothese, dass eine (Fe,Co,Ti)N-Substitutionsmischkristallphase in kubisch-flächenzentrierter Kristallstruktur Bestandteil der in dieser Arbeit hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme war, wenn die kinetische Energie der schichtbildenden Teilchen und die Depositionsrates genügend hoch sowie die FeCo-Lagendicke genügend gering waren. Der resultierende Viellagenaufbau ist in Abb. 4-2 schematisch dargestellt.

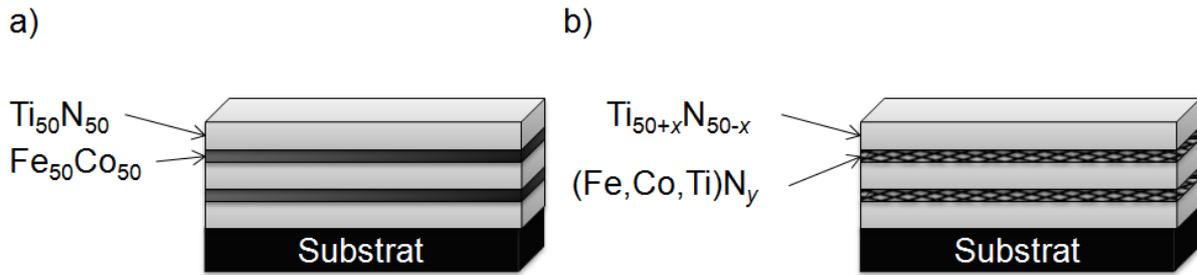


Abb. 4-2 Illustrationen a) der erwarteten und b) der beobachteten Elementzusammensetzung der Lagen in den FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen mit geringer FeCo-Lagendicke. Nach [115].

Es wird ein Modell für das Wachstum der betrachteten Viellagenschichtsysteme vorgeschlagen, das in Abb. 4-3 schematisch dargestellt ist. Die gezeigten Prozesse sind:

- Eine TiN-Lage mit ungefähr gleichem Anteil beider Atomsorten wird abgeschieden. Die TiN-Lage wächst in ihrer kfz-Gleichgewichtskristallstruktur auf.
- Fe- und Co-Atome treffen mit hoher Energie auf dieser TiN-Lage auf. Die kinetische Energie und der mögliche Impulsübertrag sind ausreichend hoch für den Einbau dieser Atome in die obersten Atomlagen.
- Dort entsteht durch Bildung von Substitutionsmischkristallen eine (Fe,Co,Ti)N-Lage. Ist diese (Fe,Co,Ti)N-Lage dünner als eine kritische Dicke $d_{\text{FeCo, krit}}$, so bleibt die kubisch-flächenzentrierte Kristallstruktur der ursprünglichen TiN-Lage erhalten, und die anschließend auf der (Fe,Co,Ti)N-Mischkristalllage abgeschiedene TiN-Lage wächst in heteroepitaktischer Beziehung zu dieser. Dies führt dann zu einer Stabilisierung

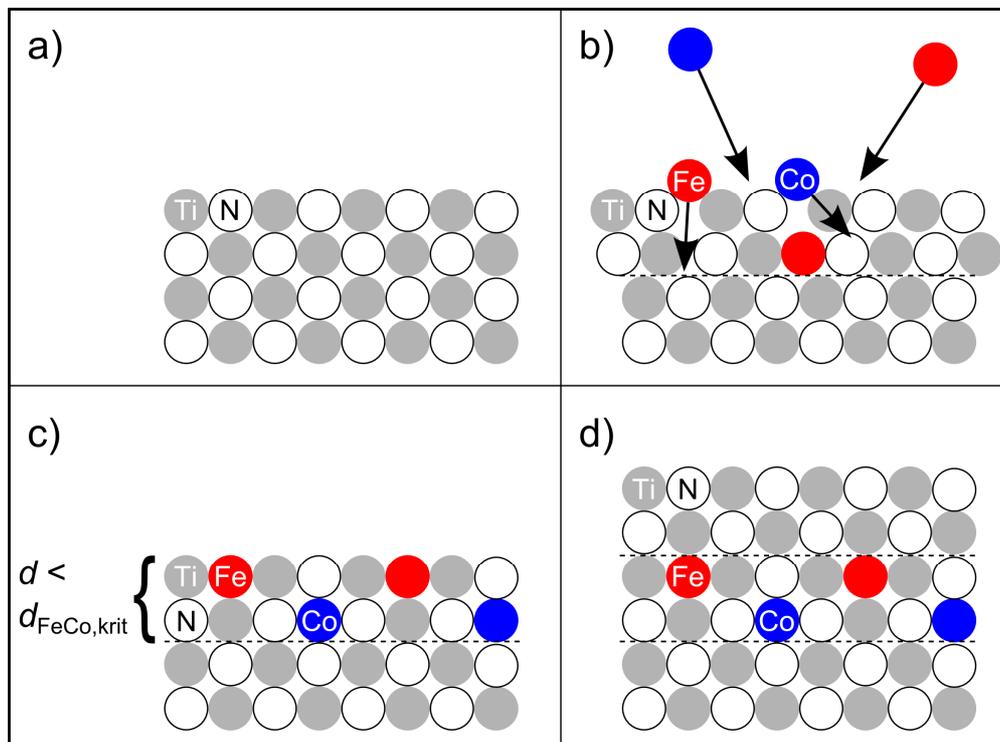


Abb. 4-3 Modell des Wachstums der (Fe,Co,Ti)N/TiN-Viellagenschichten.

der Kristallstruktur des (Fe,Co,Ti)N-Mischkristalls. Das oben beschriebene Wachstum dieser metastabilen Schicht findet bis zu einer kritischen Dicke statt, die durch die Möglichkeit der Bildung von Versetzungen begrenzt wird [128]. Da das FeCo/TiN-Viellagenschichtsystem mit $\Lambda = 8,8$ nm die beschriebene Mischkristallbildung noch aufwies, kann die untere Grenze dieser kritischen Dicke unter Berücksichtigung der Depositionsraten also zu mindestens 2,2 nm abgeschätzt werden.

- d) Das Ergebnis ist das Wachstum eines (Fe,Co,Ti)N/TiN-Viellagenschichtsystems mit heteroepitaktisch stabilisierten, kolumnar gewachsenen Kristalliten in kubisch-flächenzentrierter Kristallstruktur.

Der Einbau der Fe- und der Co-Atome in das TiN-Gitter bietet sich als Erklärung für die hohe thermische Stabilität des Viellagenaufbaus an. Als Folge des epitaktischen Wachstums ist die Gesamtheit der in einem solchen Schichtsystem vorhandenen Korngrenzflächen deutlich reduziert. Für eine Abnahme der Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus ist daher in einem höheren Maß Volumendiffusion notwendig, die im Vergleich zu Oberflächen- und Korngrenzendiffusion im Allgemeinen deutlich langsamer stattfindet. Zudem wird erwartet, dass die Einbindung der Fe- und Co-Atome in die Mischkristallstruktur für die Diffusion dieser Atome eine im Vergleich zu rein metallischen Lagen erhöhte Aktivierungsenergie erforderte. Es wurde explizit gezeigt, dass Glühen für 60 min bei 600 °C im Vakuum zu keiner nachweisbaren Abnahme der Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus führte (Abb. 3-26, Abb. 3-27). In ergänzenden Experimenten wurde dies für Temperaturen bis einschließlich 750 °C bestätigt. Bei einer Glühtemperatur von 800 °C delaminierte die Schicht während des Glühens, wahrscheinlich als Folge der Unterschiede der thermischen Ausdehnungskoeffizienten der beiden Materialien und des Substrates (Si-Einkristall).

Für die Erklärung der in den Röntgenbeugungsdiagrammen bei geringer Doppellagendicke auftretenden zusätzlichen Reflexe werden im Folgenden drei Ansätze erörtert. Wie dargestellt, bildete sich bei $\Lambda \leq 8,8$ nm ein Viellagenaufbau aus, in dem kfz-(Fe,Co,Ti)N-Lagen mit kfz-TiN-Lagen abwechselnd aufeinander geschichtet und hierbei in heteroepitaktischer Beziehung zueinander gewachsen waren. In Abb. 3-28 waren bei geringen Doppellagendicken von $\leq 4,3$ nm zwei Reflexe um die erwartete Position des (200)-Reflexes von kfz-TiN zu sehen. Dies konnte mit dem Vorliegen zweier Materialien mit unterschiedlichen Gitterparametern erklärt werden. Das Einbringen von Fe- und Co-Atomen in das TiN-Gitter ließ aufgrund des Vergleichs der Literaturwerte der beiden Materialien in kfz-Kristallstruktur eine Reduktion der Gitterparameter erwarten (Tab. 1-1, Tab. 1-3). Folge hiervon war eine Verschiebung des ursprünglichen (200)-Reflexes von TiN in die Richtung größerer Beugungswinkel. Bei (hetero-)epitaktischem Wachstum führt die Anpassung aufeinander wachsender Kristallite unterschiedlicher Gitterparameter zu einer Verspannung der Kristallgitter. Das TiN-Kristallgitter als das mit dem höheren Netzebenenabstand wurde in der Substratebene kontrahiert und dehnte sich in der Folge in Wachstumsrichtung aus, was sich in einer Verschiebung des (200)-Reflexes in Richtung kleinerer Beugungswinkel manifestierte. Der umgekehrte Effekt führte bei dem (200)-Reflex der (Fe,Co,Ti)N-Mischkristalllagen zu einer Verschiebung in Richtung größerer Beugungswinkel.

In einem einfachen Modell ist bei Viellagenschichten zweier Materialien unter Annahme perfekt kohärenter Grenzflächen neben den Gitterparametern der beiden Schichtmaterialien ent-

lang der Wachstumsrichtung die Entfernung zwischen zwei Lagen der beiden verschiedenen Materialien als dritter Gitterparameter vorhanden. In einem solchen System führt die Überlagerung von gestreuter Röntgenstrahlung zur Bildung von Übergitterreflexen. Auf Basis dieses Modells gelang es Schuller [129], Röntgenbeugungsdiagramme von unter kohärenter Grenzflächenbildung gewachsenen Cu/Nb-Viellagenschichtsystemen zu simulieren. Das Modell wurde später von Fullerton *et al.* [130] erweitert und an den Röntgenbeugungsdiagrammen von unterschiedlichen Metall/Metall-Viellagenschichtsystemen demonstriert. Auf Grundlage dieses Modells konnte die Position der Reflexe in den gemessenen Röntgenbeugungsdiagrammen mit

$$\frac{2 \sin \Theta}{\lambda} = \frac{1}{\bar{a}} + \frac{k}{\Lambda} \quad (4.3)$$

berechnet werden. In Gl. (4.3) sind λ die Wellenlänge der verwendeten Röntgenstrahlung, \bar{a} der gewichtete Mittelwert der Gitterparameter der beiden Lagenmaterialien, Λ die Doppellagendicke und k die Ordnung des Übergitterreflexes. In Abb. 4-4 sind nun für die drei Fe-Co/TiN-Viellagenschichtsysteme mit $x = d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,25$ und $\Lambda \leq 5,5 \text{ nm}$ entsprechende Modellberechnungen hierzu gezeigt. Aus den mit dem Pfeil markierten und als Reflexe nullter Ordnung angenommenen Reflexen wurden die mittleren Gitterparameter berechnet. Diese wurden dann verwendet, um gemäß Gl. (4.3) die Positionen der Übergitterreflexe zu ermitteln und in die Diagramme einzutragen. Qualitativ konnte bei allen drei Beugungsdiagrammen eine gute Übereinstimmung der Reflexpositionen mit den berechneten Werten konstatiert werden. Dies galt vor allem auch für die Reflexe an Positionen mit Beugungswinkeln zwischen 50° und 65° , deren Ursprung mit Hilfe der betrachteten Literaturwerte für Röntgenbeugung an kfz-TiN und an krz-Fe₅₀Co₅₀ nicht erklärt werden konnte. Die zwei vorgestellten Ansätze konnten auf Grundlage des vorgestellten Wachstumsmodells mögliche Ursachen für die Bildung zweier Reflexe um die Position des Literaturwerts des (200)-Reflexes von kfz-TiN plausibel machen.

Ein weiterer Aspekt für die Erklärung des Ursprungs der im Bereich zwischen 50° und 65° nachgewiesenen Beugungsreflexe wird im Folgenden erklärt: Die metallischen Komponenten in den (Fe,Co,Ti)N-Mischkristalllagen waren *a priori* zufällig verteilt. Außerdem führte die zu erwartende Durchmischung der Materialien an den Lagengrenzflächen zu Übergängen mit gradierter Verteilung der Atomsorten. Unter diesen Bedingungen war zu erwarten, dass die Rotationssymmetrie der (Fe,Co,Ti)N-Kristallite mit statistischer Verteilung der Metallatome geringer war als die der kubisch-flächenzentrierten TiN-Kristallite, in welchen die Ti- und die N-Atome wie im NaCl-Kristall abwechselnd angeordnet sind. In der Folge würden die für Beugung an kubisch-flächenzentrierten Kristallen vom NaCl-Typ geltenden Auswahlregeln und allgemein die erwartete Beugungsintensitätsverteilung ungültig und die Ausbildung von zusätzlichen Reflexen möglich geworden sein. Mit dieser Erklärung ließe sich ebenfalls die Bildung des bei Elektronenbeugung am FeCo/TiN-Viellagenschichtsystem mit der geringsten Doppellagendicke etwa auf halber Strecke zwischen dem (002)-Reflex und dem (004)-Reflex entstehenden Reflexes erklären (Abb. 3-31). Unter der obigen Annahme konnte dieser Reflex unmittelbar mit (003) indiziert werden.

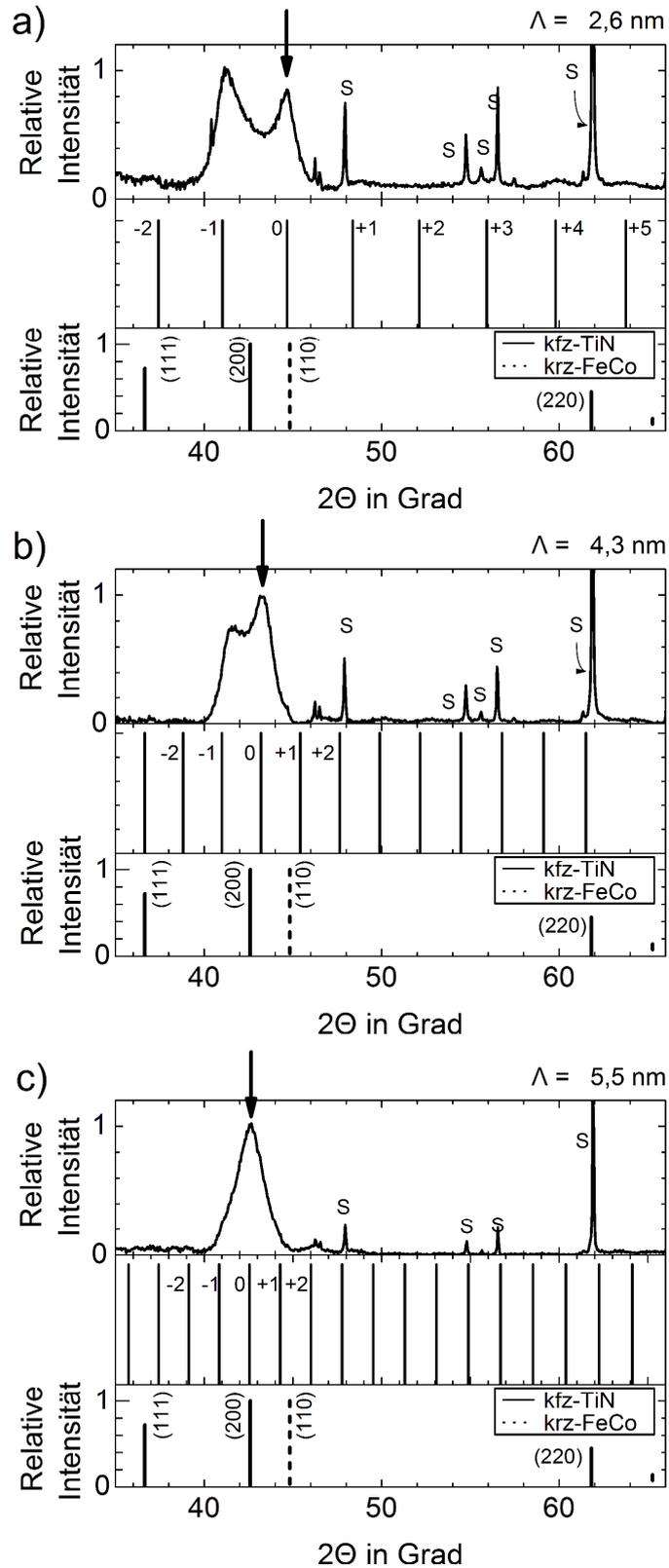


Abb. 4-4 Vergleich der Röntgenbeugungsdiagramme der ungeglühten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme mit $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,25$ und $\Lambda \leq 5,5 \text{ nm}$ mit den nach Gl. (4.3) ermittelten Positionen der Übergitterreflexe. Die mit „S“ gekennzeichneten Reflexe entstanden durch Beugung am Substrat.

4.2 Mechanische Eigenschaften

Im Folgenden wird diskutiert, welchen Einfluss der Viellagenaufbau der Schichtsysteme auf ihre mechanischen Eigenschaften hatte. Hierbei wird sowohl auf die Eigenschaften der ungeglühten als auch der geglähten Proben eingegangen.

4.2.1 Härte

Eine schematische Übersicht über die wesentliche Abhängigkeit der Härte der FeCo/TaN- und FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme, sowohl ungeglüht als auch nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum, von dem Viellagenaufbau und der aus diesem resultierenden Mikrostruktur sowie Textur ist in Abb. 4-5 gezeigt.

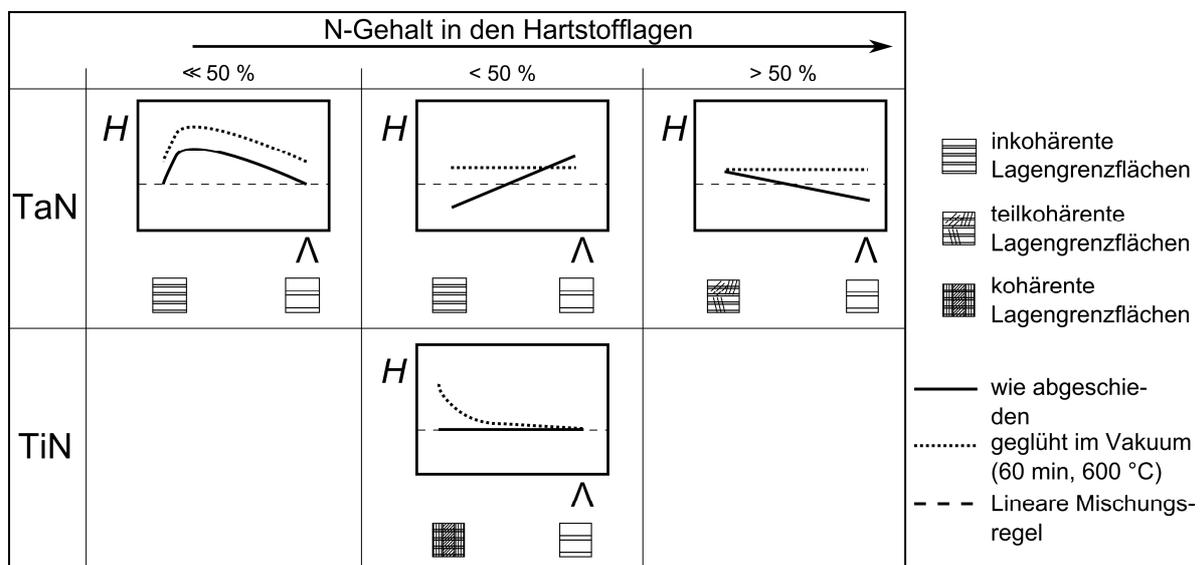


Abb. 4-5 Darstellung der Abhängigkeit der Härte der Viellagenschichtsysteme von dem Viellagenaufbau.

Bei den Schichtsystemen mit stark unterstöchiometrischen TaN-Hartstofflaggen wies die Härte in Abhängigkeit von der Doppellagendicke sowohl im ungeglühten als auch im geglähten Zustand ein Maximum auf, wobei die nach dem Glühen gemessenen Werte höher waren. Bei der geringsten Doppellagendicke sowie bei großen Doppellagendicken entsprach die Härte im ungeglühten Zustand dem jeweils mit der Linearen Mischungsregel berechneten Wert. Bei ungeglühten FeCo/TaN-Viellagenschichten mit geringem Stickstoffdefizit hingegen sank die Härte mit sinkender Doppellagendicke, während sie bei geringem Stickstoffüberschuss mit sinkender Doppellagendicke stieg. Nach dem Glühen war die Härte in beiden Fällen von der Doppellagendicke unabhängig und übertraf den mit der Linearen Mischungsregel berechneten Wert. Bei den ungeglühten FeCo/TaN-Viellagenschichten mit geringem Stickstoffüberschuss stieg die Härte mit sinkender Doppellagendicke an. Nach dem Glühen war die Härte von Λ unabhängig, und die gemessenen Härtewerte waren größer als die nach der Linearen Mischungsregel berechneten Werte. Bei FeCo/TiN-Viellagenschichten mit mittleren und hohen Doppellagendicken wurden sowohl im ungeglühten als auch im geglähten Zustand Härtewerte gemessen, die den Werten der Linearen Mischungsregel entsprachen. Bei geringen Doppellagendicken wies das FeCo/TiN-Viellagenschichtsystem vor dem Glühen ei-

ne der Linearen Mischungsregel entsprechende Härte auf, während nach dem Glühen eine signifikante Erhöhung der Härte um bis zu 36 % gemessen wurde.

Die Härte von Festkörpern ist keine rein intrinsische Eigenschaft, sondern wird stark durch extrinsische Einflussfaktoren bestimmt. Der intrinsische Anteil der Härte ist hierbei im Allgemeinen von der Orientierung der Kristallite abhängig. Bei einem Vergleich der Härteverläufe der FeCo/TaN-Viellagenschichten mit der Texturänderung durch Änderung des Viellagenaufbaus innerhalb einer Schichtserie war jeweils eine Reduzierung der Härte bei Wechsel der Textur des kfz-TaN von (200) zu (111) zu erkennen. Während keine Literatur über die Orientierungsabhängigkeit der Härte von TaN gefunden werden konnte, wurde in der Literatur für TiN beschrieben, dass auf seiner (111)-Ebene eine höhere Härte gemessen wurde als auf seiner (200)-Ebene [131]. Aufgrund des analogen Aufbaus der Einheitszellen von kfz-TaN und kfz-TiN wird erwartet, dass die gleiche Orientierungsabhängigkeit für beide Materialien vorliegt. Da die Änderung der Härte mit der Textur bei den FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen diesen Erwartungen nicht entsprach, müssen zusätzliche extrinsische Einflussgrößen, wie beispielsweise die Kristallitgrößenverteilung oder die Lagengrenzflächenbeschaffenheit, die Härte der hergestellten FeCo/TaN-Viellagenschichten dominierend beeinflusst haben.

Es steht nur eine geringe Zahl von Veröffentlichungen zur Verfügung, in denen über die thermisch bedingte Veränderung der Härte von Viellagenschichten berichtet wird. In vielen in diesen Veröffentlichungen beschriebenen Schichtsystemen waren die einzelnen Lagen durch vorwiegend inkohärente Grenzflächen voneinander getrennt, wie es auch bei den in dieser Arbeit hergestellten FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen der Fall war. So schieden Lee *et al.* [132] TiB₂/TiC-Viellagenschichtsysteme ab, in denen beide Materialien amorph vorlagen. Bei den ungeglühten Schichten maßen die Autoren bei Doppellagendicken zwischen 4 nm und 8 nm Härtewerte, die deutlich über dem mit der Linearen Mischungsregel berechneten Wert lagen. Ein weiterer signifikanter Anstieg der Härte konnte durch einstündiges Glühen bei 1000 °C in einer Schutzgasatmosphäre erreicht werden. Die Autoren führten diese Härteerhöhung auf die Kristallisation der Lagen beider Materialien zurück. In TiN/TiB₂-Viellagenschichten konnten Martin *et al.* [133] den gleichen Effekt nachweisen. Auch sie führten die Ergebnisse auf thermisch bedingte Kristallisation zurück. Bei den in dieser Arbeit hergestellten unterstöchiometrischen FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen ist das Vorliegen einer hohen Zahl von nicht mit N-Atomen gebundenen Ta-Atomen zu erwarten gewesen. Mit deren Kristallisation konnten die beobachteten Härteerhöhungen bei diesen Schichtsystemen mit dem Glühen erklärt werden.

Bei den FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen war insbesondere auffällig, dass die Schichten mit $\Lambda \leq 8,8$ nm nach dem Glühen deutlich härter als die übrigen Schichten dieser Schichtserie waren. Es handelte sich dabei um die Viellagenschichten, die durch heteroepitaktische Lagenschichtung aufwuchsen (vgl. Kapitel 4.1.3). Vergleichbare Ergebnisse wurden am Beispiel von ebenfalls heteroepitaktisch aufgewachsenen, allerdings ungeglühten, Schichten in der Literatur vorgestellt. So konnten Andersen *et al.* [134] bei heteroepitaktisch gewachsenen TiN/TiAlN-Viellagenschichten Härtewerte nachweisen, die leicht oberhalb des mit der Linearen Mischungsregel berechneten Wertes lagen. Diese nur leichte Erhöhung der Härte führten sie auf die Ausbildung einer defektreichen Mikrostruktur zurück. Junhua *et al.* [78] gelang es, in Serien von TaN/TiN- sowie TaWN/TiN-Viellagenschichtsystemen gegenüber dem

jeweils mit der Linearen Mischungsregel berechneten Wert eine Härtesteigerung um 41 % und 72 % zu erreichen, wobei das Härtemaximum in einem kleinen Bereich geringer Doppellagendicken von wenigen Nanometern gemessen wurde. Geyang *et al.* [135] konnten Schichtsysteme ähnlicher Mikrostruktur durch die alternierende Schichtung von TiN- und NbN-Lagen herstellen. Diese Schichtserie wies bei $\Lambda = 8,3$ nm ein Härtemaximum auf. Vergleichbare Ergebnisse finden sich beispielsweise auch bei Söderberg *et al.* [136, 137] für TiN/SiN_x-, bei Kim *et al.* [138] für TiN/AlN-, bei Li *et al.* [139] für AlN/VN- und bei Lao *et al.* [140] für TiN/SiC-Viellagenschichtsysteme. Zur Erklärung der Härteerhöhung wurden die bekannten Mechanismen zur Verhinderung von Versetzungsbewegungen, wie die durch Koehler [141] für Viellagenschichten aus amorphen Lagen beschriebenen unterschiedlichen Schubmoduln der Lagenmaterialien, und die durch kohärente Lagengrenzflächen verursachten Gitterverspannungen bei unterschiedlichen Gitterparametern oder verschiedenen thermischen Ausdehnungskoeffizienten der beteiligten Materialien genannt. Dass eine Härteerhöhung bei geringen Doppellagendicken der FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme in dieser Arbeit nur bei den geglühten Schichten gemessen wurde, könnte durch eine Kompensation von die Härte erhöhenden Mechanismen durch in den ungeglühten Schichten vorhandenen Leerstellen verursacht worden sein. Hierfür wurde jedoch kein direkter Nachweis gefunden.

Nach dem 60-minütigen Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum war die Härte der (Fe,Co,Ti)N/TiN-Viellagenschichtsysteme deutlich gegenüber den vor dem Glühen gemessenen Werten erhöht. Auch eine durch Glühen verursachte Härteerhöhung bei heteroepitaktisch gewachsenen Schichten ist in der Literatur dokumentiert. So stellten Zeng *et al.* [142] heteroepitaktisch gewachsene TiN/CrN-Viellagenschichtsysteme her, deren Eigenschaften sie im ungeglühten Zustand und nach jeweils 60-minütigem Glühen bei 400 °C sowie 750 °C in Umgebungsluft untersuchten. Das Schichtsystem mit Viellagenaufbau wies nach dem Glühen bei 400 °C eine gegenüber dem ungeglühten Schichtsystem um wenige Prozent erhöhte Härte auf, die nach dem Glühen bei 750 °C dann um etwa 15 % gesunken war. Die Erhöhung der Härte führten die Autoren auf eine Verbesserung der Lagengrenzflächenstruktur zurück, ohne jedoch auf die zugrundeliegenden Mechanismen näher einzugehen. Die bei höherer Glühtemperatur beobachtete Härtereduktion wurde mit der Oxidation des Schichtsystems erklärt, die bei den in dieser Arbeit hergestellten Schichtsystemen aufgrund der Durchführung der Glühprozesse im Vakuum keine Rolle spielte. Barshilia *et al.* hingegen wiesen bei heteroepitaktischen Viellagenschichtsystemen aus alternierenden Lagen von CrN und TiAlN [143] sowie TiN [144] nach einem Glühen bei Temperaturen von 400 °C und mehr in allen Fällen eine Reduktion der Härte nach. Diese war umso ausgeprägter, je höher die Glühtemperatur war. Die Autoren führten diesen Sachverhalt auf eine Abnahme der Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus als Folge thermisch bedingter Diffusion an den Lagengrenzflächen zurück. Diese Ergebnisse demonstrieren, dass die nachgewiesene Stabilität der in dieser Arbeit hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme gegen Glühen bis zu Temperaturen von mindestens 600 °C (vgl. Kapitel 3.2.1.2) entscheidende Voraussetzung für die nach dem Glühen gemessene hohe Härte war und sind ebenfalls ein Hinweis auf eine Härteerhöhung durch an den kohärenten Grenzflächen stattfindende Prozesse.

Ein weiterer Ansatz zur Erklärung des Phänomens der Erhöhung der Härte bei den FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen bei geringen Doppellagendicken, in denen TiN-Lagen alternierend mit (Fe,Co,Ti)N-Mischkristall-Lagen geschichtet waren, fand sich in der Betrachtung thermodynamischer Prozesse. Es wurde in der Literatur beschrieben, dass in TiAlN-

Einlagenschichten [145] bei Temperaturen zwischen 800 °C und 900 °C spinodale Entmischung stattfinden kann. Die durch diese verursachten Gitterverspannungsfelder verursachen einen Härteanstieg aufgrund der Behinderung von Versetzungsbewegungen [145]. Ein solcher Effekt könnte in den (Fe,Co,Ti)N-Mischkristallphasen ebenfalls eine Rolle gespielt haben. Die geringen Lagendicken und die deutlich geringeren Aktivierungsenergien für Grenzflächendiffusion im Vergleich zu Volumendiffusion könnten hierbei ein Grund dafür gewesen sein, dass diese Prozesse bereits bei den vergleichsweise geringen Temperaturen von 600 °C stattgefunden haben können. Voraussetzung hierfür ist jedoch eine vernachlässigbare Diffusion zwischen den Lagen, wie sie experimentell durch die XRR-Diagramme (Abb. 3-26) und die AES-Tiefenprofile (Abb. 3-27) nahegelegt wurde. Eine Betrachtung thermodynamischer Kenngrößen ermöglichte eine Erklärung der Unterschiede zwischen den in dieser Arbeit hergestellten (Fe,Co,Ti)N/TiN-Viellagenschichten und den oben erwähnten CrN/TiAlN-Viellagenschichten. Der Betrag der Standardbildungsenthalpie von CrN ist mit $-61,0 \text{ kJ mol}^{-1}$ [146] deutlich geringer als sowohl der von AlN ($-159,0 \text{ kJ mol}^{-1}$ [147]) und der von TiN ($-133,3 \text{ kJ mol}^{-1}$ [148]), so dass ein hoher potentieller Energiegewinn bei genügend hoher Aktivierungsenergie als Triebkraft für Diffusionsprozesse und folglich zur Abnahme der Regelmäßigkeit des Lagenaufbaus zur Verfügung stünde. Bei den für diese Arbeit hergestellten (Fe,Co,Ti)N/TiN-Viellagenschichten bestand dieses Ungleichgewicht an gebundener Energie hingegen nicht. Die in dieser Arbeit verwendeten Glühtemperaturen können daher zu niedrig gewesen sein, um die in der Folge deutlich höheren Aktivierungsenergien für Interdiffusion zwischen den Lagen bereitstellen zu können.

4.2.2 Elastizitätsmodul

Da die Poissonzahlen der in dieser Arbeit hergestellten Einzellagenmaterialien nicht bekannt waren, wurden anstelle der Elastizitätsmoduln ersatzweise die Reduzierten Elastizitätsmoduln ermittelt. Hierbei ist zu beachten, dass diese bei typischen Poissonzahlen von $0,2 < \nu < 0,3$ gemäß Gl. (2.7) weniger als 10 % von den Elastizitätsmoduln abweichen. Im Gegensatz zu der zuvor dargestellten Schichthärte handelt es sich bei dem Elastizitätsmodul um eine intrinsische Größe. In Abb. 4-6 ist eine schematische Darstellung der Verläufe der Elastizitätsmoduln in Abhängigkeit von dem jeweiligen Viellagenaufbau gezeigt.

Die Elastizitätsmoduln der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme wiesen bei den verschiedenen N-Gehalten in den TaN-Lagen jeweils unterschiedliche Abhängigkeiten von dem Viellagenaufbau auf. Die Elastizitätsmoduln der unterstöchiometrischen FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme lagen in weiten Bereichen oberhalb der jeweils mit der Linearen Mischungsregel berechneten Werte. Die elastischen Eigenschaften der FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme mit geringem Stickstoffüberschuss entsprachen den mit der Linearen Mischungsregel berechneten Werten.

Die elastischen Eigenschaften der FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme entsprachen, abgesehen von einer leichten durch das Glühen verursachte Erhöhung, den nach der Linearen Mischungsregel erwarteten Werten.

Eine deutliche Erhöhung des Elastizitätsmoduls gegenüber nach der Linearen Mischungsregeln erwarteten Werten wurde in der Literatur auf die Erhöhung des Anteils von Grenzflächendurchmischung zurückgeführt [149]. Dies ist konsistent mit der Beobachtung, dass ge-

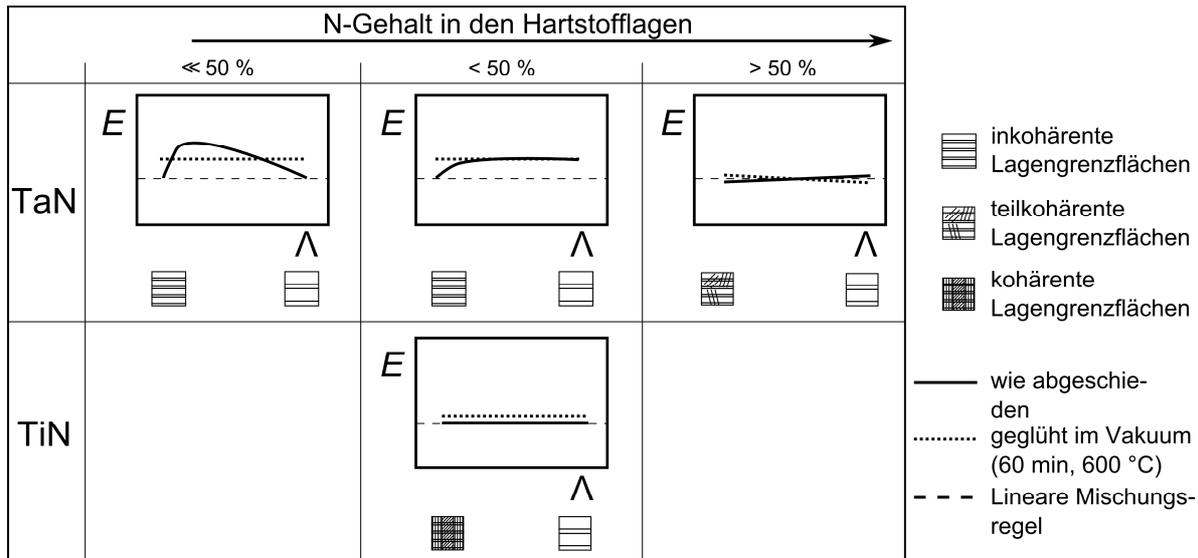


Abb. 4-6 Darstellung der Abhängigkeit der Elastizitätsmoduln der Viellagenschichtsysteme von dem Viellagenaufbau.

genüber der Linearen Mischungsregel deutlich erhöhte Werte der Elastizitätsmoduln einzig bei den FeCo/TaN-Viellagenschichten mit hohem N-Defizit und geringen Doppellagendicken nachgewiesen wurden. Bei diesen Viellagenschichten war das Maß der während des Wachstums verursachten Lagendurchmischung besonders hoch und, aufgrund der hohen Grenzflächenzahl, bei geringen Doppellagendicken besonders ausgeprägt (vgl. Abb. 3-2).

4.2.3 Eigenspannung

Abb. 4-7 zeigt eine schematische Übersicht darüber, wie die Eigenspannung der Viellagenschichtsysteme von dem Viellagenaufbau beeinflusst wurde. Die Eigenspannungen setzen sich zusammen aus einem thermischen, einem intrinsischen und einem Grenzflächenanteil. Da in dieser Arbeit Schichten auf nicht aktiv geheizten Substraten abgeschieden wurden, konnte das Vorliegen von thermischen Eigenspannungen vernachlässigt werden.

Im ungeglühten Zustand wiesen alle Viellagenschichtsysteme Druckeigenspannungen auf. In den FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen nahmen die Druckeigenspannungen mit zunehmendem Stickstoffgehalt in den TaN-Lagen tendenziell ab. Die Wachstumsbedingungen der bei unterschiedlichem Stickstoffanteil in der Prozessgasatmosphäre hergestellten Schichtsysteme unterschieden sich, wodurch Unterschiede in den intrinsischen Eigenspannungen der einzelnen Lagen verursacht sein können. So waren, nach den Modellen von Windischmann [150, 151] und Davis [152], durch auf der Schicht auftreffende Ar-Ionen verursachte Stoßkaskaden zu erwarten, die zu dem Einbau von Zwischengitter- und Substitutionsatomen geführt haben können. Der Einbau von Zwischengitteratomen führt dabei zu Druckeigenspannungen, während der Einbau von Substitutionsatomen abhängig von den Größenverhältnissen zwischen substituiertem und substituierendem Atom zu Druck- oder Zugeigenspannungen führen kann. Oberhalb einer bestimmten Teilchenenergie können die auftreffenden Atome außerdem eine lokale und temporäre Beweglichkeitserhöhung verursachen und hierdurch einen Abbau von Eigenspannungen bewirken. Das in dieser Arbeit nachgewiesene, mit wachsendem Stickstoffanteil in der Prozessgasatmosphäre tendenziell

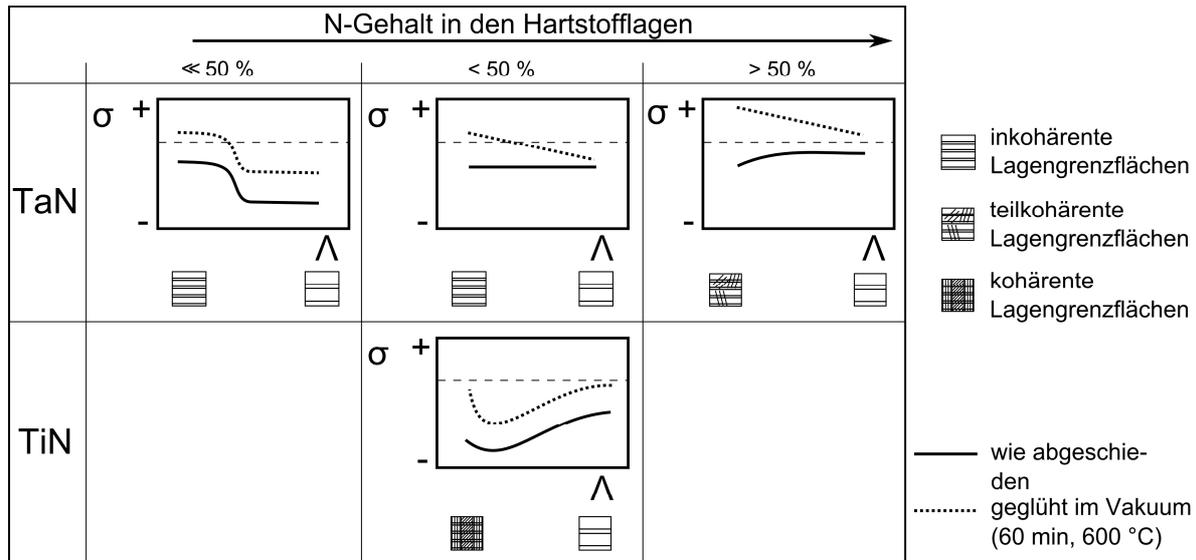


Abb. 4-7 Darstellung der Abhängigkeit der Eigenspannung der Viellagenschichtsysteme von dem Viellagenaufbau.

sinkende, Maß an Druckeigenspannungen könnte unter Berücksichtigung der oben beschriebenen Prozesse mit einer mit steigendem Stickstoffanteil abnehmenden Subplantation von Ar-Ionen auf Zwischengitterplätzen als Folge des sinkenden Ar-Partialdrucks erklärt werden. Ein weiterer wichtiger Grund für ein geringeres Maß an Druckeigenspannungen kann ein höheres Maß an Zugeigenspannungen als Folge einer geringeren Zahl von inkohärenten Korngrenzflächen sein [153]. Für die letztere Erklärung können die bei geringem N-Überschuss qualitativ nachgewiesenen größeren Körner in den TaN-Lagen sowie die beobachteten teilkohärenten Korngrenzflächen (vgl. Abb. 3-21 c) im Vergleich zu den bei geringem N-Defizit vorhandenen kleineren Körnern und inkohärenten Korngrenzflächen (vgl. Abb. 3-11 d) zumindest ein Indiz gewesen sein.

Die Schichtserien unterschieden sich darüber hinaus in dem Einfluss der Eigenspannung von dem Viellagenaufbau. Da innerhalb einer Schichtserie die Wachstumsbedingungen jeweils unverändert blieben, kommen hierfür im Wesentlichen nur noch zwei Einflüsse in Betracht. Zum einen können sich die Beiträge der intrinsischen Eigenspannungen der Lagen geändert haben, da diese schichtdickenabhängig sind [153, 154]. Zum anderen kann bei sinkender Doppellagendicke mit wachsender Zahl der Lagengrenzflächen deren Einfluss auf die Eigenspannungen zugenommen haben. Die bei den FeCo/TaN-Viellagenschichten mit geringem Stickstoffüberschuss und bei den FeCo/TiN-Viellagenschichten beobachtete Zunahme der Druckeigenspannung mit bei gleichbleibender Gesamtschichtdicke steigender Anzahl inkohärenter Lagengrenzflächen war auf mehrere Einflüsse zurückzuführen. So wurde in der Literatur [155, 156] für das Anfangsstadium des Wachstums von TiN-Einlagenschichten der gehäufte Einbau von Zwischengitteratomen in die untersten Atomlagen der Schichten durch Subplantation beschrieben, dessen Ursache in der höheren Diffusionsneigung von Atomen in (200)-texturiertem TiN als in (111)-texturiertem TiN liegt [155, 156]. Ein ähnliches Verhalten wurde für kfz-CrN nachgewiesen [154]. Für kfz-TaN konnte aufgrund der vergleichbaren Kristallstruktur das Vorliegen eines ähnlichen Verhaltens angenommen werden. Das Wachstum der hohen Anzahl von dünnen (200)-texturierten TaN-Lagen bei geringem Stickstoffüberschuss oder von dünnen (200)-texturierten TiN-Lagen in den Viellagenschichten mit ge-

ringen Doppellagendicken konnte somit zu einer hohen Zahl von Zwischengitteratomen führen, deren Folge die nachgewiesenen Druckeigenstressungen waren. Bei höherer TaN- oder TiN-Lagendicke war nach dieser Erklärung der Anteil dieser unteren Atomlagen an der Gesamtschichtdicke geringer, wodurch die Druckeigenstressungen in diesen Schichten weniger stark ausgeprägt gewesen sein würden. Die bei den FeCo/TaN-Viellagenschichten mit geringem und hohem Stickstoffdefizit bei geringen Doppellagendicken dominante (111)-Textur würde gemäß dieser Erklärung im Vergleich zu den Schichten aus der jeweils gleichen Schichtserie und mit höherer Doppellagendicke zu geringeren Druckeigenstressungen geführt haben, was mit den gemessenen Ergebnissen im Einklang stand. Eine weitere mögliche Einflussgröße können an den Lagengrenzflächen generierte Spannungen sein, deren Einfluss mit zunehmender Lagenzahl steigt.

Das Glühen der Viellagenschichtsysteme führte in allen Fällen zu einer Veränderung der Eigenstressungswerte in Richtung von Zugeigenstressung. Untersuchungen an dem TiN/Ag-Viellagenschichtsystemen durch Köstenbauer *et al.* [157] ergaben analog zu diesen, in Abb. 4-7 zusammengefassten, Ergebnissen, dass Glühen auch in diesem Hartstoff-/Metall-System zu einer Reduktion vorhandener Druckeigenstressung führte. Diese Ergebnisse wurden auf das Ausheilen vorhandener Gitterbaufehler, insbesondere der oben erwähnten Zwischengitteratome, durch thermisch induzierte Umordnungsprozesse sowie auf die Abnahme der Anzahl von Korngrenzen als Folge des Kristallitwachstums zurückgeführt. Ein weiterer möglicher Aspekt zur Erklärung der thermisch induzierten Reduktion von Druckeigenstressung in Viellagenschichtsystemen beruhte auf den plastischen Eigenschaften der FeCo-Lagen. Die FeCo-Lagen wurden bei Erhitzung weicher und konnten daher auf sie wirkende Grenzflächenspannungen durch Verformungen abbauen. Bei hohem Anteil von an Grenzflächen generierten Eigenstressungen können Verformungsprozesse eine wichtigere Rolle eingenommen haben als bei Schichten, bei denen deren Einfluss eine untergeordnete Rolle spielte. Dies ist ein Erklärungsansatz für die beträchtliche Abnahme von Druckeigenstressung bei FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen mit kleinem Λ und gering unter- oder überstöchiometrischen Hartstofflagen.

4.3 Magnetische Eigenschaften

In diesem Kapitel wird der Einfluss des Viellagenaufbaus der in dieser Arbeit hergestellten Schichtsysteme auf die Veränderung der Koerzitivfeldstärke, die Sättigungspolarisation und die Hochfrequenzeigenschaften diskutiert.

In Abb. 4-8 ist die Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke von dem jeweiligen Viellagenaufbau schematisch dargestellt. Bei den Viellagenschichtsystemen mit TaN als Hartstoffkomponente fiel auf, dass sowohl bei hohem als auch bei geringem Stickstoffdefizit bei geringen Doppellagendicken die Magnetisierbarkeit bei Raumtemperatur nicht genügend stark war, um mit dem verwendeten VSM nachgewiesen werden zu können. Daher konnten nicht in allen Fällen Koerzitivfeldstärken angegeben werden. Bei den FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen mit stark unterstöchiometrischen TaN-Lagen führte sowohl im ungeglühten Zustand als auch nach der Glühbehandlung erst eine FeCo-Lagendicke von 1,6 nm zu nachweisbaren Magnetisierungskurven (Abb. 3-6 a). Dieser Sachverhalt ist plausibel, da bei hohem Stickstoffdefizit das Vorliegen eines hohen Anteils von nicht mit N-Atomen gebundenen Ta-Atomen in den TaN-Lagen erwartet wurde. Diese Ta-Atome können schon während des Beschichtungspro-

zesses intermetallische Verbindungen mit Fe und Co eingegangen sein und dadurch die ferromagnetische Sättigungspolarisation der sich bildenden FeCo-Lagen reduziert haben. Hierfür spricht, dass bei geringerem Stickstoffdefizit in den TaN-Lagen die Magnetisierbarkeit tendenziell größer ist. So ließen sich bei den Schichtsystemen mit geringem Stickstoffdefizit im ungeglühten Zustand bei allen FeCo-Lagendicken Magnetisierungskurven ermitteln. Nach dem Glühen war lediglich bei dem Schichtsystem mit der geringsten FeCo-Lagendicke von 0,8 nm keine Magnetisierungskurve messbar (Abb. 3-16 a und b). Alle Schichtsysteme mit leicht überstöchiometrischen Hartstofflagen wiesen hingegen sowohl vor als auch nach dem Glühprozess definierte Magnetisierungskurven auf, so dass in allen Fällen Koerzitivfeldstärken angegeben werden konnten (Abb. 3-24 a und b). Eine als Ursache für die beschriebene Erhöhung der Magnetisierbarkeit mit steigendem Stickstoffanteil in den TaN-Lagen plausible Reduktion der Lagendurchmischung während des Schichtwachstums kann weiterhin durch die veränderte Prozessgasatmosphäre begünstigt worden sein. So kann die Bedeckung des $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ -Targets mit nitridischen Verbindungsprodukten einen höheren Energieaufwand zur Auslösung der Atome durch den Zerstäubungsprozess notwendig gemacht haben. Die in der Folge geringere kinetische Energie der aus dem Target ausgelösten Atome kann dann zu der Verringerung von Durchmischungsprozessen während des Schichtwachstums geführt haben. Das Glühen des FeCo/TaN-Schichtsystems mit geringem Stickstoffdefizit mit der geringsten Doppellagendicke führte zum Verschwinden der Magnetisierbarkeit (Abb. 3-16 a und b). Dies war ein Hinweis darauf, dass der vorliegende Anteil von nicht mit N-Atomen gebundenen Ta-Atomen ausreichte, um die Magnetisierbarkeit durch thermisch bedingte Volumendiffusion in die FeCo-Lagen zu reduzieren. Bei geringem Stickstoffüberschuss war hingegen zu erwarten, dass nahezu alle Ta-Atome mit N-Atomen gebunden waren. Hierdurch wurde eine thermisch bedingte Diffusion weitgehend verhindert. Mit dieser Erklärung ist die Beobachtung konsistent, dass bei geringem Stickstoffüberschuss auch bei der geringsten Doppellagendicke noch ferromagnetisches Verhalten nachgewiesen werden konnte.

Die Koerzitivfeldstärke von ferromagnetischen Materialien wird stark durch extrinsische Faktoren, wie beispielsweise durch die Korngröße oder durch Gitterdehnung, beeinflusst. Der Einfluss der FeCo-Lagendicke auf die Koerzitivfeldstärke war bei allen Serien von FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen ähnlich. Eine geringere FeCo-Lagendicke führte zu einer zunehmenden Reduktion der Koerzitivfeldstärke. Der nachfolgende Glühprozess führte wiederum zu deren Erhöhung. Die Verringerung der Lagendicke führte unmittelbar zu einer Reduktion der mittleren Korngröße in den nanokristallinen FeCo-Lagen. Gemäß dem in Kapitel 1.2.1.2 vorgestellten Modell von Herzer [13] entsprach die nachgewiesene Reduktion der Koerzitivfeldstärke als Folge der Verkleinerung der Kristallitgröße den Erwartungen. Im Allgemeinen wird dieser Effekt von weiteren Effekten überlagert. Insbesondere kann eine Verringerung des Betrags der in kristallinem FeCo vorhandenen Gitterdehnung aufgrund der magnetoelastischen Eigenschaften der FeCo-Lagen zu einer weiteren Reduktion der Koerzitivfeldstärke geführt haben. Während bei hohem N-Defizit die integrale Druckeigenspannung mit abnehmender Doppellagendicke abnahm, blieb sie bei nur geringer Unterstöchiometrie konstant und nahm bei geringer Überstöchiometrie sogar leicht zu. Es ist jedoch zu beachten, dass die integrale Eigenspannung ohne *in-situ* durchgeführte Experimente nicht in die innerhalb der Lagen und die an den Lagengrenzflächen auftretende Eigenspannung zerlegbar war.

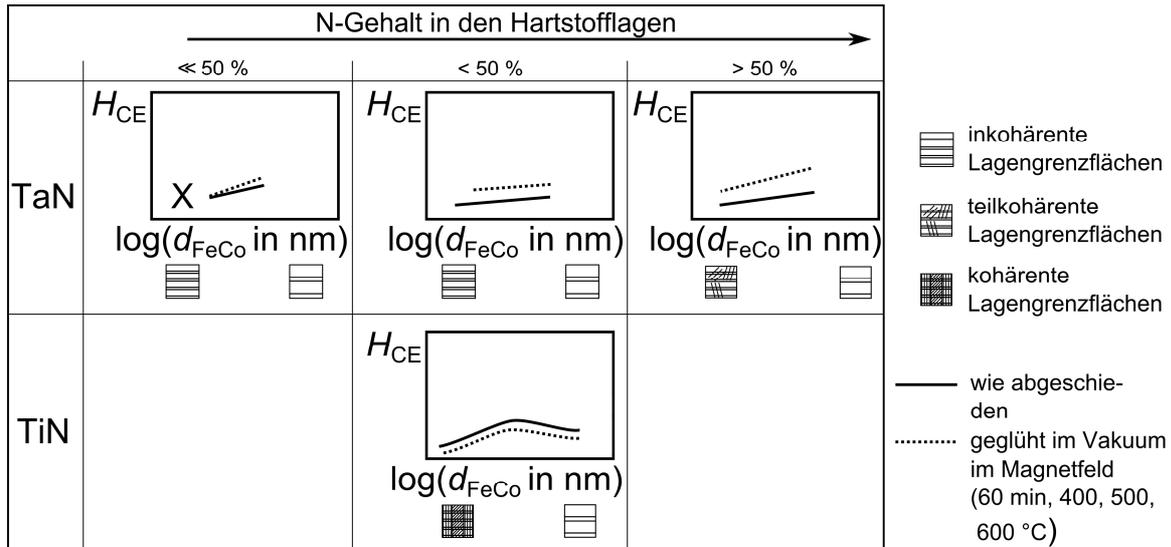


Abb. 4-8 Darstellung der Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärken der Viellagenschichtsysteme von dem Viellagenaufbau. Das Symbol d_{FeCo} bezeichnet die FeCo-Lagendicke, das Symbol H_{CE} bezeichnet die Koerzitivfeldstärke in der leichten Magnetisierungsrichtung.

Nach dem Glühprozess lag bei allen FeCo/TaN-Viellagenschichtsystem eine höhere Koerzitivfeldstärke als im ungeglühten Zustand vor. Dies widersprach der Erwartung, dass eine Reduktion der integralen Eigenspannungen und die Ausheilung von Defekten in eine Reduktion der Koerzitivfeldstärke resultieren. Hingegen ist ein Anwachsen der Koerzitivfeldstärke mit dem nachgewiesenen Kornwachstum konsistent. Außerdem kann die Diffusion von Ta-Atomen bei den Schichtsystemen mit Stickstoffdefizit und von N-Atomen bei den Schichtsystemen mit Stickstoffüberschuss zu deren Einbau als Fremdatome in das FeCo-Kristallgitter geführt haben. Diese würden dann Domänenwandverschiebungen erschwert und daher höhere Koerzitivfeldstärken notwendig gemacht haben. Letztgenannte Effekte überkompensierten die erstgenannten in den FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen.

Bei den Viellagenschichtsystemen mit TiN als Hartstoff konnten auch bei der geringsten FeCo-Lagendicke Magnetisierungskurven gemessen werden. Tendenziell sank die Koerzitivfeldstärke mit sinkender FeCo-Lagendicke, so dass die geringste Koerzitivfeldstärke bei den geringsten Doppellagendicken erreicht wurde. Im Unterschied zu den Schichtsystemen mit TaN als Hartstoff führte das Glühen der FeCo/TiN-Viellagenschichten zu einer Reduktion der Koerzitivfeldstärke. Bei den ungeglühten FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen stellte der Einbau der Fe- und Co-Atome in die TiN-Lagen unter (Fe,Co,Ti)N-Mischkristallbildung einen wesentlichen Einfluss auf die ferromagnetischen Eigenschaften dar. Die intrinsischen ferromagnetischen Eigenschaften von kfz-(Fe,Co,Ti)N waren nicht bekannt, da es sich hierbei um ein neuartiges, metastabiles Material handelte. Die metallische Legierung $Fe_{50}Co_{50}$ konnte hingegen von mehreren Forschern [158, 159] zur Ermittlung der intrinsischen physikalischen Eigenschaften in metastabiler kubisch-flächenzentrierter Kristallstruktur hergestellt werden. So gelang es Ambrose *et al.* [158], kubisch-flächenzentrierte FeCo-Legierungen über weite Zusammensetzungsbereiche epitaktisch auf Diamantsubstraten zu stabilisieren. Die so hergestellten Schichten nutzten sie für die Ermittlung wesentlicher intrinsischer magnetischer Eigenschaften. Für die Legierung der Zusammensetzung $Fe_{48}Co_{52}$ konnten sie den

Anisotropiekoeffizienten $K_1 \approx -3,4 \text{ kJm}^{-3}$ bestimmen. Der Betrag der magnetokristallinen Anisotropie von kfz- $\text{Fe}_{48}\text{Co}_{52}$ ist damit deutlich geringer als der von krz- $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$, der mit $K_1 \approx -18 \text{ kJm}^{-3}$ mehr als das fünffache beträgt [25]. Die geringen Koerzitivfeldstärken bei den FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen mit geringer Doppellagendicke sind unter Berücksichtigung von Gl. (1.4) mit der bei kfz-Kristallstruktur im Vergleich zur krz-Kristallstruktur deutlich geringeren magnetokristallinen Anisotropie konsistent. Die weitere Reduktion der Koerzitivfeldstärke mit dem Glühen ließ sich durch den Abbau von Gitterbaufehlern, wie Leerstellen, Substitutionsatomen oder Einlagerungsatomen, innerhalb der (Fe,Co,Ti)N-Lagen erklären. Grund hierfür ist, dass in der Folge eines solchen Abbaus von Gitterbaufehlern die magnetoelastische Energie innerhalb dieser Lagen gesunken ist. Da jedoch die Koeffizienten der Sättigungsmagnetostraktion weder von (Fe,Co,Ti)N-Mischkristallen noch von kubisch-flächenzentriertem $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ bekannt waren, ließ sich dieser Effekt nicht quantifizieren. Als ein weiterer direkter Einfluss auf die Senkung der Koerzitivfeldstärke mit dem Glühen ließ ein Abbau von Gitterfehlern auch eine erleichterte Domänenwandverschiebung und -drehung erwarten.

Unter der Annahme, dass bei allen hergestellten Viellagenschichten die ferromagnetischen Funktionslagen über Austauschwechselwirkung magnetisch gekoppelt waren, ist die Sättigungspolarisation im Wesentlichen von an den Lagengrenzflächen stattfindenden Mechanismen beeinflusst gewesen. Während des Schichtwachstums stattfindende Durchmischungsprozesse können eine beträchtliche Reduzierung der Sättigungspolarisation zur Folge gehabt haben. Nach Abscheidung der Viellagenschichtsysteme können während des Glühprozesses stattfindende Diffusionsprozesse zum Abbau der Regelmäßigkeit des Viellagenaufbaus geführt haben. Für einen Vergleich dieser Einflüsse bei den untersuchten Viellagenschichtsystemen sind in Abb. 4-9 die Netto-Sättigungspolarisationen (Gl. (2.12)) der jeweiligen Viellagenschichtsysteme mit der geringsten Doppellagendicke bei noch nachweis-

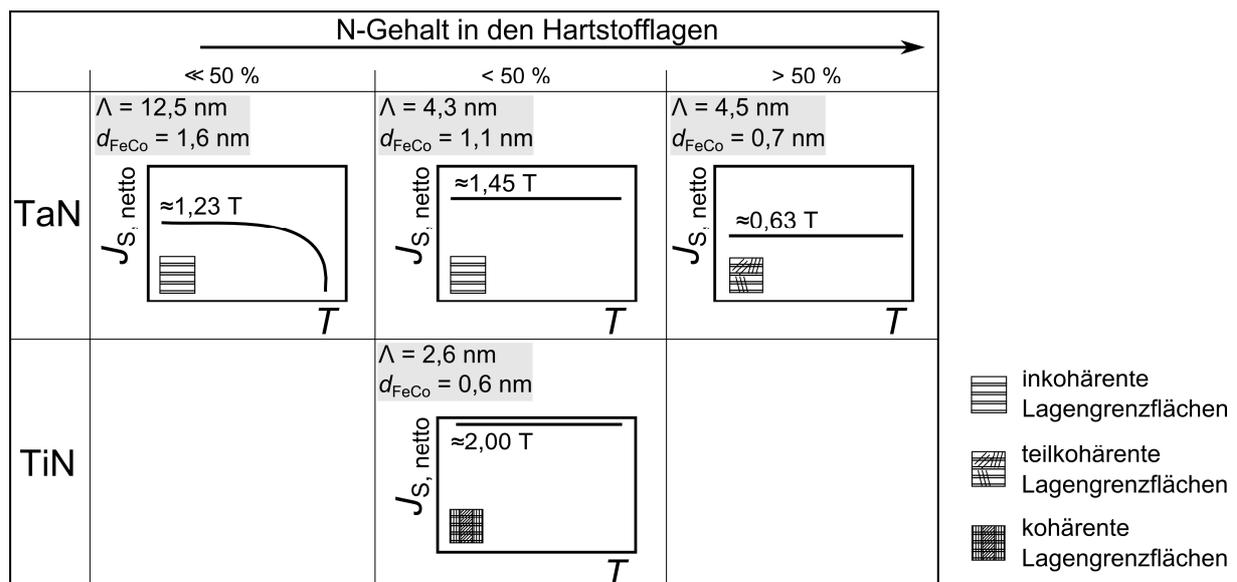


Abb. 4-9 Darstellung der Abhängigkeit der Netto-Sättigungspolarisationen $J_{S, \text{ netto}}$ (Gl. (2.12)) von Viellagenschichtsystemen mit hoher Lagenzahl von der Glüh Temperatur T .

barer Magnetisierungskurve in Abhängigkeit von der Glühtemperatur gezeigt. Aufgrund der in Abb. 4-8 gezeigten Abhängigkeiten handelt es sich bei diesen gleichzeitig um die Schichtsysteme mit den minimalen Koerzitivfeldstärken. Auch wenn bei den FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen mit hohem Stickstoffdefizit definierte Magnetisierungskurven ermittelbar waren, führte das Glühen bei 600 °C zu einer beträchtlichen Verringerung der Sättigungspolarisation. Neben der im vorigen Abschnitt erläuterten Durchmischung von Ta-Atomen mit Fe- und Co-Atomen während des Schichtwachstums deutete dies auf eine signifikante thermisch bedingte Diffusion während des Glühprozesses hin, wobei die Aktivierungsenergie bei Temperaturen zwischen 500 °C und 600 °C erreicht wurde. Bei geringem Stickstoffdefizit und bei geringem Stickstoffüberschuss hingegen war die Sättigungspolarisation während des Glühens bis zu mindestens 600 °C konstant. Gleichwohl waren die absoluten Werte beträchtlich gegenüber dem für Einlagenschichten erwarteten Referenzwert reduziert. Dies war ein Zeichen dafür, dass in diesen Schichtsystemen nicht während des Glühens stattfindende Diffusionsprozesse, sondern kinetisch bedingte Lagendurchmischung während der Schichtabscheidung die wichtigste Ursache für die Verringerung der Sättigungspolarisation im Vergleich zum FeCo-Referenzwert war.

Bei den FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen war auffällig, dass die Netto-Sättigungspolarisation (Gl. (2.12)) bei der geringsten Doppellagendicke von 2,6 nm mit 2 T nur etwa 10 % unter dem für eine Fe₅₀Co₅₀-Einlagenschicht erwarteten Wert lag. Die ferromagnetische Sättigungspolarisation von Fe₅₀Co₅₀ wurde also bei Bildung eines kubisch-flächenzentrierten (Fe,Co,Ti)N-Mischkristalls kaum verringert. Dieser Sachverhalt wurde möglicherweise durch ferromagnetisches Verhalten begünstigende Eigenschaften von TiN unterstützt, wie es für einige Kombinationen von kubisch-flächenzentrierten Übergangsmetallnitriden mit eingebauten Übergangsmetall-Fremdatomen theoretisch und experimentell nachgewiesen wurde [160, 161].

Wohl definierte ferromagnetische Hochfrequenzeigenschaften mit hoher Anfangspermeabilität und definierter Grenzfrequenz konnten ausschließlich für FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme nachgewiesen werden, die in kfz-Kristallstruktur unter Bildung des beschriebenen (Fe,Co,Ti)N-Mischkristalls aufgewachsen sind. Ein Grund für das Fehlen solcher Eigenschaften bei den übrigen Schichtsystemen kann eine hohe Dichte von Substitutions- und Einlagerungsatomen aufgrund eines hohen Maßes an Durchmischung gewesen sein. Die bei den FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen mit geringem Λ ermittelten Hochfrequenzeigenschaften waren bezüglich ihrer Grenzfrequenz mit von Liu *et al.* [123] hergestellten FeCoSiN-Schichten vergleichbar, in denen wenige Nanometer große kfz-Fe₅₀Co₅₀-Kristallite in einer amorphen SiN-Matrix eingebettet waren. Die Netto-Anfangspermeabilität (Gl. (2.15)) der für diese Arbeit hergestellten Viellagenschichten war mit Werten von über 1200 bei dem unter Zugabe von 2,0 sccm N₂-Fluss in die Prozessgasatmosphäre abgeschiedenen Viellagenschichtsystem sogar um das Dreifache gegenüber den von Liu *et al.* hergestellten Schichten höher. Mit Gl. (1.5) wird ersichtlich, dass die Anfangspermeabilität nanokristalliner Festkörper mit sinkender Kristallfeldanisotropie steigt. Die oben zusammengefassten Ergebnisse waren somit konsistent mit der Tatsache, dass die Kristallfeldanisotropie in kfz-Fe₅₀Co₅₀ deutlich geringer ist als in krz-Fe₅₀Co₅₀ in Verbindung mit der Annahme, dass ähnliches für den hergestellten kfz-(Fe,Co,Ti)N-Mischkristall galt.

4.4 Eigenschaftsprofile der entwickelten Schichtsysteme im Vergleich

Die Eigenschaftsprofile der Schichtsysteme wurden miteinander verglichen. Dies geschah ausgehend von der Fragestellung, welches der hergestellten Viellagenschichtsysteme das größte Potential zur Nutzung als Verschleißschutzbeschichtung mit fernabfragbarer sensorischer Funktionalität aufwies. Als Indikatoren für die mechanische Funktionalität wurden hierfür die Härte und die Eigenspannung vor und nach dem Glühen betrachtet, wobei letztere bei zu hohem Betrag das Anwendungspotential begrenzen kann. Als für die sensorische Funktionalität relevante Eigenschaftskennwerte wurden die Koerzitivfeldstärke, die Sättigungspolarisation sowie das Hochfrequenzverhalten, jeweils nach dem Magnetfeldglühen, betrachtet. Die für den Vergleich definierten Anforderungsprofile sind in Tab. 4-1 aufgelistet.

Tab. 4-1 Anforderungen an Härte, Eigenspannung und magnetische Eigenschaften.

Eigenschaft	qualitative Anforderungen	quantitative Anforderungen
Härte	≥ Härte einer TiN- oder TaN-Einlagenschicht	≥ 20 GPa
Eigenspannung	mit möglichst geringem Betrag, möglichst keine Zugeigenspannung	< 0, $ \sigma < 10$ GPa
Koerzitivfeldstärke	möglichst gering	≪ 10 mT
Netto-Sättigungspolarisation	möglichst wenig kleiner als die Sättigungspolarisation von FeCo	≈ 2,20 T
Hochfrequenzeigenschaften	hohe Anfangspermeabilität, definierte Grenzfrequenz	$\mu_{\text{Anf}} > 100$, Grenzfrequenz > 1 GPa

Bei qualitativer Bewertung aller Eigenschaften auf einer Skala von 0 („nicht den Anforderungen entsprechend“) bis 3 („sehr gut den Anforderungen entsprechend“) ließen sich die Ergebnisse des Vergleichs als Netzdiagramm darstellen. Dieses Netzdiagramm ist in Abb. 4-10 gezeigt.

Wie in dem Netzdiagramm illustriert, wurde die beste Kombination der gewünschten Eigenschaften für das FeCo/TiN-Viellagenschichtsystem erreicht. Neben der durch das Glühen gegenüber dem Wert der Linearen Mischungsregel beträchtlich erhöhten Härte zeichnete sich dieses Schichtsystem – wie hierbei insbesondere auch ein Vergleich mit dem FeCo/TaN-Viellagenschichtsystem zeigte – durch einen positiven Einfluss des Glühprozesses auf die weichmagnetischen Eigenschaften aus. Gleichzeitig war die erreichte Netto-Sättigungspolarisation (Gl. (2.12)) nur geringfügig gegenüber einer Fe₅₀Co₅₀-Einlagenschicht reduziert. Zudem wiesen die FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme als einzige ein definiertes Hochfrequenzverhalten auf, das sich durch hohe Anfangspermeabilitäten und Grenzfrequenzen auszeichnete.

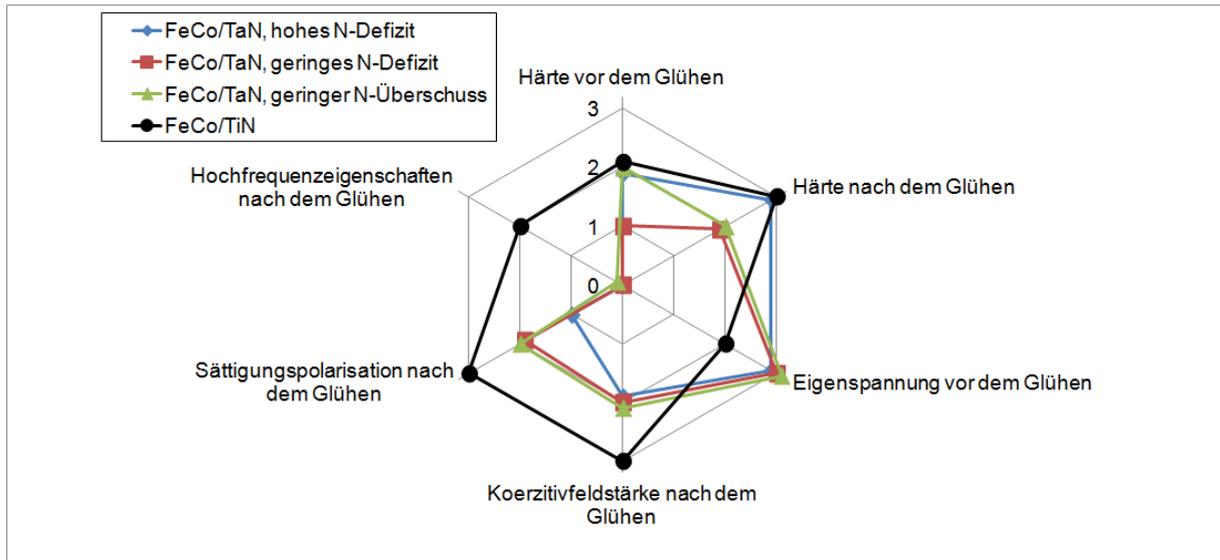


Abb. 4-10 Netzdiagramm zur qualitativen Bewertung der Eigenschaftsprofile der entwickelten Viellagenschichtsysteme. Die Eigenschaften wurden auf einer Skala von 0 bis 3 zwischen „nicht den Anforderungen entsprechend“ und „sehr gut den Anforderungen entsprechend“ qualitativ bewertet.

4.5 Wirkprinzipien zur berührungslosen Eigenschaftsmessung und exemplarische Versuche zur berührungslosen Temperaturbestimmung

In Kombination mit einer geeigneten Ausleseelektronik sind verschiedene Eigenschaften der hergestellten Viellagenschichten berührungslos messbar. In Abb. 4-11 ist eine Übersicht über Schichteigenschaften dargestellt, die mit dem in Kapitel 1.3 beispielhaft vorgestellten Verfahren der Frequenzmischung fernabfragbar messbar sind. Außerdem ist in Abb. 4-11 dargestellt, wie die magnetischen Messgrößen das Frequenzmischungsverfahren beeinflussen.

Eine erste mit dem Verfahren der Frequenzmischung berührungslos messbare Schichteigenschaft ist die Dicke, wie Teliban *et al.* [20] an einer weichmagnetischen ferromagnetischen Schicht demonstrierten. Die Messung beruhte auf dem Prinzip, dass die Amplitude der fouriertransformierten zeitabhängig modulierten Polarisation eine monotone Funktion des ferromagnetischen Gesamtvolumens war. Bechtold *et al.* [21] nutzten in einer modifizierten Variante dieses Verfahrens die Veränderung der Suszeptibilität mit der Dehnung, um deren Maß zu bestimmen. Das Messprinzip bestand darin, dass die Funktion der Abhängigkeit der Amplitude der fouriertransformierten zeitabhängig modulierten Polarisation von der Dehnung lokale Minima aufwies, die, wie die Autoren zeigten, ihre Position in monotoner Funktion der Dehnung änderten. Mit diesem Ansatz kann somit die Dehnung oder auch, bei Abhängigkeit der Dehnung von der Temperatur, nach einer entsprechenden Kalibrierung die Temperatur einer weichmagnetischen ferromagnetischen Dünnschicht gemessen werden. Eine dritte Methode zur Nutzung der Frequenzmischung wurde von Thede *et al.* [22] entwickelt und beruhte auf dem Effekt, dass zwischen dem anregenden Magnetfeld und der zeitabhängigen Polarisation eine Phasenverschiebung $\Delta\Psi$ auftrat, welche eine monotone Funktion der Dehnung war. Diese dritte Methode konnte, wie das oben beschriebene Verfahren, genutzt werden,

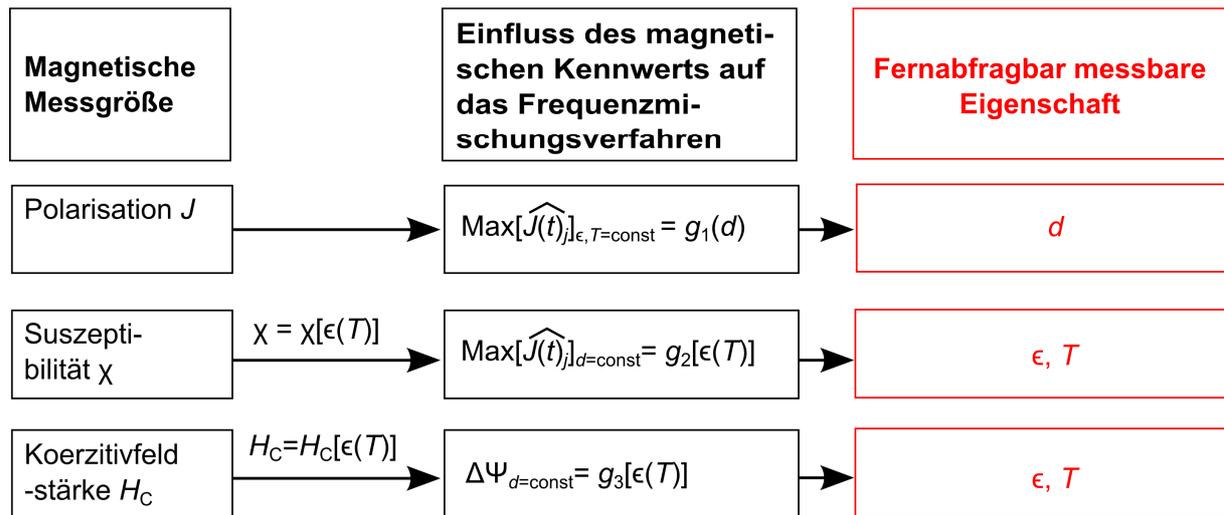


Abb. 4-11 Übersicht über den Einfluss magnetischer Kennwerte auf das Frequenzmischungsverfahren und über fernabfragbar messbare Schichteigenschaften. Die in der Übersicht verwendeten Größen sind die relative Dehnung ϵ , die Zeit t , die Temperatur T , die Phasenverschiebung $\Delta\Psi$ zwischen dem anregenden Magnetfeld und der magnetischen Polarisation, monotone Funktionen g_1 und g_3 sowie eine Funktion g_2 , deren Minima ihre Position monoton verändern. Mit einem Hutsymbol überschriebene Symbole kennzeichnen die jeweilige Fouriertransformierte.

um die Dehnung und die Temperatur einer geeigneten Dünnschicht berührungslos zu messen.

Um die in Kapitel 4.4 als Schichtsystem mit der besten Eigenschaftskombination ausgewählte FeCo/TiN-Viellagenschicht auf ihre Tauglichkeit als Sensor zu testen, wurden an der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel im Rahmen einer Kooperation beispielhafte Messungen nach dem von Thede *et al.* [22] entwickelten Verfahren durchgeführt. Hierfür wurden die messtechnischen Aufbauten und die Signalverarbeitungselektronik dahingehend modifiziert, dass die Phasenverschiebung $\Delta\Psi$ zwischen dem anregenden Feld und der Polarisation berührungslos bestimmt werden konnte [22]. Es wurden Messungen an dem in Kapitel 3.2 beschriebenen FeCo/TiN-Viellagenschichtsystem mit $d_{\text{FeCo}}/\Lambda = 0,25$ und $\Lambda \leq 5,5$ nm durchgeführt. Für diese Messungen wurden eigens Schichten auf oxidierte Siliziumsubstrate mit rechteckiger Oberfläche und den Abmessungen $5 \times 30 \times 0,375$ mm³ abgeschieden. Alle für diese Tauglichkeitsmessungen hergestellten Proben wurden für 60 min bei 600 °C im Magnetfeld geölt.

In Abb. 4-12 a sind die Hysteresekurven der FeCo/TiN-Viellagenschicht mit $\Lambda = 5,5$ nm und $d_{\text{FeCo}} = 1,3$ nm bei verschiedenen Temperaturen zwischen 30 °C und 500 °C gezeigt. Die Abnahme der Koerzitivfeldstärke und die Zunahme der Suszeptibilität mit der Temperatur wurden hierbei als Folge der magnetoelastischen Eigenschaften des Schichtsystems durch die Probenausdehnung bewirkt. Mit der modifizierten Messtechnik wurde die Phasenverschiebung $\Delta\Psi$ berührungslos bestimmt [22]. In Abb. 4-12 b ist diese Phasenverschiebung $\Delta\Psi$ in Abhängigkeit von der Temperatur der Probe bei drei verschiedenen Anregungsfeldstärken abgebildet. Es ist ersichtlich, dass der Zusammenhang zwischen der Temperatur und der Dehnung in allen Fällen in einer monotonen Abhängigkeit zwischen $\Delta\Psi$ und T resultierte.

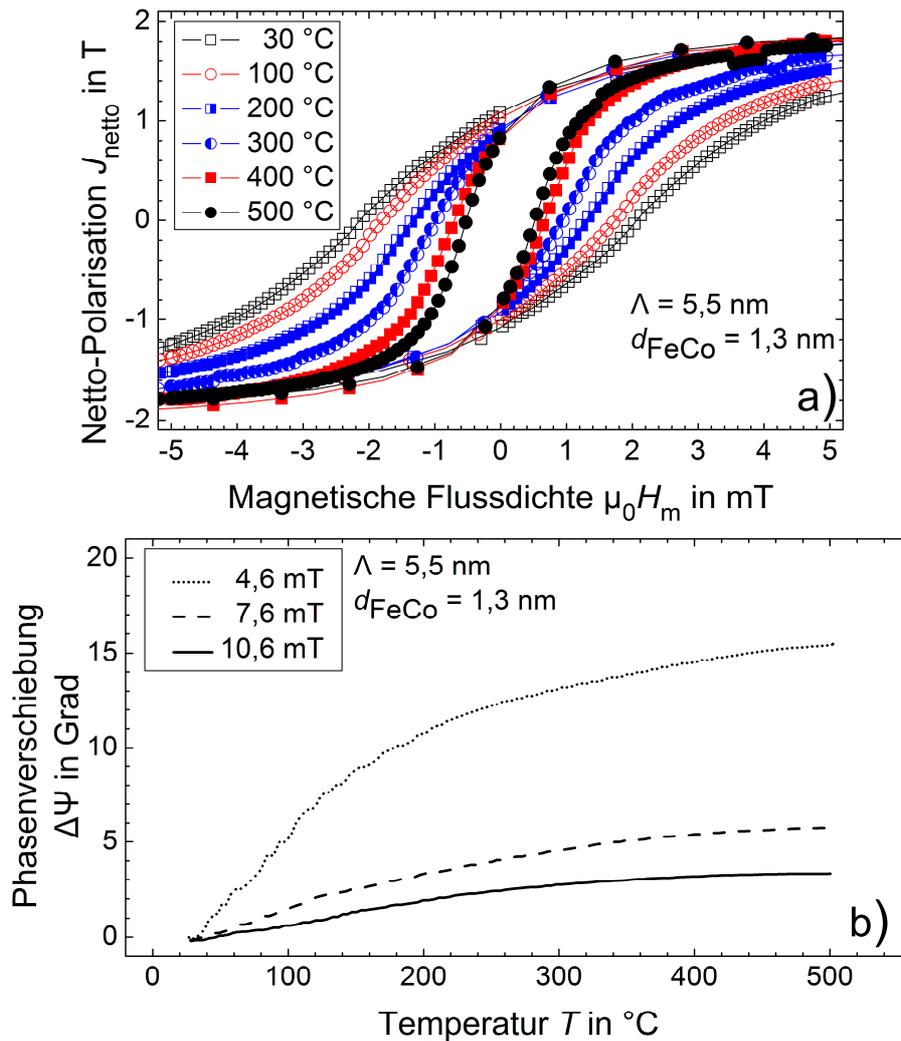


Abb. 4-12 a) Magnetisierungskurven des in dieser Arbeit entwickelten FeCo/TiN-Viellagenschichtsystems mit $\Lambda = 5,5 \text{ nm}$ und $d_{\text{FeCo}} = 1,3 \text{ nm}$ bei unterschiedlichen Temperaturen zwischen 25 °C und 500 °C und b) Phasenverschiebung $\Delta\Psi$ in Abhängigkeit von der Temperatur T des Schichtsystems bei verschiedenen anregenden Magnetfeldstärken. Die gezeigten Daten wurden aus [22] entnommen.

Durch diese Experimente wurde somit nachgewiesen, dass neben dem Materialvolumen auch die Gitterdehnung, und, nach einer entsprechenden Kalibrierung, auch die Temperatur der Schichtsysteme ermittelt werden konnten [22].

In Abb. 4-13 sind die fernabfragbar messbaren Eigenschaften der hergestellten Schichtsysteme zusammengefasst dargestellt. Die hergestellten Schichtsysteme bieten sich demnach zur Nutzung als Verschleißschutzbeschichtung oder als Bestandteil in einem mehrkomponentigen Verschleißschutzschichtsystem in solchen Fällen an, in denen die dargestellten Eigenschaften unabhängig voneinander oder sogar gleichzeitig berührungslos gemessen werden sollen. So kann die Verringerung der Schichtdicke durch, beispielsweise abrasiven, Verschleiß gemessen werden. Weiterhin können die Temperatur, beispielsweise im Reibkontakt, und die an einem beschichteten Bauteil wirkenden mechanischen Spannungen bestimmt werden. Weiterhin kann anhand der Bestimmung der gemessenen Gitterdehnung in der Schicht auftretende Materialermüdung detektiert werden. Ein Einsatz der entwickelten Schichten ist hierbei in Anwendungen möglich, in denen die Substrate nicht ferromagnetisch

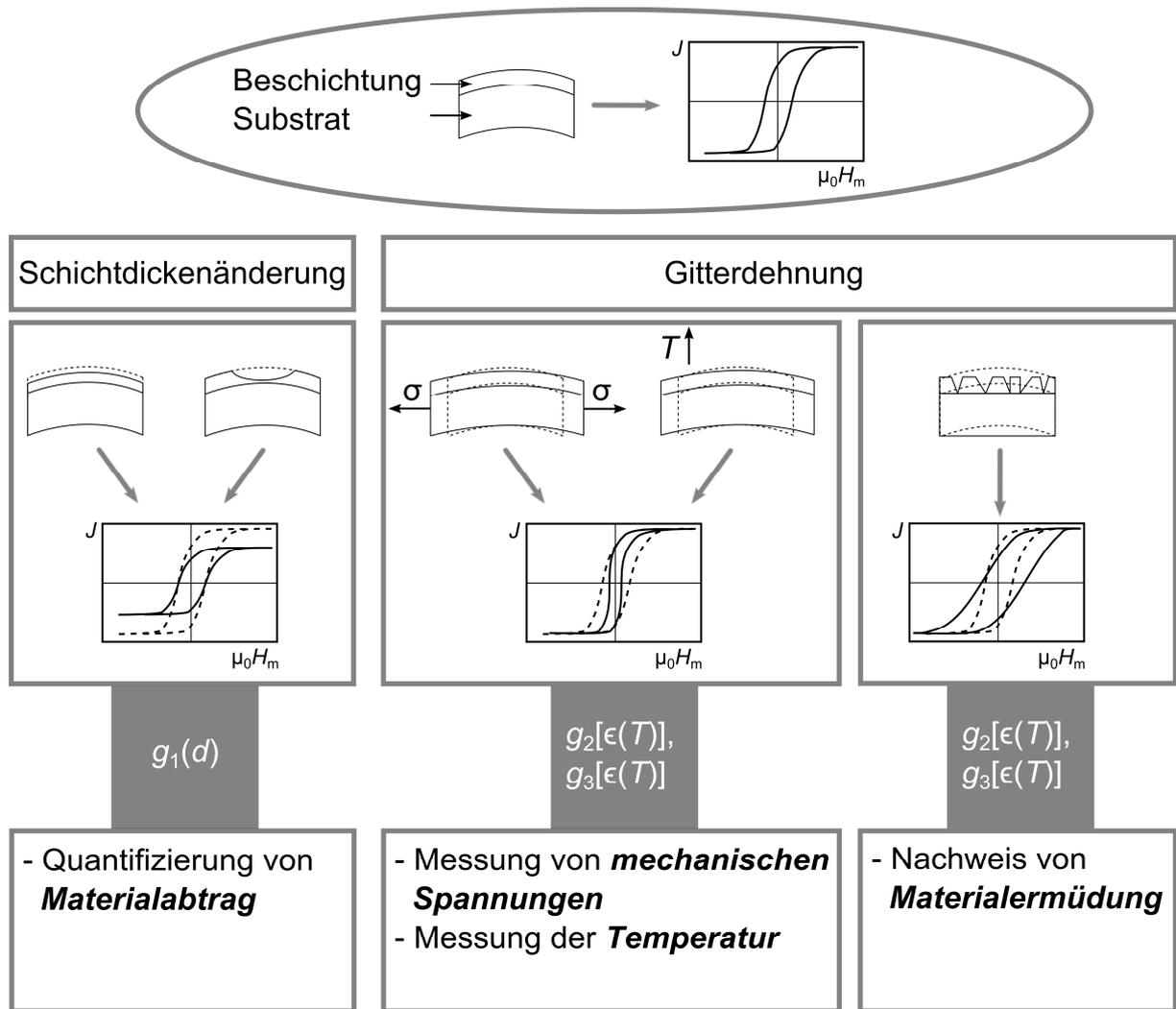


Abb. 4-13 Übersicht über die Zustände der hergestellten Verschleißschutzschichten, die, beispielsweise mittels dem beschriebenen Frequenzmischungsverfahren, berührungslos bestimmbar sind. Die in dieser Übersicht verwendeten Größen sind die relative Dehnung ϵ , die Zeit t , die Temperatur T , monotone Funktionen g_1 und g_3 sowie eine Funktion g_2 , deren Minima ihre Position monoton verändern. Zur Definition dieser Funktionen siehe Abb. 4-11.

sind, so beispielsweise bei nichtmagnetischen Hartmetallen, bei Bauteilen aus austenitischen Stählen oder aus Keramiken.

5 Zusammenfassung

Die Beschichtung von Bauteilen zum Zwecke der Verschleißverringerng wird im Maschinenbau seit langem angewendet. In vielen Bereichen ist hierbei seit den 1980er Jahren die Abscheidung von Schichten mit Kathodenzerstäubungsverfahren Stand der Technik. Vorteile der Kathodenzerstäubung sind die Möglichkeit der Abscheidung von Materialien in metastabilen Phasen, die hohe Variabilität der Prozessparameter zur Beeinflussung von Mikrostruktur und Textur, die vergleichsweise geringen Prozesstemperaturen sowie die Möglichkeit zur Herstellung von Mehrschicht- und Viellagenschichtsystemen. Während der Entwicklung neuartiger Verschleißschutzschichten mit Augenmerk auch auf eine Verlängerung von Standzeiten massive Anstrengungen entgegengebracht wurden, ist eine Bestimmung des aktuellen Schichtzustands weiterhin oft nur mit probabilistischen Methoden möglich. Es sind zwar Methoden zur aktiven Eigenschafts- und Abtragskontrolle von Verschleißschutzschichten bekannt, deren Funktionalität beruht in vielen Fällen jedoch auf gegebenem Berührungskontakt oder optischer Einsehbarkeit. Um auch eine berührungslose Erfassung des Zustands einer Verschleißschutzbeschichtung zu ermöglichen, wurde die Integration von ferromagnetischer Funktionalität in eine Verschleißschutzbeschichtung untersucht. Die Materialauswahl und die Konzeption des Viellagenaufbaus erfolgten mit Hinblick auf eine beispielhafte Verwendung in Kombination mit dem Verfahren der Frequenzmischung.

Ziel dieser Arbeit war es, materialwissenschaftliche Grundlagen zur Herstellung von Verschleißschutzschichten mit integrierter Sensorfunktionalität zu erarbeiten. Hierfür wurde das Konzept von Schichtsystemen im Viellagenaufbau gewählt. Hierdurch war eine weitgehend unabhängige Kontrolle von Lagen- und Gesamtschichtdicke gegeben. Als Verfahren zur Herstellung der Viellagenschichten kamen die nichtreaktive und die reaktive Magnetronkathodenzerstäubung zum Einsatz. Als Material für die sensorisch nutzbare ferromagnetische Funktionskomponente wurde $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ gewählt, da es die Vorteile einer hohen Sättigungspolarisation, einer hohen Sättigungsmagnetostraktion, einer hohen Anfangspermeabilität und weichmagnetischer Eigenschaft vereint. In einem ersten Ansatz wurde FeCo von einem Legierungstarget der Zusammensetzung $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ mit TaN von einem Hartstofftarget der Zusammensetzung $\text{Ta}_{50}\text{N}_{50}$ zu 1 μm dicken Viellagenschichten kombiniert. In einem zweiten Ansatz wurde TiN als Hartstoffkomponente verwendet. Auch für die Herstellung der TiN-Lagen wurde ein Target mit gleichen Anteilen von Metall- und N-Atomen verwendet. Der Aufbau der Viellagenschichtsysteme wurde systematisch verändert. Außerdem wurde die Prozessgasatmosphäre durch Zugabe des Reaktivgases N_2 variiert. Für die Herstellung der FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme wurden außerdem die FeCo-Targetleistung und der Prozessgasdruck variiert, um den Einfluss der Teilchenenergien auf die Schichtbildung und die Schichteigenschaften zu untersuchen.

Alle Viellagenschichtsysteme wurden nach ihrer Herstellung für 60 min bei 400 °C, 500 °C und 600 °C im Vakuum bei gleichzeitig angelegtem Magnetfeld gegläht. Hierdurch sollten Gitterbaufehler ausheilen und eine uniaxiale ferromagnetische Anisotropie in der Schichtebene eingepägt werden. Die ungeglähten und geglähten Viellagenschichtsysteme wurden bezüglich ihrer chemischen Zusammensetzung, ihres Viellagenaufbaus, ihrer Mikrostruktur und Textur, sowie ihrer mechanischen und magnetischen Eigenschaften charakterisiert.

Zunächst wurden FeCo/TaN-Viellagenschichtsysteme mit variiertem Viellagenaufbau in unterschiedlichen Prozessgasatmosphären abgeschieden. Hierdurch wurden Viellagenschichten mit stark und geringfügig unterstöchiometrischen sowie leicht überstöchiometrischen TaN-Lagen hergestellt, die sich aufgrund der Phasenvielfalt im Ta-N-System vor allem in ihrer Phasenzusammensetzung unterschieden. Nach dem Glühen wiesen alle Schichtsysteme höhere Härtewerte als den mit der Linearen Mischungsregel berechneten Wert auf. Die Schichtsysteme unterschieden sich deutlich in ihren magnetischen Eigenschaften. Unabhängig von dem Stickstoffgehalt der TaN-Lagen führten umso geringere FeCo-Lagendicken zu umso geringeren Koerzitivfeldstärken. Bei hohem Stickstoffdefizit führte der hohe Anteil von nur metallisch gebundenen Ta-Atomen jedoch zu einer beträchtlichen Verringerung der Sättigungspolarisation. Bei leicht unterstöchiometrischen TaN-Lagen wurde bei einer FeCo-Lagendicke von 1,4 nm bei den geglühten Schichtsystemen neben einer Koerzitivfeldstärke von weniger als 3 mT eine Netto-Sättigungspolarisation (Gl. (2.12)) von 1,45 T gemessen. Dieser Wert war gegenüber dem Glühen bei Temperaturen bis zu mindestens 600 °C stabil. Bei geringem Stickstoffüberschuss wurden schon bei den geringsten FeCo-Lagendicken von 0,7 nm Netto-Sättigungspolarisationen von 0,63 T erreicht, die sich ebenfalls gegenüber einer Glühbehandlung bei Temperaturen bis zu mindestens 600 °C als stabil erwiesen. Die Herstellung von FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen mit für sensorische Anwendungen ausreichenden Sättigungspolarisationen und mit Koerzitivfeldstärken von deutlich weniger als 1 mT mit gleichzeitig vorliegenden beträchtlichen Härtewerten von bis zu $(26,4 \pm 4,4)$ GPa erwies sich als möglich. Bei FeCo/TaN-Viellagenschichtsystemen erwies sich hierfür eine geringe Überstöchiometrie in den TaN-Lagen für eine geeignete Kombination von ferromagnetischen und mechanischen Eigenschaften als vorteilhaft, um eine deutliche Reduktion der für das Signal-Rausch-Verhältnis wichtigen Sättigungspolarisation durch metallisch gebundene Ta-Atome mit hoher Diffusionsneigung zu minimieren.

Im Gegensatz zu TaN ist TiN in einem weiten Bereich um die stöchiometrische Zusammensetzung in der kfz-Kristallstruktur stabil. Da außerdem eine geringere Anzahl möglicher stabiler Phasen existiert, ist bei Abscheidung von TiN dessen einphasiges Wachstum sehr wahrscheinlich. Dadurch ist eine Prozesskontrolle während der Abscheidung von TiN-Schichten im Vergleich zu der Abscheidung von TaN-Schichten deutlich einfacher möglich. Die in dieser Arbeit hergestellten TiN-Lagen wiesen nur ein sehr geringes Stickstoffdefizit auf, weswegen zunächst der Viellagenaufbau von FeCo/TiN-Schichtsystemen ohne N₂-Zugabe in die Prozessgasatmosphäre variiert wurde. Bei den Schichtsystemen mit geringen Doppellagendicken $\leq 8,8$ nm war nach dem 60-minütigen Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum eine beträchtliche Erhöhung der Härte gegenüber den Schichtsystemen mit höheren Doppellagendicken zu verzeichnen. Gleichzeitig war auffällig, dass bei den FeCo/TiN-Viellagenschichtsystemen mit $\Lambda < 21$ nm das Glühen zu einer Reduktion der ohnehin auch im ungeglühten Zustand schon sehr geringen Koerzitivfeldstärken führte. Bei der geringsten Doppellagendicke von 2,6 nm und einer FeCo-Lagendicke von 0,7 nm führte das Glühen bei 600 °C zu einer Reduktion der Koerzitivfeldstärke auf sogar nur 0,22 mT, während gleichzeitig die Netto-Sättigungspolarisation trotz der hohen Grenzflächenzahl mit 2 T nur etwa 10 % unterhalb des an einer FeCo-Einlagenschicht ermittelten Wertes lag. Gleichzeitig wiesen die FeCo/TiN-Viellagenschichten mit FeCo-Lagendicken von 1 nm oder weniger definiertes Verhalten im hochfrequenten elektromagnetischen Wechselfeld auf, das heißt, es wurden komplexe Permeabilitätsspektren gemessen, die neben einer hohen Anfangspermeabilität auch eine definierte Grenzfrequenz aufwiesen. Die Netto-Anfangspermeabilitäten (Gl. (2.15)) betragen

bei diesen Schichten in allen Fällen wenigstens 400 und sogar 560 bei der geringsten FeCo-Lagendicke. Eine geringfügige Erhöhung des Stickstoffanteils in den Viellagenschichten durch Zugabe von bis zu 5 Vol.-% Stickstoffanteil in die Prozessgasatmosphäre führte sogar zu einer weiteren Reduktion der Koerzitivfeldstärke auf im niedrigsten Fall nur noch 0,15 mT, sowie zu einer Erhöhung der Netto-Anfangspermeabilität auf bis zu 1200. Die Schichthärte wurde durch die Stickstoffzugabe jedoch reduziert.

Im Vergleich der Schichtsysteme miteinander wurde die beste Kombination aus mechanischen und magnetischen Eigenschaften mit dem FeCo/TiN-Viellagenschichtsystem bei einer Doppellagendicke von 2,6 nm erreicht. Nach 60-minütigem Magnetfeldglühen bei 600 °C im Vakuum wurden sehr geringe Koerzitivfeldstärken von 0,22 mT bei einer Sättigungspolarisation von 2 T ermittelt. Gleichzeitig erwies sich dasselbe Schichtsystem trotz eines 25-prozentigen Anteils von Fe₅₀Co₅₀ mit einem Wert von $(25,2 \pm 4,4)$ GPa um 19 % härter als eine 1 µm dicke TiN-Referenzschicht. Aufgrund der Härte als einem Indikator für die Verschleißbeständigkeit bietet sich dieses Schichtsystem als Bestandteil einer Verschleißschutzbeschichtung mit fernabfragbar sensorischer Funktion an.

Mit TEM-Aufnahmen wurde nachgewiesen, dass die FeCo/TiN-Viellagenschichten mit geringen Doppellagendicken aus säulenförmigen Kristalliten bestanden. Dieses Wachstum wurde dadurch ermöglicht, dass die Lagen in lokaler heteroepitaktischer Beziehung aufeinander aufwuchsen und dabei Kristallite in einer kubisch-flächenzentrierten Kristallstruktur mit ausgeprägter (200)-Textur bildeten. In den Röntgenbeugungsdiagrammen manifestierte sich dies darin, dass anstelle des (200)-Reflexes von kfz-TiN zwei Reflexe um dessen Position auftraten. Da eine Stabilisierung von FeCo-Lagen in kfz-Kristallstruktur auf den TiN-Lagen wegen des großen Unterschieds der Gitterparameter nicht als Erklärung für das Wachstum der nachgewiesenen heteroepitaktisch gewachsenen Säulen in Betracht kam, wurden weitere Experimente zur Untersuchung des Einflusses kinetischer Prozesse auf die Mikrostrukturbildung durchgeführt. In diesen Experimenten wurde bei Beibehaltung des Viellagenaufbaus zum einen die kinetische Energie der Fe- und Co-Atome durch Variation der FeCo-Targetleistung, und zum anderen die Teilchenenergie der an der Substratposition ankommenden Teilchen durch Variation des Prozessgasdrucks variiert. Mit diesen Experimenten konnte indirekt nachgewiesen werden, dass eine Mindesthöhe des kinetischen Energieeintrags für das beobachtete heteroepitaktische Säulenwachstum notwendig war. Auf Grundlage dieser experimentellen Erkenntnisse wurde ein Wachstumsmodell entwickelt, welches die Bildung der heteroepitaktisch gewachsenen Viellagenschichtsysteme mit der alternierenden Schichtung von TiN- und (Fe,Co,Ti)N-Mischkristalllagen erklärt. Die Bildung von (Fe,Co,Ti)N-Substitutionsmischkristalllagen ist in diesem Modell eine Folge des kinetischen Energieeintrags der schichtbildenden Teilchen. Die metastabile Kristallstruktur dieser (Fe,Co,Ti)N-Lagen wird in dem Modell durch die jeweils auf diese abgeschiedene TiN-Lage stabilisiert. Auf das beschriebene Schichtmodell aufbauend wurde die Doppelreflexbildung in den Röntgenbeugungsdiagrammen der FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme mit kleinen Doppellagendicken qualitativ erklärt.

Die Bildung der unter Substitutionsmischkristallbildung heteroepitaktisch gewachsenen Lagen und deren Stabilisierung ermöglichten den Einbau einer hohen Konzentration von Fe- und Co-Atomen in die kfz-TiN-Lagen. Die Einbindung der Fe- und Co-Atome in ein nitridisches Kristallgitter ließ erwarten, dass die Aktivierungsenergien für deren Volumendiffusion

deutlich höher waren als diejenigen von ausschließlich metallisch gebundenen Fe- und Co-Atomen. Mit diesem Effekt konnte die experimentell nachgewiesene Stabilität des Viellagenaufbaus gegen Glühen innerhalb des Temperaturbereichs zwischen 400 °C und 600 °C erklärt werden. Der im Vergleich zur krz-Kristallstruktur kleine Betrag der Anisotropiekonstante K_1 von kfz- $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ diente als Indikator dafür, dass auch im kubisch-flächenzentrierten (Fe,Co,Ti)N-Substitutionsmischkristall der Betrag der magnetokristallinen Anisotropie kleiner war als bei krz- $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$. Deshalb wurde die nach dem Magnetfeldglühen erreichte Kombination von sehr geringen Koerzitivfeldstärken und hohen Anfangspermeabilitäten bei FeCo/TiN-Viellagenschichten mit sehr geringen Doppellagendicken vor allem auf die Ausbildung des oben beschriebenen Viellagenaufbaus zurückgeführt.

Es gelang in dieser Arbeit also, durch Integration von ferromagnetischem $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ in die Hartstoffmaterialien $\text{Ta}_{50}\text{N}_{50}$ und $\text{Ti}_{50}\text{N}_{50}$ Viellagenschichtsysteme zu entwickeln, deren mechanische Eigenschaften mit denen von bei gleichen Bedingungen hergestellten TaN- und TiN-Einlagenschichten vergleichbar waren, und die zugleich sensorisch nutzbare ferromagnetische Eigenschaften aufwiesen. Vor allem mit der Kombination von $\text{Fe}_{50}\text{Co}_{50}$ und $\text{Ti}_{50}\text{N}_{50}$ zu Viellagenschichten mit geringen Doppellagendicken von nur wenigen Nanometern gelang es, Schichtsysteme zu entwickeln, deren ferromagnetische Eigenschaften die berührungslose Bestimmung von Schichtdicke und Gitterdehnung ermöglichen. Die berührungslose Zustandsbestimmung wurde mit einem der in dieser Arbeit hergestellten FeCo/TiN-Viellagenschichtsysteme beispielhaft anhand der Temperaturmessung gezeigt, die auf dem Zusammenhang zwischen der Gitterdehnung und der Temperatur beruhte. Die hergestellten Schichtsysteme bieten sich somit zur Nutzung als Verschleißschutzbeschichtung oder als Bestandteil eines mehrkomponentigen Verschleißschutzschichtsystems in allen Fällen an, in denen der, beispielsweise abrasive, Verschleiß, die Temperatur und mechanische Spannungen berührungslos und sogar gleichzeitig gemessen werden sollen. Weiterhin kann detektiert werden, ob Materialermüdung der Schicht bzw. des Schichtsystems vorliegt. Der Einsatz der entwickelten Schichten ist in solchen Anwendungen möglich, in denen die Substrate nicht ferromagnetisch sind, so beispielsweise bei nichtmagnetischen Hartmetallen, bei Bauteilen aus austenitischen Stählen oder aus Keramiken.

6 Literaturverzeichnis

- [1] F. W. Hahn Jr., *Thin film wear sensors*, *Wear* 74 (1981) 157–164.
- [2] A. W. Ruff, K. G. Kreider, *Deposited thin-film wear sensors: materials and design*, *Wear* 203–204 (1997) 187–195.
- [3] H. Lüthje, R. Bandorf, S. Biehl, B. Stint, *Thin film sensor for wear detection of cutting tools*, *Sensor. Actuat. A-Phys.* 116 (2004) 133–136.
- [4] T. Schönberg, K. P. Almqvist, M. K. Hansen, B. H. Christensen, M. Svensson, N. P. Østbø, u. a., *Intelligent machine parts with surface embedded sensors under wear resistant coatings*, in: 15th International Conference on Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems. Transducers 2009, IEEE, Denver, CO, 2009: S. 1857–1860.
- [5] R. J. L. Steenbakker, J. P. Feist, R. G. Wellman, J. R. Nicholls, *Sensor thermal barrier coatings: Remote in situ condition monitoring of EB-PVD coatings at elevated temperatures*, *J. Eng. Gas Turb. Power.* 131 (2009) 041301-1–041301-9.
- [6] C. Muratore, D. R. Clarke, J. G. Jones, A. A. Voevodin, *Smart tribological coatings with wear sensing capability*, *Wear* 265 (2008) 913–920.
- [7] P. C. Yashar, W. D. Sproul, *Nanometer scale multilayered hard coatings*, *Vacuum* 55 (1999) 179–190.
- [8] P. E. Hovsepian, D. B. Lewis, W.-D. Münz, *Recent progress in large scale manufacturing of multilayer/superlattice hard coatings*, *Surf. Coat. Technol.* 133–134 (2000) 166–175.
- [9] P. H. Mayrhofer, C. Mitterer, L. Hultman, H. Clemens, *Microstructural design of hard coatings*, *Prog. Mater. Sci.* 51 (2006) 1032–1114.
- [10] M. Stueber, H. Holleck, H. Leiste, K. Seemann, S. Ulrich, C. Ziebert, *Concepts for the design of advanced nanoscale PVD multilayer protective thin films*, *J. Alloy. Compd.* 483 (2009) 321–333.
- [11] M. Getzlaff, *Fundamentals of Magnetism*, 1. Aufl., Springer, Berlin, 2007.
- [12] R. Alben, J. J. Becker, M. C. Chi, *Random anisotropy in amorphous ferromagnets*, *J. Appl. Phys.* 49 (1978) 1653–1658.
- [13] G. Herzer, *Nanocrystalline soft magnetic materials*, *Phys. Scr.* T49A (1993) 307–314.
- [14] K. Suzuki, G. Herzer, J. M. Cadogan, *The effect of coherent uniaxial anisotropies on the grain-size dependence of coercivity in nanocrystalline soft magnetic alloys*, *J. Magn. Magn. Mater.* 177–181 (1998) 949–950.
- [15] D. D. L. Chung, *Composite materials: functional materials for modern technologies*, Springer, 2003.
- [16] É. D. T. de Lacheisserie, D. Gignoux, M. Schlenker, *Magnetism: Fundamentals*, Springer, 2005.
- [17] R. C. O’Handley, *Modern magnetic materials: principles and applications*, Wiley, 2000.
- [18] K. Seemann, H. Leiste, V. Bekker, *New theoretical approach to the RF-dynamics of soft magnetic FeTaN films for CMOS components*, *J. Magn. Magn. Mater.* 278 (2004) 200–207.
- [19] H.-J. Krause, N. Wolters, Y. Zhang, A. Offenhäusser, P. Miethe, M. H. F. Meyer, u. a., *Magnetic particle detection by frequency mixing for immunoassay applications*, *J. Magn. Magn. Mater.* 311 (2007) 436–444.

-
- [20] I. Teliban, C. Thede, S. Chemnitz, C. Bechtold, W. J. Quadackers, M. Schütze, u. a., *Magnetic moment investigation by frequency mixing techniques*, Rev. Sci. Instrum. 80 (2009) 115106-1–115106-5.
- [21] C. Bechtold, I. Teliban, C. Thede, S. Chemnitz, E. Quandt, *Non-contact strain measurements based on inverse magnetostriction*, Sensor. Actuat. A-Phys. 158 (2010) 224–230.
- [22] C. Thede, S. Chemnitz, I. Teliban, C. Bechtold, C. Klever, M. Stüber, u. a., *Non-contact temperature determination of embedded magnetic phases of hard coatings by exploitation of the magnetic hysteresis*, eingereicht bei Sensor. Actuat. A-Phys. (2011).
- [23] T. Massalski, ASM International., *Binary alloy phase diagrams*, 2. Aufl., ASM International, Materials Park Ohio, 1990.
- [24] T. Sourmail, *Near equiatomic FeCo alloys: Constitution, mechanical and magnetic properties*, Prog. Mater. Sci. 50 (2005) 816–880.
- [25] G. Couderchon, J. F. Tiers, *Some aspects of magnetic properties of Ni-Fe and Co-Fe alloys*, J. Magn. Magn. Mater. 26 (1982) 196–214.
- [26] I. Ohnuma, H. Enoki, O. Ikeda, R. Kainuma, H. Ohtani, B. Sundman, u. a., *Phase equilibria in the Fe-Co binary system*, Acta Mater. 50 (2002) 379–393.
- [27] T. Massalski, ASM International., *Binary alloy phase diagrams*, 2. Aufl., ASM International, Materials Park Ohio, 1990.
- [28] A. Fontbonne, J. Gilles, *New tantalum nitrides. double nitrides and oxynitrides of tantalum and niobium*, Rev. Int. Hautes Temper. Refract. 6 (1969) 181–191.
- [29] J. Gatterer, G. Dufek, P. Ettmayer, R. Kieffer, *Cubic tantalum mononitride (b1) and its miscibility with isotypic mononitrides and monocarbides of 4A-group and 5A-group metals*, Monatsh. Chem. 106 (1975) 1137–1147.
- [30] G. Brauer, E. Mohr, A. Neuhaus, A. Skokan, *Delta-TaN, high pressure form of TaN*, Monatsh. Chem. 103 (1972) 794–798.
- [31] B. Holmberg, *Structural studies on the titanium-nitrogen system*, Acta Chem. Scand. 16 (1962) 1255–1261.
- [32] A. N. Christensen, *A neutron diffraction investigation on single crystals of titanium carbide, titanium nitride, and zirconium nitride*, Acta Chem. Scand. A 29 (1975) 563–568.
- [33] G. Lobier, J. P. Marcon, *Structure of a new phase modification of Ti_2N* , Compt. Rend. 268 (1969) 1132–1135.
- [34] R. A. Baragiola, E. V. Alonso, J. Ferron, A. Oliva-Florio, *Ion-induced electron emission from clean metals*, Surf. Sci. 90 (1979) 240–255.
- [35] G. Lakits, F. Aumayr, M. Heim, H. Winter, *Threshold of ion-induced kinetic electron emission from a clean metal surface*, Phys. Rev. A 42 (1990) 5780–5783.
- [36] G. M. McCracken, *The behaviour of surfaces under ion bombardment*, Rep. Prog. Phys. 38 (1975) 241–327.
- [37] S. Mahieu, D. Depla, *Correlation between electron and negative O^- ion emission during reactive sputtering of oxides*, Appl. Phys. Lett. 90 (2007) 121117-1–121117-2.
- [38] J. C. Tucek, S. G. Walton, R. L. Champion, *Secondary-electron and negative-ion emission from Al: Effect of oxygen coverage*, Phys. Rev. B 53 (1996) 14127–14134.
- [39] J. C. Tucek, S. G. Walton, R. L. Champion, *Ion-induced secondary electron and negative ion emission from Mo/O*, Surf. Sci. 410 (1998) 258–269.
- [40] J. C. Tucek, R. L. Champion, *On the dynamics of secondary-electron and anion emis-*

-
- sion from an Al/O surface, *Surf. Sci.* 382 (1997) 137–146.
- [41] W. S. Vogán, S. G. Walton, R. L. Champion, *The role of O and Cl adsorbates on the secondary emission properties of tungsten*, *Surf. Sci.* 459 (2000) 14–22.
- [42] W. S. Vogán, R. L. Champion, *Oxygen adsorption on a Si(100) substrate: effects on secondary emission properties*, *Surf. Sci.* 492 (2001) 83–90.
- [43] D. J. Christie, *Fundamentals of high power pulsed magnetron sputtering: Visualization of mechanisms for rate reduction and increased ion fraction*, *Czech. J. Phys.* 56 (2006) B93–B97.
- [44] W. Lotz, *Electron-impact ionization cross-sections and ionization rate coefficients for atoms and ions from hydrogen to calcium*, *Z. Phys.* 216 (1968) 241–247.
- [45] W. Lotz, *Electron-impact ionization cross-sections for atoms up to $Z=108$* , *Z. Phys.* 232 (1970) 101–107.
- [46] M. Ohring, *The materials science of thin films: deposition and structure*, Academic Press, 2002.
- [47] S. Berg, T. Larsson, C. Nender, H.-O. Blom, *Predicting thin-film stoichiometry in reactive sputtering*, *J. Appl. Phys.* 63 (1988) 887–891.
- [48] S. Berg, T. Nyberg, *Fundamental understanding and modeling of reactive sputtering processes*, *Thin Solid Films* 476 (2005) 215–230.
- [49] D. Severin, O. Kappertz, T. Nyberg, S. Berg, M. Wuttig, *The effect of target aging on the structure formation of zinc oxide during reactive sputtering*, *Thin Solid Films* 515 (2007) 3554–3558.
- [50] B. A. Movchan, A. V. Demchishin, *Study of the structure and properties of thick vacuum condensates of nickel, titanium, tungsten, aluminium oxide and zirconium dioxide*, *Phys. Met. Metallogr.* 28 (1969) 83–90.
- [51] J. A. Thornton, *Influence of apparatus geometry and deposition conditions on the structure and topography of thick sputtered coatings*, *J. Vac. Sci. Technol.* 11 (1974) 666–670.
- [52] J. A. Thornton, *High rate thick film growth*, *Annu. Rev. Mater. Sci.* 7 (1977) 239–260.
- [53] J. A. Thornton, *The microstructure of sputter-deposited coatings*, *J. Vac. Sci. Technol. A* 4 (1986) 3059–3065.
- [54] R. A. Haefler, *Oberflächen- und Dünnschicht-Technologie: Beschichtungen von Oberflächen*, Springer, 1987.
- [55] P. B. Barna, M. Adamik, *Fundamental structure forming phenomena of polycrystalline films and the structure zone models*, *Thin Solid Films* 317 (1998) 27–33.
- [56] X. Nie, J. C. Jiang, L. D. Tung, L. Spinu, E. I. Meletis, *Multifunctional Co-C nanocomposite thin films*, *Thin Solid Films* 415 (2002) 211–218.
- [57] S. Biehl, H. Lüthje, R. Bandorf, J.-H. Sick, *Multifunctional thin film sensors based on amorphous diamond-like carbon for use in tribological applications*, *Thin Solid Films* 515 (2006) 1171–1175.
- [58] K. Aleksandrov, M. Schütze, I. Teliban, C. Thede, E. Quandt, *Depletion sensor for protective high temperature coatings*, *Mater. Corros.* 62 (2011) 706–712.
- [59] I. L. Rasmussen, M. Guibert, M. Belin, J.-M. Martin, N. J. Mikkelsen, H. C. Pedersen, u. a., *Wear monitoring of protective nitride coatings using image processing*, *Surf. Coat. Technol.* 204 (2010) 1970–1972.
- [60] S. Li, P. P. Freitas, M. S. Rogalski, M. Azevedo, J. B. Sousa, Z. N. Dai, u. a., *Magnetic properties and structure of a new multilayer $[FeTaN/TaN]_n$ for recording heads*, *J. Appl. Phys.* 81 (1997) 4501–4503.

-
- [61] S. Li, P. P. Freitas, S. Cardoso, J. C. Soares, B. Almeida, J. B. Sousa, *[FeTaN/TaN]_n soft multilayers for write head pole pieces*, J. Magn. Magn. Mater. 165 (1997) 363–366.
- [62] H. B. Nie, S. Y. Xu, J. Li, C. K. Ong, J. P. Wang, *Magnetic anisotropy and magnetoresistance of sputtered [(FeTaN)/(TaN)]_n multilayers*, J. Appl. Phys. 91 (2002) 7532–7534.
- [63] H. B. Nie, C. K. Ong, J. P. Wang, Z. W. Li, *Evolution of in-plane magnetic anisotropy in sputtered FeTaN/TaN/FeTaN sandwich films*, J. Appl. Phys. 93 (2003) 7252–7254.
- [64] M. S. Kumar, P. Böni, *Influence of interstitial nitrogen on the structural and magnetic properties of FeCoV/TiN_x multilayers*, J. Appl. Phys. 91 (2002) 3750–3758.
- [65] X.-C. Lu, B. Shi, M. Li, J. Luo, L. K. Y. Li, X. Chang, u. a., *Microstructure and properties of Fe-N/Ti-N magnetic multilayers*, Surf. Interface Anal. 32 (2001) 66–69.
- [66] Z.-J. Wang, L. S. Wen, X.-R. Chang, Y. S. Gu, Z.-Z. Tian, J. M. Xiao, *Oscillatory magnetic interlayer exchange coupling in Fe-N/TiN multilayers*, Appl. Phys. Lett. 68 (1996) 2887–2889.
- [67] S. Ramalingam, W. O. Winer, *Reactively sputtered TiN coatings for tribological applications*, Thin Solid Films 73 (1980) 267–274.
- [68] J. P. Bucher, K. P. Ackermann, F. W. Buschor, *R. F. reactively sputtered TiN: Characterization and adhesion to materials of technical interest*, Thin Solid Films 122 (1984) 63–71.
- [69] H. Holleck, *Möglichkeiten und Grenzen einer gezielten Stoffauswahl für verschleiß-feste Hartstoffschichten*, Mat.-wiss. U. Werkstofftech. 17 (1986) 334–341.
- [70] H. Holleck, *Material selection for hard coatings*, J. Vac. Sci. Technol. A 4 (1986) 2661–2669.
- [71] H. Holleck, *Basic principles of specific applications of ceramic materials as protective layers*, Surf. Coat. Technol. 43–44 (1990) 245–258.
- [72] H. Holleck, V. Schier, *Multilayer PVD coatings for wear protection*, Surf. Coat. Technol. 76–77 (1995) 328–336.
- [73] M. A. Auger, O. Sanchez, C. Ballesteros, M. Jergel, M. Aguilar-Frutis, C. Falcony, *TiN/AlN bilayers and multilayers grown by magnetron co-sputtering*, Thin Solid Films 433 (2003) 211–216.
- [74] Y.-H. Chen, M. Guruz, Y.-W. Chung, L.M. Keer, *Thermal stability of hard TiN/SiN_x multilayer coatings with an equiaxed microstructure*, Surf. Coat. Technol. 154 (2002) 162–166.
- [75] F. H. Mei, N. Shao, J. W. Dai, G. Y. Li, *Coherent growth and superhardness effect of AlN/TiN nanomultilayers*, Mater. Lett. 58 (2004) 3477–3480.
- [76] I. Wadsworth, D. B. Lewis, G. Williams, *Structural studies of TiN/ZrN multilayer coating deposited by physical vapour deposition*, J. Mater. Sci. 31 (1996) 5907–5914.
- [77] C. Ziebert, S. Ulrich, *Hard multilayer coatings containing TiN and/or ZrN: A review and recent progress in their nanoscale characterization*, J. Vac. Sci. Technol. A 24 (2006) 554–583.
- [78] X. Junhua, L. Geyang, G. Mingyuan, *The microstructure and mechanical properties of TaN/TiN and TaWN/TiN superlattice films*, Thin Solid Films 370 (2000) 45–49.
- [79] M. Nordin, R. Sundström, T. I. Selinder, S. Hogmark, *Wear and failure mechanisms of multilayered PVD TiN/TaN coated tools when milling austenitic stainless steel*, Surf. Coat. Technol. 133–134 (2000) 240–246.
- [80] M. Nordin, M. Larsson, S. Hogmark, *Wear resistance of multilayered PVD TiN/TaN on*

-
- HSS, Surf. Coat. Technol. 120–121 (1999) 528–534.
- [81] Y. Kang, C. Lee, J. Lee, *Effects of processing variables on the mechanical properties of Ta/TaN multilayer coatings*, Mat. Sci. Eng. B 75 (2000) 17–23.
- [82] K. J. Ma, T. Bell, A. Bloyce, *Examination of mechanical properties and failure mechanisms of TiN and Ti-TiN multilayer coatings*, Surf. Coat. Technol. 76–77 (1995) 297–302.
- [83] Ł. Major, J. Morgiel, *TEM analysis of wear of Ti/TiN multi-layer coating in ball-on-disc test*, Key Eng. Mat. 409 (2009) 123–127.
- [84] M. Bromark, M. Larsson, P. Hedenqvist, S. Hogmark, *Wear of PVD Ti/TiN multilayer coatings*, Surf. Coat. Technol. 90 (1997) 217–223.
- [85] E. Bemporad, M. Sebastiani, C. Pecchio, S. De Rossi, *High thickness Ti/TiN multilayer thin coatings for wear resistant applications*, Surf. Coat. Technol. 201 (2006) 2155–2165.
- [86] M. Herranen, U. Wiklund, J.-O. Carlsson, S. Hogmark, *Corrosion behaviour of Ti/TiN multilayer coated tool steel*, Surf. Coat. Technol. 99 (1998) 191–196.
- [87] U. Wiklund, P. Hedenqvist, S. Hogmark, B. Stridh, M. Arbell, *Multilayer coatings as corrosion protection of Zircaloy*, Surf. Coat. Technol. 86–87 (1996) 530–534.
- [88] T.S. Li, H. Li, F. Pan, *Microstructure and nanoindentation hardness of Ti/TiN multilayered films*, Surf. Coat. Technol. 137 (2001) 225–229.
- [89] Q. Zhang, Y. X. Leng, F. Qi, T. Tao, N. Huang, *Mechanical and corrosive behavior of Ti/TiN multilayer films with different modulation periods*, Nucl. Instrum. Meth. B 257 (2007) 411–415.
- [90] M. B. Daia, P. Aubert, S. Labdi, C. Sant, F. A. Sadi, P. Houdy, u. a., *Nanoindentation investigation of Ti/TiN multilayers films*, J. Appl. Phys. 87 (2000) 7753–7757.
- [91] Y. H. Cheng, T. Browne, B. Heckerman, C. Bowman, V. Gorokhovskiy, E. I. Meletis, *Mechanical and tribological properties of TiN/Ti multilayer coating*, Surf. Coat. Technol. 205 (2010) 146–151.
- [92] G. Abadias, Y. Y. Tse, A. Michel, C. Jaouen, M. Jaouen, *Nanoscaled composite TiN/Cu multilayer thin films deposited by dual ion beam sputtering: growth and structural characterisation*, Thin Solid Films 433 (2003) 166–173.
- [93] G. Abadias, S. Dub, R. Shmegeera, *Nanoindentation hardness and structure of ion beam sputtered TiN, W and TiN/W multilayer hard coatings*, Surf. Coat. Technol. 200 (2006) 6538–6543.
- [94] C. B. Wei, X. B. Tian, Y. Yang, S. Q. Yang, R. K. Y. Fu, P. K. Chu, *Microstructure and tribological properties of Cu-Zn/TiN multilayers fabricated by dual magnetron sputtering*, Surf. Coat. Technol. 202 (2007) 189–193.
- [95] V. Bekker, K. Seemann, H. Leiste, *Development and optimisation of thin soft ferromagnetic Fe-Co-Ta-N and Fe-Co-Al-N films with in-plane uniaxial anisotropy for HF applications*, J. Magn. Mater. 296 (2006) 37–45.
- [96] Powder Diffraction File 2: 44-1433, FeCo.
- [97] Powder Diffraction File 2: 38-1420, TiN.
- [98] Powder Diffraction File 2: 29-1321, hex-Ta₂N.
- [99] Powder Diffraction File 2: 39-1485, hex-TaN.
- [100] Powder Diffraction File 2: 32-1283, kfz-TaN.
- [101] L. Nevot, P. Croce, *Characterization of surfaces by grazing X-ray reflection—application to the study of polishing of some silicate glasses*, Rev. Phys. Appl. 15 (1980) 761–80.

-
- [102] L. Spieß, R. Schwarzer, G. Teichert, H. Behnken, *Moderne Röntgenbeugung: Röntgendiffraktometrie für Materialwissenschaftler, Physiker und Chemiker*, Vieweg + Teubner, 2009.
- [103] T. N. Blanton, C. R. Hoople, *X-ray diffraction analysis of ultrathin platinum silicide films deposited on (100) silicon*, Powder Diffr. 17 (2002) 7–9.
- [104] J. L. Lábár, *Consistent indexing of a (set of) single crystal SAED pattern(s) with the ProcessDiffraction program*, Ultramicroscopy 103 (2005) 237–249.
- [105] J. L. Lábár, *Electron diffraction based analysis of phase fractions and texture in nanocrystalline thin films, part I: Principles*, Microsc. Microanal. 14 (2008) 287–295.
- [106] J. L. Lábár, *Electron diffraction based analysis of phase fractions and texture in nanocrystalline thin films, part II: Implementation*, Microsc. Microanal. 15 (2009) 20–29.
- [107] W. C. Oliver, G. M. Pharr, *Measurement of thin film mechanical properties using nanoindentation*, MRS Bull. 17 (1992) 28–33.
- [108] J. S. Field, M. V. Swain, *A simple predictive model for spherical indentation*, J. Mater. Res. 8 (1993) 297–306.
- [109] G. C. A. M. Janssen, M. M. Abdalla, F. van Keulen, B. R. Pujada, B. van Venrooy, *Celebrating the 100th anniversary of the Stoney equation for film stress: Developments from polycrystalline steel strips to single crystal silicon wafers*, Thin Solid Films 517 (2009) 1858–1867.
- [110] G. G. Stoney, *The tension of metallic films deposited by electrolysis*, P. R. Soc. Lond. A-Conta. 82 (1909) 172–175.
- [111] S. Foner, *The vibrating sample magnetometer: Experiences of a volunteer (invited)*, J. Appl. Phys. 79 (1996) 4740–4745.
- [112] S. Foner, *Versatile and sensitive vibrating-sample magnetometer*, Rev. Sci. Instrum. 30 (1959) 548–557.
- [113] V. Bekker, K. Seemann, H. Leiste, *A new strip line broad-band measurement evaluation for determining the complex permeability of thin ferromagnetic films*, J. Magn. Magn. Mater. 270 (2004) 327–332.
- [114] C. Klever, M. Stüber, H. Leiste, E. Nold, K. Seemann, S. Ulrich, u. a., *Multifunctional FeCo/TiN multilayer thin films with combined magnetic and protective properties*, Adv. Eng. Mater. 11 (2009) 969–975.
- [115] C. Klever, K. Seemann, M. Stüber, S. Ulrich, H. Brunken, A. Ludwig, u. a., *Epitaxially stabilized TiN/(Ti,Fe,Co)N multilayer thin films in (pseudo-)fcc crystal structure by sequential magnetron sputter deposition*, J. Phys. D: Appl. Phys. 43 (2010) 395406-1–395406-6.
- [116] K. Frisk, *Analysis of the phase diagram and thermochemistry in the Ta-N and the Ta-C-N systems*, J. Alloy. Compd. 278 (1998) 216–226.
- [117] S. Noda, K. Tepsanongsuk, Y. Tsuji, Y. Kajikawa, Y. Ogawa, H. Komiyama, *Preferred orientation and film structure of TaN films deposited by reactive magnetron sputtering*, J. Vac. Sci. Technol. A 22 (2004) 332–338.
- [118] C.-S. Shin, D. Gall, Y.-W. Kim, N. Hellgren, I. Petrov, J. E. Greene, *Development of preferred orientation in polycrystalline NaCl-structure δ -TaN layers grown by reactive magnetron sputtering: Role of low-energy ion surface interactions*, J. Appl. Phys. 92 (2002) 5084–5093.
- [119] Y. Kajikawa, S. Noda, H. Komiyama, *Comprehensive perspective on the mechanism of preferred orientation in reactive-sputter-deposited nitrides*, J. Vac. Sci. Technol. A

-
- 21 (2003) 1943–1954.
- [120] A. Winkelmann, M. Przybylski, F. Luo, Y. Shi, J. Barthel, *Perpendicular magnetic anisotropy induced by tetragonal distortion of FeCo alloy films grown on Pd(001)*, Phys. Rev. Lett. 96 (2006) 257205-1–257205-4.
- [121] F. Yildiz, M. Przybylski, X.-D. Ma, J. Kirschner, *Strong perpendicular anisotropy in Fe_{1-x}Co_x alloy films epitaxially grown on mismatching Pd(001), Ir(001), and Rh(001) substrates*, Phys. Rev. B 80 (2009) 064415-1–064415-6.
- [122] I. L. Graff, J. Geshev, S. R. Teixeira, L. Amaral, A. Traverse, *Atomic level mixing induced by Kr irradiation of FeCo/Cu multilayers*, J. Appl. Phys. 103 (2008) 033505-1–033505-11.
- [123] Y. Liu, C. Y. Tan, Z. W. Liu, C. K. Ong, *FeCoSiN film with ordered FeCo nanoparticles embedded in a Si-rich matrix*, Appl. Phys. Lett. 90 (2007) 112506-1–12506-3.
- [124] P. E. Schmid, M. S. Sunaga, F. Lévy, *Optical and electronic properties of sputtered TiN_x thin films*, J. Vac. Sci. Technol. A 16 (1998) 2870–2875.
- [125] B. Predel, Fe-N (Iron-Nitrogen), Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg, 1995.
- [126] B. Predel, Co-N (Cobalt-Nitrogen), Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg, 1995.
- [127] A. Kirsten, C. Pietzsch, H. Oettel, *Mössbauer investigations of (Ti,Fe)N hard coatings*, Thin Solid Films 288 (1996) 198–201.
- [128] J. W. Matthews, A. E. Blakeslee, *Defects in epitaxial multilayers: I. Misfit dislocations*, J. Cryst. Growth 27 (1974) 118–125.
- [129] I. K. Schuller, *New class of layered materials*, Phys. Rev. Lett. 44 (1980) 1597–1600.
- [130] E. E. Fullerton, I. K. Schuller, H. Vanderstraeten, Y. Bruynseraede, *Structural refinement of superlattices from x-ray diffraction*, Phys. Rev. B 45 (1992) 9292–9310.
- [131] H. Ljungcrantz, M. Odén, L. Hultman, J.E. Greene, J.-E. Sundgren, *Nanoindentation studies of single-crystal (001)-, (011)-, and (111)-oriented TiN layers on MgO*, J. Appl. Phys. 80 (1996) 6725–6733.
- [132] K. W. Lee, Y.-H. Chen, Y.-W. Chung, L. M. Keer, *Hardness, internal stress and thermal stability of TiB₂/TiC multilayer coatings synthesized by magnetron sputtering with and without substrate rotation*, Surf. Coat. Technol. 177–178 (2004) 591–596.
- [133] K. J. Martin, A. Madan, D. Hoffman, J. Ji, S. A. Barnett, *Mechanical properties and thermal stability of TiN/TiB₂ nanolayered thin films*, J. Vac. Sci. Technol. A 23 (2005) 90–98.
- [134] K. N. Andersen, E. J. Bienk, K. O. Schweitz, H. Reitz, J. Chevallier, P. Kringhøj, u. a., *Deposition, microstructure and mechanical and tribological properties of magnetron sputtered TiN/TiAlN multilayers*, Surf. Coat. Technol. 123 (2000) 219–226.
- [135] L. Geyang, H. Zenghu, T. Jiawan, X. Junhua, G. Mingyuan, *Alternating stress field and superhardness effect in TiN/NbN superlattice films*, J. Vac. Sci. Technol. A 20 (2002) 674–677.
- [136] H. Söderberg, M. Odén, J. M. Molina-Aldareguia, L. Hultman, *Nanostructure formation during deposition of TiN/SiN_x nanomultilayer films by reactive dual magnetron sputtering*, J. Appl. Phys. 97 (2005) 114327-1–114327-8.
- [137] H. Söderberg, M. Odén, T. Larsson, L. Hultman, J. M. Molina-Aldareguia, *Epitaxial stabilization of cubic-SiN_x in TiN/SiN_x multilayers*, Appl. Phys. Lett. 88 (2006) 191902-1–191902-3.
- [138] D.-G. Kim, T.-Y. Seong, Y.-J. Baik, *Effects of annealing on the microstructures and mechanical properties of TiN/AlN nano-multilayer films prepared by ion-beam assisted deposition*, Surf. Coat. Technol. 153 (2002) 79–83.

-
- [139] G. Li, *Coherent growth and mechanical properties of AlN/VN multilayers*, J. Appl. Phys. 95 (2004) 92–96.
- [140] J. Lao, N. Shao, F. Mei, G. Li, M. Gu, *Mutual promotion effect of crystal growth in TiN/SiC nanomultilayers*, Appl. Phys. Lett. 86 (2005) 011902-1–011902-3.
- [141] J. S. Koehler, *Attempt to design a strong solid*, Phys. Rev. B 2 (1970) 547–551.
- [142] X. T. Zeng, S. Zhang, C. Q. Sun, Y. C. Liu, *Nanometric-layered CrN/TiN thin films: mechanical strength and thermal stability*, Thin Solid Films 424 (2003) 99–102.
- [143] H. C. Barshilia, M. S. Prakash, A. Jain, K. S. Rajam, *Structure, hardness and thermal stability of TiAlN and nanolayered TiAlN/CrN multilayer films*, Vacuum 77 (2005) 169–179.
- [144] H. C. Barshilia, A. Jain, K. S. Rajam, *Structure, hardness and thermal stability of nanolayered TiN/CrN multilayer coatings*, Vacuum 72 (2003) 241–248.
- [145] P. H. Mayrhofer, A. Hörling, L. Karlsson, J. Sjöln, T. Larsson, C. Mitterer, u. a., *Self-organized nanostructures in the Ti-Al-N system*, Appl. Phys. Lett. 83 (2003) 2049–2051.
- [146] P. Franke, D. Neuschütz, *Scientific Group Thermodata Europe (SGTE), Cr-N*, Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg, 1995.
- [147] Collaboration: *Scientific Group Thermodata Europe (SGTE), Ag-Rh*, Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg, 1995.
- [148] B. Predel, *N-Ti (Nitrogen-Titanium)*, Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg, 1995.
- [149] S. A. Barnett, M. Shinn, *Plastic and elastic properties of compositionally modulated thin films*, Annu. Rev. Mater. Sci. 24 (1994) 481–511.
- [150] H. Windischmann, *Intrinsic stress in sputter-deposited thin films*, Crit. Rev. Solid State. 17 (1992) 547–596.
- [151] H. Windischmann, *An intrinsic stress scaling law for polycrystalline thin films prepared by ion beam sputtering*, J. Appl. Phys. 62 (1987) 1800-1–1800-8.
- [152] C. A. Davis, *A simple model for the formation of compressive stress in thin films by ion bombardment*, Thin Solid Films 226 (1993) 30–34.
- [153] R. Daniel, D. Holec, M. Bartosik, J. Keckes, C. Mitterer, *Size effect of thermal expansion and thermal/intrinsic stresses in nanostructured thin films: Experiment and model*, Acta Mater. 59 (2011) 6631–6645.
- [154] R. Daniel, K. J. Martinschitz, J. Keckes, C. Mitterer, *The origin of stresses in magnetron-sputtered thin films with zone T structures*, Acta Mater. 58 (2010) 2621–2633.
- [155] R. Machunze, G. C. A. M. Janssen, *Stress and strain in titanium nitride thin films*, Thin Solid Films 517 (2009) 5888–5893.
- [156] H. Köstenbauer, G. A. Fontalvo, M. Kapp, J. Keckes, C. Mitterer, *Annealing of intrinsic stresses in sputtered TiN films: The role of thickness-dependent gradients of point defect density*, Surf. Coat. Technol. 201 (2007) 4777–4780.
- [157] H. Köstenbauer, G. A. Fontalvo, J. Keckes, C. Mitterer, *Intrinsic stresses and stress relaxation in TiN/Ag multilayer coatings during thermal cycling*, Thin Solid Films 516 (2008) 1920–1924.
- [158] T. Ambrose, J. J. Krebs, K. Bussmann, G. A. Prinz, *Magnetic and structural properties of face-centered-cubic Fe_xCo_{1-x} alloys on diamond*, J. Appl. Phys. 85 (1999) 5066–5068.
- [159] M. Zharnikov, A. Dittschar, W. Kuch, K. Meinel, C. M. Schneider, J. Kirschner, *Epitaxial fcc Fe-Co alloy films on Cu(001)*, Thin Solid Films 275 (1996) 262–265.

-
- [160] W. R. L. Lambrecht, M. S. Miao, P. Lukashev, *Magnetic properties of transition-metal nitrides*, J. Appl. Phys. 97 (2005) 10D306-1–10D306-3.
- [161] A. Filippetti, *Prediction of a ferromagnetic ground state for NaCl-type FeN*, Phys. Rev. B 59 (1999) 8397–8400.

Danksagung

Bei Herrn Professor Karl-Heinz Zum Gahr möchte ich mich sehr herzlich dafür bedanken, dass er die Anfertigung dieser Dissertation als Leiter des Instituts für Materialforschung I (IMF I) am Campus Nord des Karlsruher Instituts für Technologie (KIT), dem vormaligen Forschungszentrum Karlsruhe, ermöglicht hat. Er hat mich in meiner Zeit am KIT jederzeit sehr unterstützt, wobei ich vor allem für die Gewährung eines weiten inhaltlichen Gestaltungsraums und die großzügige Bereitstellung aller nötigen Ressourcen dankbar bin. Darüber hinaus möchte ich ihm sehr für die Unterstützung während der Fertigstellung der Arbeit sowie nicht zuletzt auch für die Übernahme des Hauptreferats danken.

Herrn Professor Volker Schulze danke ich herzlich für die Übernahme des Korreferats und das bekundete große Interesse an den präsentierten Ergebnissen.

Bei Herrn Professor Ulrich Spicher bedanke ich mich herzlich für die Übernahme des Prüfungsvorsitzes.

Allen Mitgliedern der Abteilung „Stoffverbunde und Dünnschichten“ des Instituts für Angewandte Materialien – Angewandte Werkstoffphysik, dem vormaligen IMF I, danke ich sehr herzlich für die freundliche Aufnahme und die immerwährende Unterstützung, ohne die diese Arbeit nicht fertiggestellt worden sein könnte. Ganz besonders bedanke ich mich bei Herrn Dr. Michael Stüber für Anleitung, Rat und Tat und seine bedingungslose Unterstützung. Herrn Dr. Harald Leiste danke ich herzlich für all seine Hilfe, besonders für die tatkräftige Unterstützung am TEM und an den Röntgendiffraktometern, sowie für zahlreiche fachliche Diskussionen über meine Schlussfolgerungen aus den Ergebnissen. Herrn Dr. Klaus Seemann danke ich für die große Unterstützung, vor allem bei den Messungen magnetischer Schichteigenschaften und bei deren Interpretation. Bei Herrn Dr. Carlos Ziebert bedanke ich mich vor allem für die Einweisung in die Bedienung des Nanoindenters. Frau Beate Rabsch danke ich für die aufgenommenen REM-Bilder, die sie immer in sehr hoher Qualität angefertigt hat, und für die sie jederzeit, und in vielen Fällen auch unter hohem Zeitdruck, zur Verfügung stand. Ihr gilt darüber hinaus, wie auch Frau Laura Trauth, mein Dank für die Präparation von TEM-Proben. Herrn Stefan Zils danke ich vor allem, aber nicht nur, dafür, dass er bei Auftreten technischer Defekte seine „heilenden Wunderhände“ über die Beschichtungsanlagen der Abteilung gelegt hat, wodurch die Herstellung der Schichten für diese Arbeit erst möglich wurde. Frau Uta Gerhards, Herrn Eberhard Nold, Herrn Kolja Erbes und Herrn Tobias Weingärtner danke ich für die immer sehr sorgfältig durchgeführten chemischen Analysen. Meinen Mitdoktoranden Frau Friederike Danneil, Herrn Dominic Diechle, Herrn Julian Fischer sowie den Doktoranden der nächsten Generation, Frau Kathrin Krüger, Frau Elke Schuster und Frau Stefanie Spitz, danke ich für die gute Zusammenarbeit und die gute Kameradschaft. Das Gleiche gilt auch für die in der Arbeitsgruppe tätigen Diplomanden und Studienarbeiter. Den genannten und auch allen übrigen Mitgliedern der Abteilung danke ich für die immer sehr gute Atmosphäre, die stete gegenseitige Hilfsbereitschaft und die herrschende Solidarität. Besonders bedanken möchte ich mich außerdem bei Herrn Dr. Sven Ulrich, der als Leiter der Abteilung „Stoffverbunde und Dünnschichten“ ganz entscheidend Verantwortung dafür trägt, dass jederzeit die Voraussetzungen dafür gegeben waren, dass mir meine Zeit der Mitarbeit viel Freude und Spaß bereitet hat und mir sehr am Herzen liegt.

Bei Herrn Hayo Brunken und Herrn Professor Alfred Ludwig von der Ruhr-Universität Bochum sowie bei Herrn Claas Thede und Herrn Professor Eckhard Quandt von der Christian-Albrechts-Universität zu Kiel bedanke ich mich für die konstruktive und gute Zusammenarbeit im Rahmen des Schwerpunktprogramms 1299 „Oberflächen für Hochtemperaturanwendungen“.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft danke ich für die finanzielle Förderung dieser Arbeit im Rahmen des Schwerpunktprogramms 1299.