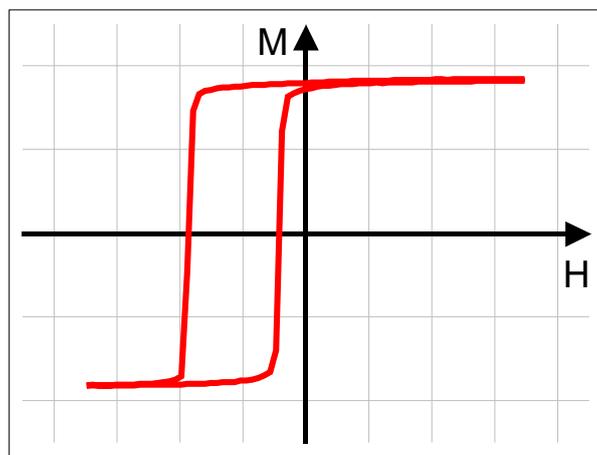


Thermische Stabilität und Modifizierung der magnetischen Austauschanisotropie in Schichtsystemen



Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

Vorgelegt im Fachbereich Physik
der Universität Kassel von

Andreas Paetzold

Juni 2002

Erster Gutachter: Prof. Dr. Klaus Röll
Zweiter Gutachter: Prof. Dr. Rainer Kassing

Tag der mündlichen Prüfung: 17. Juli 2002

Inhaltsverzeichnis

| | |
|---|-----------|
| Einleitung | 1 |
| 1 Magnetowiderstand | 5 |
| 1.1 Gigantischer Magnetowiderstand (GMR) | 5 |
| 1.2 Mikroskopischer Ursprung des GMR | 6 |
| 1.3 GMR-Schichtsysteme | 10 |
| 1.3.1 Antiferromagnetisch gekoppelte Systeme | 11 |
| 1.3.2 Spin-Valve Systeme | 12 |
| 1.4 Weitere Magnetowiderstandseffekte | 18 |
| 2 Magnetische Anisotropien | 21 |
| 2.1 Anisotropien in ferromagnetischen Schichten | 21 |
| 2.2 Anisotropien in antiferromagnetischen Schichten | 24 |
| 2.3 Austauschanisotropie | 25 |
| 2.3.1 Der Exchange-Bias Effekt | 25 |
| 2.3.2 Theoretische Modelle | 31 |
| 3 Präparation der Schichtsysteme | 40 |
| 3.1 Prinzip der Kathodenzerstäubung (Sputtern) | 40 |
| 3.1.1 DC- und HF-Dioden-Zerstäubung | 42 |
| 3.1.2 Reaktive Zerstäubung | 43 |
| 3.1.3 Kondensation und Schichtwachstum | 45 |
| 3.2 Sputteranlage | 48 |
| 3.3 Eichung der Beschichtungsraten | 50 |
| 3.4 Tempern im Magnetfeld | 52 |
| 4 Analyse der Schichtsysteme | 54 |
| 4.1 Phasen- und Strukturanalyse | 54 |
| 4.1.1 Röntgendiffraktometrie | 54 |
| 4.1.2 Transmissions-Elektronenmikroskopie (TEM) | 59 |
| 4.2 Elementanalyse mittels ERD | 66 |
| 4.3 Oberflächen-Rauigkeit | 69 |

| | | |
|----------|--|------------|
| 5 | Magnetische Messmethoden | 72 |
| 5.1 | Kerr-Magnetometrie | 73 |
| 5.1.1 | Magnetooptischer Kerr-Effekt | 73 |
| 5.1.2 | Kerr-Magnetometer | 75 |
| 5.2 | Vibrationsmagnetometrie | 78 |
| 5.3 | Magnetowiderstandsmessung | 79 |
| 6 | Verzögerte Ausbildung der Austauschisotropie | 83 |
| 6.1 | Experimentelle Ergebnisse | 83 |
| 6.2 | Thermisch aktivierte Relaxation | 87 |
| 7 | Stabilität der Austauschisotropie | 94 |
| 7.1 | Thermische Stabilität | 94 |
| 7.2 | Verbesserung der Stabilität durch Tempern | 96 |
| 7.3 | Einfluss der Mikrostruktur des NiO | 102 |
| 7.4 | Interpretation der Ergebnisse | 106 |
| 8 | Lokale Modifizierung der Austauschisotropie | 109 |
| 8.1 | Bestrahlung mit Helium-Ionen | 109 |
| 8.1.1 | Grundlagen der Ionenimplantation | 110 |
| 8.1.2 | Modifizierung der Austauschisotropie durch Ionenbestrahlung | 113 |
| 8.1.3 | Qualitatives Modell | 119 |
| 8.1.4 | Einfluss der Ionenbestrahlung auf den GMR | 120 |
| 8.2 | Bestrahlung mit kurzen Laserpulsen | 126 |
| 9 | Zusammenfassung und Ausblick | 135 |
| | Literaturverzeichnis | 139 |
| | Magnetische Größen und Einheiten | 157 |
| | Danksagung | 159 |
| | Veröffentlichungen | 161 |
| | Tagungsbeiträge | 162 |
| | Lebenslauf | 163 |

Einleitung

Heutzutage müssen ständig riesige Datenmengen verarbeitet, aber vor allem auch gespeichert werden. Der Bedarf an Speicherkapazität wird in der Zukunft vermutlich weiterhin stark wachsen. Die Speicherung der digitalen Informationen auf magnetischen Datenträgern ist eine zuverlässige Methode, die sich seit vielen Jahrzehnten bewährt hat und kontinuierlich verbessert wurde.

Die ersten kommerziellen Festplatten in den 1950er Jahren hatten eine Speicherdichte (Anzahl der digitalen Informationen pro Fläche) von etwa 2 kbit/in^2 [1].¹ Die Speicherung des gesamten Textes dieser Arbeit (ca. 330 000 Zeichen) hätte damals eine Fläche von 8517 cm^2 , die Fläche von fast 14 DIN A4 Blättern, in Anspruch genommen. Bis heute ist die Speicherdichte in Festplatten um mehr als einen Faktor 10^7 auf 34 Gbit/in^2 gestiegen [2]. Damit lässt sich dieser Text auf einer Fläche von nur $0,05 \text{ mm}^2$ speichern, was in etwa der Querschnittsfläche von 10–15 menschlichen Haaren entspricht. Dieses Beispiel veranschaulicht die enormen Fortschritte, die in der magnetischen Speichertechnologie erzielt wurden. Eine wesentliche Rolle spielte dabei die Entwicklung neuer Sensoren.

Bei der longitudinalen Speicherung der Daten auf Festplatten werden die Informationen durch die Magnetisierungsrichtungen kleiner ferromagnetischer Bereiche (Domänen) im Speichermedium repräsentiert (Abb. 1). Beim Schreiben der Informationen magnetisiert ein induktives Element die Domänen. Ausgelesen werden die Daten durch einen Sensor, der die Magnetisierungsrichtungen der Domänen detektiert. Eine Steigerung der Speicherdichte erfordert kleinere Domänen und empfindlichere Sensoren, weil die zu messenden Magnetfeldstärken abnehmen.

Anfang der 1990er Jahre wurden erstmals Sensoren auf der Basis dünner magnetoresistiver Schichten eingesetzt. Dabei handelt es sich um ferromagnetische Schichten (Legierungen aus Fe, Ni, Co), deren elektrischer Widerstand von der Magnetisierungsrichtung des Materials abhängt. Die Magnetisierungsrichtung ändert sich im Streufeld der Domänen, wobei die relative Widerstandsänderung ($\Delta R/R$) maximal 3–4 % beträgt [3]. Durch die Miniaturisierung der Leseköpfe wurde die Speicherdichte bis auf etwa 1 Gbit/in^2 gesteigert.

Der *Riesen-Magnetowiderstand* (engl. *giant magnetoresistance*, *GMR*) wurde 1988 entdeckt [4, 5]. Der GMR-Effekt wird in dünnen Schichtsystemen beobachtet, wobei der elektrische Widerstand von den relativen Magnetisierungsrichtungen

¹Einheit „square inch“: $1 \text{ in}^2 \approx 6,45 \text{ cm}^2$

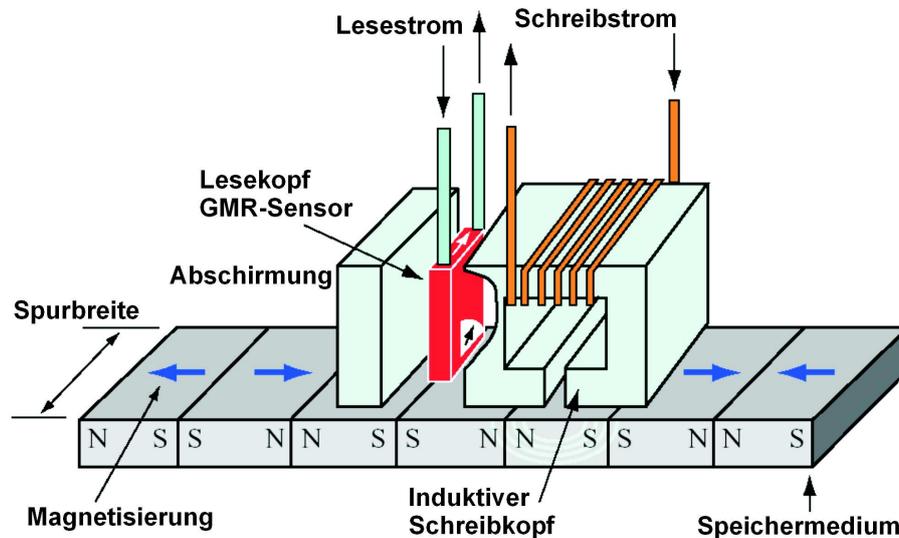


Abbildung 1: Prinzip der longitudinalen magnetischen Datenspeicherung [1]. Der induktive Schreibkopf magnetisiert kleine Bereiche (Domänen) im Speichermedium. Die Spurbreite beträgt in modernen Festplatten etwa $0,5 \mu\text{m}$ und die Bit-Länge nur $0,05 \mu\text{m}$. Die Magnetisierungsrichtung der Domänen stellt die digitale Information dar. Der Lesekopf (z. B. ein GMR-Sensor) detektiert die magnetischen Streufelder der Domänen und wandelt die magnetischen Informationen in ein elektrisches Signal um.

zweier ferromagnetischer Schichten abhängt, wenn diese durch eine dünne nicht magnetische Zwischenschicht getrennt sind. (Die physikalischen Grundlagen des GMR werden in Kapitel 1 kurz behandelt.)

Die Entwicklung und Realisierung von Leseköpfen in GMR-Technologie erfolgte sehr schnell. Erste Festplatten mit diesen Sensoren kamen gegen Ende der 1990er Jahre auf den Markt und ermöglichten einen weiteren Sprung in der Erhöhung der Speicherdichte. Die relative Widerstandsänderung beträgt in modernen Leseköpfen, die diesen Effekt nutzen, bis zu 15 % [6]. Im Zuge der Erforschung des GMR wurden noch weitere Magnetowiderstandseffekte gefunden, wodurch ein neues Arbeitsgebiet, die *Magnetoelektronik* oder *Spintronik*, eröffnet wurde [7]. Der Spin der Elektronen dient dabei als Informationsträger.

In GMR-Schichtsystemen ist der Widerstand maximal, wenn die Magnetisierungsrichtungen der ferromagnetischen Schichten antiparallel zueinander ausgerichtet sind. Bei parallelen Magnetisierungsrichtungen ist der Widerstand minimal. In Kapitel 1 werden verschiedene Möglichkeiten aufgezeigt, die zu einem solchen antiparallelen Magnetisierungszustand führen können. Eine spezielle Variante der GMR-Sensoren sind die so genannten *Spin-Valves* (Spin-Ventile). Die GMR-Leseköpfe in Festplatten sind hauptsächlich Spin-Valves, da sie sich durch hohe Empfindlich-

keiten bei kleinen Feldstärken auszeichnen.

Die Spin-Valve Systeme enthalten als wesentliche Komponente, neben den zwei ferromagnetischen Schichten (FM), noch eine antiferromagnetische Schicht (AF), die an eine der beiden FM-Schichten angrenzt. Eine magnetische Kopplung zwischen FM und AF führt zu einer unidirektionalen magnetischen Anisotropie im FM, der *Austauschanisotropie* [8, 9]. Durch die Austauschanisotropie wird die Magnetisierung der einen FM-Schicht festgehalten, so dass diese erst bei sehr hohen Feldstärken ummagnetisiert. Die Eigenschaften eines Spin-Valve Systems hängen entscheidend von der Kopplung zwischen AF und FM, der Austauschanisotropie, ab. Die Mechanismen, die zu einer Austauschanisotropie in Schichtsystemen führen können, werden in Kapitel 2 ausführlich behandelt.

Die erfolgreiche Anwendung von Spin-Valves in Festplatten hat dazu geführt, dass auch in anderen Bereichen die Entwicklungsarbeit vorangetrieben wird. Potentielle Anwendungen für GMR-Sensoren ergeben sich in der Automobiltechnik [10], der präzisen Drehzahl- und Winkelmessung [11, 12], dem Maschinenbau und der zerstörungsfreien Werkstoffprüfung [13]. Ein völlig neuer Anwendungsbereich, der bisher der Halbleitertechnologie vorbehalten war, ergibt sich durch den möglichen Einsatz von Spin-Valve Systemen als magnetische Arbeitsspeicher (engl. *Magnetic Random Access Memory, MRAM*) [14, 15]. Ein wesentlicher Vorteil der MRAMs liegt in der nicht flüchtigen Informationsspeicherung. Des Weiteren werden Spin-Transistoren [16, 17] angestrebt, mit denen elektrische Lasten magnetisch geschaltet werden. Sie bilden das magnetische Analogon zum Feldeffekttransistor.

Gemeinsam stellen alle Anwendungen hohe Anforderungen an die Zuverlässigkeit der Spin-Valve Systeme. Gefordert werden dabei: großer Magnetowiderstandswert ($\Delta R/R$), hohe Temperaturstabilität, starke und zeitlich konstante Austauschanisotropie sowie hohe chemische Resistenz. Die Wahl des antiferromagnetischen Materials spielt für diese Eigenschaften eine entscheidende Rolle. Gerade wegen der guten Korrosionsbeständigkeit [18] werden oxidische Antiferromagnete wie CoO, NiO oder Fe₂O₃ favorisiert. Außerdem erhöhen die Oxid-Schichten den Magnetowiderstandswert [19, 20], weil die Elektronen von der isolierenden Schicht wieder zurück in die aktiven Schichten reflektiert werden. Schichtsysteme mit NiO als Antiferromagnet sind aufgrund der relativ hohen NÉEL-Temperatur des Oxids ($T_N \approx 520$ K) von besonderem Interesse.

Die thermische Stabilität der Austauschanisotropie zwischen AF- und FM-Schicht ist eine wesentliche Voraussetzung für technische Anwendungen. Die Temperatur, bei der die Austauschanisotropie aufgehoben wird, bezeichnet man als *Blocking-Temperatur* (T_B). Theoretisch sollte T_B mit T_N übereinstimmen. In der Praxis ist jedoch meist $T_B < T_N$. Für Schichtsysteme mit polykristallinen NiO-Schichten schwanken die gemessenen Blocking-Temperaturen zwischen 450 und 500 K [21]. Eine weitere wichtige Voraussetzung für die Anwendung von NiO in Spin-Valves ist die zeitliche Konstanz der Austauschanisotropie. Durch verschiedene Experimente wurde gezeigt, dass die Austauschanisotropie in vielen Schichtsystemen durch äußere Magnetfelder beeinflusst wird [22–29].

Aus diesen Anforderungen ergeben sich die Ziele dieser Arbeit: Es soll untersucht werden, durch welche Materialeigenschaften die Austauschisotropie in Schichtsystemen mit NiO bestimmt wird. Durch Variation der Herstellungsbedingungen (Kapitel 3) wird die Zusammensetzung und Struktur der NiO-Schichten verändert. Die Ergebnisse systematischer Analysen dieser Größen werden in Kapitel 4 aufgeführt. Es wird sich herausstellen, dass die Stabilität der Austauschisotropie durch einen Temperprozess im Anschluss an die Herstellung der Schichtsysteme entscheidend verbessert wird. In Kapitel 6 wird gezeigt, wie thermisch aktivierte magnetische Relaxationsprozesse zur Erhöhung der Austauschisotropie führen. Der Vergleich von Materialanalysen mit magnetischen Messungen an NiO/NiFe Schichtsystemen (Kapitel 7) führt zu dem Ergebnis, dass auch die chemische Zusammensetzung und die Struktur der NiO-Schichten die thermische Stabilität der Austauschisotropie entscheidend beeinflussen.

Im Kapitel 8 werden zwei neuartige Methoden zur Modifizierung der Austauschisotropie vorgestellt. Es wird gezeigt, dass durch die Bestrahlung der Schichtsysteme mit Helium-Ionen die magnetischen Eigenschaften der Schichtsysteme gezielt verändert und optimiert werden können. Der Einfluss der Ionenbestrahlung auf die Austauschisotropie in NiO/NiFe Schichtsystemen und den Magnetowiderstand in FeMn basierten Spin-Valves steht dabei im Vordergrund der experimentellen Untersuchungen. Durch die Kombination von Lithographie und Ionenbestrahlung wird außerdem eine magnetische Mikrostrukturierung ermöglicht [30–33].

Eine zweite Möglichkeit zur Modifizierung der Austauschisotropie bietet die Bestrahlung mit kurzen Laserpuls. Durch einen thermomagnetischen Prozess kann die Austauschisotropie lokal verändert werden. Experimentelle Ergebnisse von diesem hier erstmals verwendeten Verfahren werden vorgestellt und interpretiert. Mit den beiden genannten Methoden ist es möglich, die Eigenschaften der Austauschisotropie in Schichtsystemen nachträglich gezielt zu modifizieren. Es wird erwartet, dass die Eigenschaften bzw. Kennlinien von Spin-Valve Sensoren sich durch diese Techniken „designen“ lassen.

Im letzten Kapitel werden die Ergebnisse dieser Arbeit zusammengefasst und ein Ausblick auf mögliche weiterführende Experimente und theoretische Modelle gegeben, die sich als Konsequenz der Resultate dieser Arbeit ergeben.

Kapitel 1

Magnetowiderstand

Unter dem Begriff *Magnetowiderstand* (engl. *magnetoresistance*, *MR*) versteht man die Änderung des elektrischen Widerstands bzw. der Leitfähigkeit eines elektrisch leitenden Festkörpers durch ein äußeres Magnetfeld.

In nicht (ferro)magnetischen Leitern (z. B. Cu, Au) und Halbleitern (z. B. Si, Ge) wird der Magnetowiderstand durch die LORENTZ-Kraft verursacht, die auf die bewegten Ladungsträger wirkt. Die magnetfeldabhängige Widerstandsänderung ist dabei allerdings unter 1 %. Wesentlich größere Widerstandsänderungen von einigen 10 % werden dagegen bei den magnetischen Materialien schon bei kleinen Magnetfeldstärken gemessen.

Die Magnetowiderstandseffekte werden unter dem Akronym *XMR* (X-beliebiger Magnetowiderstand) zusammengefasst. Gemeinsam basieren die XMR-Effekte auf der Wechselwirkung zwischen elektrischen und magnetischen Festkörpereigenschaften. Aus diesem Grund wird die Erforschung und technische Anwendung der XMR-Effekte dem relativ neuen Arbeitsgebiet der *Magnetoelektronik* zugewiesen.

In den folgenden Abschnitten 1.1–1.3 werden die physikalischen Grundlagen des gigantischen Magnetowiderstands und die Umsetzung in Dünnschichtsystemen diskutiert. Die anderen bekannten Magnetowiderstandseffekte werden im Abschnitt 1.4 kurz vorgestellt.

1.1 Gigantischer Magnetowiderstand (GMR)

Von einem gigantischen Magnetowiderstand (engl. *giant magnetoresistance*, *GMR*) oder auch Riesen-Magnetowiderstand wurde erstmals 1988 von BAIBICH et al. berichtet [4, 5]. Bei tiefen Temperaturen (4,2 K) wurden an dünnen Fe/Cr/Fe Viellagenschichten magnetfeldabhängige Widerstandsänderungen von fast 50 % gemessen. Der Effekt wurde als gigantisch bezeichnet, weil diese Widerstandsänderung erheblich größer war als beim damals bekannten anisotropen Magnetowiderstandseffekt (AMR-Effekt). Aufbauend auf diesen Ergebnissen konnten PARKIN et al. 1991 ähnlich hohe Widerstandsänderungen in Co/Cu/Co Viellagenschichten bei Raum-

temperatur messen [34]. Auch in granularen Systemen, z. B. Co-Granulaten in einer Cu-Matrix, wurde der GMR wenig später beobachtet [35, 36].

Voraussetzung für den GMR-Effekt ist, dass in einem System ferromagnetische Bereiche unterschiedlicher Magnetisierungsrichtungen existieren können. In dünnen Schichtsystemen kann dies durch die Trennung ferromagnetischer Lagen, z. B. aus Co, Ni oder Fe, durch eine nur wenige Nanometer dicke, nicht ferromagnetische, elektrisch leitende Zwischenschicht erzielt werden. Die Trennschicht besteht oft aus einem Übergangsmetall wie Cu, Ru, Cr oder Ir. In granularen Systemen sind es ferromagnetische Ausscheidungen (Granulate) in einer nicht magnetischen Matrix, die bei unterschiedlicher Magnetisierung den GMR-Effekt verursachen.

Der elektrische Widerstand eines GMR-Systems hängt von den relativen Magnetisierungsrichtungen der ferromagnetischen Bereiche ab. Sind zwei magnetische Bereiche parallel zueinander magnetisiert, d. h. ferromagnetisch ausgerichtet, dann ist der Widerstand des Systems minimal. Der Widerstand ist dagegen maximal, wenn die Bereiche antiparallel magnetisiert sind.

Die Änderung des Widerstands in Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld $\Delta R(H)$ bezogen auf den Widerstand R_S bei magnetischer Sättigung bzw. R_{\parallel} bei paralleler Magnetisierung der ferromagnetischen Bereiche ergibt die *Magnetowiderstandskurve*

$$\frac{\Delta R}{R_S}(H) = \frac{R(H) - R_S}{R_S} = \frac{R(H) - R_{\parallel}}{R_{\parallel}}. \quad (1.1)$$

Die maximale Änderung des Magnetowiderstands wird oft als *Magnetowiderstandswert* oder im speziellen als *XMR-Wert* bezeichnet und ist gegeben durch

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{R_{\max} - R_{\min}}{R_{\min}}. \quad (1.2)$$

Einen umfassenden Überblick über die Magnetowiderstandseffekte in Forschung und Anwendung findet man in [3, 37–41].

1.2 Mikroskopischer Ursprung des GMR

Der GMR-Effekt beruht auf der Wechselwirkung zwischen Spin bzw. magnetischem Moment¹ der Leitungselektronen und der elektronischen Bandstruktur des Festkörpers.

Nach derzeitigem Wissensstand geht man von einer spinabhängigen diffusen Streuung der Leitungselektronen an den Grenzfläche zwischen magnetischen und nicht magnetischen Bereichen sowie im Volumen der magnetischen Bereiche aus. Diese Streuprozesse sind weitgehend spinerhaltend. Das Verhältnis von Grenzflächen- zu Volumenstreuung wird durch die Schichtdicken bestimmt. In Lagen, die dünner

¹Die Vektoren von Spin und magnetischem Moment besitzen aufgrund der negativen Elektronenladung unterschiedliche Vorzeichen.

sind als die mittlere freie Weglänge der Elektronen (in Metallen ca. 10–30 nm bei Raumtemperatur), ist der Anteil an Volumenstreuung vernachlässigbar klein [42]. In extrem dünnen Schichten dominiert deshalb die Grenzflächenstreuung.

Bei den ferromagnetischen 3d-Übergangsmetallen (Fe, Co, Ni) kommt es aufgrund der Austauschwechselwirkung zur Aufhebung der Spinartung, d. h. zu einer spinabhängigen Verschiebung der Energiezustände (Abb. 1.1). Die d-Bänder mit teilweise überlappenden s-Bändern sind gegeneinander verschoben und Elektronen treten von einem ins andere Band über, wodurch eine spontane Magnetisierung entsteht. Das d-Band der Majoritätselektronen liegt unterhalb der FERMI-Energie (E_F) und ist vollständig besetzt, während das d-Band der Minoritätselektronen nicht vollständig besetzt ist, da E_F innerhalb des Bandes liegt. Die energetische Verschiebung der beiden Teilbänder beträgt bei Ni ≈ 1 eV und bei Fe $\approx 2,4$ eV [43].

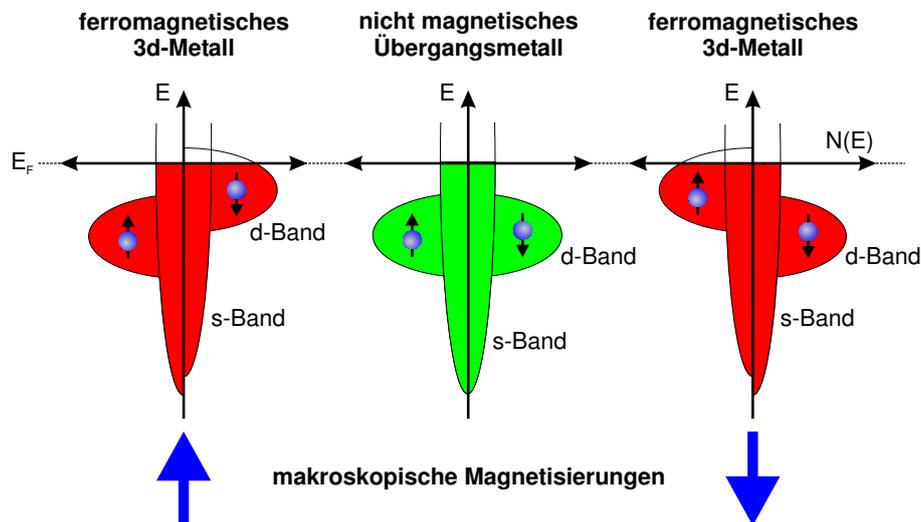


Abbildung 1.1: Schematisierte Zustandsdichten $N(E)$ für ein GMR-System, bestehend aus zwei ferromagnetischen 3d-Metallen mit einer nicht magnetischen, metallischen Zwischenschicht. Bei den Ferromagneten besitzen die Elektronen, deren magnetisches Moment parallel zur Magnetisierungsrichtung steht, eine niedrigere Energie als die Elektronen mit entgegengesetztem Moment.

In Metallen tragen nur die Elektronen in der Nähe der FERMI-Energie zum Ladungstransport bei. Bei den Ferromagneten erfolgt dieser also verstärkt durch die Minoritätselektronen. Es wird angenommen, dass der Ladungstransport in erster Linie durch die sp-Elektronen erfolgt, da die sp-Bänder breit sind und diese Elektronen folglich eine kleine effektive Masse (m^*) besitzen [38].

Ursache für den elektrischen Widerstand der Metalle ist die Streuung der Leitungselektronen an Störpotentialen wie Gitterdefekten, Grenzflächen, Verunreinigungen, Phononen oder Oberflächen. Die Streuung führt zur Reduzierung der mitt-

leren freie Weglänge (l) der Elektronen. In Massivmaterialien kann die Leitfähigkeit (σ) durch die DRUDE-SOMMERFELD-Formel

$$\sigma = \frac{ne^2l}{m^*v_F} \quad (1.3)$$

beschrieben werden. Dabei ist $n \approx 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ die Elektronendichte, e die Elementarladung, $l \approx 10 \text{ nm}$ die mittlere freie Weglänge, m^* die effektive Elektronenmasse und $v_F \approx 10^8 \text{ cm/s}$ die Geschwindigkeit der Elektronen an der FERMI-Fläche [44]. Die Zahlenwerte beziehen sich auf Metalle bei Raumtemperatur.

Im Fall eines Ferromagneten können für Spin \uparrow - und Spin \downarrow -Elektronen getrennte Leitfähigkeiten σ_\uparrow und σ_\downarrow angegeben werden. Man spricht dann von zwei Leitungskanälen, die entsprechend dem MOTTSchen Zweistrom-Modell [45] als parallel geschaltete Leiter bzw. Widerstände behandelt werden. Die resultierende Leitfähigkeit ist somit die Summe der beiden Teil-Leitfähigkeiten: $\sigma = \sigma_\uparrow + \sigma_\downarrow$.

Durch die Verschiebung der Energiebänder ist die Anzahl der freien d-Zustände in der Nähe der FERMI-Kante für Elektronen mit Spin \uparrow und Spin \downarrow verschieden (Abb. 1.1). Aus Gl. (1.3) wird direkt ersichtlich, dass dies zu unterschiedlichen Leitfähigkeiten $\sigma_\downarrow \neq \sigma_\uparrow$ der beiden Spinrichtungen führt. Bei einigen Ni- und Co-Legierungen kann der so genannte Spin-Asymmetrie Parameter $\alpha = \sigma_\uparrow/\sigma_\downarrow$ größer als 10 sein [46].

Durch *Spin-flip* Streuprozesse, bei denen Elektronen unter Umkehr ihres Spins aus dem einen Teilband in das andere gestreut werden, wird α reduziert. Die Wahrscheinlichkeit für Spin-flip Streuung nimmt mit steigender Temperatur zu, was vermutlich zur experimentell beobachteten Abnahme des Magnetowiderstands führt [42].

In Abb. 1.2 ist der Mechanismus des GMR-Effekts am Beispiel eines einfachen Schichtsystems aus zwei ferromagnetischen Lagen (FM, z. B. Co) und einer nicht magnetischen Zwischenschicht (NM, z. B. Cu) schematisch dargestellt. Die mittlere freie Weglänge der Elektronen ($l \approx 10 \text{ nm}$) soll dabei größer sein als die Schichtdicken, d. h. die Volumenstreuung kann vernachlässigt werden. Ohne angelegte Spannung bewegen sich die Leitungselektronen mit hoher Geschwindigkeit regellos in alle Richtungen durch das Schichtsystem. Wird eine Spannung angelegt, so werden die Elektronen in Richtung des elektrischen Feldes zusätzlich beschleunigt. Die Elektrodendrift ist als Strom messbar.

Das linke Bild von Abb. 1.2 zeigt die parallele Magnetisierung der beiden ferromagnetischen Schichten. Die Streuung an den Grenzflächen FM/NM ist für die beiden Spinrichtungen unterschiedlich. Die Majoritätselektronen aus den Zuständen in der Nähe der FERMI-Energie können sich weitgehend ungehindert zwischen FM und NM bewegen, da die Bandstrukturen in FM und NM für diese Spinrichtung vergleichbar sind (Abb. 1.1). Die Minoritätselektronen des FM finden dagegen im NM nicht genügend freie Zustände; sie werden an der Grenzfläche FM/NM verstärkt gestreut. Der Gesamtwiderstand des Systems ist jedoch klein, weil der Leitungskanal der Minoritätselektronen das System gewissermaßen kurzschließt.

Ein anderes Bild zeigt sich, wenn die beiden FM antiparallel magnetisiert sind

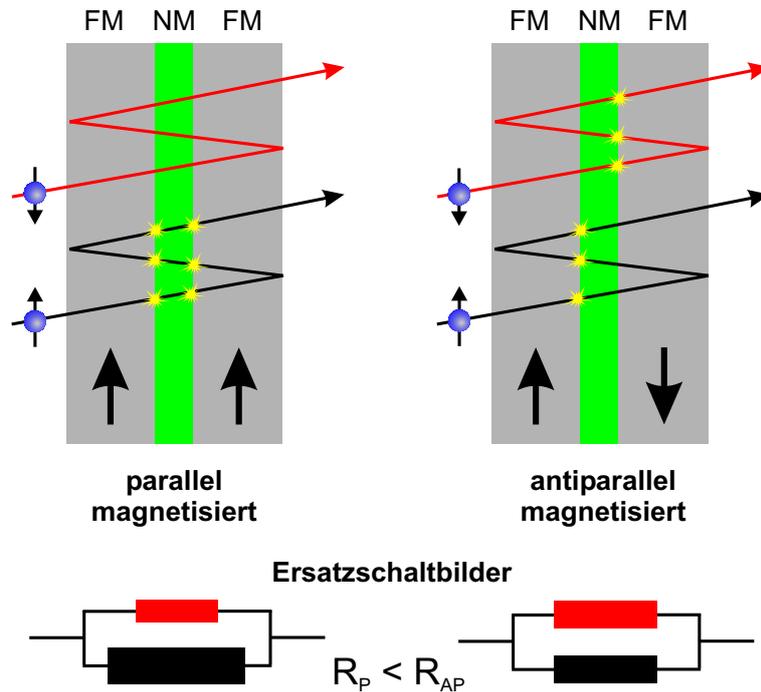


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung der spinabhängigen Elektronenstreuung bei paralleler und antiparalleler Magnetisierung zweier ferromagnetischer Lagen (FM), die durch eine nicht magnetische Zwischenschicht (NM) getrennt sind. Der Gesamtwiderstand wird als Parallelschaltung beider Leitungskanäle interpretiert und ist bei paralleler Magnetisierung der Schichten kleiner als bei antiparalleler.

(Abb. 1.2, rechts). Majoritätselektronen und Minoritätselektronen werden in diesem Fall an den Grenzflächen FM/NM im Mittel gleich stark gestreut. Für beide Spinrichtungen sind die resultierenden Leitfähigkeiten etwa gleich. Der Gesamtwiderstand des Schichtsystems ist höher als bei paralleler Magnetisierung der Schichten.

In beiden Fällen kann die Leitfähigkeit des Gesamtsystems als Summe der einzelnen, spinabhängigen Leitfähigkeiten aufgefasst werden: $\sigma = \sigma_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow}$. Der Gesamtwiderstand ist eine Parallelschaltung zweier spinabhängiger Widerstände:

$$R = \frac{R_{\uparrow} R_{\downarrow}}{R_{\uparrow} + R_{\downarrow}}. \quad (1.4)$$

Der elektrische Widerstand des Systems hängt also von der relativen Orientierung der Magnetisierungen der ferromagnetischen Lagen ab. Ein äußeres Magnetfeld kann die Magnetisierungen und damit gleichzeitig den elektrischen Widerstand (Magnetowiderstand) ändern.

Es ist nun offensichtlich, dass für ein großes $\Delta R/R$ -Verhältnis die Spin-Asymmetrie der Zustandsdichten möglichst groß sein sollte. Spinunabhängige Streupro-

zesse, z. B. an Verunreinigungen oder Defekten in den Schichten, müssen dagegen minimiert werden.

Neben der hier dargestellten anschaulichen Erklärung mit Hilfe der Bandstrukturen lässt sich die spinabhängige Streuung auch quantenmechanisch beschreiben. Als Beispiel sei das Modell von SLONCZEWSKI [47] genannt, in dem die spinabhängige Streuung ebener Wellen an einem Potentialwall behandelt wird. Die spinabhängige Streuung der Leitungselektronen an der Potentialbarriere wirkt wie ein *Spinfilter*, wodurch die Elektronen je nach ihrem Spin an der Grenzfläche zur nicht magnetischen Schicht mehr oder weniger stark gestreut werden.

Die Höhe des messbaren Magnetowiderstands hängt u. a. von den Schichtdicken des GMR-Systems ab. Mit zunehmenden Schichtdicken von FM und NM (d_{FM} bzw. d_{NM}) nimmt der Magnetowiderstandswert ($\Delta R/R$) ab [4, 5]. Dieses Verhalten kann als Folge der zunehmenden Wahrscheinlichkeit für spinunabhängige Streuprozesse bei steigender Schichtdicke verstanden werden. Insbesondere nimmt der GMR stark ab, wenn die Schichtdicken größer werden als die mittleren freien Weglängen (l) der Elektronen. In diesem Fall nimmt $\Delta R/R \propto \exp(-d_{\text{NM}}/l_{\text{NM}})$ ab [48]. Dabei ist d_{NM} die Dicke der nicht magnetischen Zwischenschicht und l_{NM} die mittlere freie Weglänge der Elektronen in der Zwischenschicht.

Bei steigender Temperatur (T) nimmt der Magnetowiderstandswert ebenfalls ab. Experimentelle Ergebnisse weisen darauf hin, dass es im Wesentlichen durch Spinflip Streuung der Elektronen an Magnonen in den ferromagnetischen Schichten bei höheren Temperaturen zunehmend zur Durchmischung der Spins kommt [49]. Die Spin-Asymmetrie nimmt demzufolge mit steigender Temperatur ab. Einen etwas geringeren Einfluss hat die zunehmende Streuung an Phononen in der nicht magnetischen Zwischenschicht. In vielen Schichtsystemen wird ein näherungsweise linearer Zusammenhang zwischen $\Delta R/R$ und T beobachtet [49, 50].

1.3 GMR-Schichtsysteme

In Abschnitt 1.2 wurden die Voraussetzungen für den GMR-Effekt und dessen Wirkungsmechanismus beschrieben. Eine magnetfeldabhängige Widerstandsänderung kann demnach nur dann eintreten, wenn sich der Winkel zwischen den Magnetisierungsrichtungen der ferromagnetischen Bereiche ändert. Eine weitere Voraussetzung für den Riesen-Magnetowiderstand sind Schichtdicken kleiner als die mittlere freie Weglänge der Ladungsträger. Bei GMR-Schichtsystemen betragen die Dicken der ferromagnetischen Lagen typischerweise 1–5 nm. Die nicht magnetischen Zwischenschichten sind dagegen nur 0,5–3 nm dünn, um die spinabhängigen Streuprozesse in der Zwischenschicht zu minimieren.

Damit die ferromagnetischen Materialien eine magnetische Vorzugsrichtung (Anisotropie) erhalten, werden sie oft in einem Magnetfeld parallel zur Schichtebene abgeschieden. Beim Aufwachsen der Schichten richten sich die magnetischen Momente der Atome im Feld aus. Es entsteht eine orientierte chemische Nahordnung,

die dem Material eine einachsige (uniaxiale) magnetische Anisotropie induziert. Dadurch wird sich die spontane Magnetisierung bevorzugt parallel oder antiparallel zur so genannten magnetischen *leichten Achse* oder *leichten Richtung* ausrichten. Die Achsen senkrecht zur leichten Achse werden magnetisch *schwere Achsen* bzw. *schwere Richtungen* genannt. Liegt die leichte Achse in der Schichtebene, so spricht man auch von *in-plane Anisotropie* oder *in-plane Magnetisierung*. Die magnetischen Anisotropien in dünnen Schichten werden in Kapitel 2 ausführlicher behandelt.

Generell kann zwischen zwei Formen von GMR-Systemen unterschieden werden: magnetisch gekoppelte, die eine antiferromagnetische Austauschkopplung zwischen den ferromagnetischen Schichten nutzen, und ungekoppelte Systeme, bei denen keine magnetische Kopplung zwischen den ferromagnetischen Schichten vorhanden ist.

1.3.1 Antiferromagnetisch gekoppelte Systeme

Zur Erzielung einer antiparallelen Magnetisierung zweier ferromagnetischer Lagen wird bei den gekoppelten Systemen die 1986 von GRÜNBERG et al. [51] entdeckte Zwischenschicht-Austauschkopplung ausgenutzt. Dabei handelt es sich um eine magnetische Austauschkopplung der ferromagnetischen Schichten über eine dünne nicht magnetische Zwischenschicht. PARKIN et al. [52] fanden eine oszillatorische Abhängigkeit der Kopplungsstärke von der Zwischenschichtdicke in Fe/Cr/Fe Schichtsystemen. Inzwischen wurde die oszillatorische Zwischenschichtkopplung für fast alle Übergangsmetalle und einige Legierungen nachgewiesen [53].

Die Austauschkopplung ist in Abhängigkeit von der Zwischenschichtdicke periodisch ferro- oder antiferromagnetisch (Abb. 1.3). In Abhängigkeit von der Zwischenschichtdicke orientieren sich die Magnetisierungen zweier benachbarter ferromagnetischer Lagen entweder parallel (ferromagnetische Kopplung) oder antiparallel (antiferromagnetische Kopplung). In manchen Systemen (z. B. Fe/Al/Fe) stellt sich bei bestimmten Zwischenlagendicken auch eine 90° Orientierung ein [54]. Die Oszillationsperiodenlänge beträgt für die meisten metallischen Zwischenschichtmaterialien etwa 1 nm. Cr besitzt mit ca. 1,8 nm eine größere Periodenlänge. Systematische Untersuchungen der Oszillationswellenlänge haben gezeigt, dass die Kopplungsstärke von den 5d- über die 4d- bis zu den 3d-Metallen exponentiell mit der Anzahl an d-Elektronen innerhalb einer Periode ansteigt [53]. Eine Abhängigkeit der Oszillationsperiodenlänge und der Kopplungsstärke von der Kristallstruktur verschiedener Übergangsmetalle wurde dabei nicht gefunden [53].

Es existieren mittlerweile zahlreiche Theorien zur Beschreibung der Zwischenschicht-Austauschkopplung [55]. Einige Modelle basieren auf einer Wechselwirkung der ferromagnetischen Schichten über die Leitungselektronen der Zwischenschicht. Diese Wechselwirkung beruht auf der von RUDERMAN und KITTEL [56] eingeführten und später von KASUYA und YOSIDA [57] erweiterten RKKY-Theorie der Wechselwirkung lokalisierter magnetischer Momente über delokalisierte Elektronen. Nach der RKKY-Theorie besteht für eine planare Geometrie der Zusammenhang [42]

$$J \propto d_{\text{NM}}^{-2} \sin(2\pi d_{\text{NM}}/\lambda_{\text{F}} + \Phi) \quad (1.5)$$

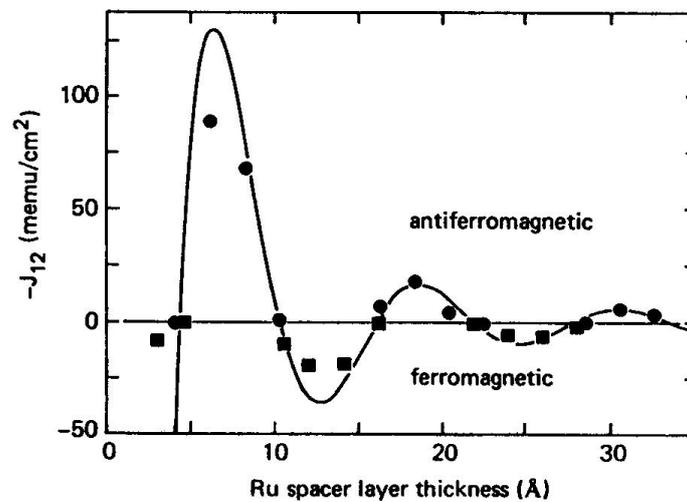


Abbildung 1.3: Stärke der oszillatorischen Zwischenschicht-Austauschkopplung für $\text{Ni}_{80}\text{Co}_{20}/\text{Ru}/\text{Ni}_{80}\text{Co}_{20}$ Vielfachschichten als Funktion der Ru-Schichtdicke. Aufgetragen sind Messwerte und eine Anpassungskurve nach dem RKKY-Modell [42].

zwischen Kopplungsenergie (J) und der Dicke der nicht magnetischen Zwischenschicht (d_{NM}). Die Theorie sagt voraus, dass die Oszillationswellenlänge (λ_{F}) mit der Form der FERMI-Flächen des Zwischenschichtmaterials verknüpft ist [58].

Die gekoppelten GMR-Systeme nutzen die Tatsache, dass bei bestimmten Zwischenlagendicken eine antiferromagnetische Austauschkopplung vorliegt. In diesem Zustand sind die Lagen antiparallel magnetisiert und der elektrische Widerstand des Systems ist maximal (vgl. Abb. 1.2). In einem äußeren Magnetfeld, das stärker ist als die Austauschkopplung, richten sich die Magnetisierungen parallel aus und der Widerstand des Systems sinkt: gemessen wird ein magnetfeldabhängiger Widerstand (Magnetowiderstand).

In Vielfachschichtsystemen ist der Magnetowiderstandswert größer als in Doppelschichten, was durch die erhöhte Zahl an Grenzflächen FM/NM erklärbar ist. Typische Magnetowiderstandswerte ($\Delta R/R$) von Vielfachschichten sind bis zu 70 % in Co/Cu/Co Schichtsystemen bei Raumtemperatur. In Fe/Cr/Fe Systemen ist der Effekt bei Raumtemperatur dagegen wesentlich kleiner. Allerdings werden bei tiefen Temperaturen (4,2 K) Rekordwerte von $\Delta R/R \approx 200\%$ erreicht [59].

Weitere Details zur Zwischenschicht-Austauschkopplung und deren theoretische Beschreibung befinden sich z. B. in [40, 42, 54, 55, 58, 60, 61].

1.3.2 Spin-Valve Systeme

Die so genannten *Spin-Valves* (übersetzt: *Spin-Ventile*) zeichnen sich dadurch aus, dass die magnetische Austauschkopplung zwischen den ferromagnetischen Schichten

durch die Verwendung dickerer Zwischenschichten weitgehend unterdrückt wird. Typische Zwischenlagendicken liegen bei diesen Systemen im Bereich von 2 bis 3 nm. Die Dicken der ferromagnetischen Schichten (d_{FM}) sind wie bei den gekoppelten Vielagenstrukturen kleiner oder in der Größenordnung der mittleren freien Weglänge der Leitungselektronen, also $2 \text{ nm} \lesssim d_{\text{FM}} \lesssim 5 \text{ nm}$.

Pseudo Spin-Valves

Um einen Magnetowiderstandseffekt zu erhalten, muss es auch bei dieser Konfiguration einen Magnetfeldbereich geben, in dem die ferromagnetischen Schichten antiparallel magnetisiert sind. Bei geeigneter Wahl der Herstellungsbedingungen kann man ferromagnetische Schichten eines Materials mit unterschiedlichen Koerzitivfeldstärken ($H_{c,1} \neq H_{c,2}$) produzieren. Wahlweise können auch zwei verschiedene Metalle mit unterschiedlichem H_c verwendet werden, z. B. Co und NiFe [62]. Sind zwei derartige Schichten durch eine genügend dicke, nicht magnetische Zwischenschicht getrennt, so sind sie magnetisch entkoppelt. Die Magnetisierungen der entkoppelten Lagen sättigen bei unterschiedlichen Magnetfeldstärken. Die Magnetisierungskurve zeigt dann eine stufenförmige Hysteresekurve (Abb. 1.4, links). Derartige Spin-Valve Systeme werden als *Pseudo Spin-Valves* bezeichnet.

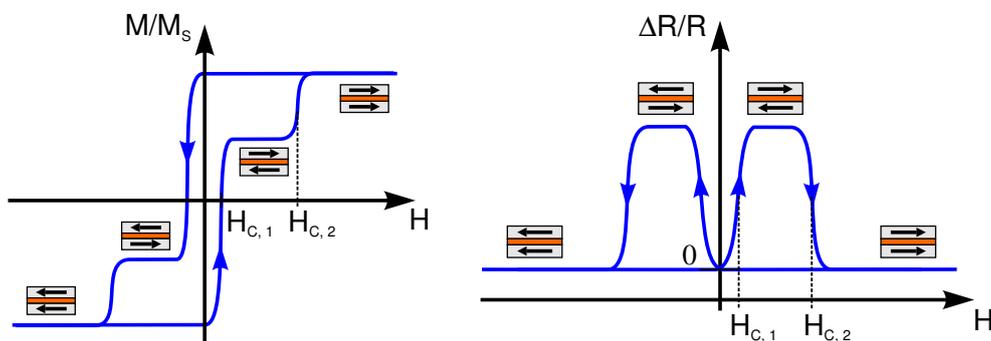


Abbildung 1.4: Idealisierte Magnetisierungskurve (links) und Magnetowiderstandskurve (rechts) eines Spin-Valves mit unterschiedlichen Koerzitivfeldstärken ($H_{c,1} < H_{c,2}$) der ferromagnetischen Lagen.

Der Verlauf der Magnetowiderstandskurve dieses Spin-Valve Systems ist in Abb. 1.4 (rechts) dargestellt. Der Magnetowiderstand ist maximal, wenn eine der beiden Schichten unmagnetisiert ist und die andere nicht, also eine antiparallele Magnetisierung benachbarter Lagen vorliegt. Er ist dagegen klein, wenn die Lagen durch ein äußeres Magnetfeld $|H| > |H_{c,2}|$ parallel ausgerichtet werden. Derartige Schichtsysteme mit zwei unterschiedlichen Koerzitivfeldstärken wurden u. a. im Rahmen einer inzwischen abgeschlossenen Diplomarbeit [62] in der Arbeitsgruppe untersucht.

Spin-Valves mit antiferromagnetischen Schichten

Eine weitere Möglichkeit, die antiparallele Magnetisierung der ferromagnetischen Schichten in einem Spin-Valve System zu erhalten, ist die magnetische Kopplung einer der beiden Schichten an einen Antiferromagneten.² Die zweite ferromagnetische Lage ist durch eine nicht magnetische Zwischenschicht von der ersten getrennt (Abb. 1.5, a).

Die Kopplung zwischen ferromagnetischer und antiferromagnetischer Schicht ist so stark, dass die Ummagnetisierung der gekoppelten ferromagnetischen Schicht erst bei relativ hohen Feldstärken erfolgt. Die Schicht wird in ihrer Magnetisierungsrichtung festgehalten, weshalb man auch von *pinning* bzw. einer *gepinnten Schicht* (engl. *pinned layer*) spricht. Die antiferromagnetische Lage, durch die diese Austauschkopplung hervorgerufen wird, heißt auch *Pinning-Schicht* (engl. *pinning layer*). Durch die Austauschkopplung ist die Hystereseurve der gepinnten Schicht um den Betrag des Austauschfeldes (H_{eb}) verschoben (Abb. 1.5, b). Für den Effekt der Austauschverschiebung existiert keine einheitliche Bezeichnung. Oft werden die Begriffe *Exchange-Bias Effekt* oder *Austauschanisotropie* verwendet (vgl. Abschnitt 2.3).

Die zweite ferromagnetische Schicht im Spin-Valve System ist nicht gepinnt. Sie wird bereits bei Feldstärken, die größer sind als die Koerzitivfeldstärke sind, ummagnetisiert. Da diese Schicht durch die Zwischenschicht von der anderen magnetisch entkoppelt ist wird sie als *freie Schicht* (engl. *free layer*) bezeichnet.

Die Magnetisierungskurve (Abb. 1.5, b) zeigt, dass bei mittleren Feldstärken ($H \leq H_{\text{eb}}$) nur die Magnetisierung der freien Schicht vom äußeren Magnetfeld abhängt, wodurch eine parallele und antiparallele Magnetisierung der ferromagnetischen Lagen möglich wird. Bei antiparalleler Ausrichtung ist der elektrische Widerstand des Systems maximal und bei paralleler minimal (Abb. 1.5, c).

In Abb. 1.5 ist ebenfalls zu sehen, dass die Hystereseurve der freien Schicht nicht symmetrisch zur Null-Feldachse verläuft. Es tritt eine minimale Verschiebung zu negativen Feldstärken um den Betrag H_e auf. Dies ist die Folge einer schwachen magnetostatischen Kopplung zwischen den beiden ferromagnetischen Schichten. Diese ferromagnetische Kopplung kann durch magnetische Oberflächenmomente vermittelt werden, die sich bedingt durch eine korrelierte Rauigkeit an den Grenzflächen Ferromagnet/Zwischenschicht gegenüberstehen (engl. *orange-peel coupling*). Bei Annahme einer sinusförmigen Rauigkeit $z(x, y) = -h \sin \frac{2\pi x}{\lambda} \sin \frac{2\pi y}{\lambda}$ mit der Amplitude h und der Wellenlänge λ kann die Kopplungsenergie J näherungsweise durch

$$J = \sqrt{2}\pi^2 M_S^2 \frac{h^2}{\lambda} e^{-2\pi\sqrt{2}d/\lambda} \quad (1.6)$$

ausgedrückt werden [63]. Dabei ist M_S die Sättigungsmagnetisierung der ferromagnetischen Schichten und d die Dicke der nicht magnetischen Zwischenschicht.

²Der Kopplungsmechanismus wird in Abschnitt 2.3 genauer behandelt. An dieser Stelle soll nur das Phänomen erwähnt werden.

a) Aufbau eines Spin-Valves mit antiferromagnetischer Schicht

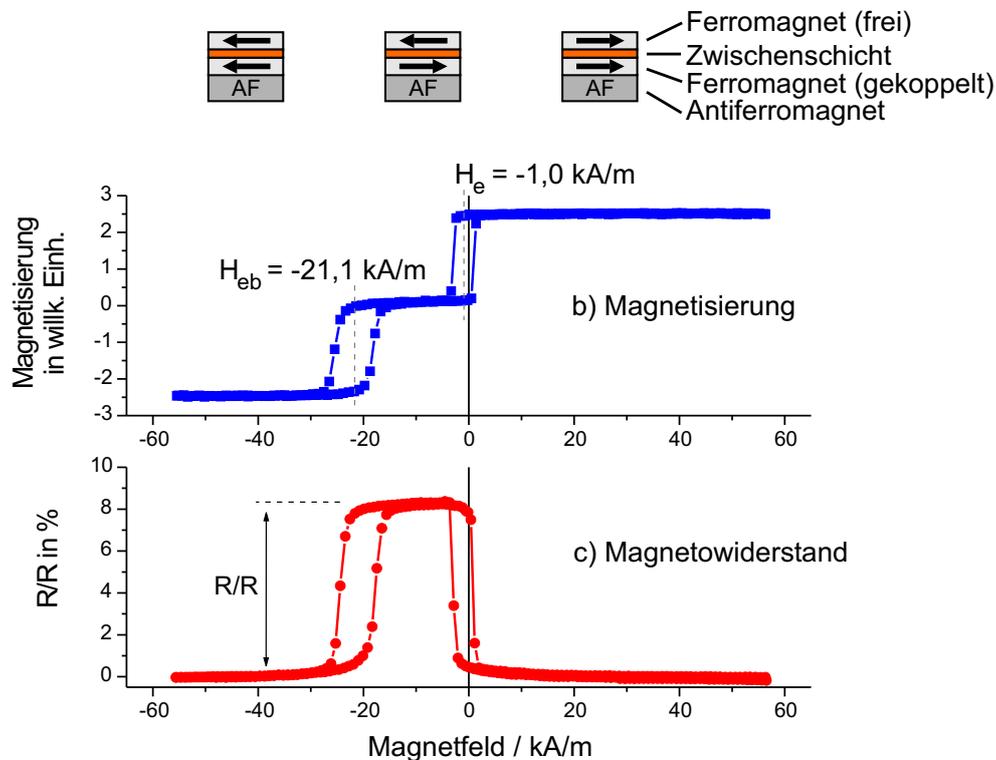


Abbildung 1.5: (a) Schichtfolge bei Spin-Valve Systemen mit Antiferromagnet. (b) Magnetisierungskurve und (c) Magnetowiderstandskurve eines Co/Cu/Co/FeMn Spin-Valves. Der Magnetowiderstandswert beträgt $\Delta R/R \approx 8,4\%$.

Zusätzlich kann bei sehr dünnen Zwischenschichtdicken eine ferromagnetische Kopplung durch magnetische Brücken (engl. *pinholes*) zu diesem Effekt führen [64–67]. Einen weiteren Beitrag zur Kopplung der beiden ferromagnetischen Schichten liefert die Zwischenschicht-Austauschkopplung, die in Abhängigkeit von der Zwischenschichtdicke oszillierend ferromagnetisch oder antiferromagnetisch ist (vgl. Abb. 1.3). Bei dem Spin-Valve System aus Abb. 1.5 beträgt die Dicke der Cu-Zwischenschicht 2,4 nm, was zu einer schwachen ferromagnetischen Zwischenschicht-Austauschkopplung führt.

Durch ein vergleichsweise schwaches Magnetfeld kann die freie Schicht gesättigt werden. Die zweite Schicht wird durch die Austauschkopplung in ihrer Magnetisierungsrichtung festgehalten und bleibt dabei noch gesättigt. Ist φ der Winkel, den die Magnetisierungsvektoren der beiden magnetisch gesättigten Schichten aufspannen, so gilt: $\Delta R/R \propto -\cos \varphi$. In diesem Fall hängt der Magnetowiderstandswert nur noch von der Richtung des äußeren Feldes relativ zur Magnetisierungsrichtung der gepinnten Schicht ab. Aus diesem Zusammenhang wird deutlich, dass sich durch Spin-Valve Systeme Drehwinkel-Sensoren realisieren lassen.

Die Eigenschaften eines Spin-Valves hängen stark von den Herstellungsbedingungen und natürlich von den Materialien ab. Als ferromagnetische Schichten werden meist Übergangsmetalle bzw. Legierungen aus den Elementen Fe, Ni und Co gewählt. Für die freie Schicht wird oft $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ (*Permalloy*) wegen des besonders weichmagnetischen Verhaltens bevorzugt. Im Folgenden wird diese Legierung mit dem Mischungsverhältnis 81:19 (oder geringfügig davon abweichend) vereinfacht als NiFe bezeichnet. Co besitzt eine hohe Spinpolarisation der Leitungselektronen und sorgt deshalb für hohe Magnetowiderstandswerte. Für die Anwendung in Sensoren haben sich Legierungen aus Co und Fe durchgesetzt.

Die Streuprozesse in der Zwischenschicht sollten möglichst gering sein, um große Widerstandsänderungen zu erreichen. Dies kann durch geeignete Wahl des Zwischenmaterials erreicht werden. Das Leitungsband des nicht magnetischen Materials muss dem Leitungsband im ferromagnetischen Material angepasst sein. Als geeignet haben sich die Edelmetalle Cu, Ag und Au erwiesen [68].

Eine Vielzahl an Möglichkeiten besteht bei der Wahl des antiferromagnetischen Materials. In der letzten Zeit haben sich die antiferromagnetischen Legierungen FeMn, NiMn, IrMn, PtMn sowie oxidische Antiferromagnete wie NiO und $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ als geeignete Kandidaten herausgestellt. Auch über kompensierte Ferrimagneten wie TbCo wird diskutiert [69]. Die thermische, magnetische und auch die chemische Stabilität des Schichtsystems hängen von der Wahl des antiferromagnetischen Materials ab. Der Antiferromagnet sollte deshalb folgende Anforderungen erfüllen:

- hohe NÉEL-Temperatur \rightarrow thermische Stabilität
- hohe, zeitlich konstante Austauschverschiebung \rightarrow magnetische Stabilität
- hohe Korrosionsbeständigkeit \rightarrow chemische Stabilität

Gerade wegen der hohen chemischen Resistenz ist der Einsatz oxidischer Antiferromagnete erstrebenswert.

In Abb. 1.6 sind verschiedene Schichtstrukturen für Spin-Valve Systeme dargestellt. Die einfachsten Systeme sind vierlagig: antiferromagnetische Pinning-Schicht (AF), gepinnte ferromagnetische Schicht (p-FM), nicht magnetische Zwischenschicht (NM) und freie ferromagnetische Schicht (f-FM). Wird die AF-Schicht zuletzt aufgebracht, so nennt man die Struktur *Top Spin-Valve*. Werden die anderen Schichten auf der AF-Lage deponiert, dann spricht man von einem *Bottom Spin-Valve*.

Besonders hohe Magnetowiderstandswerte zeigen die symmetrischen Anordnungen. Hier liegt die freie Schicht zwischen zwei gepinnten Schichten. Infolgedessen gibt es mehr Grenzflächen für die spinabhängige Streuung. Höchste Magnetowiderstandswerte werden in symmetrischen NiO/Co/Cu Spin-Valves mit $\Delta R/R \approx 21\%$ gemessen [19, 71]. Dies wird u. a. auf die Reflexion der Elektronen an den Grenzflächen zu den oxidischen Schichten zurückgeführt [20, 72].

Eine Möglichkeit zur Erhöhung des Magnetowiderstandswerts bietet das *interface engineering* (Abb. 1.6, rechts). Dabei wird eine zweite nur wenige Ångström

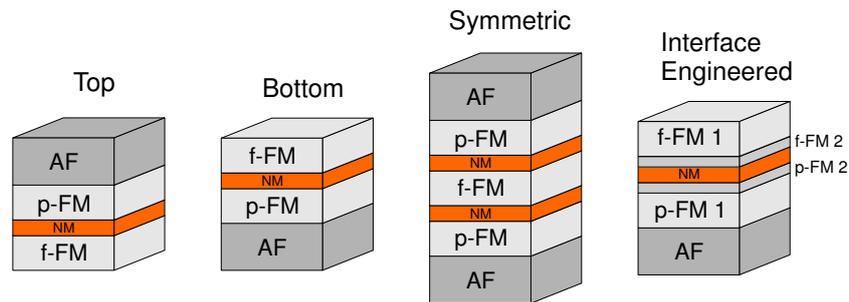


Abbildung 1.6: Typische Schichtstrukturen für Spin-Valve Systeme (nach [70]).

(1 Å = 0,1 nm) dicke Schicht eines ferromagnetischen Materials mit hoher Spinpolarisation an die Grenzfläche zum NM gebracht. Ziel ist es, die spinabhängige Grenzflächenstreuung und damit den Magnetowiderstand zu erhöhen. Das Einbringen dünner Co-Lagen hat sich als vorteilhaft erwiesen [66].

Die Erhöhung des Magnetowiderstandswertes von Spin-Valves durch so genannte *Nano-Oxide Layers (NOL)* wurde kürzlich erfolgreich demonstriert [6, 73–75]. Der Magnetowiderstandswert wurde durch kurze Oxidation der ferromagnetischen Schichten (an der von der Zwischenschicht abgewandten Seite) mehr als verdoppelt [74]. Es wird angenommen, dass die Elektronen an den nur 1–2 nm dünnen Oxidschichten reflektiert werden. Die Grenzflächen FM/NM werden von den reflektierten Elektronen wiederholt durchquert, was zur Verstärkung des GMR führt. Die Erhöhung des GMR durch Spiegelung von Leitungselektronen an oxidischen Schichten wurde bereits zuvor an symmetrischen NiO Spin-Valve Systemen gezeigt [19, 71, 76].

Verbreitet sind mittlerweile Spin-Valves mit so genannten *künstlichen Antiferromagneten* (engl. *Artificial Antiferromagnet, AAF*). Bei diesen Strukturen besteht der Antiferromagnet aus zwei oder mehr ferromagnetischen Lagen, die durch nicht magnetische Zwischenschichten getrennt sind. Die Zwischenschichtdicke wird derart gewählt, dass sich eine starke antiferromagnetische Zwischenschicht-Austauschkopplung einstellt (s. Abschnitt 1.3.1). Schichtsysteme mit AAF zeichnen sich insbesondere durch eine hohe thermische Stabilität aus [77].

Spin-Valve Systeme haben aufgrund ihrer hohen Feld-Sensitivität und hoher $\Delta R/R$ -Verhältnisse inzwischen eine enorme Bedeutung für kommerzielle Anwendungen gewonnen. Als Sensoren in den Leseköpfen von Festplatten werden sie seit Ende der 1990er Jahre eingesetzt und ermöglichten eine drastische Steigerung der Speicherdichte (siehe z. B. [78]).

1.4 Weitere Magnetowiderstandseffekte

Die Entdeckung des GMR-Effekts und sein enormes Anwendungspotential haben in den letzten 15 Jahren dazu geführt, dass sich viele Wissenschaftler und Firmen mit dem Thema *Magnetowiderstand* beschäftigt haben. Im Zuge der Forschungsaktivitäten wurden weitere Magnetowiderstandseffekte entdeckt, die zum Teil neue physikalische Fragestellungen aufgeworfen haben, aber auch ganz neue Anwendungsfelder eröffnen. Im Folgenden sollen diese Effekte kurz vorgestellt werden.

Hall-Effekt: Dieser von EDWIN H. HALL bereits 1879 entdeckte Effekt beruht auf der LORENTZ-Kraft $\vec{F}_L = q(\vec{v} \times \vec{B})$, die auf bewegte elektrische Ladungen in einem Magnetfeld wirkt. Dabei ist q die elektrische Ladung, \vec{v} die Geschwindigkeit der Ladungsträger und \vec{B} die magnetische Flussdichte. In einer stromdurchflossenen Probe wirkt die Kraft \vec{F}_L senkrecht zur Strom- und Magnetfeldrichtung und lenkt die Ladungsträger von ihrer Bewegungsrichtung ab. Mit steigender Magnetfeldstärke nimmt der wirksame Leitungsquerschnitt ab und der so genannte HALL-Widerstand (R_H) steigt.

Die HALL-Spannung, die senkrecht zur Stromrichtung gemessen wird, ist

$$U_H = R_H I = \frac{A_H B I}{d} = \frac{B I}{n e d}. \quad (1.7)$$

Dabei ist A_H der HALL-Koeffizient, B die magnetische Flussdichte, I die Stromstärke, d die Dicke der Probe, n die Ladungsträgerdichte und e die Elementarladung.

Aufgrund der hohen Ladungsträgerdichte $n \approx 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ (Cu) ist die messbare HALL-Spannung in Metallen nur sehr klein, was direkt aus Gl. (1.7) ersichtlich ist. Die relative Widerstandsänderung liegt deshalb im Bereich weniger Promille. Größere HALL-Spannungen werden bei Halbleitern gemessen. In Eigenhalbleitern (undotiertes Material) beträgt die Ladungsträgerdichte nur $n \approx 10^{10} \text{ cm}^{-3}$ (Si) und in dotierten Halbleitern sind $n \approx 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ typisch, wodurch größere HALL-Spannungen möglich sind.

Vorteil der HALL-Elemente (auch HALL-Generatoren genannt) ist der, bei konstanter Stromstärke, in weiten Bereichen lineare Zusammenhang zwischen HALL-Spannung und magnetischer Flussdichte (Gl. 1.7). Die meisten Instrumente zur Magnetfeld-Messung (GAUSS-Meter) arbeiten mit HALL-Sonden.

Anisotroper Magnetowiderstand (AMR): Der AMR-Effekt beschreibt die Änderung des elektrischen Widerstands in Abhängigkeit von der relativen Orientierung zwischen Magnetisierung und Stromrichtung. Der Magnetowiderstandswert ($\Delta R/R$) liegt im Prozent-Bereich.

Bei ferromagnetischen Schichten wird beobachtet, dass der elektrische Widerstand (R) von der relativen Orientierung zwischen Stromdichte (\vec{j}) und Magnetisierung (\vec{M}) abhängt. Liegen Magnetisierungs- und Stromrichtung in der Schichtebene,

so kann der AMR rein phänomenologisch durch

$$R(\vartheta) = R(\pi/2) + \Delta R \cos^2 \vartheta \quad (1.8)$$

beschrieben werden [79]. Dabei ist ΔR die maximale Widerstandsänderung und ϑ der Winkel, den \vec{j} und \vec{M} aufspannen. Der Widerstand wird demnach maximal, wenn \vec{j} und \vec{M} parallel bzw. antiparallel orientiert sind. Ist die Probe in magnetische Domänen aufgeteilt, so gilt die Beziehung (1.8) für jede Domäne einzeln.

Durch ein äußeres Magnetfeld (\vec{H}) kann die Magnetisierung (\vec{M}) einer Probe beeinflusst werden. Bei konstanter Stromrichtung (\vec{j}) ist damit eine Änderung des Winkels ϑ in Abhängigkeit vom Magnetfeld möglich. Nach Gl. (1.8) bedeutet das eine magnetfeldabhängige Änderung des elektrischen Widerstands der Schicht. Der Verlauf der Magnetowiderstandskurve $R(H)$ wird davon abhängen, ob der Strom bei der Widerstandsmessung parallel oder senkrecht zum Magnetfeld fließt. Bei paralleler Orientierung spricht man von einer longitudinalen Messanordnung und bei senkrechter Orientierung von einer transversalen Messanordnung. Für die beiden Geometrien werden deshalb getrennte Magnetowiderstandswerte angegeben.

Als physikalische Ursache des AMR gilt die Spin-Bahn-Wechselwirkung. Theoretische Beschreibungen des Effekts findet man u. a. in [80, 81]. Vereinfacht ausgedrückt bewirkt die Spin-Bahn-Kopplung in einem Ferromagneten einen zusätzlichen Beitrag zum magnetischen Moment und es kommt es zu einer Asymmetrie der Elektronenorbitale [48]. Die Asymmetrie der Wellenfunktionen spiegelt sich in einer räumlich anisotropen Leitfähigkeit des Metalls wider. Die höchsten Magnetowiderstandswerte werden bei ferromagnetischen Legierungen aus Ni-Fe oder Ni-Co mit bis zu 5 % gemessen [42].

Tunnel-Magnetowiderstand (TMR): In TMR-Systemen sind ferromagnetische Schichten durch dünne Isolatorschichten (z. B. 1–2 nm Al_2O_3) getrennt. Während der GMR auf der spinabhängigen Streuung der Leitungselektronen beruht, wird der TMR durch das spinabhängige Tunneln der Elektronen durch die Isolatorschicht verursacht. Bei paralleler Magnetisierung der ferromagnetischen Schichten ist die Wahrscheinlichkeit für das Tunneln von Elektronen durch die Potentialbarriere größer als bei antiparalleler Magnetisierung.

Der TMR-Wert wird analog zum GMR-Wert definiert (Gl. 1.2). Die gemessenen Widerstandsänderungen sind ähnlich oder größer als beim GMR-Effekt [82].

Theoretische Modelle zum spinabhängigen Tunneln von Elektronen durch dünne Isolatorschichten [83] existierten schon lange vor der ersten experimentellen Beobachtung in Dünnschichtsystemen bei tiefen Temperaturen [84]. Aufgrund verbesserter Präparationsverfahren und vermutlich auch stimuliert durch die Erkenntnisse über den GMR-Effekt wurde der Tunnel-Magnetowiderstand 1995 auch bei Raumtemperatur gemessen [85, 86].

Ähnlich wie beim GMR-Effekt existiert auch für den TMR-Effekt derzeit noch keine umfassende Theorie, die alle experimentell beobachteten Phänomene be-

schreibt [87]. Übersichtsartikel zum TMR-Effekt und dessen theoretischer Beschreibung sind u. a. [88–91].

Für die Anwendung gewinnt der TMR-Effekt zunehmend an Bedeutung. Gerade bei der Entwicklung zukünftiger magnetischer Arbeitsspeicher (engl. *Magnetic Random Access Memory, MRAM*) wird verstärkt mit Tunnelementen gearbeitet. Prinzipiell sind zwar sowohl GMR- als auch TMR-Systeme für den Einsatz in MRAMs geeignet, jedoch hält man TMR-Elemente für die bessere Wahl. Der Grund dafür ist, dass der Magnetowiderstandswert ($\Delta R/R$) beim TMR-Effekt nicht von der lateralen Größe des einzelnen Bauelements abhängt, was für eine höhere Integrationsfähigkeit spricht.

Kolossaler Magnetowiderstand (CMR): Sehr starke Magnetfelder (einige Tesla) können bei manchen Festkörpern einen Phasenübergang vom elektrischen Leiter zum Isolator verursachen. Dabei beeinflusst das Magnetfeld die Energiebänder eines Metalls mit sehr schmalen Leitungsbanden derart, dass die Streuung der Leitungselektronen stark zunimmt. Es handelt sich um einen intrinsischen Effekt, der überwiegend bei Materialien auf Manganoxid-Basis wie LaXMnO_3 mit $X = \text{Ca, Sr}$ oder Ba beobachtet wird. Der 1993 entdeckte CMR-Effekt [92] zeigt Magnetowiderstandswerte von mehreren 100 %. Eine Übersicht befindet sich in [93].

Bisher haben sich für den CMR-Effekt noch keine technischen Anwendungen gefunden [13], da die erforderlichen Feldstärken sehr groß sind.

Gigantische Magnetoimpedanz (GMI): Der GMI-Effekt wurde 1992 entdeckt und ist ein reiner Wechselstromwiderstand, der die Impedanz des Leiters verändert. Da sich der Stromfluss bei hohen Wechselstromfrequenzen im äußeren Bereich des Leiters konzentriert (Skin-Effekt), lässt sich die Permeabilität und damit die Impedanz durch ein äußeres Magnetfeld beeinflussen. Die größten Impedanzänderungen von 360 % wurden bei $\text{FeSi}_{0,03}$ gemessen [94].

Kapitel 2

Magnetische Anisotropien

Im Allgemeinen versteht man unter dem Begriff der *Anisotropie* die Richtungsabhängigkeit physikalischer Eigenschaften eines Systems. Eine magnetische Anisotropie liegt vor, wenn die freie Energie eines magnetischen Systems von der Richtung der Magnetisierung bzw. der Untergitter-Magnetisierung abhängt. Eine Energie dieser Art wird *Anisotropieenergie* genannt.

Ohne äußeres Magnetfeld richten sich die magnetischen Momente bevorzugt parallel/antiparallel zu den so genannten *leichten Achsen* bzw. *leichten Richtungen* der Magnetisierung aus. Diese Orientierung ist energetisch günstiger. Die energetisch ungünstigen Achsen/Richtungen werden als *schwere Achsen* bzw. *schwere Richtungen* bezeichnet. In kristallinen Systemen (Festkörpern) werden die Richtungen der Anisotropieachsen oft durch den Aufbau des Kristallgitters bestimmt.

In den Abschnitten 2.1 und 2.2 werden die uniaxialen Anisotropien in einzelnen ferromagnetischen bzw. antiferromagnetischen Schichten kurz erläutert. Die unidirektionale Anisotropie (Austauschanisotropie), die in Schichtsystemen aus Ferromagnet und Antiferromagnet beobachtet wird und in dieser Arbeit eine wichtige Rolle spielt, wird in Abschnitt 2.3 ausführlich behandelt.

2.1 Anisotropien in ferromagnetischen Schichten

In ferromagnetischen Schichten werden oft einachsige Anisotropien beobachtet. Die Anisotropieenergie, die zur Ausrichtung der Magnetisierung führt, setzt sich aus verschiedenen Anteilen zusammen. Die wesentlichen Mechanismen, die zu Anisotropien in magnetischen Schichten führen können, werden im Folgenden kurz vorgestellt.

Magnetokristalline Anisotropie: Bedingt durch die Symmetrie des Kristallgitters nehmen die magnetischen Momente in einem kristallinen Festkörper bevorzugt die Richtungen ausgezeichneter Kristallachsen ein. Im einfachsten Fall resultiert eine einachsige (uniaxiale) Anisotropie. Zum Beispiel richten sich die Spins in einkristallinem Kobalt bevorzugt parallel zur *c*-Achse des Kristallgitters.

ters aus [95]. Der physikalische Grund für diese Anisotropieenergie ist die Spin-Bahn-Kopplung der Elektronen. Durch die Spin-Bahn-Kopplung beeinflusst die Anordnung der Atome im Kristallgitter (Kristallsymmetrie) den Spin der Elektronen. Da die Magnetisierung in den ferromagnetischen Metallen durch den Spin der Elektronen getragen wird, spiegelt sich die Kristallsymmetrie in der Magnetisierung wider. Der Beitrag zur magnetokristallinen Anisotropie aufgrund der magnetostatischen Wechselwirkung zwischen den magnetischen Momenten ist dagegen vernachlässigbar klein [96].

Formanisotropie: Bei ferromagnetischen Materialien kann die äußere Form eine Anisotropie hervorrufen. An den Grenzflächen eines magnetisierten Körpers entstehen freie magnetische Pole. Diese Pole verursachen im Inneren des Körpers das so genannte *entmagnetisierende Feld*, das der Magnetisierung des Körpers entgegen wirkt und diese dadurch reduziert. Durch die magnetostatische Wechselwirkung der magnetischen Momente mit dem entmagnetisierenden Feld entsteht ein zusätzlicher Energiebeitrag: die *Entmagnetisierungsenergie*. Die Dichte der Entmagnetisierungsenergie wird in dünnen Schichten aus $\varepsilon_{\text{Form}} = -\frac{1}{2}\mu_0 M_S \sin^2 \varphi$ berechnet [97]. Dabei ist μ_0 die magnetische Feldkonstante, M_S die Sättigungsmagnetisierung und φ der Winkel zwischen M_S und der Schichtnormalen. Das System ist bestrebt, die Entmagnetisierungsenergie zu minimieren. Ohne ein äußeres Magnetfeld wird die Magnetisierung deshalb bevorzugt in der Schichtebene liegen.

Grenzflächenanisotropie: Bei sehr dünnen Schichten kann die Existenz von Grenzflächen einen Anisotropiebeitrag hervorrufen, der eine Magnetisierungsrichtung senkrecht zur Schichtebene begünstigt. Die Ursache dieser Anisotropie liegt im Bruch der Kristallsymmetrie an den Grenzflächen eines Festkörpers [98]. Wie bei der magnetokristallinen Anisotropie hat die Symmetrie des Kristallgitters aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung einen Einfluss auf die Ausrichtung der Spins und damit auf die Magnetisierungsrichtung. Mit steigender Schichtdicke nimmt der Beitrag der Grenzflächenanisotropie zur gesamten Anisotropie ab und die Anisotropiebeiträge des Volumens dominieren. Typischerweise spielt die Grenzflächenanisotropie erst bei Schichtdicken unter 2 nm eine Rolle.

Induzierte Anisotropie: Durch das Aufheizen (Tempern) und Abkühlen eines ferromagnetischen Körpers in einem Magnetfeld oder unter Anwendung mechanischer Spannungen kann dem Material eine Vorzugsrichtung der Magnetisierung aufgeprägt werden. Bei dünnen Schichten kann diese Anisotropie auch durch die Anwesenheit eines Magnetfeldes während des Schichtwachstums hervorgerufen werden. Man nimmt an, dass die Anisotropie durch Ausrichtung und Platzwechsel von Atomen und Atom-Paaren im äußeren Magnetfeld verursacht wird. Das Modell der Ausrichtung von Atom-Paaren wird insbesondere zur Deutung der induzierten Anisotropie in ferromagnetischen Legierungen herangezogen [99, 100].

Magnetostriktion: Die Magnetostriktion oder magnetoelastische Anisotropie beschreibt die Formveränderung eines Materials durch ein Magnetfeld. Umgekehrt kann eine Formveränderung durch mechanische Spannungen auch eine Änderung der Magnetisierungsrichtung bewirken, was einer zusätzlichen Anisotropieenergie, der *magnetoelastischen Energie*, entspricht. Die physikalische Ursache für die Magnetostriktion ist die Spin-Bahn-Kopplung der Elektronen. Durch die indirekte Kopplung der Spins an das Kristallgitter führt eine Änderung der Magnetisierungsrichtung zu Verzerrungen des Gitters und umgekehrt. Eine makroskopische Gestaltsänderung (z. B. eine Längenänderung) wirkt sich dadurch auf die Ausrichtung der Spins und damit auf die Magnetisierungsrichtung aus.

Die einzelnen Beiträge zur uniaxialen Anisotropieenergie werden in der *effektiven uniaxialen Anisotropiekonstanten* (K_u^{eff}) zusammengefasst. Die Energiedichte (ε) der Gesamtanisotropie kann bei reiner uniaxialer Anisotropie durch

$$\varepsilon(\varphi) = K_u^{\text{eff}} \sin^2 \varphi \quad (2.1)$$

ausgedrückt werden, wenn φ der Winkel zwischen dem Magnetisierungsvektor und der Schichtnormalen ist. Bei $K_u^{\text{eff}} < 0$ liegt die Magnetisierungsrichtung bevorzugt in der Schichtebene ($\varphi = 90^\circ$ oder $\varphi = 270^\circ$). Ist $K_u^{\text{eff}} > 0$ so wird die Magnetisierung senkrecht zur Schichtebene vorgezogen ($\varphi = 0^\circ$ oder $\varphi = 180^\circ$). Die Konstante K_u^{eff} wird häufig auch einfach als *uniaxiale Anisotropiekonstante* (K_u) bezeichnet. Experimentell kann die Anisotropiekonstante durch Messung des Umagnetisierungsverhaltens (Kapitel 5) oder durch Messung des Richtmoments bei Änderung der Magnetisierungsrichtung (z. B. Torsions-Schwingungs-Magnetometer, Ferromagnetische Resonanz) bestimmt werden [101].

Bei der Herstellung der Schichtsysteme, die im Rahmen dieser Arbeit untersucht wurden, war ein Magnetfeld parallel zur Schichtebene angelegt, um die leichte Richtung der Anisotropie durch das Magnetfeld auszurichten (induzierte Anisotropie). Alle ferromagnetischen Schichten hatten dadurch eine bevorzugte Magnetisierungsrichtung in der Schichtebene.

Bei den hergestellten ferromagnetischen Schichten handelt es sich um polykristallines Material, in dem die Kristallite näherungsweise statistisch verteilt sind.¹ Die Beiträge zur magnetokristallinen Anisotropie heben sich bei vollkommen zufälliger Orientierung der Kristallite im Mittel gegenseitig auf. Makroskopisch betrachtet kann dadurch die magnetokristalline Anisotropie vernachlässigt werden. Die Grenzflächenanisotropie spielt bei einer Schichtdicke der Ferromagnete von 5 nm ebenfalls kaum eine Rolle. Die wesentlichen Beiträge zur Anisotropie in den untersuchten ferromagnetischen Schichten werden demnach durch die Formanisotropie und induzierte Anisotropie erzeugt.

¹Dabei wird vorausgesetzt, dass die Schichten keine starke Texturierung aufweisen.

2.2 Anisotropien in antiferromagnetischen Schichten

Einen Antiferromagneten kann man sich im einfachsten Fall durch zwei gegeneinander verschobene Untergitter mit entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen vorstellen. Die Spins der Untergitter heben sich wechselseitig auf, so dass makroskopisch keine Magnetisierung gemessen wird.

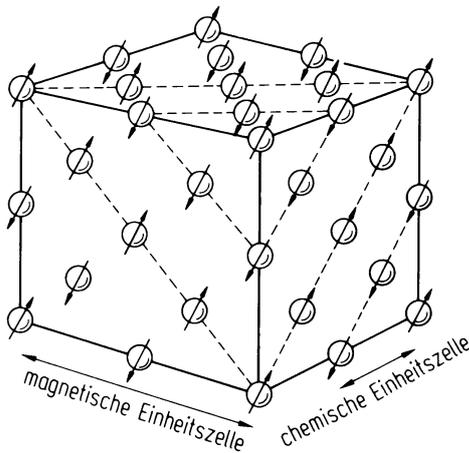


Abbildung 2.1: Spin-Anordnung in NiO. Die Sauerstoff-Atome sind nicht eingezeichnet [43].

zwischen zwei Nickel-Ionen kommt durch den so genannten *Superaustausch* zustande. Dabei handelt es sich um eine indirekte Kopplung, die über ein dazwischen liegendes Sauerstoff-Ion erfolgt. Eine anschauliche Erklärung der Mechanismen, die zum Superaustausch führen, befindet sich in [43].

Im NiO liegen die Spins parallel in den (111)-Ebenen und antiparallel zu den Spins der benachbarten Ebenen (Abb. 2.1). Die Energie der magnetischen dipolaren Wechselwirkung ist bei dieser Konfiguration am niedrigsten [102]. Die parallele bzw. antiparallele Ausrichtung der Spins innerhalb der (111)-Ebenen wird auf eine Kontraktion des Kristallgitters in Richtung der [111]-Achse unterhalb der NÉEL-Temperatur zurückgeführt [100]. Durch diese Kontraktion wird der Abstand zwischen den antiferromagnetisch gekoppelten Spins verkürzt, wodurch die Energie des Spin-Systems verringert wird. Diese Kontraktion ist experimentell nachweisbar und äußert sich in einer leichten Verzerrung des Kristallgitters unterhalb der NÉEL-Temperatur, die für NiO $T_N \approx 520$ K beträgt.

Durch die Kontraktion des Kristallgitters wird eine ausgezeichnete Achse im System erzeugt. Diese Kontraktion liefert einen Beitrag zur Anisotropie im NiO. Experimentelle Analysen mittels *Antiferromagnetischer Resonanz* haben ergeben, dass für NiO die uniaxiale Anisotropiekonstante $K_u \approx -500$ mJ/cm³ ist [100].

Die Mechanismen, die zur Anisotropie in antiferromagnetischen Materialien führen, sind im Prinzip die gleichen wie bei den Ferromagneten [100]. Beiträge zur Anisotropieenergie von der Formanisotropie treten bei Antiferromagneten allerdings nicht auf, weil keine makroskopische Magnetisierung vorhanden ist und deshalb auch kein entmagnetisierendes Feld auftritt.

Das antiferromagnetische Nickelmonoxid (NiO), das in dieser Arbeit eine wichtige Rolle spielt, besitzt eine Kristallstruktur vom NaCl-Typ. Die positiven Ni-Ionen bilden ein kubisch flächenzentriertes (fcc) Gitter, wobei die Austausch-Wechselwirkung zwischen den zweit-nächsten Nachbarn dominiert [100]. Die starke antiferromagnetische Kopplung zwischen

2.3 Austauschisotropie

2.3.1 Der Exchange-Bias Effekt

Über das Phänomen der Austauschisotropie wurde zuerst 1956 von MEIKLEJOHN und BEAN berichtet [8, 9]. In feinen, teilweise oxidierten Co-Teilchen fanden sie eine Verschiebung der Hystereseurve entlang der Feldachse. Sie führten diesen Effekt auf eine „neue magnetische Anisotropie“ zurück.

Die Austauschisotropie wird beobachtet, wenn ein System, in dem Grenzflächen zwischen antiferromagnetischen und ferromagnetischen Bereichen existieren, von einer Temperatur über der NÉEL-Temperatur des Antiferromagneten ($T > T_N$) in einem statischen Magnetfeld auf eine Temperatur $T < T_N$ abgekühlt wird. Alternativ kann die Austauschkopplung auch durch andere Einflüsse hervorgerufen werden, z. B. durch Schichtabscheidung im Magnetfeld.

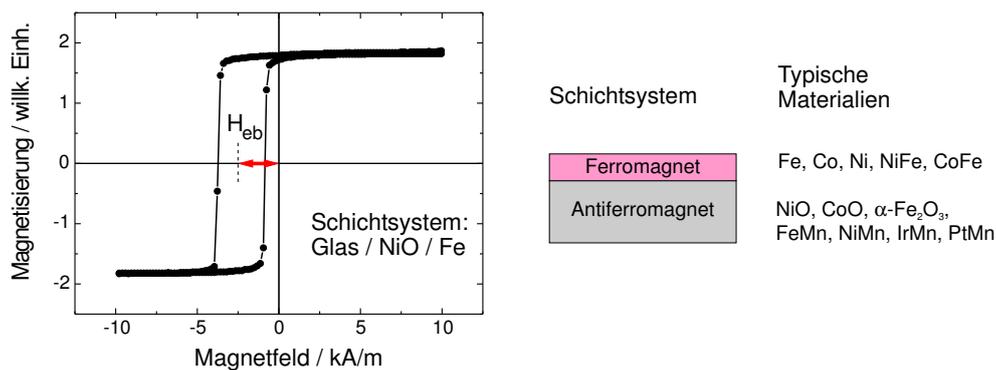


Abbildung 2.2: Magnetisierungskurve eines NiO(50 nm)/Fe(5 nm) Schichtsystems. Durch die Austauschisotropie ist die Hystereseurve der Fe-Schicht um den Betrag der Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) verschoben, weshalb man auch von *Austauschverschiebung* spricht.

Die Wirkung der beobachteten Austauschisotropie ist vergleichbar mit einem zusätzlichen Magnetfeld, das die Magnetisierung eines Ferromagneten bevorzugt in eine Raumrichtung ausrichtet. Bei dem Effekt handelt es sich also um eine *unidirektionale Anisotropie*, die durch eine magnetische Kopplung zwischen Ferromagnet (FM) und Antiferromagnet (AF) hervorgerufen wird. Das angenommene Feld, welches zur Verschiebung der Hystereseurve führt, wird als *Exchange-Bias Feld* (H_{eb}), *Pinning-Feld* oder *Austausch-Feld* bezeichnet (Abb. 2.2). Eine einheitliche Bezeichnung hat sich noch nicht etabliert. Bei den meisten Systemen AF/FM kommt es durch die Austauschisotropie außerdem zu einer erhöhten Koerzitivfeldstärke (H_c) des FM [21, 103].

Die Austauschisotropie wird in magnetischen Systemen beobachtet, in denen Grenzflächen zwischen antiferromagnetischen und ferromagnetischen Bereichen existieren.

tieren. Dabei kann es sich z. B. um feine ferromagnetische Partikel handeln, die von einer antiferromagnetischen Hülle umgeben sind [8, 9]. Auch in inhomogenen Materialien und Mischungen, bei denen die Grenzfläche AF/FM nicht klar definiert ist, wird ein Exchange-Bias Effekt beobachtet [21]. Außerdem besteht die Möglichkeit, ferromagnetische Teilchen, Cluster oder Schichten auf antiferromagnetischen Einkristallen zu präparieren. Bei diesen Systemen sind die Grenzflächen AF/FM sehr genau definiert und leicht zu manipulieren. Die meisten Experimente zur Austausch-anisotropie wurden jedoch mit dünnen Schichten durchgeführt. Zur Herstellung dieser Schichtsysteme existieren weit entwickelte Verfahren (Aufdampfen, Kathodenzerstäubung, Epitaxie, Laserablation etc.), mit denen wohl definierte Schichten und Grenzflächen geschaffen werden können.

Der Exchange-Bias Effekt wurde inzwischen für eine Vielzahl an Materialkombinationen aus AF und FM nachgewiesen und untersucht. Der Effekt wurde bei oxidischen (z. B. NiO, CoO, Fe_xO_y) und metallischen AF (z. B. FeMn, NiMn, IrMn, PtMn) sowie in Metall-Fluoriden und -Nitriden (z. B. FeF_2 , MnF_2 , CrN) gefunden. Auch in Systemen FM/Ferrimagnet, AF/Ferrimagnet und Ferrimagnet/Ferrimagnet konnten Austauschverschiebungen gemessen werden. Eine ausführliche Übersicht der bisher erforschten Systeme und Materialien sowie der Untersuchungsmethoden erhält man in [21, 103].

Schichtdickenabhängigkeit

Bei allen Schichtsystemen wird eine Abhängigkeit der Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) von der Dicke der ferromagnetischen Schicht (d_{FM}) gemessen (Abb. 2.3, links) [104–106]:

$$H_{\text{eb}} \propto 1/d_{\text{FM}}. \quad (2.2)$$

Diese Abhängigkeit deutet darauf hin, dass der Exchange-Bias Effekt seine Ursache an der Grenzfläche AF/FM hat und es sich um einen *Grenzflächeneffekt* handelt. Für die Koerzitivfeldstärke (H_c) wird die gleiche Abhängigkeit ($H_c \propto 1/d_{\text{FM}}$) gemessen.

Für die Abhängigkeit der Exchange-Bias Feldstärke von der Dicke der antiferromagnetischen Schicht (Abb. 2.3, rechts) lässt sich keine einfache Beziehung angeben. Erste analytische Modelle zur Beschreibung der Schichtdickenabhängigkeit wurden kürzlich aufgestellt und mit experimentellen Daten erfolgreich verglichen [107].

Generell wird beobachtet, dass eine gewisse Mindestdicke der antiferromagnetischen Schicht (einige Nanometer) erforderlich ist, um den Exchange-Bias Effekt hervorzurufen [105]. Ab einer Dicke von etwa 10–30 nm erreicht H_{eb} für die meisten AF einen Sättigungswert [104, 108, 109]. Wann genau dieser Wert erreicht wird, hängt stark vom Material und der Mikrostruktur des AF ab (Abb. 2.3, rechts). Bei derartigen Messungen an polykristallinen AF muss jedoch beachtet werden, dass sich mit der Schichtdicke auch meistens weitere Eigenschaften (z. B. Korngrößen, Oberflächen-Rauigkeit) des AF ändern, was zu unerwünschten Überlagerungen der Effekte führen kann. Es wird vermutet [21], dass derartige strukturelle Änderungen für die in manchen Systemen beobachtete Abnahme von H_{eb} , nach dem Überschreiten einer

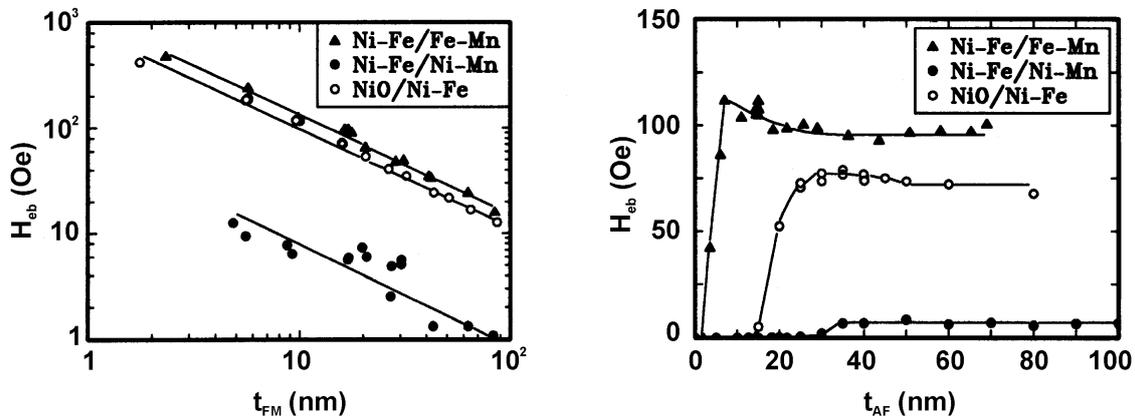


Abbildung 2.3: Abhängigkeit der Exchange-Bias Effekte (H_{eb}) von der Schichtdicke t_{FM} des Ferromagneten (links) und t_{AF} des Antiferromagneten (rechts) für die Schichtsysteme NiFe/FeMn (▲), NiFe/NiMn (●) und NiO/NiFe (○) [104]. Es ist $1 \text{ Oe} \approx 80 \text{ A/m}$.

gewissen Dicke des AF [104, 110], verantwortlich sind (Abb. 2.3, rechts).

Kristallinität und Kristallorientierung des Antiferromagneten

Da es sich bei der Austauschisotropie offenbar um einen Grenzflächeneffekt handelt, liegt die Vermutung nahe, dass die Orientierung der Spins bzw. magnetischen Momente an der Grenzfläche einen entscheidenden Einfluss auf die Exchange-Bias Feldstärke hat. Je nach Orientierung des Kristallgitters bilden verschiedene Kristallebenen mit unterschiedlichen Spin-Konfigurationen die Oberfläche des AF. Die Spins können parallel zur Oberfläche liegen (*in-plane*) oder senkrecht zu dieser (*out-of-plane*) wie in Abb. 2.4 schematisch dargestellt. Experimente haben gezeigt, dass für reine out-of-plane Spins kein Exchange-Bias Effekt erhalten wird, während in-plane Konfigurationen eine Austauschverschiebung erzeugen [111, 112]. In diesem Fall hat die Spinorientierung an der Grenzfläche einen starken Einfluss auf die Austauschisotropie.

Im AF sind die Spins antiparallel gekoppelt, so dass sich die magnetischen Momente gegenseitig aufheben (Abb. 2.4, b). Allerdings gibt es Kristallebenen in denen alle Spins parallel angeordnet sind und erst die nächste Ebene die Spins der entgegengesetzten Richtung trägt (Abb. 2.4, c). Bildet eine derartige Ebene die Oberfläche des AF, so ist das magnetische Netto-Moment an der Oberfläche nicht Null. In diesem Fall spricht man von einer *unkompensierten* Spinstruktur an der Oberfläche. Stehen sich jeweils entgegengesetzte Spins an der Oberfläche gegenüber, so heben sich die Momente gegenseitig auf und die Spins sind *kompensiert*. Viele Experimente mit unterschiedlichen AF haben bestätigt, dass sowohl kompensierte als auch unkompensierte Spinstrukturen zum Exchange-Bias Effekt führen [112–114].

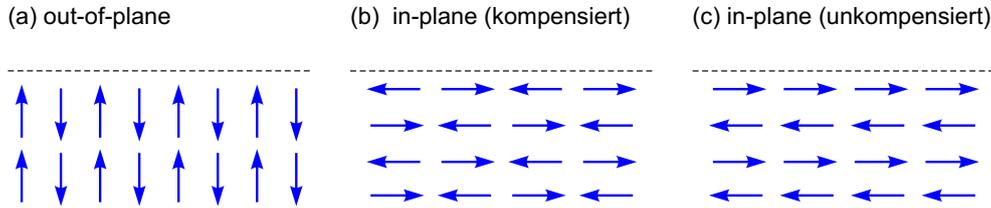


Abbildung 2.4: Mögliche Spin-Konfigurationen in einem Antiferromagneten mit ideal glatter Oberfläche. (a) Out-of-plane, (b) kompensierte in-plane und (c) unkompensierte in-plane Anordnung der Spins.

Dieses idealisierte Bild der Oberfläche hält bei realen, oft polykristallinen AF nicht stand. Hier kommt es zu Oberflächen-Effekten wie Rekonstruktion und Relaxation. Außerdem ist die Fläche nicht ideal glatt, sondern wird von Kristalliten gebildet und besitzt dadurch eine Rauigkeit. Bei realen Systemen ist es also äußerst schwierig, eine Aussage über die Spin-Konfiguration an der Grenzfläche AF/FM zu treffen. Bei polykristallinen Schichtsystemen scheint der Exchange-Bias Effekt jedoch weitgehend unabhängig von der Kristallorientierung zu sein. In NiO/NiFe Schichtsystemen wurde kein Zusammenhang zwischen Kristallorientierung und H_{eb} gefunden [114–116].

In vielen Experimenten wurde jedoch ein Zusammenhang zwischen H_{eb} und der Mikrostruktur (Korngröße, Oberflächen-Rauigkeit) des AF festgestellt. Allerdings sind diese Ergebnisse zum Teil sehr widersprüchlich. So wurde für das System NiO/NiFe bei steigender NiO-Korngröße eine Zunahme von H_{eb} gemessen [117] und in anderen Experimenten genau das Gegenteil [118]. Vermutlich ist die Korngröße nicht der einzige Parameter, der bei solchen Experimenten variiert wurde. Dadurch kann es zu Überlagerungen verschiedener Einflussfaktoren gekommen sein.

Temperaturabhängigkeit

In den meisten Systemen wird eine Abnahme von H_{eb} mit steigender Temperatur und eine starke Temperaturabhängigkeit von H_{c} beobachtet. Einen typischen Verlauf, der bei einem NiO/NiFe-Schichtsystem gemessen wurde, zeigt Abb. 2.5. Die Temperatur, bei der die Austauschverschiebung verschwindet ($H_{\text{eb}} \approx 0$) wird als *Blocking-Temperatur* (T_{B}) bezeichnet.

Spätestens, wenn die NÉEL-Temperatur (T_{N}) des AF erreicht wird und das Material in die paramagnetische Phase übergeht, kann der Exchange-Bias Effekt nicht mehr bestehen. In einigen Schichtsystemen fallen Blocking-Temperatur und NÉEL-Temperatur ungefähr zusammen ($T_{\text{B}} \approx T_{\text{N}}$). Dies wird insbesondere für relativ dicke, stark texturierte und einkristalline AF beobachtet [112, 119, 120]. Andererseits gibt es Systeme, bei denen T_{B} wesentlich kleiner ist als T_{N} [121–123]. Für die meisten Materialkombinationen AF/FM wird eine Blocking-Temperatur knapp unterhalb T_{N}

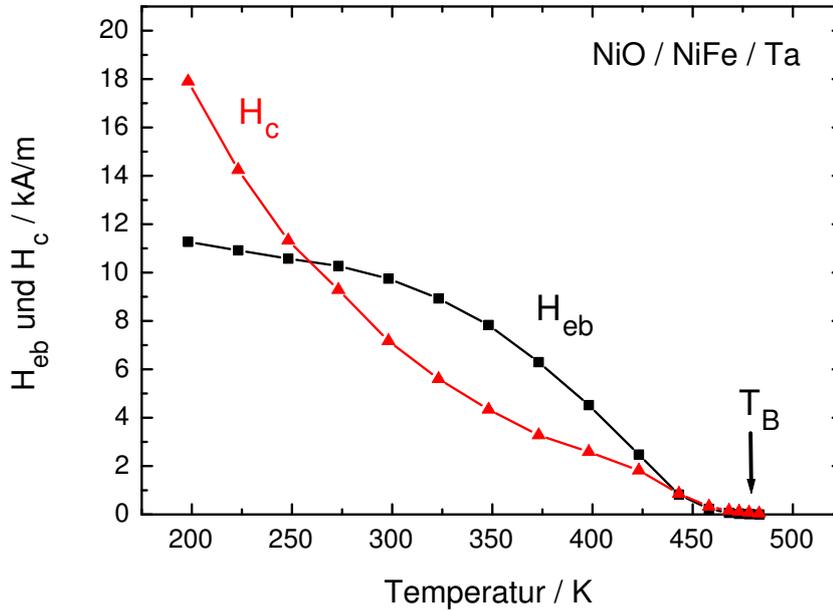


Abbildung 2.5: Temperaturabhängigkeit von Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) und Koerzitivfeldstärke (H_c) in einem NiO/NiFe-Schichtsystem. Bei der Blocking-Temperatur (T_B) ist $H_{eb} = 0$.

gemessen.

Die Ursache für reduzierte Blocking-Temperaturen ($T_B < T_N$) liegt anscheinend in der Mikrostruktur der AF. Es wird beobachtet, dass die Schichtdicke und die Größe der Kristallite im AF einen Einfluss auf die thermische Stabilität der Austauschkopplung haben. Allgemein scheinen dünne AF mit kleinen Kristalliten die Blocking-Temperatur zu reduzieren, während in dicken Schichten mit großen Körnern $T_B \approx T_N$ gemessen wird [108, 120, 124, 125]. In extrem dünnen, epitaktischen NiO-Schichten bis 20 Monolagen wurden erheblich reduzierte NÉEL-Temperaturen nachgewiesen [126]. Daneben können Abweichungen von der idealen chemischen Stöchiometrie des AF zu niedrigeren Blocking-Temperaturen führen [127]. Auf dieses Verhalten weisen auch die Ergebnisse in Abschnitt 7.3 hin.

Bei den meisten antiferromagnetischen Schichten handelt es sich um polykristalline Materialien, in denen es eine gewisse Unordnung aufgrund verschiedener Korngrößen und Oberflächen-Rauigkeit gibt (s. Abschnitt 4.1.2). Wegen dieser Unordnung wird es im System AF/FM nicht nur eine scharf definierte Blocking-Temperatur geben, sondern vielmehr eine Verteilung lokaler Blocking-Temperaturen [108, 128–130].

Viele AF/FM Systeme zeigen unterhalb T_B einen mehr oder weniger starken Anstieg von H_c (Abb. 2.5). Wie stark die Erhöhung von H_c ausfällt, hängt vermutlich von der Anisotropie des AF ab. Auf den Zusammenhang zwischen Austauschani-

tropie und Koerzitivfeldstärke des FM wird in Abschnitt 2.3.2 genauer eingegangen.

Grenzflächen-Rauigkeit

Bisher konnte noch kein eindeutiger und allgemein gültiger Zusammenhang zwischen Grenzflächen-Rauigkeit und dem Exchange-Bias Effekt aufgestellt werden. Die experimentellen Ergebnisse sind dabei sehr unterschiedlich und teilweise sogar widersprüchlich.

Bei einigen Systemen wurde eine Abnahme von H_{eb} mit steigender Rauigkeit gemessen [114, 131]. Jedoch wurde bei anderen Systemen genau das Gegenteil beobachtet [113]. Im Allgemeinen scheinen die polykristallinen Schichtsysteme aber wenig sensitiv auf die Grenzflächen-Rauigkeit zu reagieren. Für polykristalline NiO/NiFe Schichtsysteme konnte meist keine eindeutige Abhängigkeit zwischen H_{eb} und der Rauigkeit nachgewiesen werden [116, 118], während andere Autoren von abnehmendem H_{eb} bei steigender Rauigkeit berichteten [114, 117]. Allerdings scheint die Grenzflächen-Rauigkeit einen entscheidenden Einfluss auf H_c zu haben [115, 116].

Vorstellbar ist eine Beeinflussung der Domänenbildung im AF durch die Oberflächen-Rauigkeit. Insbesondere nach dem Modell von MALOZEMOFF [132, 133] hätte dies auch einen Einfluss auf die unidirektionale Anisotropie (s. Abschnitt 2.3.2).

Weitere experimentelle Beobachtungen

Bei mehrfachen, aufeinander folgenden Messungen der Hysteresekurve wurde in einigen AF/FM-Systemen eine Abnahme von H_{eb} mit der Anzahl der Messzyklen verzeichnet [134–136]. Dieser so genannte **Training-Effekt** wird fast ausschließlich bei Schichtsystemen mit polykristallinen AF beobachtet [21] und tritt nicht zwangsweise auf, sondern hängt wahrscheinlich auch von den Präparationsbedingungen ab. Beim Training-Effekt scheint es um eine nachträgliche Ausrichtung der antiferromagnetischen Domänen zu handeln, die sich nach der Herstellung in einem metastabilen Zustand befanden und erst durch die Ummagnetisierungsprozesse und/oder thermische Aktivierung ihre energetisch günstigste Konfiguration einnehmen.

Über den Einfluss **mechanischer Spannungen** auf die Austauschanisotropie gibt es bisher nur wenige Untersuchungen an dünnen Schichtsystemen. Die Experimente zeigen, dass Spannungen zwar die Anisotropie und H_c des FM verändern, jedoch H_{eb} nur wenig beeinträchtigen [137, 138].

Wie am Anfang dieses Abschnitts erwähnt, kann die Austauschanisotropie durch Abkühlen des AF unter die NÉEL-Temperatur in einem statischen Magnetfeld initialisiert werden. In sehr starken Magnetfeldern (einige Tesla) kann dabei ein **positiver Exchange-Bias Effekt** hervorgerufen werden [139]. Die Verschiebung der Hysteresekurve ist normalerweise dem ausrichtenden Feld entgegengesetzt. Beim positiven Exchange-Bias Effekt ist die Hysteresekurve nach dem Feldkühlen jedoch in Richtung des Magnetfeldes verschoben. Theoretische Modelle führen den Effekt auf antiferromagnetisch gekoppelte Spins an der Grenzfläche AF/FM zurück [139, 140].

Der Exchange-Bias Effekt besteht nicht nur bei direktem Kontakt zwischen AF und FM, sondern wirkt auch noch durch dünne nicht magnetische Zwischenschichten aus Ag, Au oder Cu. Dieser **langreichweitige Exchange-Bias Effekt** nimmt mit steigender Zwischenschichtdicke exponentiell ab und verschwindet bei Dicken von 3–6 nm [141]. Der Mechanismus der Zwischenschicht-Austauschkopplung (Abschnitt 1.3.1) wird für die Vermittlung der Kopplung verantwortlich gemacht. Der Nachweis des oszillatorischen Charakters dieser Kopplung in NiFe/Cu/FeMn Schichtsystemen unterstützt diese Vermutung [142].

Kommt es an der Grenzfläche AF/FM zu einer leichten Verkippung der Spins des AF, so dass ihre Richtung etwas von der leichten Anisotropieachse abweicht, kann die so genannte **90°-Kopplung** oder **Spin-flop Kopplung** entstehen [111, 143, 144]. Grund dafür ist ein Netto-Moment an der Oberfläche des AF senkrecht zur leichten Achse, das zur Ausrichtung des FM führt. Die Spins des FM und des AF bilden dann näherungsweise einen Winkel von 90°, weil diese Konfiguration die energetisch günstigste ist. Einem theoretischen Modell zufolge wird diese Kopplung für FM mit niedriger Anisotropie erwartet [140].

2.3.2 Theoretische Modelle

Zur Erklärung der im vorherigen Abschnitt vorgestellten Austauschanisotropie existieren verschiedene theoretische Modelle. Unter bestimmten Annahmen liefern sie alle eine Erklärung für die beobachtete Austauschverschiebung. Komplexe Modelle versuchen zusätzlich, den Einfluss der Austauschanisotropie auf die Koerzitivfeldstärke des Ferromagneten (FM) und die Temperaturabhängigkeit der Austauschverschiebung zu beschreiben.

Nimmt man an, dass die Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) die minimale Feldstärke ist, die aufgebracht werden muss, um die Austauschkopplung aufzuheben, dann lässt sich H_{eb} durch

$$H_{\text{eb}} = \frac{J_{\text{eb}}}{\mu_0 M_S d_{\text{FM}}} \quad (2.3)$$

ausdrücken. Dabei ist J_{eb} die Konstante der Austauschkopplung, M_S die Sättigungsmagnetisierung, d_{FM} die Dicke des FM und $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$ Vs/Am die magnetische Feldkonstante. Gleichung (2.3) folgt durch Gleichsetzen der ZEEEMAN-Energiedichte eines FM in einem äußeren Magnetfeld ($E_Z = \mu_0 M_S H$) und der Grenzflächenenergie pro Einheitsvolumen ($E_G = J_{\text{eb}}/d_{\text{FM}}$). Die Konstante der Austauschkopplung (J_{eb}) ist die Grenzflächenenergie pro Einheitsfläche, die sich nach dem HEISENBERG-Modell aus der Kopplung zwischen einem ferromagnetischen Spin (\vec{S}_{FM}) und einem antiferromagnetischen Spin (\vec{S}_{AF}) an der Grenzfläche ergibt:

$$J_{\text{eb}} = -\frac{N}{a^2} \cdot 2J \vec{S}_{\text{FM}} \cdot \vec{S}_{\text{AF}}. \quad (2.4)$$

Dabei ist N die Anzahl der wirksamen Spinpaare in einer 2-dimensionalen Einheitszelle, a die Länge der Einheitszelle und J das Austauschintegral. Bei $J < 0$ wird die antiparallele Spinorientierung bevorzugt und bei $J > 0$ die parallele Orientierung.

Da die in Experimenten gemessene Exchange-Bias Feldstärke von der Dicke und der Sättigungsmagnetisierung des FM abhängt, wird zum Vergleich verschiedener Schichtsysteme oft die Konstante der Austauschkopplung ($J_{\text{eb}} = \mu_0 M_S d_{\text{FM}} H_{\text{eb}}$) anstatt der Feldstärke H_{eb} angegeben.

In dieser Arbeit wurden hauptsächlich NiFe-Schichten konstanter Dicke auf polykristallinem NiO untersucht. Deshalb wird auf die Berechnung der Kopplungskonstanten J_{eb} verzichtet und nur H_{eb} angegeben. Die gemessenen Exchange-Bias Feldstärken für NiO/NiFe Schichtsysteme sind in der Größenordnung $H_{\text{eb}} \approx 10$ kA/m (s. Kapitel 6 ff.). Für die verwendete NiFe-Legierung (Permalloy) beträgt die Sättigungsmagnetisierung $\mu_0 M_S \approx 1$ T [145], womit $J_{\text{eb}} \approx 0,05$ mJ/m² ist.

Intuitive Modelle zur Beschreibung des Exchange-Bias Effekts gehen von einer Austauschkopplung der Spins an der Grenzfläche zwischen AF und FM aus. Die Grenzflächen werden dabei als atomar glatt betrachtet. Voraussetzung für diese intuitiven Modelle ist allerdings eine unkompenzierte Spin-Konfiguration an der Oberfläche des AF wie sie in Abb. 2.6 (a) schematisch dargestellt ist. Dabei wird angenommen, dass die Spins des FM mit den ungesättigten Spins an der AF-Oberfläche eine ferromagnetische Kopplung eingehen. Es ist sofort einzusehen, dass nach diesem einfachen Modell keine Austauschverschiebung auftritt, wenn alle Spins an der Oberfläche des AF durch ihre nächsten Nachbarn im AF abgesättigt sind und dadurch an der Oberfläche nur kompenzierte Spins vorliegen (Abb. 2.6, b). In diesem Fall heben sich die Wirkungen der Kopplungen an der Grenzfläche gerade gegenseitig auf, wodurch der Exchange-Bias Effekt verschwindet.

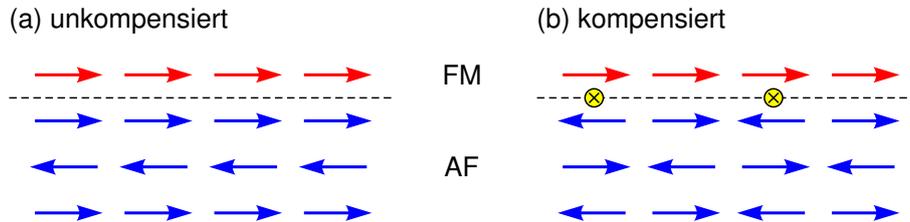


Abbildung 2.6: Unkompenzierte (a) und kompenzierte (b) Spin-Konfiguration an der Grenzfläche atomar glatten ferromagnetischen (FM) und antiferromagnetischen (AF) Schichten. Die energetisch ungünstigen Kopplungen sind mit \otimes gekennzeichnet.

Aus diesem intuitiven Modell mit ideal glatten Grenzflächen ergeben sich nach Gl. (2.4) Kopplungskonstanten (J_{eb}) in der Größenordnung einiger mJ/m², was etwa um einen Faktor 100 größer ist als die in Schichtsystemen gemessenen Werte. Diese Abweichung von den Experimenten ist nicht verwunderlich, denn die Annahme ideal glatter Grenzflächen wird in der Realität nur schwer erfüllbar sein. Eine gewisse Oberflächen-Rauigkeit der Materialien ist meistens unvermeidbar. Doch selbst bei epitaktisch hergestellten und einkristallinen Systemen werden derart große Austauschverschiebungen nicht beobachtet. Bei diesen Systemen ist H_{eb} sogar oft kleiner

als bei polykristallinen Schichten [21].

Um den Unterschied zwischen den gemessenen und den berechneten Kopplungsenergien zu beseitigen, wurden zahlreiche weiterführende Modelle entwickelt. Ziel dieser Modelle war es, die Eigenschaften realer Schichtsysteme besser abzubilden und eine Erklärung für die reduzierten Kopplungsenergien an der Grenzfläche zwischen AF und FM zu liefern. Eine Aufzählung aller Modelle mit ihren Annahmen und Folgen für den Exchange-Bias Effekt würde den Rahmen dieser Arbeit überschreiten. Zusammenfassungen der bisher aufgestellten Theorien zum Exchange-Bias Effekt findet man in [21, 103, 146–149].

Im Folgenden sollen zwei Modelle, die zur Deutung der experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit beitragen können, genauer vorgestellt werden.

Das „Random-Field“ Modell

Das von MALOZEMOFF entwickelte Modell [132, 133] zur Beschreibung der Austauschanisotropie führt die beobachtete Austauschverschiebung auf ein lokal begrenztes, zufällig orientiertes Magnetfeld (engl. *random field*) zurück. In diesem Feld richten sich die Spins an der Grenzfläche zwischen Antiferromagnet (AF) und Ferromagnet (FM) aus. Dem Modell zufolge werden diese Felder durch zufällig auftretende Rauigkeiten bzw. Defekte an der Grenzfläche AF/FM verursacht.

In diesem Modell wird von einer kompensierten Spin-Konfiguration der AF-Oberfläche mit zufälliger Grenzflächen-Rauigkeit ausgegangen wie es in Abb. 2.7 schematisch dargestellt ist. Im Gegensatz zu den einfachen Modellen sind jetzt auch Domänen im AF zulässig, was einen zusätzlichen Energiebeitrag liefert. Vorausgesetzt wird bei diesem Modell jedoch auch eine kollineare Anordnung der Spins an der Grenzfläche.

Die Vorstellung atomar glatter Grenzflächen wird aufgehoben, indem ein Spin des FM an der Grenzfläche zum AF durch einen Spin des AF-Materials ersetzt wird. Dieser Spin stellt einen Defekt in der ferromagnetischen Ordnung dar und wird deshalb im Folgenden als *Defekt-Spin* bezeichnet.

Je nach Orientierung des Defekt-Spins gibt es verschiedene Beiträge zur Kopplungsenergie an der Grenzfläche. Energetisch ungünstig ist die Ausrichtung des Spins entgegen der Magnetisierungsrichtung des FM, weil dadurch viele ungesättigte (frustrierte) Kopplungen entstehen (Abb. 2.7, b). Günstiger ist die parallele Ausrichtung des Defekt-Spins relativ zum FM, wodurch weniger frustrierte Kopplungen resultieren (Abb. 2.7, a).

Für Defekte, die aus dem anderen Untergitter des AF stammen, ist allerdings die entgegengesetzte Magnetisierungsrichtung des FM energetisch günstiger. Über die gesamte Grenzfläche gemittelt heben sich also die Wirkungen der Spins aus den beiden Untergittern gegenseitig auf und es würde keinen Exchange-Bias Effekt geben. In einem lokal begrenzten Bereich wird jedoch eine der beiden Defekt-Sorten überwiegen. Der Überschuss der einen Sorte ist dabei proportional zur Standardabweichung vom Mittelwert. Die Kopplungskonstante (J_{eb}) für den betrachteten

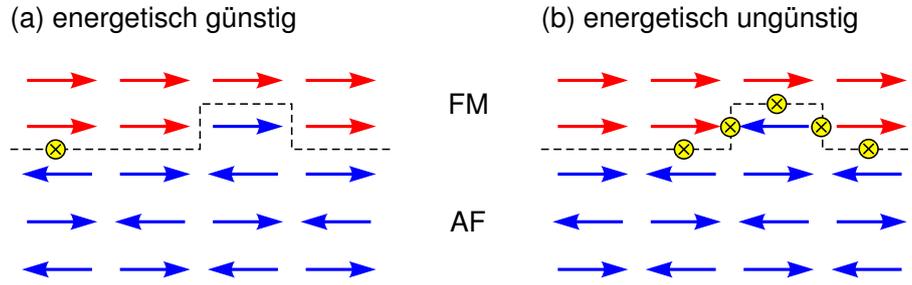


Abbildung 2.7: An der Grenzfläche wird ein FM-Spin durch einen AF-Spin ersetzt. Es ist energetisch günstiger, wenn der AF-Spin parallel zur Magnetisierung des FM ausgerichtet ist (a) als antiparallel zu dieser (b). Die ungünstigen (frustrierten) Kopplungen sind mit \otimes markiert.

Bereich ist deshalb proportional zu $1/\sqrt{N}$, wenn N die Anzahl der Spinpaare in diesem Bereich ist. In dem lokal begrenzten Bereich wird also ein kleiner Überschuss an Defekt-Spins in eine Richtung weisen. Sie erzeugen das lokale zufällig orientierte Feld (engl. *random field*), das dem FM eine Vorzugsrichtung gibt.

Wenn die antiferromagnetische Ordnung initialisiert wird, z. B. beim Abkühlen des AF unter die NÉEL-Temperatur (T_N), wird das System bestrebt sein, möglichst viele Defekt-Spins parallel zur Magnetisierung des FM auszurichten. Dazu bricht die antiferromagnetische Struktur in Domänen auf. Die Domänenwände verlaufen dabei senkrecht zur Grenzfläche zwischen FM und AF. Jede Domäne ordnet sich so an, dass möglichst wenig frustrierte Kopplungen entstehen. Die Defekt-Spins weisen dann bevorzugt in Richtung der Magnetisierung des FM und werden beim Abkühlen unter T_N „eingefroren“. An der Grenzfläche zum FM entsteht insgesamt ein kleiner Überschuss an Spins in dieser Richtung, der den Exchange-Bias Effekt erzeugt.

In der Originalarbeit [132] wird postuliert, dass die mittlere Domänengröße (L) im AF in der Größenordnung der Domänenwände liegt:

$$L \approx \pi \sqrt{A_{AF}/K_u}. \quad (2.5)$$

Dabei ist A_{AF} der Austauschkoefizient und K_u die uniaxiale Anisotropiekonstante im Antiferromagneten. Unter Berücksichtigung der abgeschätzten Domänengröße (L) folgt für die Exchange-Bias Feldstärke [132]

$$H_{eb} = \frac{2z\sqrt{A_{AF}K_u}}{\pi^2 M_{FM} d_{FM}}. \quad (2.6)$$

Die Zahl z ist ein Ordnungsparameter, der vom mittleren Grad der Spin-Frustration an der Grenzfläche AF/FM abhängt. M_{FM} ist die Magnetisierung und d_{FM} die Dicke des Ferromagneten.

Durch die Annahme einer Grenzflächen-Rauigkeit führt das „Random-Field“ Modell die unidirektionale Anisotropie auf die Entstehung lokaler Felder zurück, die letztlich zur Aufspaltung der antiferromagnetischen Ordnung in Domänen führt.

Modell für polykristalline Schichtsysteme

Ein Modell für die Austauschanisotropie in polykristallinen Schichtsystemen aus Ferromagnet (FM) und Antiferromagnet (AF) wurde von STILES und McMICHAEL aufgestellt [150]. Das Modell wurde von den Autoren kontinuierlich für die Beschreibung der Temperaturabhängigkeit der Austauschkopplung [151] und der Koerzitivfeldstärke [152] erweitert. Die grundlegenden Merkmale dieses Modells zur Erklärung der Austauschanisotropie sind im Folgenden zusammengefasst.

Um ein polykristallines Schichtsystem aus FM und AF zu beschreiben, wird in diesem Modell angenommen, dass sich der AF aus kleinen voneinander unabhängigen Kristalliten bzw. Körnern (engl. *grains*) zusammensetzt. Die antiferromagnetischen Körner sollen dabei so klein sein, dass sie nicht in Domänen aufspalten und sich in einem einzigen antiferromagnetischen Zustand befinden. Nur partielle Domänenwände parallel zur Grenzfläche AF/FM sind erlaubt, die durch die Austauschkopplung zum FM entstehen können. Die leichten Anisotropieachsen der AF-Körner seien in ihrer Richtung zufällig verteilt. Die Domänen im FM sollen groß sein im Vergleich zu den AF-Kristalliten, so dass für einen einzelnen Kristallit eine einheitliche Magnetisierung des FM besteht.

Die Energie eines AF-Korns, das an den FM gekoppelt ist, setzt sich im vorliegenden Modell aus zwei Anteilen zusammen:

$$E = -NJ_{\text{net}} \left[\vec{M}_{\text{FM}} \cdot \vec{m}(0) \right] + \frac{Na^2\sigma_w}{2} [1 - \vec{m}(0) \cdot (\pm\vec{u})]. \quad (2.7)$$

Dabei ist N die Anzahl der Spins an der Grenzfläche des AF-Korns und Na^2 die koppelnde Fläche mit der Gitterkonstanten a . Für die Kopplung entscheidend sind weiterhin die Magnetisierung des Ferromagneten (\vec{M}_{FM}), die netto Magnetisierung eines Untergitters des AF an der Grenzfläche [$\vec{m}(0)$] und die Richtung der uniaxialen Anisotropie im AF ($\pm\vec{u}$). Die Energie wird bestimmt durch die mittlere Energie der direkten Austauschkopplung zwischen FM und dem netto Moment des AF an der Grenzfläche (J_{net}) und der Energie einer 180°-Domänenwand im AF (σ_w).

In der ersten Veröffentlichung [150] zu diesem Modell wurde noch ein weiterer Term für die Energie der *Spin-flop Kopplung* in Gl. (2.7) berücksichtigt. Diese Kopplung bevorzugt eine 90°-Ausrichtung der Magnetisierungen \vec{M}_{FM} und $\vec{m}(0)$ (Abschnitt 2.3.1). Da die Spin-flop Kopplung jedoch nicht zu einer unidirektionalen Anisotropie führt, sondern diese nur reduziert [151], wurde sie in die weitere Modellbildung nicht einbezogen.

Der erste Term in Gl. (2.7) beschreibt die direkte Kopplung der Spins an der Grenzfläche AF/FM mit einer mittleren Kopplungsenergie (J_{net}). Der zweite Beitrag zur Energie (E) wird durch die Entstehung partieller (in-plane) Domänenwände im AF geliefert. Die Energie der Domänenwand wird durch den Winkel α bestimmt, den $\vec{m}(0)$ und $\pm\vec{u}$ aufspannen. Die Entstehung partieller Domänenwände im AF ist in Abb. 2.8 für zwei Fälle schematisch dargestellt. Die unterste Atomlage im FM koppelt an die Spins des an der Grenzfläche dominierenden Untergitters im

AF-Korn. Weicht die Richtung der Magnetisierung des FM (\vec{M}_{FM}) von der leichten Anisotropierichtung im AF ($\pm\vec{u}$) ab, so wird im AF eine partielle Domänenwand „aufgedreht“. Dabei wird die Magnetisierung des FM als einheitlich für einen AF-Kristalliten betrachtet. Partielle Domänenwände im FM sind nicht erlaubt.

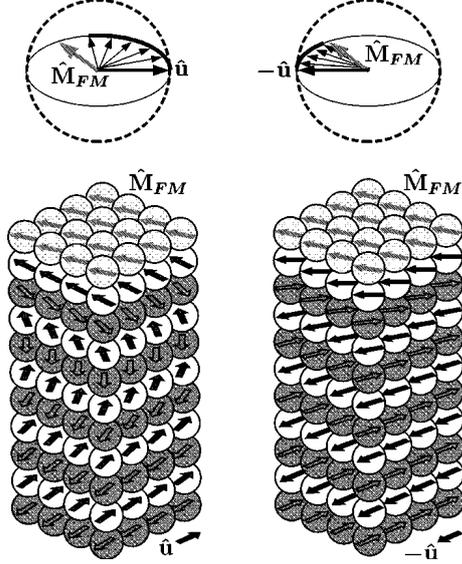


Abbildung 2.8: Partielle Domänenwände im AF [150].

Die Stärke der direkten Kopplung hängt von der Größe der Kontaktfläche und der Anzahl unkompensierter Spins an der Grenzfläche AF/FM ab. Aufgrund der in realen Schichtsystemen immer vorhandenen Oberflächen-Rauigkeit wird davon ausgegangen, dass immer ein gewisser Anteil unkompensierter Momente an der Oberfläche eines AF-Korns vorliegt und zur Kopplung beiträgt. Bei statistischer Verteilung der Spins beider Untergitter im AF ist der Unterschied zwischen den beiden Spinrichtungen proportional zu \sqrt{N} , wenn N die Anzahl der Spins an der Grenzfläche ist. Im Durchschnitt tragen demnach \sqrt{N} Spins zur Kopplung an der Grenzfläche bei. Dadurch ist die mittlere Kopplungsenergie pro Spin $J_{\text{net}} \approx J_{\text{int}}/\sqrt{N}$, wenn J_{int} die Austauschenergie für die Kopplung zweier Spins an der Grenzfläche ist. Für

die Austauschenergie an der Grenzfläche (J_{int}) wird oft der Wert der Austauschkonstanten im FM oder AF angenommen. Typische Austauschkonstanten liegen in der Größenordnung einiger 10 meV [150].

Weiterhin wird die Existenz eines kritischen Winkels (α_{crit}) postuliert. Bei nicht zu dünnen Schichten steigt α_{crit} von 90° auf 180° mit wachsender Schichtdicke. Beim Überschreiten dieses Winkels löst sich eine partielle Domänenwand im AF auf, das AF-System geht in einen anderen Zustand über und die antiferromagnetische Ordnung des gesamten Kornes wird invertiert. Diese Annahme ist erforderlich, um irreversible Prozesse bei der Ummagnetisierung des Systems in hohen Feldern zu beschreiben. Bei bestehender Austauschkopplung zwischen AF und FM führen diese Prozesse zu Energieverlusten im System wie sie z. B. in starken, rotierenden Magnetfeldern beobachtet werden [147].

Die Eigenschaften der Domänenwände im AF werden durch den Austauschkoeffizienten (A_{AF}) und die Anisotropieenergie pro Einheitsvolumen (K_{u}) bestimmt. Bei uniaxialer Anisotropie ist die Energie einer Domänenwand

$$\sigma_w = 4\sqrt{A_{\text{AF}}K_{\text{u}}} \quad (2.8)$$

und die Breite einer Domänenwand

$$\delta_w = \pi\sqrt{A_{\text{AF}}/K_{\text{u}}}. \quad (2.9)$$

Ist die Dicke des AF in der Größenordnung der Domänenwandbreite (δ_w), dann „sieht“ eine partielle Domänenwand im AF das Ende der Schicht und löst sich von selbst auf. Im AF können dann keine partiellen Domänenwände existieren, wodurch auch kein Exchange-Bias Effekt auftritt. In vielen AF betragen typische Wandenergien wenige mJ/m^2 , wodurch δ_w im Bereich einiger Nanometer liegt. Insofern stimmt das Modell mit Experimenten [104, 105] überein, bei denen eine minimale AF-Schichtdicke von 10–30 nm für den Exchange-Bias Effekts gefunden wurde (Abb. 2.3).

Mit Hilfe des Modells können zwei Grenzfälle diskutiert werden. Im Fall schwacher Austauschkopplung an der Grenzfläche ist $2J_{\text{net}} < \sigma_w a^2$ und bei starker Kopplung $2J_{\text{net}} > \sigma_w a^2$. Bei starker Kopplung wird sich beim Ummagnetisieren des FM eine partielle Domänenwand im AF-Korn ausbilden. Die Exchange-Bias Feldstärke wird dann durch die Energie der Domänenwand limitiert. Beim Überschreiten des kritischen Winkels α_{crit} wird der Zustand eines AF-Korns instabil und die antiferromagnetische Ordnung wird sich irreversibel ändern, wodurch Energieverluste entstehen. Ist die Kopplung an der Grenzfläche (J_{net}) klein gegen die Wandenergie (σ_w), bleiben die Spins im AF von der Ummagnetisierung des FM weitgehend unberührt. Die Exchange-Bias Feldstärke wird in diesem Fall durch J_{net} begrenzt.

Die Energie des gesamten Systems erhält man bei diesem Modell durch Mittelung über alle Kristallite, die eine rein zufällige Orientierung der leichten Anisotropieachsen haben. Eine spezielle Verteilung der kritischen Winkel oder der zugehörigen Energiebarrieren, wie sie z. B. im Modell von FULCOMER und CHARAP [153] vorkommt, wird dabei nicht berücksichtigt.

Die **Temperaturabhängigkeit** der unidirektionalen Anisotropie wird im Rahmen des Modells auf die thermische Stabilität der antiferromagnetischen Ordnung in den AF-Körnern zurückgeführt. Bei tiefen Temperaturen (T) ist die antiferromagnetische Ordnung stabil und führt zur beobachteten Austauschverschiebung. Steigende Temperaturen ermöglichen thermisch aktivierte Zustandsänderungen und der antiferromagnetische Zustand wird beim Ummagnetisieren des FM instabil, was zur Reduzierung von H_{eb} führt. Neben diesen thermisch aktivierten Prozessen trägt die Temperaturabhängigkeit der Domänenwand-Energie im AF (σ_w) zur Temperaturabhängigkeit von H_{eb} bei. Im Modell wird angenommen: $\sigma_w(T) = \sigma_{w,0}(1 - T/T_N)^{5/6}$, wobei T_N die NÉEL-Temperatur des AF und $\sigma_{w,0}$ die Wandenergie bei $T = 0$ ist.

Wichtig ist die Annahme, dass es für jedes AF-Korn zwei stabile Zustände der Kopplung gibt, die durch eine Energiebarriere (ΔE) voneinander getrennt sind. Diese Annahme entspricht dem Modell von FULCOMER und CHARAP [153], das für die Beschreibung der thermisch aktivierten Relaxation (Abschnitt 6.2) benutzt wird. Die Energie ΔE setzt sich in einem einfachen Modell aus der Energie des Endzustandes plus der Energie, die zur Bildung einer Domänenwand erforderlich ist, zusammen. Die beiden Grundzustände liegen vor, wenn die Untergitter-Magnetisierungen des AF parallel zu \vec{u} bzw. parallel zu $-\vec{u}$ sind. Für diese Grundzustände gibt es zwei lokale Energieminima. Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Zustand im AF bei einer Temperatur T seinen ursprünglichen Zustand für eine Zeit t beibehält kann

durch

$$w(t) = \exp[-\nu_0 t \exp(-\Delta E/k_B T)] \quad (2.10)$$

ausgedrückt werden [151], wenn ΔE die zu überwindende Energiebarriere zwischen zwei Zuständen ist. Die Frequenz $\nu_0 \approx 10^9 \text{ s}^{-1}$ beschreibt die Anzahl der Versuche pro Zeit, die Barriere zu überwinden. Für $T \rightarrow 0$ sind alle Zustände stabil und $w(t) \rightarrow 1$. Bei hohen Temperaturen nimmt die Wahrscheinlichkeit $w(t)$ exponentiell mit der Zeit t ab, denn $w(t) \rightarrow \exp(-\nu_0 t)$ für $T \rightarrow \infty$.

Betrachtet man einen Ummagnetisierungsprozess des FM, der eine gewisse Zeit (t) dauert, dann wird es in Abhängigkeit von der Temperatur stabile und instabile Körner geben. Bei stabilen Körnern ist $\Delta E \gg k_B T$, so dass die Zustände bei der Ummagnetisierung erhalten bleiben ($w \approx 1$) und zur unidirektionalen Anisotropie beitragen. Instabile Körner haben kleine Barrieren ($\Delta E \ll k_B T$) und wechseln in einer Zeit, die klein ist gegen die Messzeit (t), ihren Zustand entsprechend der Magnetisierung des FM. Die instabilen Körner tragen also nicht zur Austauschanisotropie bei.

Die Temperatur, ab der ein Korn instabil wird und nicht mehr zum Exchange-Bias Effekt beiträgt, wird *Blocking-Temperatur* genannt. Durch die thermische Aktivierung der Zustandsänderungen im AF kann die Blocking-Temperatur kleiner als die NÉEL-Temperatur sein. Gibt es eine Verteilung von Energiebarrieren (ΔE) innerhalb des Schichtsystems, dann gibt es auch eine Verteilung von Blocking-Temperaturen. Jedes Korn trägt bis zum Überschreiten seiner individuellen *lokalen Blocking-Temperatur* zum Exchange-Bias Effekt bei.

Der Sättigungswert von H_{eb} bei niedrigen Temperaturen (vgl. Abb. 2.5) wird durch das Verhältnis der mittleren Kopplungsenergie (J_{net}) zur Energie einer Domänenwand ($\sigma_{\text{w},0}$) bestimmt. Die niedrigere der beiden Energien limitiert H_{eb} bei tiefen Temperaturen.

Die bei den meisten Experimenten beobachtete erhöhte **Koerzitivfeldstärke** in AF/FM Schichtsystemen wird in diesem Modell auf zwei Mechanismen zurückgeführt. Beim Durchlaufen der Hystereseurve kommt es zu unterschiedlichen, richtungsabhängigen Ummagnetisierungsprozessen im FM sowie zu irreversiblen Zustandsänderungen in den AF-Körnern.

Aufgrund der zufällig verteilten Anisotropieachsen der AF-Körner ist die Kopplung zwischen FM und AF im Schichtsystem nicht homogen. Aus dem magnetisch gesättigten Zustand kommend, wird die Drehung der Magnetisierungsrichtung einer ferromagnetischen Domäne je nach lokaler Kopplung in der einen oder in der anderen Raumrichtung erfolgen, wenn das äußere Feld abnimmt. Es bilden sich viele Domänen unterschiedlicher Magnetisierungsrichtungen. Mit fortschreitender Ummagnetisierung wird jedoch eine Richtung dominieren. Während der Ummagnetisierung müssen dadurch viele kleine Energiebarrieren im FM überwunden werden, was zu Energieverlusten führt. Bei starker Kopplung im FM wird die Domänenbildung verhältnismäßig gering sein, was zu einer niedrigen Koerzitivfeldstärke (H_c) führt. Bei schwacher ferromagnetischer Kopplung wird dagegen eine hohe Koerzitivfeldstärke erwartet. Dem Modell zufolge tritt dieser Beitrag zu H_c bei allen

Temperaturen auf und liefert eine $H_c \propto d_{\text{FM}}^{-2}$ Abhängigkeit, wenn d_{FM} die Dicke des Ferromagneten ist.

Bei hohen Temperaturen kann die Ordnung in den AF-Körnern instabil werden, so dass diese beim Ummagnetisieren der FM-Schicht ihren Zustand irreversibel ändern. Die irreversiblen Änderungen führen zu einem zusätzlichen Energieverlust im System, wodurch H_c erhöht wird. Dominieren die Verluste im AF, so ergibt sich $H_c \propto d_{\text{FM}}^{-1}$. Die Stärke der Kopplung im FM hat in diesem Temperaturbereich weniger Einfluss auf H_c .

Kapitel 3

Präparation der Schichtsysteme

Das Ziel dieser Arbeit ist, die Austauschkopplung zwischen antiferromagnetischen NiO-Schichten und angrenzenden ferromagnetischen Schichten zu untersuchen. Die Probenpräparation mittels Kathodenzerstäubung (engl. *sputtering*) spielt deshalb eine entscheidende Rolle. Insbesondere wird sich zeigen, dass der reaktive Herstellungsprozess für die NiO-Schichten die magnetischen Eigenschaften des Schichtsystems stark beeinflusst und deshalb sehr genau kontrolliert werden muss. Im Folgenden wird das Nickeloxid immer mit NiO abgekürzt, auch wenn die Schichten mehr oder weniger als 50 % Sauerstoff enthalten und genau genommen $\text{Ni}_x\text{O}_{1-x}$ vorliegt.

Die Austauschanisotropie wurde hauptsächlich in Schichtsystemen aus NiO und NiFe untersucht. Neben diesem „Standardsystem“ wurden jedoch auch NiO/Fe und NiO/Ni Schichtsysteme hergestellt und magnetisch charakterisiert. Tantal wurde als Material für die abschließende Schutzschicht gewählt, weil es höchst korrosionsbeständig ist [154, 155]. Diese Eigenschaft beruht auf der Ausbildung einer dünnen passivierenden Oxid-Schicht, die sich nach kurzer Zeit an Luft ausbildet und den Fortschritt der Oxidation hemmt.

Die Schichtsysteme wurden auf dünne Glassubstrate (12 mm Durchmesser) oder auf einkristalline Si(100) Wafer (ca. $15 \cdot 15 \text{ mm}^2$) gesputtert. Eine Abhängigkeit der magnetischen Eigenschaften von der Art der verwendeten Substrate wurde nicht festgestellt.

In Abschnitt 3.1 wird zunächst allgemein das Prinzip der Kathodenzerstäubung als Verfahren zur Herstellung dünner Schichten erläutert. Die Abschnitte 3.2–3.4 beschäftigen sich mit den gegebenen apparativen Voraussetzungen sowie der Beschreibung des Herstellungsverfahrens und der Behandlung der Proben nach der Schichtherstellung.

3.1 Prinzip der Kathodenzerstäubung (Sputtern)

Das Ziel der Kathodenzerstäubung (engl. *sputtering*) ist, Material eines Festkörpers abzutragen und dieses auf einem Substrat als dünne Schicht zu deponieren. Das Ver-

fahren wird zur Herstellung dünner Schichten seit Ende der 1950er Jahre angewendet und hat sich in vielen Industriezweigen als Standardmethode zur Beschichtung von Oberflächen durchgesetzt.

Beim Sputtern wird in einem Inertgas (z. B. Argon) eine Gasentladung bei einem Druck von etwa 10^{-3} bis 10^{-2} mbar gezündet. Das Plasma besteht aus durch Stoßionisation erzeugten freien Elektronen und positiven Ionen sowie aus neutralen Atomen bzw. Molekülen. Makroskopisch betrachtet ist das Plasma elektrisch neutral. Durch Ladungsfluktuationen können im Inneren jedoch beträchtliche Feldstärken herrschen. Ein angelegtes elektrisches Feld beschleunigt die positiven Ionen der Gasentladung in Richtung der Kathode (Target). Die beschleunigten Ionen zerstäuben die Kathode, indem sie durch Impulsübertrag Atome und kleinere Molekülfragmente aus den Oberflächenregionen des Targets herausschlagen. Am Target selbst werden durch den Ionenbeschuss auch Sekundärelektronen und -ionen ausgelöst sowie Photonen (sichtbare, UV- und Röntgen-Strahlung) emittiert [156].

Das zerstäubte Material, das im Wesentlichen aus neutralen Teilchen besteht, scheidet sich im Randbereich der Gasentladung als dünne Schicht auf anderen Oberflächen ab und bildet mit der Zeit eine Schicht aus Targetmaterial. Die Kathodenzerstäubung erlaubt es, sowohl metallische als auch nicht metallische Schichten zu deponieren.

Die Sputterausbeute (S) gibt Auskunft über die Anzahl der pro einfallendem Primärion aus dem Target ausgelösten Festkörperatome. Sie ist definiert durch

$$S = \frac{\text{Anzahl der ausgelösten Festkörperatome}}{\text{Anzahl der Initialteilchen}} \quad (3.1)$$

und hängt vom Massenverhältnis Ion/Target, der Kristallinität und Kristallorientierung des Targetmaterials sowie von der Energie und dem Einfallswinkel der Primärionen ab. Die Ausbeute (S) hat für die meisten Materialien ein Maximum bei einem Ioneneinfallswinkel zwischen 70° und 80° bezogen auf die Targetnormale. Bei größeren Winkeln nimmt der Anteil der reflektierten Primärionen zu und die Sputterausbeute sinkt.

Beispielsweise betragen die Sputterausbeuten bei senkrechtem Beschuss elementarer polykristalliner Targets mit Ar^+ -Ionen der Energie 1 keV für Bor $S = 0,6$ Atome/Ion und $S = 3,0$ Atome/Ion für Cu, Au oder Pd [157].

Der Zerstäubungseffekt tritt allerdings erst ein, sobald die Energie der Primärionen einen Grenzwert überschreitet. Die Energieschwelle hängt von der Sublimationsenergie des Targetmaterials ab. Für die meisten Materialien liegt die Energieschwelle zwischen 10 und 40 eV [158]. Bis zu einer Ionenenergie von ca. 50 keV steigt die Sputterausbeute an und fällt danach wieder ab, weil bei höheren Energien die Eindringtiefe ins Target zunimmt und dadurch weniger Energie an die Oberflächenatome abgegeben wird [157].

3.1.1 DC- und HF-Dioden-Zerstäubung

Bei der Zerstäubung in Dioden-Geometrie stehen sich zwei ebene, metallische Elektroden im Abstand von einigen Zentimetern gegenüber. Der Aufbau befindet sich normalerweise in einem Hochvakuum- oder Ultrahochvakuum-Rezipienten.

In DC-Dioden-Anordnung (Abb. 3.1, links) wird an die Kathode (Target) eine negative Gleichspannung von wenigen kV angelegt. Die gegenüberstehende Anode (Substrathalter) liegt auf Masse. Bei einem Ar-Druck zwischen 10^{-3} und 10^{-2} mbar wird eine Gasentladung gezündet. Aufgrund der Potentialdifferenz zwischen Plasma und der negativen Elektrode, bildet sich vor der Kathode eine sichtbar dunkle Zone von wenigen Millimetern, die CROOKESSche Zone. In diesem Bereich liegt der größte Teil des Potentialgefälles. Die Ar^+ -Ionen werden auf dieser Strecke am stärksten beschleunigt. Mit einer Energie von wenigen keV treffen sie auf das Target und schlagen Atome und kleinere Fragmente heraus. Die zerstäubten Teilchen lagern sich u. a. auf den Oberflächen der gegenüber angebrachten Substrate ab.

Mit der DC-Dioden-Anordnung können nur elektrisch leitende Materialien gesputtert werden. Andernfalls würden die positiven Ladungen der sputternden Ar^+ -Ionen nicht abgeführt. Dies würde zu einer kontinuierlichen positiven Aufladung des Targets führen, das beschleunigende Potential würde abgebaut und der Sputterprozess käme letztlich zum Erliegen.

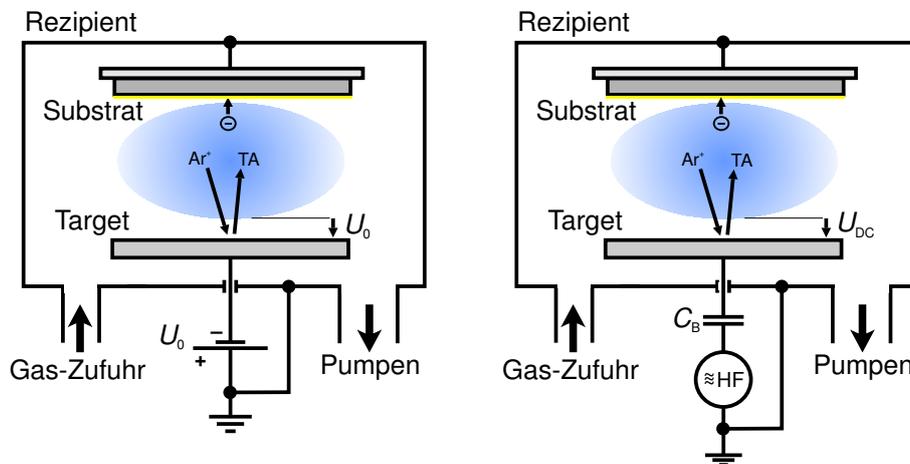


Abbildung 3.1: Prinzip der Kathodenzerstäubung in DC- (links) und HF-Dioden-Anordnung (rechts). Beschleunigte Ar^+ -Ionen schlagen Targetatome (TA) und Targetionen aus dem Material heraus. Die ausgelösten Targetatome bilden auf der Anode bzw. den Substraten dünne Schichten.

Eine Variante der oben beschriebenen DC-Methode ist die Hochfrequenz-Dioden-Zerstäubung (HF-Dioden-Sputtern), die auch zur Deposition dünner Schichten aus elektrisch leitenden und isolierenden Materialien geeignet ist. Die hochfrequente Spannung von wenigen kV wird dabei über einen Kondensator auf das Target geleitet. Gebräuchliche Frequenzen sind 2 MHz, 13,56 MHz und 27,2 MHz [158]. Die

Rezipientenwände und die Substrathalterung liegen wie bei der DC-Anordnung auf Masse (Abb. 3.1, rechts).

Im hochfrequenten elektrischen Wechselfeld zwischen den Elektroden wird eine Gasentladung gezündet. Das beschleunigende Potential bildet sich aufgrund der unterschiedlichen Beweglichkeit von Ar^+ -Ionen und Elektronen aus. Während einer positiven Halbperiode der Wechselspannung erreichen mehr Elektronen das Target als Ionen in einer negativen Halbperiode, die wegen des Kondensators in der Zuleitung jedoch nicht abfließen können. In einer negativen Halbperiode können die Elektronen dagegen über den geerdeten Substrathalter ungehindert abfließen. Dies hat zur Folge, dass sich das Target gegenüber dem Plasma negativ auflädt. Um die Quasineutralität des Plasmas zu erhalten, bildet sich ein elektronenbremsendes (ionenbeschleunigendes) Gleichspannungspotential aus bis ein Gleichgewicht zwischen Elektronen- und Ionenstrom herrscht. Die so genannte *Self-bias Spannung* oder DC-Potential (U_{DC}), ist von der Größenordnung [157]

$$U_{\text{DC}} \approx U_0^{\text{hf}} + \frac{k_{\text{B}}T_{\text{e}}}{e_0}. \quad (3.2)$$

Dabei ist U_0^{hf} die Amplitude der Wechselspannung zwischen Plasma und Elektrode, k_{B} die BOLTZMANN-Konstante, e_0 die Elementarladung und $T_{\text{e}} \approx 10^4\text{--}10^5$ K die Elektronentemperatur [159].

Die Ar^+ -Ionen werden durch das DC-Potential in Richtung des Targets beschleunigt. Diese Beschleunigung kann schrittweise erfolgen, wenn die Ionenlaufzeit durch die Raumladungszone vor dem Target länger ist als die Periodenlänge der Hochfrequenz. Die zerstäubenden Prozesse am Target sind die gleichen wie in der DC-Anordnung.

Gerade bei der industriellen Herstellung optisch transparenter Oxidschichten (z. B. in der Displaytechnik) oder zur Formierung elektrisch isolierender Schichten aus Al_2O_3 wird das HF-Beschichtungsverfahren bevorzugt eingesetzt [160, 161]. In der Praxis werden beide Arten der Zerstäubung (DC und HF) häufig mit Magnetfeldunterstützung am Target betrieben (Magnetron-Sputtern), was zur erheblichen Steigerung der Beschichtungsraten und damit zu kürzeren Prozesszeiten führt.

3.1.2 Reaktive Zerstäubung

Mehrkomponentige Beschichtungen, z. B. Metall-Oxid- oder Metall-Nitrid-Verbindungen, können durch reaktives Kathodenzerstäuben (reaktives Sputtern) hergestellt werden. Dabei stammt mindestens eine der Schichtkomponenten aus der Gasphase.

Während der Beschichtung wird neben dem Inertgas ein Reaktivgas in den Rezipienten geleitet.¹ Das zerstäubte Targetmaterial kann mit dem Reaktivgas eine chemische Verbindung eingehen und auf dem Substrat eine „Verbindungsschicht“ bilden. Generell kann die Reaktion an drei verschiedenen Orten stattfinden:

¹Gelegentlich wird auch das Reaktivgas selbst als Sputtergas verwendet.

- (i) Das Reaktivgas bildet die Verbindung mit den Adatomen an der Substratoberfläche.
- (ii) Das Reaktionsprodukt bildet sich an der Targetoberfläche und wird danach zerstäubt.
- (iii) Die chemische Reaktion erfolgt in der Gasphase, d. h. auf dem Weg der Targetatome zum Substrat.

Die Bildung des Reaktionsproduktes in der Gasphase (Punkt 3) ist jedoch sehr unwahrscheinlich. Meist wird bei relativ niedrigen Partialdrücken des Reaktivgases gearbeitet, was zu einer geringen Stoßwahrscheinlichkeit der Reaktionspartner in der Gasphase führt. Eine chemische Reaktion ist dort deshalb unwahrscheinlich und spielt erst bei hohem Partialdruck des Reaktivgases eine Rolle. Eine Reaktion in der Gasphase führt außerdem zur Bildung von größeren Agglomeraten des Reaktionsproduktes, die eine ungleichmäßige Schicht aus großen Partikeln am Substrat formen [162].

Die Reaktion an der Targetoberfläche führt dagegen oft zur Ausbildung einer Verbindungsschicht auf derselben, was in vielen Fällen mit einer drastischen Abnahme der Sputterrate² einhergeht. Wünschenswert ist demnach eine Reaktion direkt an der Substratoberfläche.

Verbindungsschichten können prinzipiell auch unter Verwendung eines entsprechenden Verbindungstargets gesputtert werden, z. B. oxidische Schichten mittels HF-Zerstäubung. Nachteilig wirkt sich dabei allerdings die i. A. unterschiedliche Sputterausbeute der einzelnen Targetkomponenten aus. Durch präferentielles Sputtern einer Komponente kann sich die Zusammensetzung an der Targetoberfläche ändern, wodurch die Schichtzusammensetzung erheblich von der des Targets abweichen kann [163]. Außerdem muss mit einer niedrigen Beschichtungsrate gerechnet werden, weil die Sputterausbeuten der Verbindungen meist relativ niedrig sind. So beträgt z. B. die totale Sputterausbeute bei senkrechtem Beschuss mit Ar^+ -Ionen der Energie 1 keV für das Metall Aluminium $S_{\text{Al}} = 2,0$ Atome/Ion und für das Oxid nur $S_{\text{Al}_2\text{O}_3} = 0,2$ Atome/Ion [157].

Bei einem reaktiven Beschichtungsprozess existieren generell zwei unterschiedliche Phasen der Zerstäubung, die so genannten *Sputtermodi*. Es wird zwischen dem metallischen und dem reaktiven Sputtermode unterschieden (Abb. 3.2). Als Beispiel dient der Zerstäubungsprozess eines Metalltargetes mit Sauerstoff als Reaktivgas.

Bei niedrigen O_2 -Flüssen werden im metallischen Modus überwiegend Metallatome an der Targetoberfläche mit entsprechend hoher Ausbeute zerstäubt. Erst, wenn ein kritischer Wert f_1 (Punkt A) überschritten wird, erfolgt der Übergang in den reaktiven Sputtermodus (Punkt B), in dem ein Überangebot an Reaktivgas vorliegt. Ob dieser Übergang abrupt oder kontinuierlich erfolgt, hängt von der Reaktivität des Targetmaterials in Bezug auf das Reaktivgas ab [156]. Die Targetoberfläche

²Beim reaktiven Zerstäuben ist i. A. die Sputterrate (am Target) nicht proportional zur Beschichtungsrate (am Substrat), weil eine Reaktionskomponente aus der Gasphase stammt.

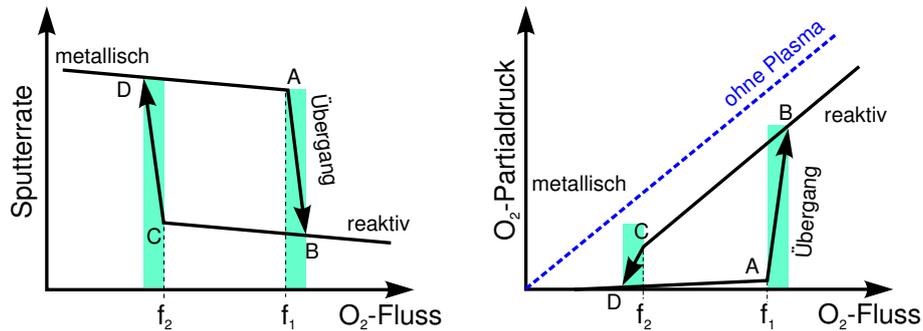


Abbildung 3.2: Hysterese-Effekte bei der reaktiven Kathodenerstäubung am Beispiel von O_2 als Reaktivgas.

wird bei steigendem O_2 -Fluss zunehmend mit Verbindungsmaterial (Oxid) bedeckt bis die gesamte Oberfläche oxidiert ist, was i. A. zur Abnahme der Sputterausbeute und Beschichtungsrate führt [164, 165].

Ist das Target vollständig mit der Verbindungsschicht überzogen, so muss der O_2 -Fluss bis unter den Wert $f_2 < f_1$ gesenkt werden (Punkt C), um das Target in den metallischen Modus (Punkt D) zurückzuführen, wodurch die in Abb. 3.2 dargestellten Hysterese-Effekte verursacht werden. Dieser Effekt wird sowohl bei der Sputterrate als auch beim O_2 -Partialdruck beobachtet [166, 167].

Optimale Prozessbedingungen herrschen oft nur im Übergangsbereich zwischen metallischem und reaktivem Modus (A→B), wenn die Sputterrate noch vergleichsweise hoch ist, aber am Substrat bereits eine Verbindungsschicht gebildet wird [168]. Wie in Abschnitt 4.2 gezeigt wird, kann die Zusammensetzung der Schichten durch die Wahl des Arbeitspunktes in gewissen Grenzen variiert werden (s. auch [162]). Bei der Analyse des Beschichtungsprozesses ist die *Optische Emissionsspektroskopie (OES)* eine hilfreiche Methode [23, 169, 170]. Bei der OES wird die charakteristische optische Emissionsstrahlung der in der Entladung vorliegenden angeregten Atome und Ionen detektiert.

3.1.3 Kondensation und Schichtwachstum

Beim Wachstum dünner Schichten laufen in der Anfangsphase der Schichtbildung (Kondensation) an der Substratoberfläche drei grundlegende Prozesse ab: Adsorption, Diffusion und Desorption.

Zunächst adsorbieren Atome aus der Gasphase auf der Oberfläche. Diese Adatome können auf der Substratoberfläche diffundieren. Die Stärke der Oberflächendiffusion hängt u. a. von der Substrattemperatur (T_S) und der Aktivierungsenergie für die Oberflächendiffusion (E_D) ab. Für Metalle ist E_D proportional zur Schmelztemperatur T_M [158]. Die Diffusionskonstante (D) für diesen Prozess ist proportional zu $\exp(-E_D/k_B T_S)$. Die Adatome können einen niederenergetischen Platz auf der

Oberfläche einnehmen und/oder nach einer mittlere Aufenthaltszeit (τ_A) auch wieder desorbieren, wobei $\tau_A \propto \exp(E_A/k_B T_S)$ mit der Adsorptionsenergie E_A ist.

Für die Beschreibung der Schichtbildung und des Schichtwachstums können unter Berücksichtigung der o. g. Prozesse Ratengleichungen für ein Modell erstellt werden [171]. Es wird bereits deutlich, dass die Energie der auftreffenden Atome, die Substrattemperatur sowie materialabhängige Aktivierungsenergien entscheidende Parameter für die Art der Schichtbildung und des weiteren Wachstums sind.

Je nach Wechselwirkung zwischen Substrat- und Adatomen können beim weiteren Schichtwachstum grundsätzlich drei verschiedene Wachstumsmodi auftreten:

- (i) Ist die Wechselwirkung zwischen Substrat- und Schichtatomen größer als die zwischen benachbarten Schichtatomen, so kommt es zum lagenweisen Wachstum, auch FRANK-VAN DER MERWE-Wachstum genannt [172]. Eine nachfolgende Schicht beginnt erst zu wachsen, wenn die darunter liegende Schicht abgeschlossen ist.
- (ii) Bei höherer Wechselwirkung zwischen benachbarten Adatomen als zwischen Substrat- und Adatomen kann es von Anfang an zum inselartigen Wachstum (VOLMER-WEBER-Wachstum) kommen, bevor das Substrat vollständig bedeckt ist [173].
- (iii) Eine Kombination der beiden zuvor genannten Modi ist das STRANSKI-KRATANOW-Wachstum [174]. Dabei bildet sich zunächst eine aus wenigen Monolagen bestehende geschlossene Schicht, auf der dann dreidimensionale Inseln aufwachsen.

Der Einfluss der Beschichtungsparameter auf die wachsende Schichtstruktur wurde von MOVCHAN und DEMCHISHIN (MD) für Schichten, die durch Elektronenstrahlverdampfung abgeschieden wurden, untersucht und aus den Ergebnissen ein Modell abgeleitet [175]. Sie folgerten, dass die entstehenden Schichtstrukturen in Abhängigkeit vom Verhältnis zwischen Substrattemperatur (T_S) und Schmelztemperatur (T_M) des aufgedampften Materials generell in drei Zonen (I–III) eingeteilt werden können.

Das MD-Modell wurde von THORNTON für aufgestäubte Schichten erweitert, da bei der Kathodenzerstäubung der Entladungsdruck eine zusätzliche Einflussgröße auf das Schichtwachstum darstellt [176, 177]. Neben den Zonen I–III fand er eine vierte Übergangszone T (Abb. 3.3).

Voraussetzung für einen kompakten Schichtaufbau ist eine hohe Beweglichkeit der kondensierten Teilchen auf der Substratoberfläche. Die Mobilität der Adatome wird zum einen durch die Substrattemperatur und zum anderen durch die kinetische Energie der auftreffenden Teilchen bestimmt. Daneben spielt die Oberflächen-Rauigkeit des Substrats eine entscheidende Rolle. Durch Abschattungseffekte und bei niedriger Substrattemperatur kommt es ebenfalls zur Einschränkung der Mobilität der Adatome. Bei der DC- und HF-Dioden-Zerstäubung besitzen die Adatome Energien von 1–10 eV [159].

Generell führt ein höherer Entladungsdruck zur Reduzierung der Energie der auf der Substratoberfläche auftreffenden Teilchen, weil die Anzahl der Kollisionen mit Energieverlust bei steigendem Gasdruck zunimmt; die mittlere freie Weglänge der zerstäubten Teilchen wird kleiner. Der zweite wichtige Parameter ist das Verhältnis zwischen T_S und T_M . Nach den o. a. Überlegungen zur Schichtbildung bestimmt es das Ausmaß der Oberflächendiffusion sowie der thermischen Desorption der Adatome von der Oberfläche.

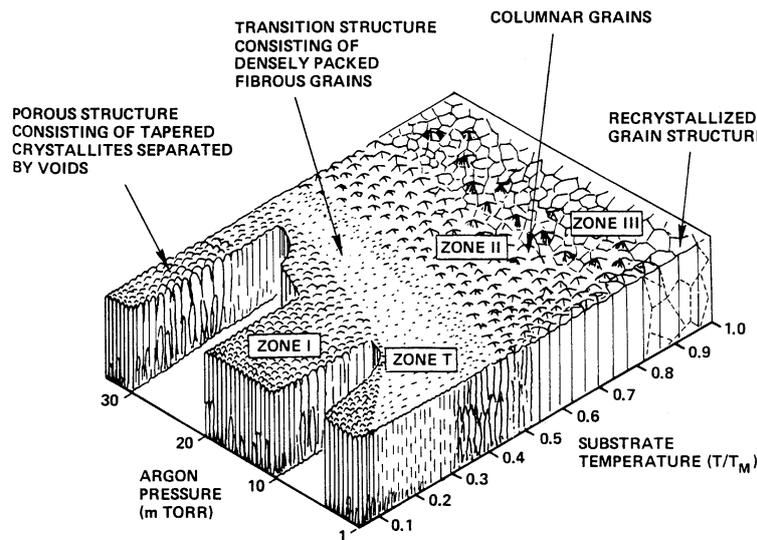


Abbildung 3.3: Strukturmodell für gesputterte Schichten aus der Originalarbeit von THORNTON [177] ($1 \text{ mTorr} \approx 1,3 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$).

Bei niedriger Energie der Adatome ist deren Diffusion auf der Substratoberfläche gering. Die entstehenden Schichtstrukturen der Zone I tendieren zur Ausbildung kleiner, stengelförmiger Kristallite mit relativ großen Hohlräumen dazwischen. Die Schichteigenschaften weichen dann oft stark von denen des Massivmaterials ab und die Oberflächen zeigen große Rauigkeiten.

Speziell bei niedrigen Ar-Drücken wird bei $0,2 \lesssim T_S/T_M \lesssim 0,5$ eine Übergangszone T zwischen den Zonen I und II beobachtet. Diese Schichten zeichnen sich durch hohe Packungsdichten mit faserigen Kristalliten und sehr glatten Oberflächen aus. Die Energie der Adatome ist dabei bereits groß genug, um Substrat- und Nukleations-Rauigkeiten zu überwinden [177]. Je nach Größe der Strukturen wird in diesem Übergangsbereich noch zwischen Nano-, Mikro- und Makrosäulen bzw. -hohlräumen unterschieden [158].

Mit steigendem T_S/T_M nimmt die Oberflächendiffusion der Adatome weiter zu und die Kristallitgrößen wachsen. In der Zone II bilden sich kolumnare Kristallite, die sich über die gesamte Schichtdicke erstrecken. Schließlich reicht die Energie ab $T_S/T_M \gtrsim 0,8$ aus, um große (nahezu einkristalline) Bereiche durch Rekristallisation zu formen.

Ergänzt wurde das THORNTON-Modell durch die Zonen 0 und IV, in denen amorphe Strukturen gebildet werden. Die Zone 0 schließt sich bei niedrigeren Substrattemperaturen an die Zone 1 an. Die Beweglichkeit der Adatome ist in diesem Bereich offenbar so gering, dass amorphe Strukturen entstehen. In der Zone IV, bei sehr hohen Substrattemperaturen, können ebenfalls amorphe Schichten entstehen. Im Gegensatz zu denen der Zone 0 besitzen diese Schichten jedoch eine hohe Packungsdichte und nahezu die Eigenschaften des Massivmaterials, was sie für Anwendungen besonders interessant macht [160].

Entladungsdruck, Substrattemperatur und Sputterleistung bestimmen letztendlich die Energie der schichtbildenden Teilchen und damit den Wachstumsprozess. In der Praxis bieten diese Prozessparameter viele Möglichkeiten zur gezielten Beeinflussung der Schichtstrukturen und -eigenschaften. Gerade bei industriellen Funktionsschichten (optische, magnetische, verschleißmindernde etc.) werden hohe Anforderungen an die Qualität und Reproduzierbarkeit der Schichten gestellt (siehe z. B. [178]).

3.2 Sputteranlage

Alle oxidischen Schichtsysteme wurden mit einer HF-Dioden Sputteranlage vom Typ Z400 der Firma *Leybold-Heraeus* hergestellt. Das Hochvakuum im Rezipienten wird durch eine Turbomolekularpumpe mit vorgeschalteter Drehschieberpumpe erzeugt. Im Rezipienten sind vier Targets drehbar über dem Substrathalter angebracht, so dass die einzelnen Schichten nacheinander deponiert werden können (Abb. 3.4). Das DC-Potential wird über die Betriebsspannung des HF-Senders eingestellt. Die Targets und die Substrathalter werden während der Beschichtung mit Wasser gekühlt. Zur Induzierung einer uniaxialen Anisotropie in die ferromagnetischen Schichten sind im Kühlblock des Substrathalters zwei Permanentmagnete (Hartferrite) untergebracht. Die Magnete ($33,5 \cdot 12 \cdot 6 \text{ mm}^3$) erzeugen am Probenort ein Magnetfeld von 2–3 kA/m, das parallel zur Substratebene gerichtet ist und im folgenden Text *Wachstumsfeld* (H_w) genannt wird. Gedankt sei an dieser Stelle der Firma *Peter Welter GmbH & Co. KG* (Erfstadt), die für diesen Zweck Magnete vom Typ *Ferrom 300 Ba* kostenlos zur Verfügung stellte.

Die Sputteranlage wurde mit einer zusätzlichen Schleusenkammer ausgerüstet, damit der Rezipient zum Substrataustausch nicht belüftet werden muss (Abb. 3.4). Die Substrate befinden sich auf einem $30 \cdot 30 \text{ mm}^2$ großen Halter aus Kupfer, der mit Hilfe eines Transfermechanismus in den Kühlblock eingerastet wird. Die Kammer wird durch eine zweite Turbomolekularpumpe evakuiert und kann zum Substratwechsel mit Stickstoff geflutet werden, während der Rezipient das Hochvakuum beibehält. Die erforderliche Zeit zum Substratwechsel wurde durch diesen Umbau der Anlage erheblich reduziert, weil das Evakuieren des relativ großen Rezipienten nach einem Substratwechsel entfällt.

Bedingt durch den höheren Kühlblock, der nun die Permanentmagnete beinhal-

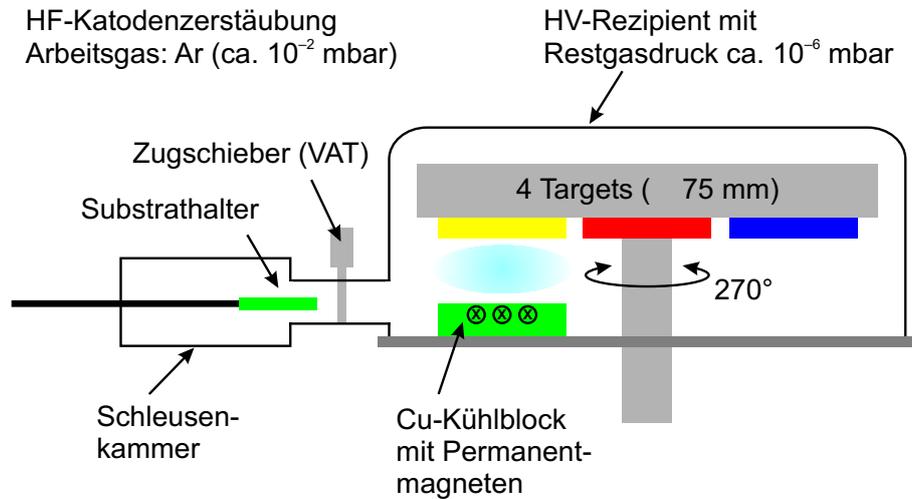


Abbildung 3.4: Aufbau der Sputteranlage mit Substratschleuse.

tet, hat sich der Abstand zwischen Target und Substrat (d_{TS}) von früher 60 mm auf 46 mm verkürzt. Die Änderung dieses Abstands führte zu veränderten Sputterbedingungen. In Abschnitt 3.1.2 wird sich zeigen, dass der verkürzte Abstand auch Auswirkungen auf den reaktiven Sputterprozess hat. Alle Schichtsysteme, die im Rahmen dieser Arbeit hergestellt und untersucht wurden, sind mit $d_{TS} = 46$ mm hergestellt worden.

| | |
|--|--------------------------|
| Hochfrequenz | 13,56 MHz |
| Leistungsaufnahme | max. 500 W |
| Anzahl der Targetpositionen | 4 |
| Durchmesser der Targets | 75 mm |
| Abstand: Target \Leftrightarrow Substrat | 46 mm |
| Saugleistung der Pumpen (N_2) | ca. 200 l/s |
| Restgasdruck | $< 3 \cdot 10^{-6}$ mbar |
| Sputtergas (Reinheit) | Ar ($> 99,999\%$) |
| Reaktivgas für Oxide | O_2 ($> 99,998\%$) |

Tabelle 3.1: Technische Daten *Leybold-Heraeus Z400*.

Die Zufuhr von Arbeits- und Reaktivgas zum Rezipienten wird durch drei Massendurchflussregler der Firma *MKS Instruments* reguliert. Die Durchflussregler werden von einem Steuergerät (Firma *MKS*, Typ *247C*) kontrolliert und bedient. Der Massendurchfluss (Gasstrom) wird in der Einheit sccm (Standard-Kubikzentimeter pro Minute) angegeben. Die Einheit sccm bezieht sich auf den Durchfluss³ bei 273 K

³Der Gasdurchfluss ergibt sich bei konstanter Temperatur durch die Messung von Druck- und Volumenänderung.

und 1,013 bar. Es gilt daher [179]: $1 \text{ sccm} = 18,12 \cdot 10^{-3} \text{ mbar l/s}$.

Zur Druckmessung im Hochvakuumbereich dient ein Ionisationsvakuummeter mit Glühkathode (*Leybold-Heraeus, Ionivac IM 110*). Mit diesem Instrument kann der Druck im Bereich von $2 \cdot 10^{-7}$ bis 1 mbar bei einer Genauigkeit von $\pm 10\%$ (auf linearisierter Skala) [180] gemessen werden. Für die Totaldruckmessung wird ein Baratron (Typ *627A*) der Firma *MKS* eingesetzt. Dieses Gerät hat einen Messbereich von 10^{-4} bis 0,1 mbar und eignet sich für die Druckmessung während der Beschichtung, wobei typischerweise Drücke von 10^{-3} bis 10^{-2} mbar herrschen. Es handelt sich um ein kapazitives Messprinzip, das von der Gassorte unabhängig ist.

3.3 Eichung der Beschichtungsraten

Die für die Probenherstellung benutzte Sputteranlage bietet nicht die Möglichkeit, die Beschichtungsrate während der Deposition zu messen. Um trotzdem reproduzierbare Schichtdicken zu erhalten, müssen Eichschichten für die verschiedenen Targetmaterialien hergestellt werden.

Bei konstanten Sputterbedingungen ist die Schichtdicke (d) proportional zur Prozesszeit (t) [181, 182]. Der Proportionalitätsfaktor ist die Beschichtungsrate (r):

$$d = r \cdot t. \quad (3.3)$$

Die Beschichtungsrate wird in der Einheit nm/min angegeben. Bei den angegebenen Schichtdicken handelt es sich also immer um nominelle Werte, die sich rechnerisch aus der Beschichtungsrate und der Prozesszeit ergeben. Die tatsächlichen Schichtdicken wurden zum Teil mit Hilfe der Transmissions-Elektronenmikroskopie überprüft (Abschnitt 4.1.2).

| | |
|----------------|---|
| Restgasdruck | $\lesssim 3 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$ |
| Ar-Zufluss | 100 sccm |
| Ar-Druck | $9,8 \cdot 10^{-3} \text{ mbar}$ |
| Vorsputterzeit | 10 Min. |

Tabelle 3.2: Allgemeine Bedingungen für die Herstellung der Schichten.

Die Schichtdicken der Eichschichten wurden mit einem Tiefen-Profilometer *DEK-TAK II* der Firma *Sloan* gemessen. Bei der Tiefen-Profilometrie tastet eine feine Metallspitze die Probenoberfläche ab. Ein PC erstellt anschließend ein zweidimensionales Höhenprofil. Die geschätzte relative Genauigkeit der Messungen liegt bei etwa 5 bis 10%. Bei jeder Eichschicht wurde die Schichtdicke an mindestens fünf verschiedenen Punkten gemessen und anschließend der Mittelwert gebildet.

Zur Bestimmung der absoluten Schichtdicke mit dem Profilometer muss die Eichschicht eine Stufe von der Höhe der vollen Schichtdicke besitzen. Um diese Stufe zu

erhalten, wird vor der Beschichtung ein Strich mit einem wasserfesten Stift auf das Substrat gemacht. In einem Ultraschallbad löst sich das aufgesputterte Material über der markierten Stelle ab. Diese Methode kann als *Lift-off Verfahren* bezeichnet werden. Der Höhenunterschied an der Stufe wird mit dem Profilometer gemessen.

Die Beschichtungsrate hängt von den Herstellungsbedingungen ab. Deshalb müssen bei der Herstellung der Eichschichten und der Probenherstellung gleiche Bedingungen herrschen. Insbesondere gilt das für den Sputterdruck bzw. Sputtergas-Zufluss, das DC-Potential sowie den Abstand zwischen Target und Substrat. Die Beschichtungsbedingungen und die ermittelten Beschichtungsraten sind in den Tabellen 3.2 und 3.3 aufgeführt.

| Target-material | Ar-Fluss f_{Ar} / sccm | DC-Potential U_{DC} / V | Beschichtungsrate r / nm min ⁻¹ |
|-----------------|------------------------------------|-------------------------------------|---|
| Al | 100 | 1000 | 10,1 ± 0,4 |
| Fe | 100 | 1100 | 6,8 ± 0,5 |
| Ni | 100 | 1000 | 8,5 ± 0,8 |
| NiFe | 100 | 1000 | 7,5 ± 0,5 |
| Ta | 100 | 1000 | 5,8 ± 0,4 |

Tabelle 3.3: Beschichtungsparameter und durch Eichschichten ermittelte Beschichtungsraten. Abstand Target \leftrightarrow Substrat: $d_{\text{TS}} = 46$ mm.

Eine Besonderheit ergibt sich bei der Eichung der Beschichtungsraten beim reaktiven Sputtern der NiO-Schichten. Die Beschichtungsrate hängt dabei vom Partialdruck bzw. Zufluss des Reaktivgases ab (Abschnitt 3.1.2). Die Beschichtungsrate muss deshalb für jeden eingestellten O₂-Zufluss bestimmt werden.

Mit Hilfe der *Optischen Emissionsspektroskopie (OES)* wurde festgestellt, dass der Übergang vom metallischen zum reaktiven Sputtermodus bei NiO bereits bei sehr kleinem O₂-Anteil (0,3 bis 1,0 %) im Sputtergas erfolgt [23]. In der Übergangszone wird mit der Bildung von stöchiometrischem NiO gerechnet. Das antiferromagnetische Verhalten (Kopplung zum Ferromagneten, thermische Stabilität etc.) von NiO, welches in diesem Übergangsbereich hergestellt wurde, ist deshalb von besonderem Interesse. In diesem Bereich ändern sich die Materialeigenschaften am stärksten. Die Experimente konzentrieren sich auf den Bereich mit geringem O₂-Anteil im Sputtergas (0–5 sccm O₂).

Zur Bestimmung der Beschichtungsraten für NiO wurde das Ni-Target jeweils 5 Min. mit reinem Argon und anschließend 5 Min. mit dem Ar/O₂-Gemisch vorgesputtert. Dadurch wurde gewährleistet, dass bei jedem Beschichtungsprozess gleiche Voraussetzungen am Target herrschten. Der Ar-Fluss wurde konstant auf 100 sccm gehalten. Das DC-Potential war $U_{\text{DC}} = 1$ kV. Der Sputterdruck stieg bei den geringen O₂-Flüssen nur unmerklich an und entsprach in etwa der Angabe in Tabelle 3.2.

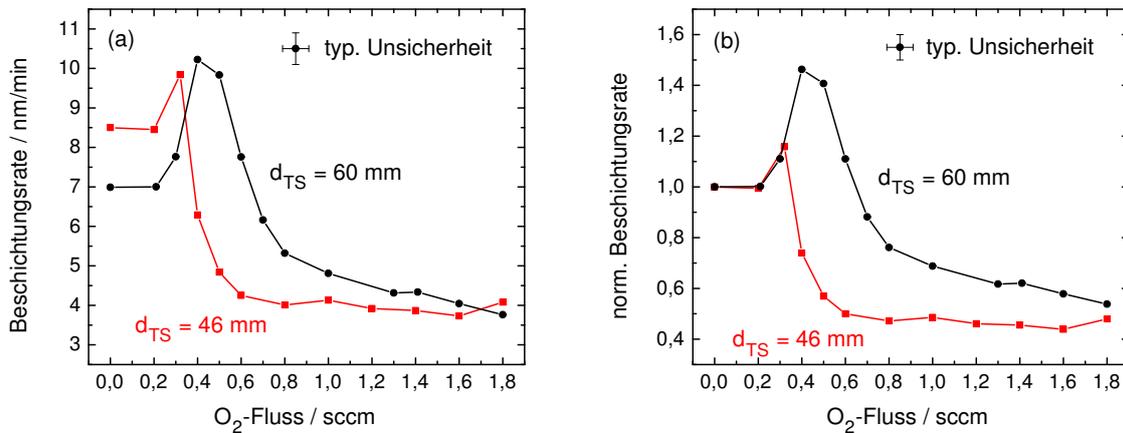


Abbildung 3.5: (a) Absolute und (b) normierte Beschichtungsrate für NiO in Abhängigkeit vom O₂-Fluss bei zwei verschiedenen Abständen zwischen Target und Substrat (d_{TS}).

In den Abbildungen 3.5 (a) und (b) sind die für das reaktive Sputtern von NiO bestimmten Beschichtungsrate in Abhängigkeit vom O₂-Zufluss für zwei verschiedene Abstände zwischen Target und Substrat (d_{TS}) aufgetragen. Bei kleinerem Abstand werden im metallischen Sputtermodus größere Beschichtungsrate gemessen.

Der Übergang vom metallischen in den reaktiven Sputtermodus erfolgt bei kleinerem d_{TS} schon bei niedrigeren O₂-Flüssen und die Übergangszone zwischen den beiden Sputtermodi ist schmaler. In Abb. 3.5 (b) ist gut zu erkennen, dass die Oxidation am Substrat bei gleichen O₂-Flüssen einsetzt und die Beschichtungsrate zwischen 0,2 und 0,3 sccm ansteigt. Die Oxidation der Targetoberfläche, die sich in der abfallenden Beschichtungsrate bemerkbar macht, schreitet bei kleinerem d_{TS} schneller voran.

Das Maximum der Beschichtungsrate kurz vor dem Übergang in den reaktiven Sputtermodus lässt sich durch die Oxidation der zerstäubten Ni-Teilchen direkt an der Substratoberfläche erklären [23]. Bei zunächst konstanter Sputterausbeute am Target nimmt in dieser Phase die Beschichtungsrate zu, weil die zweite Schichtkomponente (Sauerstoff) aus der Gasphase zum Schichtwachstum beiträgt. Es hängt vom Abstand zwischen Target und Substrat ab, wie stark dieser Anstieg ausfällt. Sobald die Oxidation am Target überwiegt, nimmt die Beschichtungsrate aufgrund der niedrigeren Sputterausbeute des Oxids stark ab. Über ein ähnliches Verhalten wurde von SCHILLER et al. beim reaktiven Sputtern von TiO_x-Schichten berichtet [168].

3.4 Tempern im Magnetfeld

Generell gibt es zwei Möglichkeiten, die unidirektionale Anisotropie in gekoppelten Schichtsystemen aus Antiferromagnet (AF) und Ferromagnet (FM) zu initialisieren.

Die Schichtsysteme können in einem homogenen Magnetfeld abgeschieden werden, wodurch den magnetischen Momenten eine Vorzugsrichtung aufgeprägt wird. Einzelne ferromagnetische Schichten erhalten durch dieses Verfahren eine uniaxiale Anisotropie (s. Abschnitt 2.1). Den antiferromagnetischen Schichten wird ebenfalls eine Anisotropie induziert. Die induzierte Anisotropie steht allerdings immer in Konkurrenz zur kristallinen Anisotropie, die eine Ausrichtung der magnetischen Momente entlang bestimmter Kristallachsen hervorruft. Die Ausrichtung der Kristallite wird durch das Schichtwachstum bestimmt.

Eine andere Methode zur Erzielung der Austauschverschiebung ist das so genannte *Feldkühlen* (engl. *field cooling*) der AF/FM Schichtsysteme. Oberhalb der NÉEL-Temperatur (T_N) verliert ein AF seine antiferromagnetische Ordnung und geht in die paramagnetische Phase über. Beim Feldkühlen wird diese Eigenschaft ausgenutzt, indem das AF/FM Schichtsystem ausgehend von einer Temperatur oberhalb T_N in einem äußeren Magnetfeld auf eine Temperatur niedriger als T_N abgekühlt wird. Beim Übergang von der paramagnetischen in die antiferromagnetische Phase nehmen die magnetischen Momente bevorzugt eine Richtung parallel zum äußeren Magnetfeld ein. Die Momente werden sozusagen „eingefroren“.

Aus den Ergebnissen der Kapitel 6 und 7 geht hervor, dass beide Methoden für das Schichtsystem NiO/NiFe nicht äquivalent sind. Nach der Präparation der Schichtsysteme im Magnetfeld ist der AF noch nicht vollständig ausgerichtet. Die Ausrichtung und Stabilisierung der antiferromagnetischen Bereiche in der Schicht erfordert eine gewisse Aktivierungsenergie, die nur durch nachträgliche Energiezufuhr (z. B. thermische Energie) erzielt werden kann. Aus diesem Grund wurden die meisten der untersuchten Proben nach der Herstellung zusätzlich im Magnetfeld getempert und abgekühlt. Dieser Prozess wird im Folgenden auch einfach als *Tempern* bezeichnet. Dabei handelt es sich immer um ein Aufheizen über T_N und Abkühlen in einem äußeren Magnetfeld parallel zur Schichtebene.

Das Tempern wurde im Aufbau des VSM (Abschnitt 5.2) durchgeführt. Dabei wird die Probe von gasförmigem Stickstoff umströmt, der durch eine Heizspirale auf die gewünschte Temperatur gebracht wird. Die Temperatur wird mit einem Thermoelement (PT-100) gemessen und von einem Regler (Firma *Eurotherm*, Typ 2132) konstant gehalten.

Die NÉEL-Temperatur von NiO ist $T_N \approx 520$ K. Die Proben wurden deshalb für 20 Minuten bei 533 K (260 °C) in einem Magnetfeld der Stärke 80 kA/m (entspricht 100 mT) getempert. Anschließend wurden sie innerhalb von ca. 5 Minuten im Magnetfeld auf Raumtemperatur abgekühlt. Das Magnetfeld war parallel zum Wachstumsfeld (H_w) gerichtet, so dass es die ursprüngliche Richtung der unidirektionalen Anisotropie unterstützte.

Kapitel 4

Analyse der Schichtsysteme

4.1 Phasen- und Strukturanalyse

4.1.1 Röntgendiffraktometrie

Eine Standardmethode zur Strukturbestimmung von kristallinen Materialien ist die Röntgendiffraktometrie (engl. *x-ray diffraction*, *XRD*), auch Röntgenbeugung genannt [183–186]. Dabei wird der periodische Aufbau eines kristallinen Festkörpers ausgenutzt.

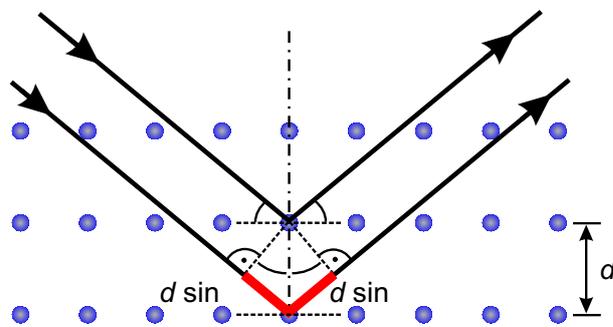


Abbildung 4.1: BRAGG'sche Beugungsbedingung für ein zweidimensionales Gitter.

Unter bestimmten Bedingungen kommt es bei der Reflexion von Röntgenstrahlen an einem kristallinen Festkörper zur konstruktiven Interferenz der auslaufenden (gebeugten) Wellen. Die Kristallebenen, an denen die Reflexion stattfindet, werden Netzebenen genannt. Voraussetzung für die konstruktive Interferenz ist, dass der Gangunterschied zwischen den, an parallel verlaufenden Netzebenen, gebeugten Strahlen gerade ein ganzzahliges Vielfaches der Wellenlänge

(λ) der Röntgenstrahlung beträgt (Abb. 4.1). Konstruktive Interferenz tritt demnach nur bei Einfallswinkeln (Θ) auf, die der BRAGG'schen Beugungsbedingung

$$2d \sin \Theta = n\lambda \quad (n = 1, 2, 3, \dots) \quad (4.1)$$

genügen. Diese Gleichung bildet die Grundlage der Strukturanalyse mittels Röntgendiffraktometrie.

Im Experiment wird die Intensität der auslaufenden Welle als Funktion des Winkels Θ gemessen. Ein lokales Intensitätsmaximum, ein Beugungsreflex, wird detek-

tiert, wenn die BRAGG-Bedingung erfüllt ist. Aus den Winkeln (Θ), bei denen ein Beugungsreflex vorliegt, lässt sich der Abstand (d) der beugenden Netzebenenschar berechnen.

Eine Netzebenenschar wird durch die MILLER-Indices (h, k, l) definiert, die die Orientierung der Netzebenen im Kristallgitter angeben. Eine Netzebene schneidet die Achsen der Elementarzelle jeweils bei $1/h$, $1/k$ und $1/l$. Jeder Beugungsreflex lässt sich über den Netzebenenabstand (d) eindeutig einer Netzebenenschar (hkl) zuordnen. Für Kristalle mit einer kubischen Elementarzelle und den Gitterkonstanten $a = b = c$ gilt:

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}. \quad (4.2)$$

Die gemessenen Netzebenenabstände (d_{hkl}) können mit denen bekannter Materialien verglichen werden und erlauben dadurch einen Rückschluss auf die im Probenvolumen vorliegenden chemischen Phasen des untersuchten Materials. In polykristallinem Material sind die Netzebenen normalerweise zufällig orientiert, so dass eine Vielzahl von d_{hkl} gemessen werden. In dünnen Schichten liegt oft eine durch das Schichtwachstum bedingte Vorzugsorientierung der Kristallite vor. Man spricht in diesem Fall von einer *Texturierung*.

Das antiferromagnetische NiO (Bunsenit) spielt in dieser Arbeit eine wichtige Rolle. Es besitzt ein kubisch-flächenzentriertes (fcc) Gitter¹ vom Typ NaCl. Bei Verwendung von Cu-K $_{\alpha 1}$ Strahlung der Wellenlänge $\lambda = 154,06$ pm lassen sich die in Tabelle 4.1 angegebenen Netzebenenabstände (d_{hkl}) und Beugungswinkel (2Θ) mit Gl. (4.1) berechnen. Es sind zwar einige höherwertige Oxide des Nickels (NiO₂ und Ni₂O₃) bekannt, jedoch werden diese nur bei sehr hohen Temperaturen, hohem O₂-Druck oder durch spezielle chemische Reaktionen gebildet [187]. Bei den gegebenen Herstellungs- und Versuchsbedingungen sind diese Phasen nicht stabil.

Die Beugungsexperimente wurden freundlicherweise von Herrn PROF. DR. THOMASZ STOBIECKI und seinen Mitarbeitern an der Universität für Bergbau und Metallurgie in Kraków (Polen) durchgeführt. Verwendet wurde ein kommerzielles Röntgendiffraktometer vom Typ *X'Pert* der Firma *Philips Analytical*.

Die Messungen wurden bei einem kleinen konstanten Einfallswinkel ($\Phi = 1,2^\circ$) des Primärstrahls (engl. *grazing incidence*) vorgenommen. Diese Methode eignet sich besonders für die Untersuchung dünner Schichten, weil in dieser Geometrie die von der Schicht gestreute Intensität größer ist. Zum Signal tragen nur die Netzebenen bei, die mit der Probenoberfläche einen Winkel ($\Theta - \Phi$) bilden. Als Primärstrahlung wurde Cu-K $_{\alpha 1}$ Strahlung der Wellenlänge $\lambda = 154,06$ pm eingesetzt. Die gebeugte Strahlung wurde in einem Bereich $20^\circ < 2\Theta < 100^\circ$ mit einer Schrittweite von $0,04^\circ$ detektiert.

Abbildung 4.2 zeigt die Ergebnisse der XRD-Experimente an 100 nm dicken NiO-Schichten auf Si(100)-Substraten. Untersucht wurden fünf Proben, die bei unter-

¹Streng genommen besitzt das NiO erst oberhalb der NÉEL-Temperatur ein exakt kubisches Gitter. Bei Raumtemperatur ist das Gitter leicht rhomboedrisch verzerrt. Der Unterschied ist jedoch derart gering, dass das Gitter in der Praxis meist als *pseudo kubisch* behandelt wird.

| Substanz | Kristall-system | Gitterpara-meter/pm | (hkl) | d_{hkl} in pm | 2Θ in Grad |
|-------------------|------------------|---------------------|-------|--------------------|----------------------|
| Ni | kubisch (fcc) | $a = 352,38$ | (111) | 203,4 | 44,50 |
| | | | (200) | 176,2 | 51,85 |
| | | | (220) | 124,6 | 76,38 |
| | | | (311) | 106,2 | 92,94 |
| | | | (222) | 101,7 | 98,44 |
| NiO (Bunsenit) | kubisch (fcc) | $a = 419,46$ | (111) | 242,2 | 37,09 |
| | | | (200) | 209,7 | 43,10 |
| | | | (220) | 148,3 | 62,58 |
| | | | (311) | 126,5 | 75,04 |
| | | | (222) | 121,1 | 79,01 |
| | | | (400) | 104,9 | 94,54 |

Tabelle 4.1: Netzebenenabstände (d_{hkl}) und erwartete Beugungswinkel ($2\Theta < 100^\circ$) für Ni und NiO bei einem Beugungsexperiment mit Cu-K $_{\alpha 1}$ Strahlung [187].

schiedlichen O₂-Zuflüssen während des Sputterprozesses hergestellt wurden. Neben den Messwerten sind die Referenzwerte für NiO gemäß Tabelle 4.1 eingezeichnet. Die Intensität der Referenzwerte entspricht einer Messung an NiO-Pulver, wobei alle Netzebenen rein zufällig orientiert sind. Das erwartete Beugungsmuster der kubischen NiO-Phase konnte bis zur (400)-Ebene identifiziert werden.

Die Verschiebung des Si(311)-Peaks bei der Probe mit 0,40 sccm O₂ wird durch den so genannten „*miscut*“ der einkristallinen Si-Substrate verursacht. Verlaufen die Kristallebenen nicht genau parallel zur Oberfläche, so verursacht eine Drehung der Probe um 180° diesen Effekt [188]. Da der Einfallswinkel bei der benutzten Methode konstant ist, erscheint der Beugungsreflex dann bei einem anderen Winkel. Der Ursprung des kleinen, breiten Peaks ($2\Theta \approx 55^\circ$) konnte nicht abschließend geklärt werden. Sicher ist, dass dieser Peak durch das Si-Substrat verursacht wird. In identischen Proben auf Glassubstraten wurde dieser Beugungsreflex nicht gefunden.

Einen Ausschnitt aus zwei Beugungsdiagrammen (0,32 und 0,40 sccm) zeigt Abb. 4.3. Die Überlagerung von zwei Beugungsreflexen bei 43,06° und 44,54° ist im unteren Diagramm deutlich zu erkennen. Die beiden Reflexe konnten den NiO(200) und Ni(111) Netzebenen zugeordnet werden (s. Tabelle 4.1). Bei geringer Sauerstoffzufuhr wird also noch nicht das gesamte Ni oxidiert, sondern die oxidische und die metallische Phase koexistieren. Die Elementanalyse mittels ERD (Abschnitt 4.2) zeigt in diesem Bereich einen Ni-Überschuss in den Schichten. Ein Exchange-Bias Effekt wird bei NiO/NiFe-Schichtsystemen in diesem Fall nicht beobachtet (Abschnitt 7.3).

In den Abbildungen 4.2 und 4.3 ist zu erkennen, dass sich die Beugungsreflexe bei steigendem O₂-Fluss zu kleineren Winkeln (2Θ) verschieben, d. h. die Abstände der Netzebenen (d_{hkl}) werden größer; das Kristallgitter wird zunehmend gedehnt.

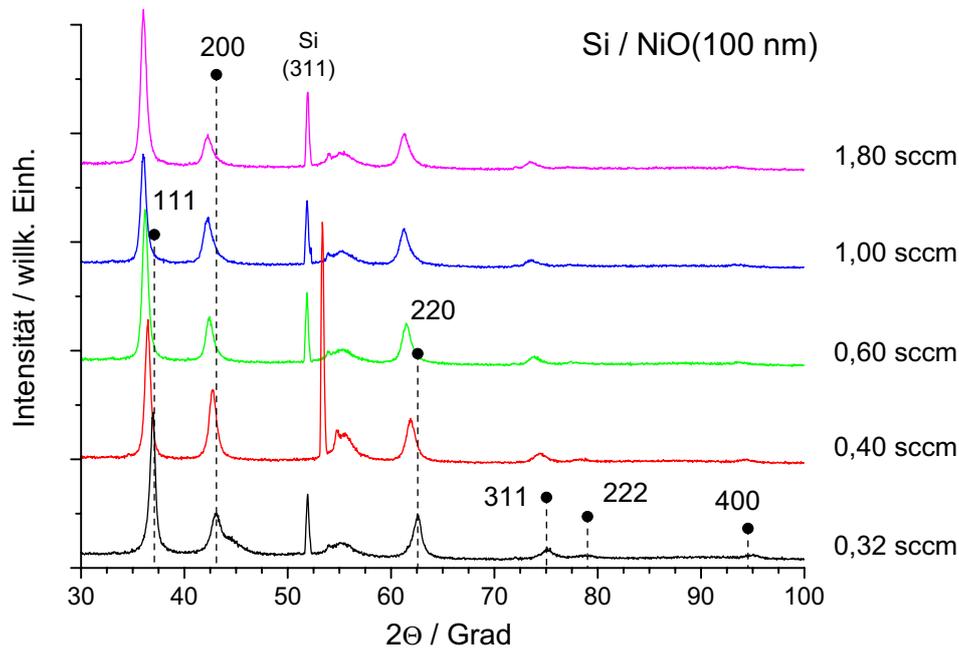


Abbildung 4.2: Beugungsdiagramme für NiO, hergestellt bei verschiedenen O₂-Flüssen. Referenzwerte gemäß Tabelle 4.1.

Die Netzebenenabstände (d_{hkl}) und die daraus resultierenden Gitterparameter (a_{hkl}) wurden für jeden Beugungsreflex mit den Gleichungen (4.1) und (4.2) berechnet. Zur Bestimmung des Beugungswinkels (Θ) wurde jeder einzelne gemessene Peak durch eine LORENTZ-Funktion

$$I(\Theta) = I_0 + \frac{2A}{\pi} \frac{w}{4(\Theta - \Theta_c)^2 + w^2} \quad (4.3)$$

approximiert. Dabei ist I_0 der Offset, A die Fläche unter der Kurve, w die Halbwertsbreite und Θ_c das Zentrum des Peaks, was dem gesuchten Beugungswinkel entspricht.

Neben anderen Fehlerquellen wird der größte Einzelfehler bei XRD-Messungen mit einem Diffraktometer durch die Abweichung der Probenposition von der Diffraktometer-Achse verursacht. Die dadurch entstehende Messunsicherheit in d_{hkl} ist proportional zu $\cos^2 \Theta / \sin \Theta$ [183]. Das bedeutet, dass bei großen Beugungswinkeln $\Theta \rightarrow 90^\circ$ eine minimale Messunsicherheit zu erwarten ist.

Zur Bestimmung eines möglichst präzisen Gitterparameters wurden die aus d_{hkl} für jeden Reflex einzeln berechneten a_{hkl} gegen $\cos^2 \Theta / \sin \Theta$ aufgetragen. Der extrapolierte Schnittpunkt der Ausgleichsgeraden mit der a -Achse bei $\cos^2 \Theta / \sin \Theta = 0$ ist der Gitterparameter (a). Die Ergebnisse der Analyse sind in Abb. 4.4 dargestellt.

Deutlich zu erkennen ist die Zunahme des Gitterparameters (a) bei steigendem O₂-Fluss während der reaktiven Beschichtung, wobei nach einem steilen (näherungsweise exponentiellen) Anstieg ein Sättigungswert von $a \approx 423$ pm erreicht

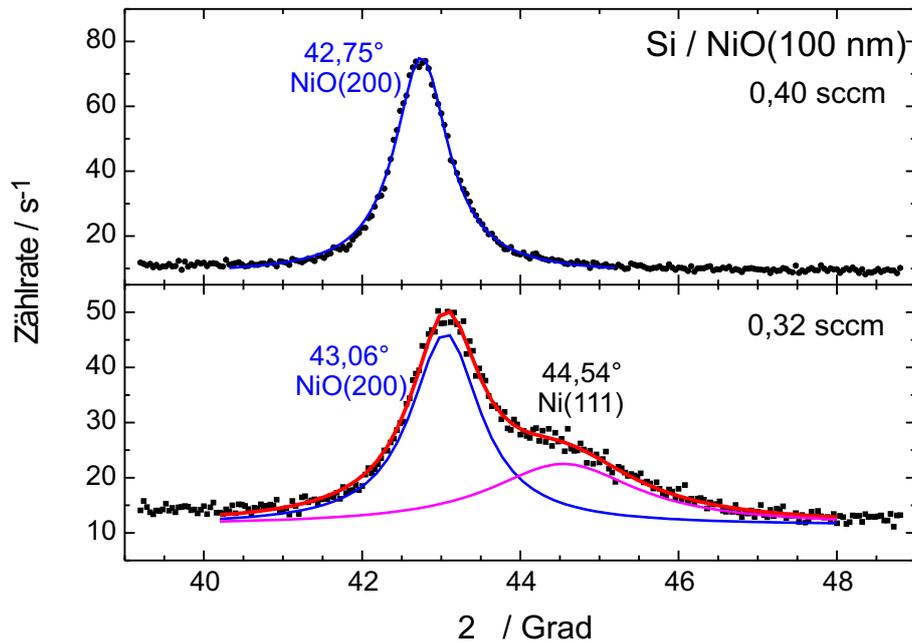


Abbildung 4.3: Bei 0,32 sccm O_2 koexistieren Ni und NiO (unten), während ab 0,40 sccm O_2 nur noch NiO nachgewiesen wird (oben).

wird. Das entspricht einer relativen Vergrößerung der Elementarzelle um etwa 1%. Die Dehnung des Kristallgitters wird vermutlich durch überschüssigen Sauerstoff verursacht, der zusätzlich in das NiO eingebaut wird. Die ideale NiO-Gitterstruktur wird mit steigendem O_2 -Fluss zunehmend gestört.

Zu ähnlichen Ergebnissen kamen FARIA et al. durch die Untersuchung 140–250 nm dicker reaktiv gesputterter NiO-Schichten [189]. Mit zunehmendem O_2 -Fluss fanden sie ansteigende Gitterparameter von 418 auf 424 pm und zeigten, dass gleichzeitig die inneren Spannungen von etwa 80 auf 500 MPa zunahm.

Die Ergebnisse der Röntgendiffraktometrie deuten bereits darauf hin, dass die Stöchiometrie der NiO-Schichten mit steigendem O_2 -Fluss von dem idealen 1:1-Verhältnis zwischen Ni und O abweicht. Die absoluten Element-Konzentrationen wurden deshalb zusätzlich durch ERD-Analysen (Abschnitt 4.2) bestimmt. Außerdem ist zu erkennen, dass der Übergang vom sauerstoffarmen zum sauerstoffreichen NiO in einem eng begrenzten O_2 -Fluss-Bereich (0,32 bis 0,40 sccm) abläuft und eine exakte 1:1-Stöchiometrie im reaktiven Sputterprozess nur schwer zu erreichen ist.

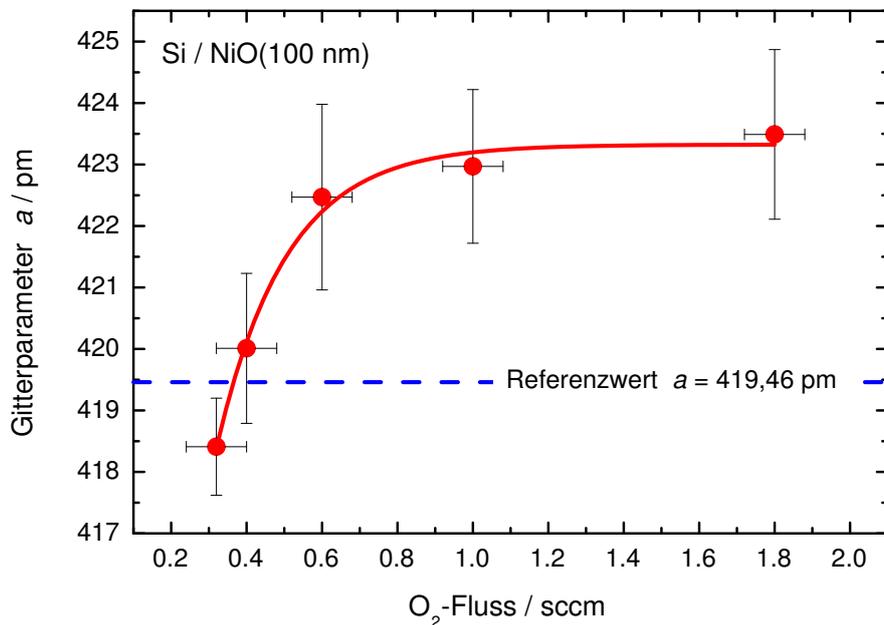


Abbildung 4.4: Gitterparameter (a) der NiO-Schichten in Abhängigkeit vom O_2 -Fluss während der Beschichtung.

4.1.2 Transmissions-Elektronenmikroskopie (TEM)

Die Transmissions-Elektronenmikroskopie (oder Durchstrahlungs-Elektronenmikroskopie) erlaubt eine direkte Visualisierung der Schichtstruktur mit nahezu atomarer Auflösung. Diese Methode ermöglicht es, Informationen über Schichtdicken, Grenzflächen-Rauigkeiten, durch den Herstellungsprozess bedingte Durchmischung und die Kristallinität (polykristallin, amorph) der Schichten zu erhalten. Das erste Transmissions-Elektronenmikroskop wurde in den frühen 1930er Jahren von MAX KNOLL und ERNST RUSKA² am Hochspannungsinstitut der Technischen Hochschule Berlin entwickelt [190, 191].

An dieser Stelle soll kurz auf die wesentlichen Merkmale und die Kontrastentstehung bei der Transmissions-Elektronenmikroskopie (TEM) eingegangen werden. Detaillierte Informationen zur Elektronenmikroskopie und der notwendigen Probenpräparation, sind in verschiedenen Lehrbüchern [192–195] zu finden.

Bei der Elektronenmikroskopie wird eine Erhöhung des Auflösungsvermögens dadurch erreicht, dass die Abbildung nicht durch sichtbares Licht, sondern durch Elektronen erfolgt, die eine wesentlich kürzere Wellenlänge besitzen können. Die DE BROGLIE-Wellenlänge eines Teilchens ist unter Berücksichtigung der relativistischen

²E. RUSKA erhielt für seine Arbeiten auf den Gebieten der Elektronenoptik und -mikroskopie zusammen mit G. BINNING und H. ROHRER für die Entwicklung des Raster-Tunnelmikroskops im Jahr 1986 den Nobelpreis für Physik.

Massenänderung

$$\lambda = \frac{h}{p} = \frac{h\sqrt{1 - v^2/c^2}}{m_0v} \quad (4.4)$$

mit der PLANCKSchen Konstante $h = 6,626 \cdot 10^{-34}$ Js, der Lichtgeschwindigkeit $c \approx 3 \cdot 10^8$ m/s, dem relativistischen Impuls $p = m_0v/\sqrt{1 - v^2/c^2}$, der Ruhemasse m_0 und Geschwindigkeit v des Teilchens. Daraus wird direkt ersichtlich, dass eine Erhöhung der Geschwindigkeit zur Reduzierung der Wellenlänge führt. Handelt es sich um elektrisch geladenen Teilchen, so können diese durch elektrische Felder beschleunigt werden.

Bei typischen Beschleunigungsspannungen eines TEM von $U = 100$ kV beträgt die Wellenlänge der Elektronen $\lambda_e \approx 3,7$ pm [196]. Das Auflösungsvermögen (kleinster auflösbarer Abstand zweier Objektpunkte) eines TEM ist typischerweise besser als 1 nm und wird im Wesentlichen durch Linsenfehler (sphärische und chromatische Aberration) begrenzt.

Die zur Abbildung benötigten Elektronen werden in einer Elektronenquelle durch Glüh- oder Feldemission erzeugt und durch ein elektrisches Hochspannungsfeld beschleunigt. Eine Elektronenoptik formt den abbildenden Elektronenstrahl und lenkt ihn auf die Probe. Aufgrund der starken Streuung der Elektronen in der Materie, müssen die Präparate sehr dünn (< 100 nm) sein, damit ein Teil der Elektronen die Probe durchdringen und zur Bildentstehung beitragen kann. Die mehrstufige Elektronenoptik kann durch elektrostatische oder elektromagnetische Linsen realisiert sein. In der Praxis werden die elektromagnetischen Linsen wegen geringerer Abbildungsfehler bevorzugt [196]. Das Endbild wird auf einen Leuchtschirm oder eine Fotoplatte projiziert. In modernen TEM werden CCD-Kameras zur Bildaufzeichnung eingesetzt, was eine digitale Nach- und Weiterverarbeitung der Abbildungen ermöglicht.

Zur Bild- bzw. Kontrastentstehung tragen bei der TEM verschiedene Mechanismen bei, die auf der Wechselwirkung zwischen Elektronen und durchstrahlter Materie beruhen. Dabei spielen Zusammensetzung und Dicke der Probe entscheidende Rollen.

Der **Streu-** oder **Absorptionskontrast** entsteht dadurch, dass nicht alle Elektronen des einfallenden Elektronenstrahls die Probe ungehindert durchdringen. Einige Elektronen werden im Material so stark gestreut oder absorbiert, dass sie nicht mehr zur Bildentstehung beitragen. In kristallinen Proben können einfallende Elektronen gemäß der BRAGGSchen Beugungsbedingung (Gl. 4.1) entsprechend orientierter kristalliner Bereiche um den Winkel 2Θ von ihrer ursprünglichen Ausbreitungsrichtung abgelenkt werden (Abb. 4.1). Die Beugung der Elektronen trägt zum **Beugungskontrast** bei. Auf die Bildebene werden dabei entweder die gebeugten Elektronen (*Dunkelfeldabbildung*) oder die ungebeugten Elektronen (*Hellfeldabbildung*) abgebildet, wodurch ein Kontrast zwischen unterschiedlich orientierten kristallinen Bereichen der Probe entsteht.

Der Absorptions- und der Beugungskontrast stellen einen Amplitudenkontrast dar. Beide zeichnen sich durch ein relativ geringes Auflösungsvermögen (schlechter

als 1–2 nm) aus [197]. Für die hochauflösende TEM-Abbildung nutzt man deshalb den **Phasenkontrast**. Dabei wird ausgenutzt, dass die Streuung der Elektronen an den Probenatomen meist mit einer Phasenverschiebung der Welle verbunden ist. Diese Phasenverschiebung kann zur Kontrastbildung genutzt werden, wenn man den gebeugten Wellen eine zusätzliche Phasenverschiebung um $\pm\pi/2$ vermittelt. Der Phasenkontrast entsteht, wenn Elektronen unterschiedlicher Phase die Objektivlinse passieren. Durch diese Methode der Kontrastbildung werden in modernen TEM Auflösungsvermögen von 0,3 bis 0,15 nm erzielt [195].

TEM-Abbildungen der Schichtsysteme

Die Mikrostruktur der hergestellten Schichtsysteme wurde an vier ausgewählten NiO(50 nm)/NiFe(5 nm)/Ta(5 nm) Proben auf Si(100)-Substraten mit Hilfe der TEM untersucht. Zwei dieser Proben waren nach der Herstellung wie in Abschnitt 3.4 beschrieben getempert worden.

Die TEM-Querschnittsaufnahmen wurden freundlicherweise von Herrn PROF. DR. J. ZWECK und Frau M. BLOMENHOFER am Institut für Experimentelle und Angewandte Physik der Universität Regensburg durchgeführt. Alle Bilder wurden mit einem TEM (Firma *Philips*, Typ *CM30*) aufgenommen. Die Beschleunigungsspannung für die Elektronen betrug max. 300 kV, was einer Wellenlänge von 1,97 pm entspricht. Die dabei erreichbare maximale Vergrößerung ist ca. 550 000-fach. Das Auflösungsvermögen des Mikroskops beträgt bestenfalls 0,23 nm. Alle Aufnahmen entstanden durch Hellfeldabbildung.

Wie bereits erwähnt, erfordert die TEM eine spezielle Probenpräparation. Um ein Elektronen transparentes Querschnittspräparat von maximal 100 nm Dicke zu erhalten, wird eine 3 mm große Scheibe aus dem Schichtsystem geschnitten und durch mechanisches Schleifen auf eine Restdicke von ca. 20 μm gebracht. Mit einem Ar^+ -Ionenstrahl wird unter schrägem Einfallswinkel die gesamte Probe an einer Stelle abgetragen, so dass am Rand dieser Stelle ein keilförmiger Querschnitt entsteht. Für eine scharfe Abbildung mit dem TEM muss vor jeder Aufnahme eine Stelle mit geeigneter Probendicke am Rand dieses „Keils“ gesucht werden.

Abbildung 4.5 zeigt die TEM-Querschnittsaufnahme eines NiO/NiFe/Ta Schichtsystems auf Si. Die einzelnen Schichten sind deutlich zu erkennen, was für eine geringe Durchmischung beim Herstellungsprozess spricht. NiO und NiFe besitzen polykristalline Schichtstrukturen mit geringen Grenzflächen-Rauigkeiten. Je nach Orientierung der Kristallite erscheinen diese hell oder dunkel. Die säulenförmigen NiO-Kristallite erstrecken sich meist über die gesamte Schichtdicke. Der mittlere Durchmesser der NiO-Kristallite für das in Abb. 4.5 dargestellte System beträgt 9 nm.

Zwischen Substrat und NiO liegt noch eine 1–2 nm dünne Siliziumoxid-Schicht, die durch Oxidation der Si-Oberfläche entsteht. Da die Substratoberfläche vor der Beschichtung nicht durch Sputterätzen behandelt wurde, ist diese Oxid-Schicht immer vorhanden.

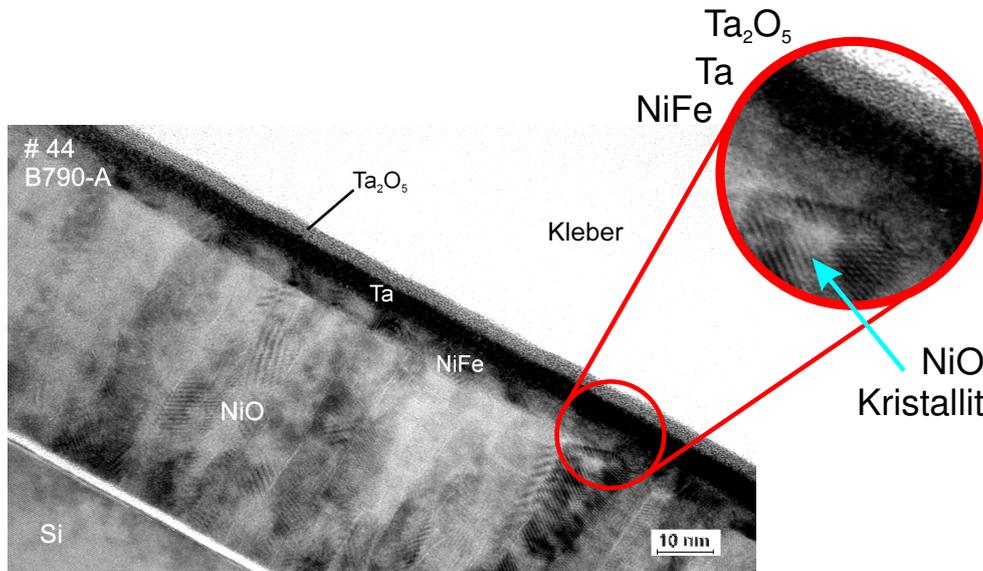


Abbildung 4.5: TEM-Querschnittsaufnahme eines Schichtsystems NiO(50 nm)/NiFe(5 nm)/Ta(5 nm) auf einem Silizium-Substrat.

Die Tantal-Schutzschicht erscheint aufgrund der stärksten Elektronenstreuung dunkler als alle anderen Schichten. Bei der obersten Schicht, die in allen Bildern deutlich zu erkennen ist, handelt es sich vermutlich um Tantalpentoxid (Ta_2O_5), das sich als Passivschicht auf freien Ta-Oberflächen schon bei niedrigen O_2 -Partialdrücken bildet [198]. Da Ta überwiegend mit der Oxidationszahl +5 auftritt, ist die Oxidation zu Ta_2O_5 am wahrscheinlichsten. TaO_2 ist als reine Phase nicht stabil [187].

Das Ta_2O_5 besitzt eine sehr große Elementarzelle mit trikliner Kristallstruktur und den Gitterkonstanten $a = 0,378$ nm, $b = 0,38$ nm und $c = 3,574$ nm [187]. Im Vergleich zum elementaren Ta, das eine kubische Struktur mit $a = 0,33$ nm hat [187], ist das Volumen der Elementarzelle etwa um den Faktor 14 größer. Das heißt es genügen wenige Monolagen Ta zur Bildung einer 3–4 nm dicken Ta_2O_5 -Schicht.

In den TEM-Aufnahmen erscheinen die beiden obersten Schichten als amorph oder zumindest nanokristallin, während in den NiO- und NiFe-Schichten deutlich Kristallite und teilweise sogar Netzebenen sichtbar sind.

Zwischen den getemperten und ungetemperten Schichtsystemen wurden in den TEM-Abbildungen keine Unterschiede bezüglich der Schichtdicken oder Grenzflächen-Rauigkeiten festgestellt. Dies ist ein Hinweis darauf, dass das 20-minütige Tempern bei 533 K (Abschnitt 3.4) keine gravierenden Durchmischungsprozesse an den Grenzflächen auslöst.

Bestimmung der Schichtdicken

Die digitalen TEM-Abbildungen wurden mit Hilfe des Bildbearbeitungsprogramms *Image Tool 3.0* [199] ausgewertet. Die Software ermöglicht u. a. Längenmessungen in Pixelgrafiken nach der Kalibrierung an einem in das Bild eingeblendeten Maßstab. Der Maßstab ergibt sich aus dem für die Aufnahme gewählten Vergrößerungsfaktor des TEM.

Die Anzahl der aus den Aufnahmen gewonnenen Messwerte hängt von der Anzahl der zur Verfügung stehenden und der Qualität der Bilder pro Schichtsystem ab. Für jedes Schichtsystem wurden jedoch mindestens fünf verschiedene Querschnittsaufnahmen ausgewertet. Als Mittelwerte für die Schichtdicken wurden die in Tabelle 4.2 aufgeführten Werte mit ihren Standardabweichungen ermittelt.

| Probe | NiO/nm | NiFe/nm | Ta/nm | Ta ₂ O ₅ /nm |
|-------|------------|-----------|-----------|------------------------------------|
| 42 | 46,1 ± 1,1 | 4,3 ± 0,6 | 5,0 ± 0,4 | 4,2 ± 0,3 |
| 44 | 46,5 ± 1,2 | 4,7 ± 0,5 | 4,1 ± 0,3 | 2,9 ± 0,3 |
| 45 | 49,0 ± 1,2 | 4,2 ± 0,3 | 4,7 ± 0,4 | 2,9 ± 0,4 |
| 47 | 44,2 ± 0,4 | 4,6 ± 0,2 | 4,3 ± 0,3 | 3,5 ± 0,3 |

Tabelle 4.2: Gemittelte Schichtdicken und Standardabweichungen.

Die aus den TEM-Bildern ermittelten Schichtdicken sind 10–15 % kleiner als die Werte, die nach Herstellung und Vermessung der Eichschichten erwartet wurden. Ein Grund für diese Abweichungen könnte die mit der Betriebszeit fortschreitende Abnutzung der Sputter-Targets sein, wodurch sich die Depositionsraten leicht ändern. Bei der Probe 42 war die Beschichtungszeit für Ta etwa 5 s länger als bei den anderen Proben, was zur Vergrößerung der Schichtdicke von etwa 0,5 nm führte. Im Vergleich zu den anderen Ta-Schichtdicken wird dies auch in den TEM-Bildern deutlich.

Größenverteilung der Kristallite

Die Durchmesser der Kristallite bzw. Körner wurden für die einzelnen Schichtsysteme aus den TEM-Abbildungen ermittelt. An den Korngrenzen kann sich die Orientierung, die Gitterkonstante und/oder die Gitterstruktur ändern. Die Elektronen werden dann in benachbarten Körnern unterschiedlich gebeugt, was zu einem Kontrast in der Abbildung führt und die Korngrenzen sichtbar macht.

Die Kristallite einer dünnen polykristallinen Schicht können als Näherungsweise zylinderförmig betrachtet werden. Innerhalb der Schicht liegt i. A. keine definierte Größe der Kristallite vor, sondern es existiert eine wachstumsbedingte Größenverteilung. Die Bestimmung der NiO-Kristallitdurchmesser erfolgte an den NiO/NiFe/Ta Schichtsystemen analog zur Messung der Schichtdicken. Für jede Probe wurden die Durchmesser von etwa 50–100 NiO-Kristalliten gemessen. Die Verteilung der Messwerte entsprach einer logarithmischen Normalverteilung, auch Log-

normalverteilung genannt.

Der Korndurchmesser, kurz Korngröße, ist durch den Wert Null nach unten hin begrenzt. Eine Folge davon ist, dass die Verteilung der Korngrößen nicht symmetrisch-normal ist, weil die Variationsmöglichkeit durch diese Schranke nach unten hin beschränkt ist. Die Verteilung wird dadurch auf einer Seite gestreckt und auf der anderen Seite gestaucht. Logarithmische Normalverteilungen der Korndurchmesser in dünnen Schichten wurden bereits für einige andere Materialien nachgewiesen [200, 201].

Die Wahrscheinlichkeitsdichte der Lognormalverteilung ist für $x > 0$ [202]:

$$w(x) = \frac{1}{\sigma x \sqrt{2\pi}} \exp \left[-\frac{(\ln x - \mu)^2}{2\sigma^2} \right]. \quad (4.5)$$

Für $x \leq 0$ gilt $w(x) = 0$. Bei wenigen Messwerten und asymmetrischer Verteilung ist der Median als Kennzahl für den Mittelwert zu bevorzugen [202]. Er gibt den Messwert an, der die Verteilung in zwei gleich große Hälften teilt. Der Median (x_m) einer Lognormalverteilung ist:

$$x_m = e^\mu. \quad (4.6)$$

Durch Logarithmieren von Gl. (4.6) und Einsetzen in Gl. (4.5) gelangt man zu einer für die Auswertung der Messwerte besser geeigneten Form der Lognormalverteilung:

$$w(x) = \frac{1}{\sigma x \sqrt{2\pi}} \exp \left[-\frac{\ln^2(x/x_m)}{2\sigma^2} \right]. \quad (4.7)$$

Die NiO-Schichten zeigen in den TEM-Aufnahmen dicht gepackte, faserförmige Strukturen mit sehr glatten Oberflächen. Die Kristallite haben Durchmesser zwischen 4 und 17 nm, wobei eine logarithmische Normalverteilung der Werte vorliegt (Abb. 4.6). Nach dem Modell von THORNTON sind diese Strukturen der Zone T zuzuordnen (Abschnitt 3.1.3 mit Abb. 3.3), was auch in etwa den Prozessparametern entspricht. Die Schichten wurden bei relativ niedrigen Ar-Drücken von 10^{-2} mbar ($\approx 7,5$ mTorr) hergestellt. Das Verhältnis zwischen Substrat- und Schmelztemperatur (T_S/T_M) bewegt sich zwischen 0,1 und 0,3 (Tabelle 4.3). Dabei ist die Substrattemperatur nur abgeschätzt, was für die weiteren Betrachtungen jedoch ausreicht.

| Material | T_M / K | T_S/T_M | Quelle |
|-----------------------------------|-----------|-----------|--------|
| Ni | 1728 | 0,21–0,27 | [203] |
| NiO | 2228 | 0,17–0,21 | [203] |
| Ni ₈₀ Fe ₂₀ | 1713 | 0,22–0,27 | [204] |
| Ta | 3290 | 0,11–0,14 | [203] |

Tabelle 4.3: Schmelztemperaturen (T_M) der zerstäubten Materialien. Als Substrattemperatur wurde $370 \text{ K} \lesssim T_S \lesssim 470 \text{ K}$ angenommen.

Mit steigendem O₂-Fluss wird eine Tendenz zur Ausbildung kleinerer Kristallite beobachtet (Abb. 4.6). Die Verteilung wird insgesamt schmaler und der Median (d_M)

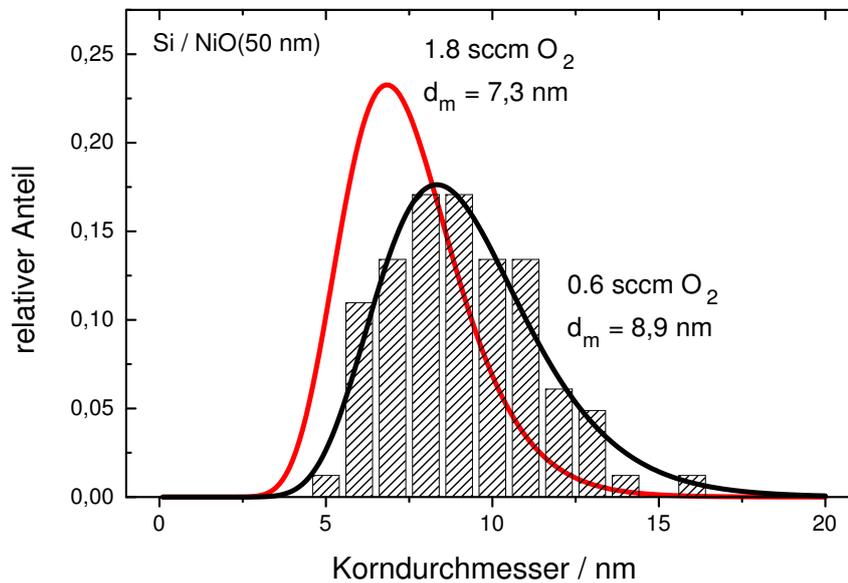


Abbildung 4.6: Aus den TEM-Aufnahmen ermittelte Kristallitdurchmesser von zwei NiO-Schichten. Die eingezeichneten Linien sind Anpassungskurven einer logarithmischen Normalverteilung (Gl. 4.7) mit den mittleren Korndurchmessern (d_m). Die einzelnen Messwerte für 1,8 sccm O₂ sind zur besseren Übersicht nicht eingezeichnet.

verschiebt sich zu kleineren Werten. Nach dem Modell von THORNTON ist dies ein Zeichen für eine abnehmende Mobilität der Adatome auf der Substratoberfläche. Die Energie der schichtbildenden Teilchen nimmt anscheinend mit steigendem O₂-Partialdruck ab. Aufgrund der fortschreitenden Oxidation der Targetoberfläche wird mehr Energie zum Zerstäuben der Oberfläche benötigt und die kinetische Energie der zerstäubten Teilchen nimmt ab. Dies spiegelt sich auch in der sinkenden Beschichtungsrate wider (Abb. 3.5).

Vergleichbare Korndurchmesser von 4–10 nm in reaktiv gesputterten 100–150 nm dicken NiO-Schichten wurden von HOTOVÝ et al. gemessen [205, 206]. LAI et al. berichten von Kristalliten mit 5,4 nm Durchmesser in 45 nm dicken NiO-Schichten auf amorphen Aluminium-Substraten [118]. In 30 nm dicken Schichten, hergestellt durch Zerstäubung eines NiO-Targets, fanden CARTIER et al. mittlere Korndurchmesser von 5–7 nm [207].

In den NiFe-Schichten sind nur vereinzelt Kristallite und bei hoher Auflösung auch Kristallgitterlinien erkennbar. Die Größenordnung der Körner liegt ebenfalls bei 5–10 nm. Es handelt sich also auch hier um eine polykristalline Schichtstruktur. Im Gegensatz dazu sind selbst bei sehr hoher Auflösung in den Ta-Schichten keine Kristallite oder Gitterlinien sichtbar. Die Schichten scheinen, bedingt durch die hohe Schmelztemperatur von Ta, eine amorphe oder nanokristalline Struktur zu besitzen.

Zwischen getemperten und ungetemperten Schichten konnten keine Unterschiede in den Kristallitgrößen oder Schichtdicken festgestellt werden. Der mittlere Durchmesser der NiO-Kristallite war vor und nach dem Tempern 9 nm. Die Temperatur beim Feldkühlen (533 K) reicht also noch nicht aus, um deutliche Veränderungen in der Mikrostruktur, z. B. durch Rekristallisation, in den Schichtsystemen zu verursachen. Erst bei höheren Temperaturen (800–1000 K) beobachteten LAI et al. [118] starkes Wachstum der NiO-Kristallite in NiO/NiFe Schichtsystemen.

Der Einfluss der NiO-Korngrößen auf die magnetischen Eigenschaften der gekoppelten Schichtsysteme wird in Abschnitt 7.3 diskutiert.

4.2 Elementanalyse mittels ERD

Beim reaktiven Sputterprozess hängt die Zusammensetzung der hergestellten Schichten stark von den Herstellungsbedingungen ab (vgl. Abschnitt 3.1.2). Insbesondere ist der Reaktivgasanteil im Sputtergas ein entscheidender Parameter.

Zur weiteren Charakterisierung der NiO-Schichten wurden die Element-Konzentrationen in den reaktiv gesputterten Schichten mittels *Elastic Recoil Detection Analysis (ERDA)* am Münchener Tandem-Beschleuniger bestimmt. Diese Analysen wurden freundlicherweise von Herrn DR. ANDREAS BERGMAIER vom Institut für Experimentalphysik E12 der Technischen Universität München durchgeführt.

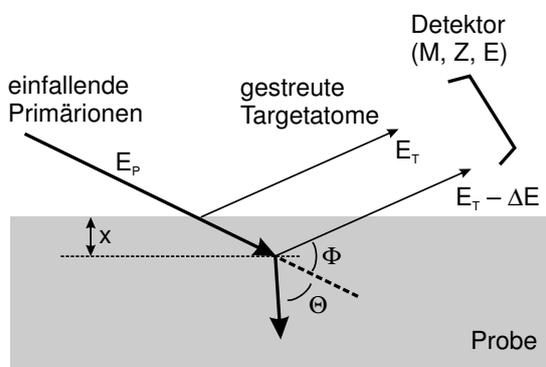


Abbildung 4.7: Prinzip der ERD-Analyse (nach [208]).

Bei der ERD-Analyse handelt es sich um eine der RUTHERFORD-Rückstreuung (engl. *Rutherford Backscattering, RBS*) verwandte Methode. Ein wesentlicher Unterschied zwischen RBS und ERD ist, dass beim RBS die gestreuten Projektile nachgewiesen werden, während beim ERD die angestoßenen (gestreuten) Targetatome detektiert und direkt über ihre Masse und Kernladung identifiziert werden. Voraussetzung dafür ist, dass die Projektile einen großen Teil ihrer Energie auf die Targetatome übertragen. Deshalb funktioniert die ERD-Technik nur, wenn die Masse der Projektile vergleichbar oder größer ist als die Masse der Targetatome. Aus diesem Grund werden bevorzugt schwere Ionen als Primärteilchen verwendet. Durch die Verwendung schwerer Primärionen (z. B. Ni, I oder Au) mit einer Energie von 1–3 MeV/u ist es möglich, insbesondere leichte Elemente (^1H bis ^{16}O) tiefenaufgelöst zu detektieren [209].

Das Messprinzip der ERD-Methode ist in Abb. 4.7 schematisch dargestellt. Die einfallenden schweren Primärionen übertragen durch elastische Stöße einen Teil ihrer Energie (E_p) auf die Atome in der Probe. Die Targetatome werden unter dem meist

kleinen Winkel (Φ) in Vorwärtsrichtung gestreut und von einem Detektor-System anhand ihrer Kernladung (Z) und Masse (M) identifiziert. Aus der ebenfalls gemessenen Energie der gestreuten Targetatome (E_T) schließt man auf die Tiefenverteilung der Atome. Es besteht ein definierter Zusammenhang zwischen dem Energieverlust eines Targetatoms (ΔE) und der Tiefe (x), aus der das gestreute Atom stammt [209]. Für die Bestimmung eines Tiefenprofils benötigt man den Streuquerschnitt sowie den Energieverlust der Ionen und der gestreuten Atome.

Die Nachweisgrenze für leichte Elemente (bis etwa Ge) liegt bei etwa 10 ppm [210]. Die Tiefenauflösung beträgt in der Regel ca. 10 nm und kann in der Nähe der Probenoberfläche bestenfalls bis auf etwa 1 nm erhöht werden [211]. In einigen Fällen konnte sogar eine atomare Auflösung (Nachweis einzelner Atomlagen) erzielt werden [212]. Die Tiefenauflösung wird im Wesentlichen durch die Energieauflösung des Detektor-Systems bestimmt. Durchmischungs- und Sputterprozesse können bei den verwendeten Primärionen-Dosen von 10^{10} bis 10^{11} cm $^{-2}$ vernachlässigt werden [213]. Es handelt sich also um ein weitgehend zerstörungsfreies Messverfahren.

Bei den durchgeführten Experimenten wurde die quantitative Zusammensetzung von 100 nm dicken NiO-Schichten auf Glas gemessen. Außerdem wurde eine NiFe-Schicht untersucht, um die Zusammensetzung der Legierung zu bestimmen. Bei den Messungen kam ein Primärstrahl aus ^{127}I der Energie 170 MeV zum Einsatz. Die gemessenen Element-Konzentrationen sind in Tabelle 4.4 zusammengefasst.

| Probe | O ₂ -Fluss | Ni / at. % | O / at. % | Fe / at. % | H / at. % |
|-------|-----------------------|--------------------|---------------------|--------------------|---------------------|
| NiO | 0,32 sccm | 64,3 ($\pm 0,5$) | 33,4 ($\pm 0,4$) | - | 2,38 ($\pm 0,06$) |
| NiO | 0,40 sccm | 44,4 ($\pm 0,4$) | 53,4 ($\pm 0,5$) | - | 2,29 ($\pm 0,06$) |
| NiO | 0,60 sccm | 42,9 ($\pm 0,4$) | 54,4 ($\pm 0,5$) | - | 2,69 ($\pm 0,07$) |
| NiO | 1,00 sccm | 43,0 ($\pm 0,4$) | 54,3 ($\pm 0,5$) | - | 2,73 ($\pm 0,07$) |
| NiO | 1,80 sccm | 40,8 ($\pm 0,4$) | 56,1 ($\pm 0,5$) | - | 3,13 ($\pm 0,07$) |
| NiFe | - | 82,1 ($\pm 0,5$) | 0,62 ($\pm 0,06$) | 15,5 ($\pm 0,2$) | 1,76 ($\pm 0,05$) |

Tabelle 4.4: Mittels ERDA bestimmte absolute Element-Konzentrationen. Die Werte in der Spalte O₂-Fluss beziehen sich auf die eingestellten O₂-Flüsse während der reaktiven NiO-Herstellung.

Die in allen Schichten nachgewiesenen 2–3% Wasserstoff stammen vermutlich aus dem Restgas im Rezipienten. Der Wasserstoff wird bei der Beschichtung aus den Wänden der Sputterkammer nachgeliefert [179]. Das Saugvermögen von Turbomolekularpumpen ist für leichte Gase geringer als für schwere Gase. Deshalb kann es zu einem erhöhten Wasserstoffpartialdruck im Restgas kommen. Eine Herabsetzung des Wasserstoffpartialdrucks ließe sich durch den Einsatz einer Vorpumpe mit größerem Saugvermögen oder durch die zusätzliche Verwendung einer Öldiffusionspumpe zwischen Turbomolekularpumpe und Vorpumpe erreichen [158].

Innerhalb der Nachweisgenauigkeit von ca. 10 ppm wurden keine weiteren Elemente (Verunreinigungen) als die in Tabelle 4.4 aufgeführten gefunden. Die Tiefen-

verteilung der Elemente in den Schichten war sehr homogen [213].

In Abb. 4.8 sind die Ergebnisse der ERD-Analysen mit den gemessenen Beschichtungsrate für NiO grafisch dargestellt. In Teil (b) ist das Verhältnis zwischen gemessener Sauerstoff-Konzentration (c_{O}) und Nickel-Konzentration (c_{Ni}) aufgetragen. Im reaktiven Sputtermodus, wenn die Beschichtungsrate maximal ist, werden Schichten mit weniger als 50 % Sauerstoffanteil abgeschieden ($c_{\text{O}}/c_{\text{Ni}} < 1$). Bei steigendem O_2 -Fluss kommt es zu einem abrupten Übergang und es wird NiO mit mehr als 50 % Sauerstoff gebildet ($c_{\text{O}}/c_{\text{Ni}} > 1$).

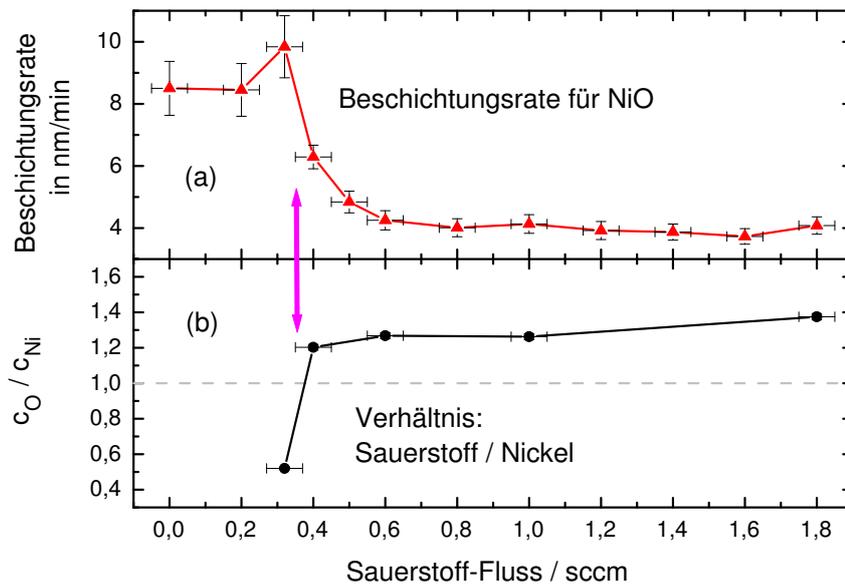


Abbildung 4.8: (a) Beschichtungsrate beim reaktiven Sputtern von NiO und (b) Verhältnis zwischen Sauerstoff-Konzentration (c_{O}) und Nickel-Konzentration (c_{Ni}) in den gesputterten Schichten in Abhängigkeit vom O_2 -Fluss bei der Herstellung. Der Pfeil markiert den Bereich, in dem mit nahezu stöchiometrischem NiO gerechnet werden kann.

Exakt stöchiometrisches NiO ($c_{\text{O}}/c_{\text{Ni}} = 1$) wird bei den gewählten Sputterparametern (wenn überhaupt) nur in einem sehr kleinen O_2 -Fluss-Bereich zwischen 0,32 und 0,40 sccm gebildet und erfordert eine sehr präzise Gasfluss-Regelung. Reproduzierbare Schichten wären in diesem Bereich jedoch nur schwer zu erhalten, da sich die Beschichtungsrate sowie die Schichteigenschaften in diesem Bereich am stärksten mit dem O_2 -Fluss ändern (Abb. 4.8).

Die Ergebnisse der Röntgendiffraktometrie (XRD) zeigen eine zunehmende Dehnung des NiO-Gitters bei steigendem O_2 -Fluss (vgl. Abschnitt 4.1.1), was auf den Einbau zusätzlicher Sauerstoff-Atome (Zwischengitteratome) in die NiO-Schichten schließen lässt. Insofern stimmen die Ergebnisse von XRD und ERDA überein.

Bei einem O_2 -Fluss von 0,32 sccm wird noch keine Austauschverschiebung ge-

messen (s. Abschnitt 7.3). Die Ergebnisse der ERD-Analyse sowie der XRD-Messungen zeigen, dass alle untersuchten Schichtsysteme, die eine Austauschisotropie vorweisen, kein absolut stöchiometrisches NiO enthielten, sondern NiO mit einem Sauerstoff-Überschuss.

4.3 Oberflächen-Rauigkeit

Die Oberflächen-Rauigkeit der NiO-Schichten wurde für verschiedene O₂-Flüsse während der Herstellung untersucht. Mit einem Raster-Kraftmikroskop (engl. *Scanning Force Microscope*) [214] lässt sich die Oberflächen-Topographie einer Probe abbilden.

Bei der Raster-Kraftmikroskopie werden die lokalen Kräfte zwischen einer Mikrosonde und der Probenoberfläche detektiert. Als Mikrosonde dient eine nur wenige Nanometer große Spitze, die an einem 100–200 μm langen Biegeelement (engl. *cantilever*) mit sehr kleiner Federkonstante (D) angebracht ist (Abb. 4.9). In Abhängigkeit vom Abstand zwischen Spitze und Probenoberfläche wirkt auf die Spitze eine Kraft (F), die das Biegeelement nach dem HOOKEschen Gesetz um die Strecke $\Delta z = F/D$ auslenkt. Die Auslenkung des Biegeelements (Δz) wird mit einem Auslenkungssensor, z. B. mit einem Laser-Interferometer, sehr genau detektiert. Bei der Messung wird die Spitze durch piezoelektrische Aktuatoren lateral über der Oberfläche bewegt. Ein Computer erstellt aus dem Auslenkungssignal und den Ortskoordinaten ein Abbild der Oberflächen-Topographie. Im Gegensatz zur Tunnelmikroskopie können mit der Kraftmikroskopie auch elektrische isolierende Materialien (z. B. NiO) und Halbleiter untersucht werden. Unter idealen Bedingungen kann mit der Raster-Kraftmikroskopie atomare Auflösung erreicht werden [215, 216].

Verschiedene Kräfte wirken zwischen der Oberfläche und der abtastenden Spitze. Die interatomaren VAN DER WAALS-Kräfte tragen dabei den größten Teil zur Signalentstehung bei³. Es hängt vom Abstand zwischen Spitze und Oberfläche ab, ob die Kraft attraktiv oder repulsiv ist. Beim Betrieb des Kraft-Mikroskops im so genannten *contact mode* berührt die Spitze die Oberfläche leicht. Die Kraft, die auf

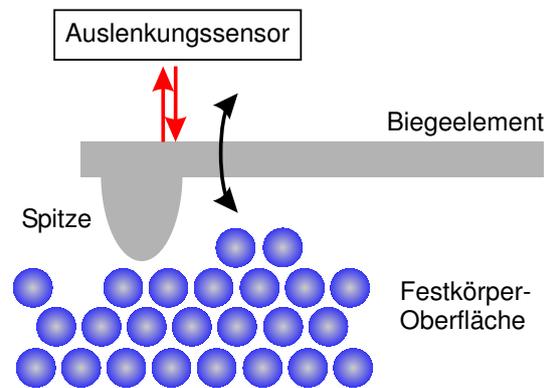


Abbildung 4.9: Messprinzip bei der Raster-Kraftmikroskopie.

³Neben der VAN DER WAALS-Kraft können noch Kapillarkräfte, hervorgerufen durch einen dünnen Wasserfilm auf der Oberfläche, sowie Kräfte, die durch die Dehnung des Biegeelements selbst verursacht werden, zur resultierenden Kraft beitragen.

die Spitze wirkt, ist in diesem Fall repulsiv, d. h. von der Probe weg gerichtet. Im *non-contact mode* befindet sich die Spitze in einem Abstand von 1–10 nm über der Oberfläche. Die resultierende Kraft zwischen Spitze und Probenoberfläche beträgt im *contact mode* zwischen 10^{-6} und 10^{-8} N, während im *non-contact mode* wesentlich kleinere Kräfte von etwa 10^{-12} N wirken [217].

Die Messungen an den NiO-Schichten wurden mit einem kommerziellen Rasterkraftmikroskop der Firma *Park Scientific Instruments* in der Arbeitsgruppe Experimentalphysik I der Universität Kassel durchgeführt. Das Gerät wurde im *contact mode* betrieben, wobei die Kraft zwischen Spitze und Probe konstant auf 12 nN gehalten wurde.

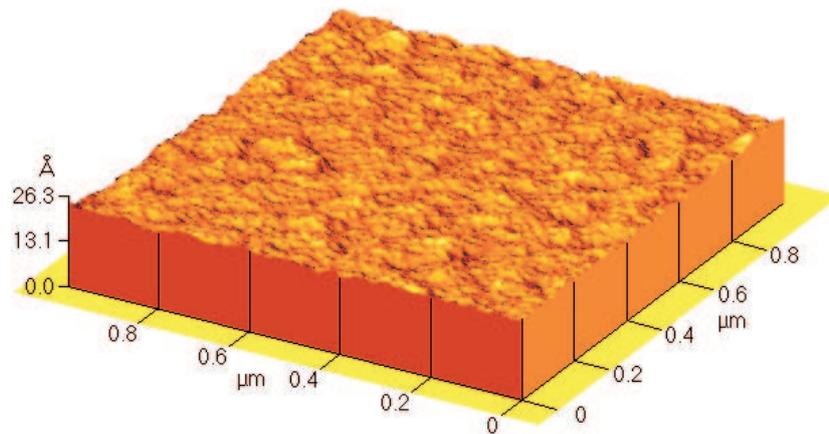


Abbildung 4.10: Dreidimensional dargestellte Oberflächen-Topographie einer 30 nm dicken NiO-Schicht auf Glas. Bildfläche $1 \mu\text{m}^2$.

Untersucht wurden fünf verschiedene 30 nm dicke NiO-Schichten auf Glassubstraten. Die Schichten wurden bei O_2 -Flüssen zwischen 0,4 und 2,5 sccm hergestellt. Vor der Messung wurden die Proben gereinigt, um möglichst saubere Oberflächen zu erhalten. Für jede Probe wurden mehrere Bilder aufgenommen, wobei der Messbereich zwischen $0,5^2 \mu\text{m}^2$ und $5^2 \mu\text{m}^2$ lag. Jedes aufgenommene Bild enthielt 512^2 oder 256^2 Messpunkte. Die Zeilenfrequenz der Abtastung betrug 1 Hz, d. h. 1 Zeile/Sekunde. Ein typisches Abbild der Oberflächen-Topographie einer 30 nm dicken NiO-Schicht zeigt Abb. 4.10.

Ein oft verwendetes Maß für die Qualität der Oberflächenbeschaffenheit ist der Wert der *rms-Rauigkeit* (engl. *root mean square roughness*). Die aus den Bildern gewonnenen Werte der rms-Rauigkeit (ρ_{rms}) wurden von einer Software zur Auswertung der Oberflächen-Topographie gemäß

$$\rho_{\text{rms}} = \frac{1}{N} \sqrt{\sum_{i=1}^N (z_i - \bar{z})^2} \quad (4.8)$$

berechnet. Dabei ist N die Anzahl der Messwerte, z_i der i -te und \bar{z} der mittlere Höhen-Messwert.

Die Messungen an den NiO-Schichten ergaben Oberflächen-Rauigkeiten mit $\rho_{\text{rms}} < 0,5$ nm. Dabei konnte keine Abhängigkeit vom O_2 -Fluss festgestellt werden. Die Abbildungen zeigten sehr glatte Oberflächen mit geringen Rauigkeiten. Diese Ergebnisse stimmen qualitativ mit den TEM-Querschnittsaufnahmen (Abschnitt 4.1.2) überein. Die Variation des Sauerstoffanteils im Sputtergas während der NiO-Abscheidung hat (in dem untersuchten Bereich) demnach keinen messbaren Einfluss auf die Rauigkeit der NiO-Schichten. Weiterhin zeigen die Messungen, dass das reaktiv gesputterte NiO sehr glatte Oberflächen besitzt und somit eine gute Unterlage für die nachfolgenden Schichten bildet.

Kapitel 5

Magnetische Messmethoden

Ziel der magnetischen Messungen, der Magnetometrie, ist es, die Magnetisierung (M) bzw. das magnetische Moment (m) einer Probe in Abhängigkeit vom äußeren Magnetfeld (H) zu messen.

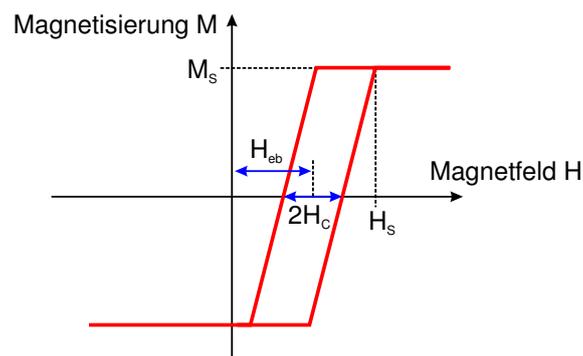


Abbildung 5.1: Idealisierte Magnetisierungskurve eines Schichtsystems aus Antiferromagnet und Ferromagnet. Der Exchange-Bias Effekt führt zu einer Verschiebung der Hysteresekurve um den Betrag H_{eb} .

Im Allgemeinen können den Magnetisierungskurven magnetische Materialeigenschaften wie die Koerzitivfeldstärke (H_c), die Sättigungsmagnetisierung (M_s), die Sättigungsfeldstärke (H_s) und die remanente Magnetisierung (M_R) entnommen werden. Abbildung 5.1 zeigt einen idealisierten Verlauf einer Magnetisierungskurve einer ferromagnetischen Schicht, die durch die Austauschkopplung zur angrenzenden antiferromagnetischen Schicht entlang der Feldachse um den Betrag der Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) verschoben ist. Die Wirkung dieser Kopplung entspricht einer unidirektionalen Anisotropie in der ferromagnetischen Schicht.

Die Einheiten der magnetischen Größen werden in dieser Arbeit entsprechend dem *Internationalen Einheitensystem (SI)* angegeben. Die SI-Einheit der magnetischen Feldstärke (H) und der Magnetisierung (M) ist A/m. Die Einheit für die

magnetische Flussdichte ($B = \mu_0 H$) ist Tesla (T). Im Anhang befindet sich eine Übersicht der magnetischen Größen und Einheiten mit ihrem Umrechnungsfaktoren.

Zur Messung magnetischer Eigenschaften existiert eine Vielzahl an makroskopischen und mikroskopischen Methoden, die hier nicht alle aufgeführt werden können. Einen Überblick über klassische und moderne Messmethoden bieten z. B. [37, 218, 219].

Die fortschreitende Miniaturisierung, die auch bei magnetischen Anwendungen wie der Datenspeicherung stattfindet, erfordert die stetige Entwicklung und Optimierung magnetischer Mess- und Abbildungsverfahren. Methoden zur magnetischen Charakterisierung auf mikroskopischer Skala sind z. B. die KERR-Mikroskopie [218, 220–222], die Magneto-Kraftmikroskopie (engl. *Magnetic Force Microscopy, MFM*) [223], die LORENTZ-Transmissions-Elektronenmikroskopie [195, 197], die Photoemissionsmikroskopie (PEEM) [224] sowie die Ausnutzung des zirkularen magnetischen Dichroismus [225] bei der Transmission von Röntgenstrahlung durch Materie.

Die Ermittlung makroskopischer magnetischer Eigenschaften erfolgt durch Magnetometer. Auch hier existieren einige unterschiedliche Methoden und Varianten, die in vielen Lehrbüchern beschrieben werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein KERR-Magnetometer (Abschnitt 5.1) und ein Vibrationsmagnetometer (Abschnitt 5.2) zur magnetischen Charakterisierung der Schichtsysteme benutzt. Die magneto-resistiven Eigenschaften wurden durch magnetfeldabhängige Widerstandsmessungen nach der Vier-Punkt-Methode bestimmt (Abschnitt 5.3).

5.1 Kerr-Magnetometrie

5.1.1 Magnetooptischer Kerr-Effekt

Bei der Reflexion von linear polarisiertem Licht an der polierten Oberfläche eines magnetisierten Körpers kommt es zu einer Drehung der Polarisationsrichtung und es entsteht elliptisch polarisiertes Licht. Dieser Effekt wurde 1877 von JOHN KERR entdeckt [226] und nach ihm benannt: *magnetooptischer Kerr-Effekt*. Hierfür hat sich das Akronym *MOKE* eingebürgert.

Wird die Drehung der Polarisation bei der Transmission von linear polarisiertem Licht durch magnetisiertes Material beobachtet, so wird dies durch den FARADAY-Effekt beschrieben. Beide magnetooptischen Effekte beruhen auf einer Magnetisierungsabhängigkeit des Dielektrizitätstensors im Bereich der optischen Wellenlängen. Vereinfacht kann die dielektrische Verschiebung (\vec{D}) in der Form

$$\vec{D} = \epsilon \left(\vec{E} + i\tilde{Q} \vec{m} \times \vec{E} \right) \quad (5.1)$$

geschrieben werden [220]. Dabei ist ϵ die Dielektrizitätskonstante, \vec{E} der Vektor der

elektrischen Feldstärke, \tilde{Q} ein komplexer frequenzabhängiger Materialparameter¹ und $\vec{m} = \vec{M}/M_S$ der Magnetisierungsvektor.

Aus Gl. (5.1) wird bereits ersichtlich, dass keine Drehung der Polarisation auftritt, wenn die Polarisation des einfallenden Lichts in Richtung des Magnetisierungsvektors ($\vec{E} \parallel \vec{m}$). Je nach Orientierung zwischen Polarisation und \vec{m} unterscheidet man zwischen polarem, longitudinalem und transversalem KERR-Effekt.

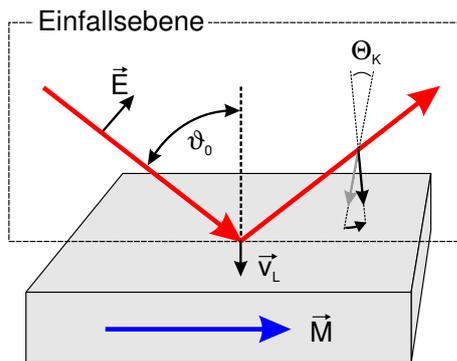


Abbildung 5.2: Geometrie beim longitudinalen magnetooptischen KERR-Effekt mit s-polarisiertem Licht. Der elektrische Feldvektor (\vec{E}) oszilliert senkrecht zur Einfallsebene.

Der **longitudinale** KERR-Effekt, bei dem der Magnetisierungsvektor parallel zur Einfallsebene zeigt, erfordert einen schrägen Einfallswinkel ($\vartheta_0 > 0$) und erzeugt eine KERR-Drehung für s- und p-polarisiertes Licht. Der Effekt wird in Abhängigkeit von der Wellenlänge für einen Einfallswinkel $30^\circ < \vartheta_0 < 60^\circ$ maximal [227]. Die Geometrie beim longitudinalen KERR-Effekt für s-polarisiertes Licht, auf dem das Messprinzip des verwendeten KERR-Magnetometers (Abschnitt 5.1.2) beruht, ist in Abb. 5.2 dargestellt.

Eine Veranschaulichung der elementaren Wechselwirkung beim magnetooptischen KERR-Effekt kann mit Hilfe der LORENTZ-Kraft erfolgen. Wie in Abb. 5.2 schematisch dargestellt wird angenommen, dass die Magnetisierung (\vec{M}) parallel zur Einfallsebene des Lichts liegt. Im Einfluss des elektrischen Feldes des einfallenden Lichts werden die Elektronen zu Oszillationen parallel zur Polarisationsrichtung angeregt. Das „regulär“ reflektierte Licht wird in der selben Richtung wie das einfallende Licht polarisiert sein. Ist das Material magnetisiert, so wirkt auf die bewegten Elektronen eine LORENTZ-Kraft, die zu einer zusätzlichen Bewegung der Elektronen senkrecht zur Oberfläche führt. Diese sekundäre Bewegung ist proportional zu $\vec{v}_L = -\vec{m} \times \vec{E}$ und erzeugt nach dem HUYGENSSchen Prinzip einen zusätzlichen Beitrag zum reflektierten Licht, die sogenannte KERR-Amplitude. Nach dem Superpositionsprinzip erhält der elektrische Feldvektor (\vec{E}) des reflektierten Lichts eine zusätzliche Komponente senkrecht zu seiner ursprünglichen Schwingungsrichtung,

Beim **polaren** KERR-Effekt zeigt der Magnetisierungsvektor senkrecht zur Oberfläche und eine KERR-Drehung tritt bei s- und p-polarisiertem Licht (selbst für senkrechte Inzidenz) ein. Bei p-polarisiertem Licht schwingt der elektrische Feldvektor parallel zur Einfallsebene und bei s-polarisiertem Licht senkrecht zu dieser.

Beim **transversalen** KERR-Effekt weist der Magnetisierungsvektor senkrecht zur Einfallsebene. Bei der Reflexion von p-polarisiertem Licht kommt es bei einem schrägen Einfallswinkel ($\vartheta_0 > 0$) zu einer Änderung der Intensität des reflektierten Lichts, die als KERR-Signal genutzt werden kann. Aufgrund seiner geringen Signalstärke spielt der transversale KERR-Effekt nur eine untergeordnete Rolle.

¹Der VOIGT-Parameter (\tilde{Q}) ist ein Maß für die Drehung der Polarisation des Lichts. Der Realteil von \tilde{Q} ist im Bereich des sichtbaren Lichts für die meisten ferromagnetischen Metalle ungefähr 0,03 und proportional zu M_S [218].

was zu einer magnetisierungsabhängigen Drehung der Polarisationsrichtung des reflektierten Lichts (KERR-Drehung) um den Winkel Θ_K führt. Es entsteht elliptisch polarisiertes Licht. Die Proportionalität zwischen KERR-Drehung (Θ_K) und Magnetisierung (\vec{M}) macht man sich bei der KERR-Magnetometrie zu nutze.

Das Licht dringt bei der Reflexion an einer Festkörperoberfläche zu einem gewissen Teil in das Material ein. Deshalb stammen die Informationen, die über den KERR-Effekt erhalten werden, nicht nur von der Oberfläche, sondern auch aus tiefer liegenden Bereichen des Materials. Wegen der Absorption nimmt der Anteil der tiefer liegenden Schichten exponentiell mit der Eindringtiefe ab. Außerdem tritt bei der Reflexion in unterschiedlichen Tiefen eine Phasenverschiebung auf, was zu einer zusätzlichen Abschwächung des reflektierten Lichts führt. Die KERR-Amplitude kann als komplexe, exponentiell abfallende Funktion der Tiefe (z) beschrieben werden [228]:

$$f(z) = e^{-i4\pi\tilde{n}z/\lambda}. \quad (5.2)$$

Dabei ist λ die Wellenlänge des einfallenden Lichts und $\tilde{n} = n(1 - i\kappa)$ der komplexe Brechungsindex² des Mediums. Der Realteil von Gl. (5.2) hat eine Nullstelle bei

$$z_0 = \lambda/(8n). \quad (5.3)$$

Bis zur Tiefe z_0 tragen alle Anteile (entsprechend ihrer Phase) zum Gesamtsignal bei. Deshalb kann z_0 als magnetooptische Informationstiefe bezeichnet werden. Zum Beispiel wird für Fe ein vom Einfallswinkel fast unabhängiger Brechungsindex von $n \approx 3$ bei der Wellenlänge $\lambda = 640$ nm gemessen [196]. Damit ergibt sich für Fe bei dieser Wellenlänge eine Informationstiefe von $z_0 \approx 27$ nm.

Der magnetooptische KERR-Effekt ist also mit der Reflexion des Lichts an der Oberfläche eines magnetisierten Körpers verbunden. Die eigentliche Information (das KERR-Signal) stammt jedoch aus einer Tiefe, die etwa der (halben) Eindringtiefe des Lichts entspricht [228].

Für das Verständnis des Messprinzips eines KERR-Magnetometers reicht die hier beschriebene einfache Betrachtungsweise aus. Eine mikroskopische Beschreibung führt den magnetooptischen KERR-Effekt auf optische induzierte Übergänge zwischen energetischen Bändern (Interband-Übergänge) im Festkörper zurück, die proportional zur Spinpolarisation der Zustände durch das eingestrahlte Licht angeregt werden. Die Antwort des Festkörpers auf das externe elektromagnetische Feld wird dann mit Hilfe des Leitfähigkeitstensors ($\hat{\sigma}$) beschrieben. Für eine ausführliche theoretische Behandlung des KERR-Effekts sei jedoch auf weiterführende Literatur [218, 229–233] verwiesen.

5.1.2 Kerr-Magnetometer

Alle Schichtsysteme, die im Rahmen dieser Arbeit magnetisch untersucht wurden, weisen eine Magnetisierung auf, die in der Schichtebene liegt (in-plane Magnetisie-

²Der reelle Anteil (n) bestimmt die Brechungsverhältnisse, während der imaginäre Teil ($k = n\kappa$) für die Absorption verantwortlich ist.

nung). Zur Messung der Magnetisierungskurven wurde deshalb u. a. ein Magnetometer benutzt, dessen Messprinzip auf dem longitudinalen magnetooptischen KERR-Effekt beruht. Eine detaillierte Beschreibung des Aufbaus und der Funktionsweise des (in-plane) KERR-Magnetometers befindet sich in der Arbeit von BEHRENDT [234]. Hier soll nur das Messprinzip des Magnetometers kurz erläutert werden.

Als Lichtquelle dient ein He-Ne-Laser der Wellenlänge 633 nm und der Ausgangsleistung 2,4 mW. Das Licht des Lasers wird mit einem GLAN-THOMPSON-Prisma senkrecht zur Einfallsebene linear polarisiert (s-polarisiert) und fällt unter einem Winkel $\vartheta_0 = 35^\circ$ auf die Probe. Das von der Probe reflektierte Licht wird von einem WOLLASTON-Prisma in zwei senkrecht zueinander polarisierte Strahlen aufgeteilt. Das Intensitätsverhältnis der beiden auslaufenden Teilstrahlen hängt dabei vom Winkel zwischen der Polarisationsrichtung des von der Probe reflektierten Lichts und dem Prisma ab. Das Prisma wird so justiert, dass beide Teilstrahlen bei fehlender Magnetisierung der Probe gleiche Intensitäten aufweisen. Wird eine magnetisierte Probe in den Strahlengang gebracht, so erfolgt eine KERR-Drehung und -Elliptisierung des reflektierten Strahls und die Intensität des einen Teilstrahls nimmt zu, während die Intensität des anderen abnimmt. Die beiden Teilstrahlen werden mit einer optischen Linse auf je eine Fotodiode fokussiert, deren Ausgangssignale von einem Differenzverstärker verstärkt werden. Die gemessene Intensität

$$I(\Theta_K) = I_R \sin(2\Theta_K) \quad (5.4)$$

ist für kleine KERR-Winkel (Θ_K) proportional zu Θ_K [221].

Das äußere Magnetfeld zum Ummagnetisieren der Proben kann durch ein HELMHOLTZ-Spulenpaar oder eine Kombination aus vier Spulen mit einem Eisen-Joch erzeugt werden. Die HELMHOLTZ-Spulen liefern ein sehr homogenes Magnetfeld und eignen sich für Messungen bei kleinen Magnetfeldstärken bis ca. ± 4 kA/m. Werden größere Magnetfeldstärken bis zu ± 160 kA/m benötigt, so müssen die Spulen mit dem Eisenkern verwendet werden. Aufgrund der definierten Größe des Luftspaltes im Joch ist man auf Probenabmessungen bis etwa $3 \cdot 3$ cm² beschränkt. Bei den typischen Probenabmessungen ($\varnothing = 12$ mm) hängt die Wahl der Feldspulen also in erster Linie vom erforderlichen maximalen Magnetfeld ab. Die Messungen an den NiO/NiFe Schichtsystemen wurden mit den Elektromagneten mit Eisenkern durchgeführt, weil die Sättigungsfeldstärken hier typischerweise größer als 25 kA/m sind.

Ein PC steuert ein bipolares Netzteil zur Erzeugung des Spulenstroms von maximal $\pm 4,7$ A und nimmt während einer Messung das Ausgangssignal des Differenzverstärkers in Abhängigkeit vom anliegenden Spulenstrom auf. Der Zusammenhang zwischen Spulenstrom und Magnetfeldstärke ist in einer Eichdatei hinterlegt.

Neben dem hier beschriebenen Aufbau eines KERR-Magnetometers mit einem WOLLASTON-Prisma und einem Differenzverstärker gibt es noch weitere Realisierungsmöglichkeiten. Ein Überblick über weitere magnetooptische Messmethoden befindet sich z. B. in der Arbeit von KNAPPMANN [221].

Ein entscheidender Vorteil der KERR-Magnetometrie liegt darin, dass die ge-

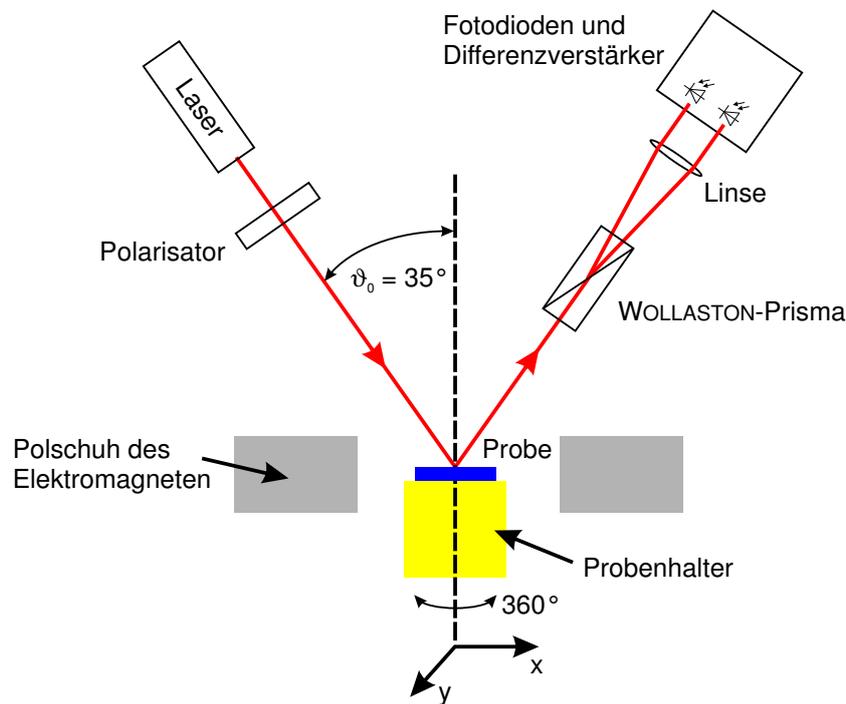


Abbildung 5.3: Anordnung des Magnetometers zur Untersuchung magnetischer Proben mit dem longitudinalen magnetooptischen KERR-Effekt. Der Probenhalter ist auf einem X/Y-Tisch befestigt.

messene Information nur aus dem Probenbereich stammt, der sich im Laserfokus befindet. Mit dem KERR-Magnetometer steht also ein Instrument zur Verfügung, mit dem lokale Magnetisierungskurven gemessen werden können, was speziell für den Nachweis der lokal begrenzten Manipulation der Austauschisotropie durch Ionenbeschuss oder Laserbestrahlung (Abschnitte 8.1 und 8.2) erforderlich ist. Auf der Probenoberfläche beträgt der Durchmesser des Laserspots ohne Fokussierung ca. 1,5 mm. Bei Verwendung einer zusätzlichen Sammellinse im einfallenden Lichtweg, kann der Durchmesser auf ca. 0,4–0,5 mm reduziert werden.

Der Einsatz der KERR-Mikroskopie [220–222] zur Beobachtung lokaler Magnetisierungen in austauschgekoppelten Schichtsystemen scheitert in diesem Fall an der geringen Dicke der ferromagnetischen Schichten, die bei den untersuchten Systemen typischerweise nur 5 nm beträgt. Bei Schichtdicken unterhalb der maximalen Informationstiefe (z_0) des KERR-Effekts (Gl. 5.3) hängt die KERR-Amplitude exponentiell von der Schichtdicke ab, weil entsprechend weniger Material zur KERR-Drehung beiträgt. Hinzu kommt, dass NiFe im Vergleich zu Fe eine relativ geringe KERR-Drehung erzeugt, was eine Abbildung der magnetischen Domänen durch das KERR-Mikroskop verhindert. Dickere ferromagnetische Schichten zeigen wiederum einen erheblich kleineren Exchange-Bias Effekt, da sich die Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) umgekehrt proportional zur Schichtdicke verhält ($H_{\text{eb}} \propto 1/d_{\text{FM}}$).

5.2 Vibrationsmagnetometrie

Ein Teil der gemessenen und hier abgebildeten Magnetisierungskurven, insbesondere die temperaturabhängigen Messungen, wurden mit einem Vibrationsmagnetometer (engl. *Vibrating Sample Magnetometer*, VSM) aufgenommen. Das Prinzip des VSM beruht auf der Messung der Induktionsspannung, die durch den bewegten Probedipol in einer Aufnahmespule erzeugt wird. Der Aufbau des VSM ist in Abb. 5.4 schematisch dargestellt.

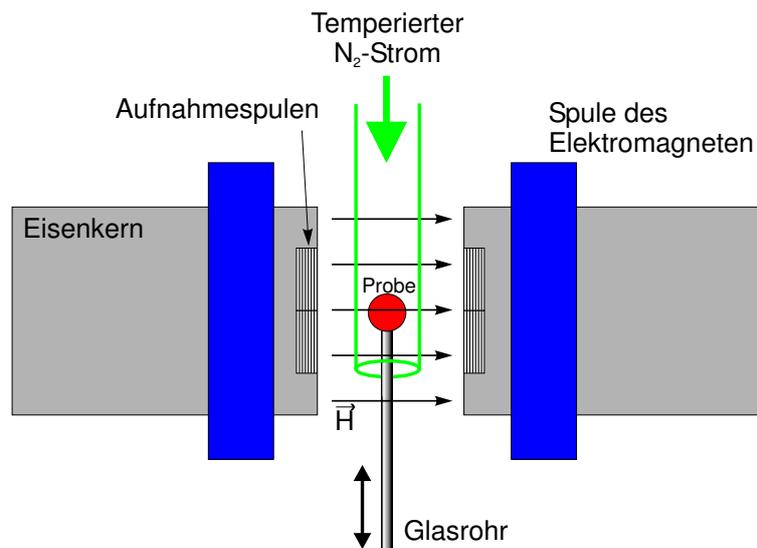


Abbildung 5.4: Aufbau des Vibrationsmagnetometers (VSM). Sicht von oben mit dem Magnetfeld parallel zur Schichtebene.

Die zu untersuchende Probe wird im (näherungsweise) homogenen Magnetfeld (\vec{H}) zwischen den insgesamt vier Aufnahmespulen mit jeweils n Windungen oszillierend bewegt. Der Antrieb der Probe ist durch einen Lautsprecher realisiert, an dessen Membran ein Glasrohr befestigt ist. Im Inneren des Glasrohres wird ein Unterdruck erzeugt, so dass die Probe durch den äußeren Luftdruck am Glasrohr festgehalten wird. Das Glasrohr ist drehbar befestigt, so dass die Orientierung der Probe im Magnetfeld geändert werden kann. Mit den Elektromagneten lassen sich bei einem maximalen Spulenstrom von 30 A magnetische Flussdichten bis 1 T erzeugen, was Magnetfeldstärken von ca. 800 kA/m entspricht.

Besitzt die Probe ein magnetisches Moment parallel zur Spulenachse (\vec{m}_{\parallel}), so bewirkt das oszillierende Moment der Probe einen sich zeitlich ändernden magnetischen Fluss (Φ) durch die Aufnahmespulen. Die einzelnen Spulen sind so verschaltet, dass an jedem Spulenpaar nach dem FARADAYSchen Induktionsgesetz eine Induktionsspannung

$$U_{\text{ind}} = -2n \frac{\partial \Phi}{\partial t} \quad (5.5)$$

gemessen wird. Diese Spannung ist dem magnetischen Moment der Probe parallel

zur Spulenachse (m_{\parallel}) proportional. Ist das Volumen der Probe (V) bekannt, so wird die Magnetisierungskomponente bestimmt durch

$$\vec{M}_{\parallel} = \frac{1}{V} \vec{m}_{\parallel}. \quad (5.6)$$

Die Induktionsspannung an den Spulen wird von einem Lock-in-Verstärker gemessen, dessen Referenzsignal die Antriebsspannung der Probenbewegung ist. Der Lock-in-Verstärker detektiert nur die Komponente der Spannung, die mit der Probenbewegung in Frequenz und Phase übereinstimmt. Störungen durch Signale mit anderen Frequenzen werden dadurch minimiert. Das Ausgangssignal des Lock-in-Verstärkers wird von einem PC in Abhängigkeit vom angelegten Magnetfeld aufgenommen. Wegen der Proportionalität zwischen Induktionsspannung (U_{ind}) und magnetischem Moment (m_{\parallel}) kann so die Magnetisierungskurve $M_{\parallel}(H)$ gemessen werden.

Der Vorteil des VSM gegenüber dem KERR-Magnetometer besteht in der Möglichkeit temperaturabhängige Messungen durchzuführen. Die Probe befindet sich dabei in einem Glasrohr, durch das ein gleichmäßiger Strom gasförmigen Stickstoffs geleitet wird (Abb. 5.4). Das Gas wird durch thermische Verdampfung von flüssigem Stickstoff erzeugt. Die Temperatur des Stickstoffstroms wird durch einen Regelkreis bestehend aus Heizelement, Temperaturregler und -sensor konstant gehalten. Diese Technik ermöglicht magnetische Messungen bei Temperaturen zwischen 130 K und 570 K. Für Messungen bei noch höheren Temperaturen sollte nach Möglichkeit ein UHV-VSM³ verwendet werden, um eine Oxidation der Schichtsysteme durch restlichen Sauerstoff zu vermeiden [66]. Dies betrifft insbesondere Spin-Valve Systeme mit antiferromagnetischem FeMn, da das FeMn im Gegensatz zum NiO sehr schnell oxidiert [18].

Im Gegensatz zur KERR-Magnetometrie, bei der die Information nur aus dem beleuchteten Probenbereich stammt, handelt sich bei den VSM-Messungen um ein integrales Messverfahren, denn das magnetische Moment der gesamten Probe trägt zum Signal bei.

Das kleinste messbare magnetische Moment liegt bei einem typischen VSM-Aufbau in der Größenordnung $m \approx 10^{-8} \text{ Am}^2$ und ist damit knapp ausreichend für die Messung atomarer Schichten [235]. Eine Empfindlichkeit von bis zu 10^{-13} Am^2 kann durch ein ähnliches Messprinzip unter Einsatz eines supraleitenden Aufnehmers erreicht werden [236]. Die Induktionsspannung wird dabei von einem JOSEPHSON-Kontakt, einem so genannten SQUID (engl. *Superconducting Quantum Interference Device*), sehr genau gemessen. Wegen des supraleitenden Bauelements muss das gesamte System jedoch mit flüssigem Helium gekühlt werden.

5.3 Magnetowiderstandsmessung

Bei dem Magnetowiderstand handelt es sich um die Änderung des elektrischen Widerstands (R) eines elektrisch leitenden Materials in Abhängigkeit von der Magne-

³Bei einem Ultra-Hochvakuum VSM befindet sich die Probe in einem evakuierten Rezipienten.

tisierung bzw. einem äußeren Magnetfeld (s. Kapitel 1). Die Magnetowiderstandskurve dient zur Charakterisierung der magnetoresistiven Eigenschaften eines Materials oder eines Schichtsystems.

Grundsätzlich kann bei dünnen Schichtsystemen zwischen zwei Geometrien der Widerstandsmessung unterschieden werden. Entweder wird die Probe so kontaktiert, dass ein Prüfstrom parallel zur Schichtebene fließt (engl. *current in plane*, CIP) oder senkrecht zu dieser (engl. *current perpendicular to the plane*, CPP). Eine CPP-Messung erfordert die Kontaktierung der Probe von beiden Seiten und ist deshalb aufwendiger als eine CIP-Messung. Zwar sind die gemessenen Magnetowiderstandswerte in CPP-Geometrie meist höher als in CIP-Geometrie [48], aber aufgrund der einfacheren Kontaktierung wird in der Praxis meist die CIP-Geometrie bevorzugt. Alle in dieser Arbeit gezeigten Magnetowiderstandskurven wurden in CIP-Geometrie gemessen.

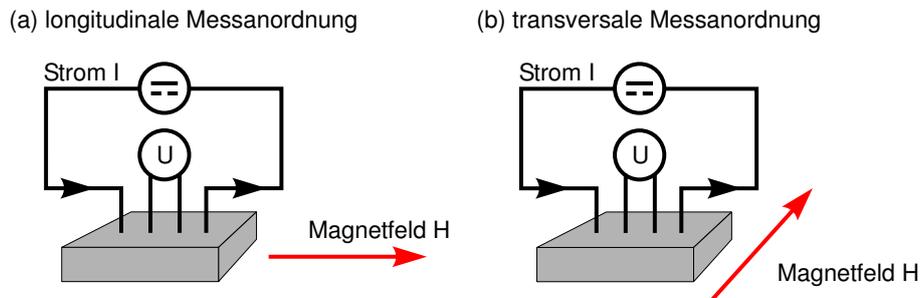


Abbildung 5.5: Messung des Magnetowiderstandes in (a) longitudinaler und (b) transversaler CIP-Geometrie.

Weiterhin ist zu unterscheiden, ob der Prüfstrom parallel oder senkrecht zum äußeren Magnetfeld fließt. Fließt der Strom parallel zu den Magnetfeldlinien, so spricht man von einer longitudinalen Messanordnung (Abb. 5.5, a) und im anderen Fall von einer transversalen Anordnung (Abb. 5.5, b). Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Magnetowiderstandsmessungen erfolgten alle in transversaler Anordnung, wobei die leichten Achsen der magnetischen Proben immer parallel zum Magnetfeld ausgerichtet waren.

Die Messung des elektrischen Widerstands kann mit der so genannten *Vier-Punkt-Methode* erfolgen. Dabei wird die Probe mit vier linear angebrachten Messspitzen kontaktiert. Über die beiden äußeren Kontakte wird ein Prüfstrom (I) durch die Probe geleitet und der Spannungsabfall (U) über die beiden inneren Kontakte gemessen (Abb. 5.5). Bei konstantem Abstand zwischen den Messspitzen (s) ist der spezifische Widerstand einer halb-unendlichen (sehr dicken) Probe [237]:

$$\rho = 2\pi s \frac{U}{I}. \quad (5.7)$$

Handelt es sich um eine sehr dünne Schicht der Dicke d auf einem isolierenden

Substrat, dann ist der spezifische Widerstand [238]:

$$\rho = \frac{\pi d U}{\ln 2 I}. \quad (5.8)$$

Der Schichtwiderstand ist deshalb

$$R = \frac{\rho}{d} = 4,532 \frac{U}{I}. \quad (5.9)$$

Aufgrund der besonderen Geometrie ist also bei der Messung des absoluten Schichtwiderstands ein Korrekturfaktor zu berücksichtigen. Bei den Magnetowiderstandsmessungen werden meist nur relative Änderungen ($\Delta R/R$) angegeben, weshalb der Korrekturfaktor dabei keine Rolle spielt.

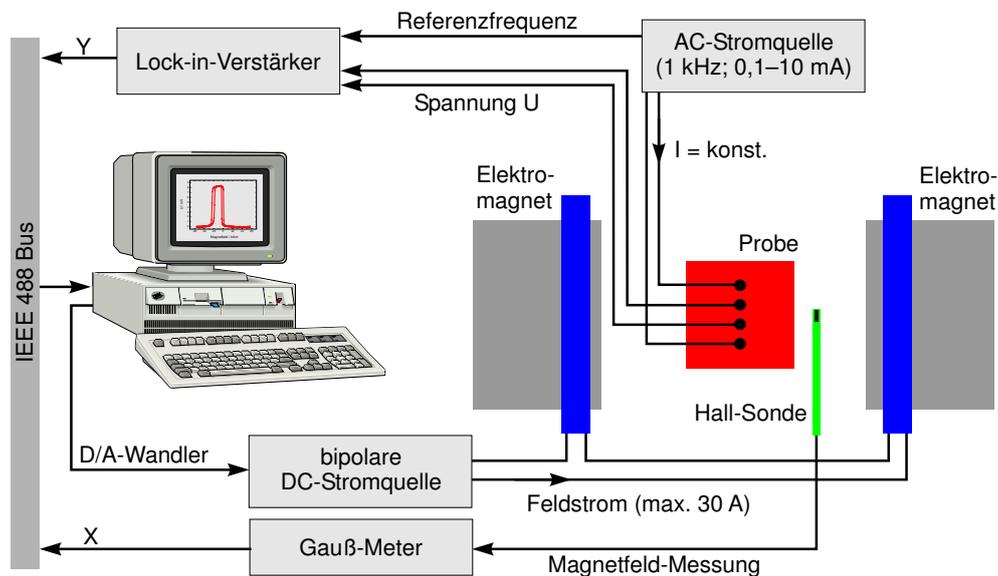


Abbildung 5.6: Experimenteller Aufbau für die GMR-Messungen. Die Probe ist eigentlich klein im Vergleich zu den Elektromagneten. Deshalb kann das Magnetfeld, welches parallel zur Schichtebene gerichtet ist, als homogen betrachtet werden.

Eine Magnetowiderstandskurve wird aufgenommen, indem der Widerstand einer Probe in Abhängigkeit von einem äußeren Magnetfeld gemessen wird. Der experimentelle Aufbau ist in Abb. 5.6 schematisch dargestellt. Für die Widerstandsmessungen wurden die Proben mit vier vergoldeten Stiften kontaktiert. Der Abstand zwischen zwei benachbarten Kontakten betrug 1 mm. Durch die äußeren Kontakte wurde ein konstanter Strom ($I = 0,3 \text{ mA}$) geleitet und die Spannung (U) an den beiden inneren Kontakten gemessen. Bei den durchgeführten Messungen wurde mit konstantem Wechselstrom der Frequenz $f = 1 \text{ kHz}$ gearbeitet, was eine präzise und

weitgehend störungsfreie Spannungsmessung mittels Lock-in-Technik ermöglichte. Die Frequenz f war gleichzeitig die Referenzfrequenz für den Lock-in-Verstärker.

Ein PC steuert über einen Digital/Analog-Wandler das bipolare Netzteil, welches den Gleichstrom (max. 30 A) zur Erzeugung des Magnetfeldes liefert. Die Messung des Magnetfeldes erfolgt über ein GAUSS-Meter mit angeschlossener HALL-Sonde. Die Signale von Lock-in-Verstärker und GAUSS-Meter werden über IEEE 488-Schnittstellen vom PC ausgelesen. Die gemessene Spannung (U) wird in Abhängigkeit von der Magnetfeldstärke (H) aufgezeichnet. Bei konstantem Strom (I) ist die Spannung proportional zum Widerstand: $R(H) \propto U(H)$.

Die Magnetowiderstandskurve eines GMR-Schichtsystems ergibt sich nach Normierung der Widerstandsänderung (ΔR) auf den Sättigungswiderstand (R_S)

$$\frac{\Delta R}{R_S}(H) = \frac{R(H) - R_S}{R_S}. \quad (5.10)$$

Der Sättigungswiderstand (R_S) wird gemessen, wenn das Schichtsystem magnetisch gesättigt ist und der Widerstand minimal ist (vgl. Kapitel 1). Ein Beispiel für eine gemessene Magnetowiderstandskurve von einem Spin-Valve System ist Abb. 1.5 (b). Der Magnetowiderstandswert ($\Delta R/R$) ist durch den maximalen Wert der Magnetowiderstandskurve definiert.

Kapitel 6

Verzögerte Ausbildung der Austauschanisotropie

6.1 Experimentelle Ergebnisse

Nach der Herstellung der Schichtsysteme bestehend aus NiO und einem angrenzenden Ferromagneten (NiFe, Fe oder Ni) wurde ein Anstieg der Exchange-Bias Feldstärke beobachtet. Alle Proben zeigten eine nachträgliche Erhöhung der Austauschverschiebung, wobei keinerlei Einwirkung von außen erforderlich war. Die Proben befanden sich bei Raumtemperatur an Luft. Die ursprüngliche Exchange-Bias Feldstärke (direkt nach der Herstellung) stieg im Mittel um 40 bis 70 % innerhalb weniger Tage an.

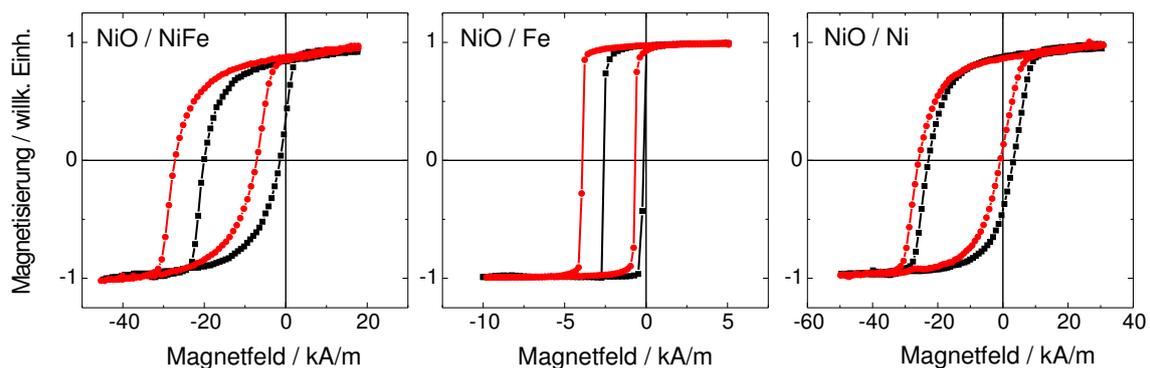


Abbildung 6.1: Magnetisierungskurven von drei Schichtsystemen: NiO(50 nm)/FM(5 nm)/Ta(2 nm) mit FM = NiFe (links), Fe (Mitte), Ni (rechts). Direkt nach der Herstellung gemessen (■) und ca. 7 Tage später (●).

In Abb. 6.1 sind die Magnetisierungskurven von drei verschiedenen Schichtsystemen dargestellt: NiO(50 nm)/FM(5 nm)/Ta(2 nm) mit FM = NiFe (links), Fe (Mitte), Ni (rechts).

te), Ni (rechts). Bei allen drei Materialkombinationen wird eine magnetische Nachwirkung beobachtet, die zur Erhöhung der Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) führt. In den Schichtsystemen NiO/NiFe und NiO/Fe erhöht sich H_{eb} um 60–70 % und im Schichtsystem NiO/Ni um etwa 40 %. Die Koerzitivfeldstärke (H_c) bleibt dabei nahezu unverändert. Es handelt sich also um einen Effekt, der nur die unidirektionale Anisotropie der Schichtsysteme betrifft.

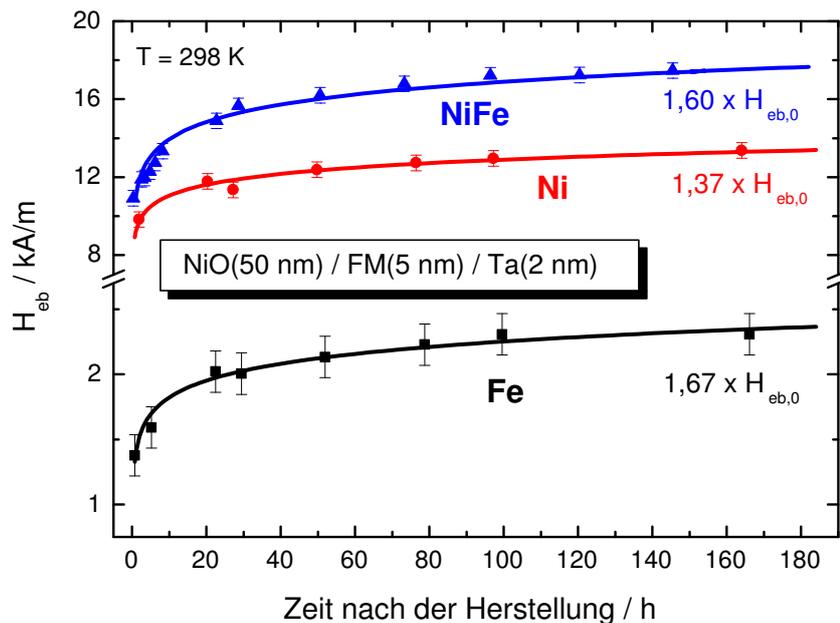


Abbildung 6.2: Zunahme der Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) bei Raumtemperatur in Schichtsystemen mit verschiedenen Ferromagneten: NiO(50 nm)/FM(5 nm)/Ta(2 nm) mit FM = NiFe, Ni oder Fe.

Die Änderung von H_{eb} ist in Abb. 6.2 als Funktion der Zeit (t) nach der Herstellung für die drei verschiedenen Materialkombinationen aus Abb. 6.1 aufgetragen. Die nachträgliche Erhöhung der Austauschverschiebung tritt unabhängig vom ferromagnetischen Material auf. Während der ersten 24 Stunden steigt H_{eb} am stärksten an. Nach etwa 120 Stunden befindet sich das System nahezu im Gleichgewicht und H_{eb} steigt nur noch geringfügig. Selbst nach sehr langer Zeit wurde immer noch eine leichte Zunahme von H_{eb} beobachtet. Maximale Exchange-Bias Feldstärke von bis zu 24 kA/m wurden nach einigen Monaten an NiO/NiFe Schichtsystemen gemessen. Die durchgezogenen Linien in Abb. 6.2 sind Anpassungskurven, wobei eine logarithmische Zeitabhängigkeit angenommen wurde (vgl. Abschnitt 6.2).

Der Einfluss eines äußeren Magnetfeldes auf die Änderung der Austauschverschiebung nach der Herstellung wurde ebenfalls untersucht. Dabei wurden identische NiO(50 nm)/NiFe(5 nm)/Ta(2 nm) Proben direkt nach der Herstellung in einem Magnetfeld ($H_{\text{ext}} = 80$ kA/m) bei Raumtemperatur gelagert. Die Richtung

von H_{ext} war entweder parallel zum Wachstumsfeld ($H_{\text{ext}} \parallel H_w$) oder antiparallel ($H_{\text{ext}} \nparallel H_w$). In verschiedenen Zeitabständen wurden die Magnetisierungskurven der Schichtsysteme gemessen.

Abbildung 6.3 zeigt die zeitliche Änderung von H_{eb} nach der Herstellung für drei NiO/NiFe/Ta Schichtsysteme. Der Kurvenverlauf ohne äußeres Magnetfeld (■) entspricht der in Abb. 6.2 dargestellten Situation.¹ Ein zusätzliches Magnetfeld (H_{ext}), das parallel zum Wachstumsfeld wirkt ($H_{\text{ext}} \parallel H_w$) und die Austauschanisotropie unterstützt, hat nur einen sehr geringen Einfluss auf die zeitliche Änderung von H_{eb} (●). Die Zunahme von H_{eb} wird durch das Feld geringfügig beschleunigt.

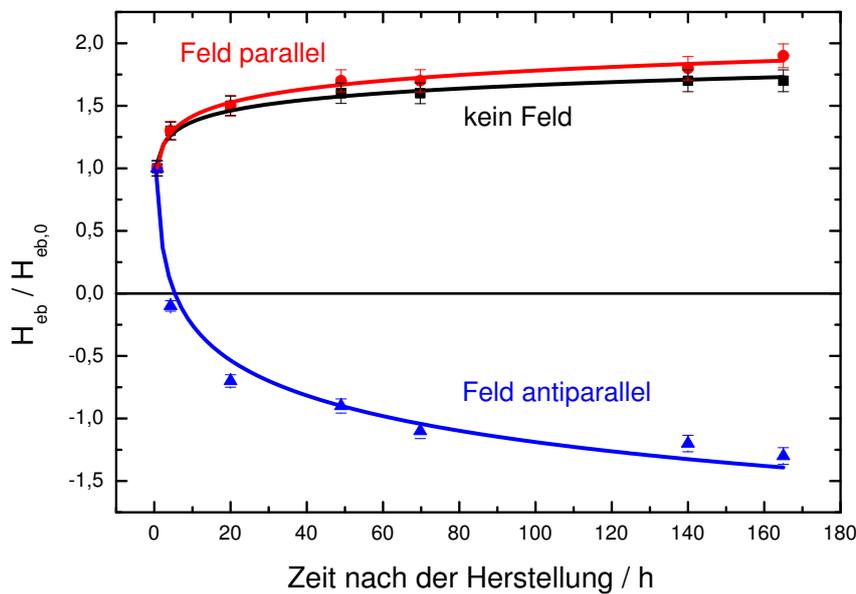


Abbildung 6.3: Einfluss eines zusätzlichen Magnetfeldes auf die Veränderung von H_{eb} nach der Herstellung in einem NiO/NiFe/Ta Schichtsystem. H_{eb} wurde auf den Ausgangswert $H_{\text{eb},0} = H_{\text{eb}}(t = 0)$ normiert. Die Linien sind Anpassungskurven gemäß $H_{\text{eb}} = h + K \ln t$ (Gl. 6.17).

Wird die NiFe-Schicht entgegen ihrer bevorzugten Magnetisierungsrichtung durch ein äußeres Magnetfeld gesättigt gehalten ($H_{\text{ext}} \parallel H_w$), so führt dies mit der Zeit zur Invertierung der unidirektionalen Anisotropie im Schichtsystem. Die Richtung der Austauschanisotropie folgt dem Magnetfeld (H_{ext}) und erreicht bereits nach etwa 48 Stunden eine betragsmäßig gleich große Austauschverschiebung mit entgegengesetztem Vorzeichen. Der Betrag der Exchange-Bias Feldstärke steigt auch in diesem Fall über den Wert direkt nach der Herstellung ($H_{\text{eb},0}$) an.

Die Austauschanisotropie wird offenbar durch das äußere Magnetfeld stark beeinflusst. Ist kein Magnetfeld vorhanden, so reicht allein das magnetische Moment

¹Der Einfluss des nur etwa 25 A/m starken Erdmagnetfeldes wird vernachlässigt.

der ferromagnetischen Schicht (FM), um die Austauschisotropie zu verstärken. Im Rahmen der theoretischen Modelle zum Exchange-Bias Effekt (Abschnitt 2.3.2) bedeutet dies eine Zunahme der Grenzflächenenergie. Im Antiferromagneten (AF) muss dazu eine nachträgliche Ausrichtung der antiferromagnetischen Bereiche stattfinden, so dass die effektive Kopplung zwischen AF und FM verstärkt wird.

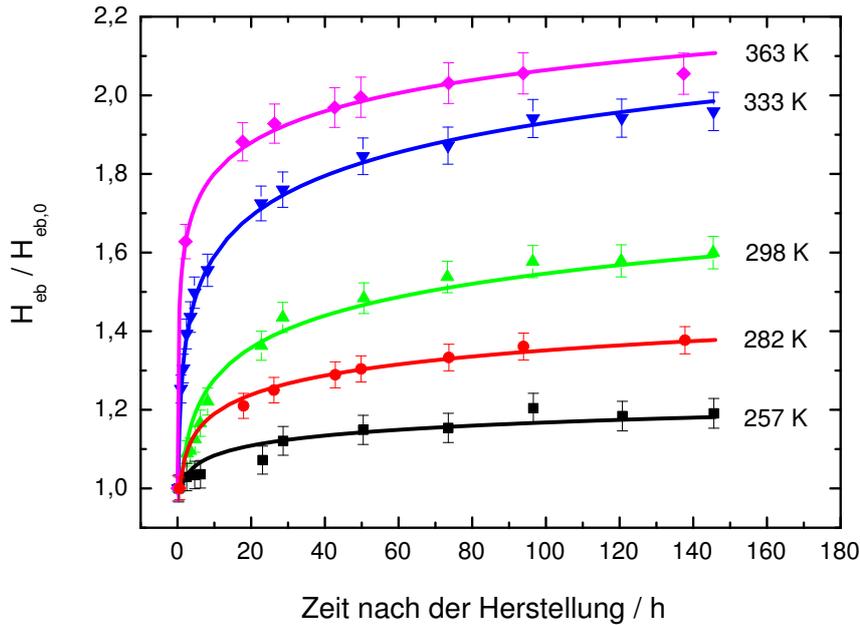


Abbildung 6.4: Zeitliche Veränderung der Austauschverschiebung (ohne äußeres Magnetfeld) nach der Herstellung der NiO/NiFe/Ta Schichtsysteme. Die angegebenen Temperaturen bezeichnen die jeweilige Auslagerungstemperatur (T_L). Die durchgezogenen Linien entsprechen wieder Anpassungskurven gemäß $H_{eb} = h + K \ln t$ (Gl. 6.17).

Aus Abb. 6.4 wird deutlich, dass es sich bei den Relaxationsprozessen um thermisch aktivierte Prozesse handelt. Es wurden identische NiO/NiFe/Ta Proben nach der Herstellung bei verschiedenen Temperaturen (T_L) gelagert. Die Magnetisierungskurven wurden mit dem KERR-Magnetometer gemessen und H_{eb} ermittelt. Vor den Messungen wurden die Proben auf Raumtemperatur gebracht, um vergleichbare Ergebnisse zu erhalten.

Die Experimente zeigen, dass die Erhöhung von H_{eb} stark temperaturabhängig ist. Bei hohen Temperaturen ($T_L = 363$ K) verdoppelt sich H_{eb} innerhalb der ersten 80 Stunden nach der Herstellung, während die Relaxationsprozesse knapp unterhalb der Raumtemperatur ($T_L = 257$ K) nahezu unterdrückt werden. Die Koerzitivfeldstärke (H_c) bleibt von den Relaxationsprozessen weitgehend unberührt. In einigen Fällen wurde eine geringfügige Abnahme von H_c beobachtet.

Abbildung 6.5 zeigt die Magnetisierungskurven einer NiO/NiFe/Ta Probe direkt

nach der Herstellung sowie nach 140 Stunden bei $T_L = 363$ K. Beide Messungen wurden bei Raumtemperatur durchgeführt. Die zunehmende Verschiebung der Hysteresekurven ist deutlich zu erkennen. H_{eb} steigt um mehr als 100 % und H_c nimmt etwas ab.

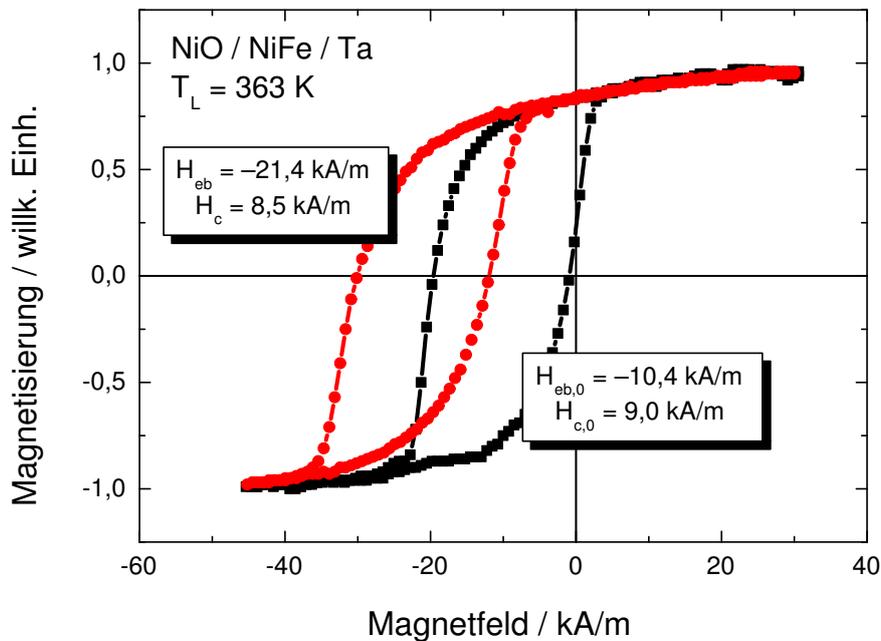


Abbildung 6.5: Bei einer Auslagerungstemperatur $T_L = 363$ K steigt $|H_{eb}|$ von 10,4 kA/m direkt nach der Herstellung (■) bis auf 21,4 kA/m nach etwa 140 Stunden (▲) an. H_c nimmt dabei etwas ab.

Die Experimente lassen darauf schließen, dass sich die Schichtsysteme nach der Herstellung noch nicht im energetischen Gleichgewicht befinden. Durch thermische Aktivierung werden Prozesse ausgelöst, die zur Verstärkung der Austauschisotropie führen. Thermisch aktivierte Relaxationsprozesse können innerhalb eines Modells zur Austauschisotropie in Systemen aus AF und FM, das von FULCOMER und CHARAP [153] entwickelt wurde, beschrieben werden. Dieses Modell soll mit einigen Erweiterungen im folgenden Abschnitt zur Beschreibung der beobachteten Phänomene herangezogen werden.

6.2 Thermisch aktivierte Relaxation

Das von FULCOMER und CHARAP entwickelte Modell [153] beschreibt die Kopplung zwischen einem ferromagnetischen Film und einer angrenzenden antiferromagnetischen Schicht, die aus N voneinander unabhängigen kleinen Bereichen besteht, durch ein makroskopisches Zwei-Niveau-Modell. Ähnliche Modelle wurden zuvor für

die Beschreibung magnetischer Nachwirkungen in Ferromagneten aufgestellt [95]. Dabei handelt es sich um eine verzögerte Änderung der Magnetisierung.

Die im Modell von FULCOMER und CHARAP angenommenen unabhängigen antiferromagnetischen Bereiche könnten z. B. die Körner einer polykristallinen Schicht sein, aus denen sich die Schicht zusammensetzt. Die ferromagnetische Schicht wird im Rahmen dieses Modells als eindomänig angenommen.

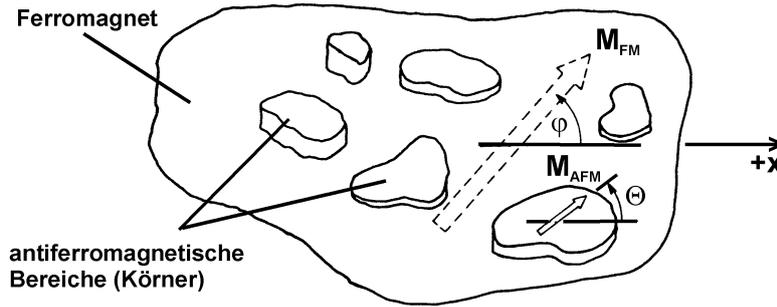


Abbildung 6.6: Modellsystem aus antiferromagnetischen Bereichen bzw. Körnern, die in Austauschkopplung zu einem ferromagnetischen Film stehen (nach [153]).

Es wird angenommen, dass beide Schichten uniaxiale Anisotropien besitzen und die leichten Achsen der Magnetisierungen parallel zur positiven x -Richtung seien. Die totale Energie der antiferromagnetischen Schicht kann durch

$$U = \sum_{i=1}^N S_i [K_u D_i \sin^2 \Theta_i - J_{eb} \cos(\Theta_i - \varphi)] \quad (6.1)$$

ausgedrückt werden. Dabei ist K_u die uniaxiale Anisotropiekonstante des Antiferromagneten und J_{eb} die Konstante der Austauschkopplung. S_i und D_i sind die Kontaktfläche bzw. die Dicke des i -ten antiferromagnetischen Korns. Im Folgenden wird angenommen, dass alle Körner die gleiche Dicke ($D_i = D$) haben, die der Schichtdicke entspricht. Der Winkel zwischen der positiven x -Richtung und dem magnetischen Moment an der Grenzfläche eines antiferromagnetischen Bereichs ist Θ_i . φ ist der Winkel zwischen der positiven x -Richtung und dem magnetischen Moment der ferromagnetischen Lage.

Zur Vereinfachung werden noch die Austauschenergie ($E_{eb}^i = J_{eb} S_i$) und die Anisotropieenergie ($E_a^i = K_u D S_i$) eingeführt. In den hier durchgeführten Experimenten weist das magnetische Moment des Ferromagneten entweder parallel ($\varphi = 0$) oder antiparallel ($\varphi = \pi$) zur positiven x -Richtung. Somit ist die totale Energie des i -ten antiferromagnetischen Korns:

$$U_i = E_a^i \sin^2 \Theta_i - E_{eb}^i \cos \Theta_i \quad (\text{für } \varphi = 0), \quad (6.2)$$

$$U_i = E_a^i \sin^2 \Theta_i + E_{eb}^i \cos \Theta_i \quad (\text{für } \varphi = \pi). \quad (6.3)$$

Im Folgenden wird nur noch der Fall $\varphi = 0$ betrachtet, wobei die ferromagnetische Schicht parallel zur positiven x -Richtung magnetisiert ist. Die Rechnung für $\varphi = \pi$ verläuft jedoch analog. Abbildung 6.7 zeigt die Winkelabhängigkeit der totalen Energie für die beiden Grenzfälle.

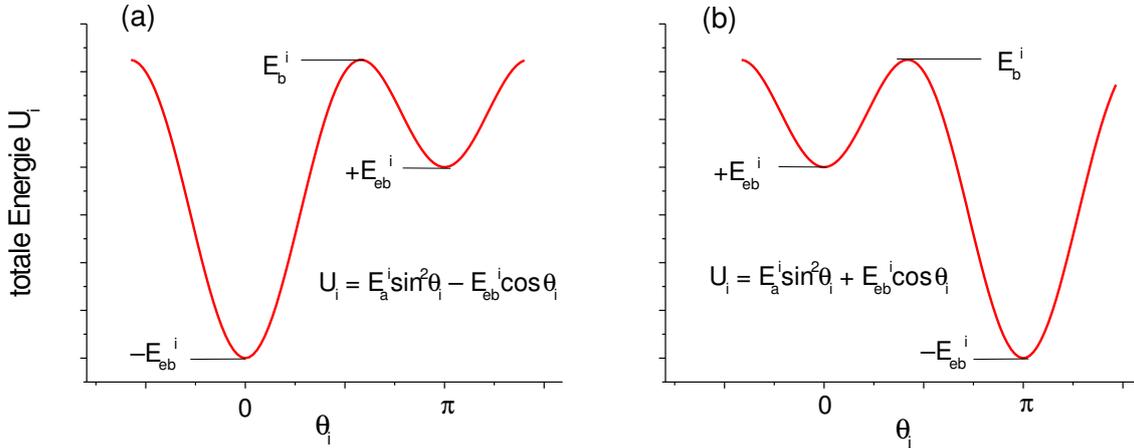


Abbildung 6.7: Winkelabhängigkeit der totalen Energie eines antiferromagnetischen Kornes mit uniaxialer Anisotropie, das an eine ferromagnetische Schicht koppelt. Die Magnetisierung des Ferromagneten weist parallel $\varphi = 0$ (a) bzw. antiparallel $\varphi = \pi$ (b) zur $+x$ -Richtung.

Zur Bestimmung der energetischen Minima wird die partielle Ableitung von Gl. (6.2) nach Θ_i gebildet:

$$\frac{\partial U_i}{\partial \Theta_i} = 2E_a^i \sin \Theta_i \left(\cos \Theta_i + \frac{E_{eb}^i}{2E_a^i} \right) \quad (6.4)$$

Solange die Bedingung $E_a^i > E_{eb}^i/2$ erfüllt ist, gibt es zwei lokale Minima der totalen Energie bei den Winkeln $\Theta_i = 0$ und $\Theta_i = \pi$. Die beiden Minima sind durch eine Energiebarriere

$$E_b^i = E_a^i \left[1 + \left(\frac{E_{eb}^i}{2E_a^i} \right)^2 \right] \quad (6.5)$$

bei $\Theta_i = \arccos(-E_{eb}^i/2E_a^i)$ getrennt.

Da es sich um voneinander unabhängige antiferromagnetische Bereiche handelt, wird es bei $t = 0$ einen Anfangszustand geben, in dem die Zustände gemäß der BOLTZMANNschen Verteilungsfunktion über die Winkel $\Theta = 0$ und $\Theta = \pi$ verteilt sind. Die Wahrscheinlichkeit, dass sich der i -te antiferromagnetische Bereich zu einem Zeitpunkt (t) im energetisch höheren Niveau ($\Theta_i = \pi$) befindet sei $p_i^+(t)$. Für das niedrigere Niveau ($\Theta_i = 0$) sei die Wahrscheinlichkeit $p_i^-(t)$. Die Werte $p_i^+(t)$ und $p_i^-(t)$ werden durch ihre Anfangswerte sowie die thermische Anregung aus einem Niveau in das andere bestimmt. Außerdem gilt: $p_i^+ + p_i^- = 1$.

Die zeitliche Änderung der Wahrscheinlichkeit im niedrigeren Energieniveau ist gegeben durch [153]

$$\frac{dp_i^-}{dt} = \nu_0 \left[p_i^+ \exp\left(-\frac{E_b^i - E_{eb}^i}{k_B T}\right) - p_i^- \exp\left(-\frac{E_b^i + E_{eb}^i}{k_B T}\right) \right]. \quad (6.6)$$

Die Frequenz ν_0 ist die charakteristische Rate für das Umklappen eines Spins und ist in der Größenordnung $\nu_0 \approx 10^9 \text{ s}^{-1}$ [153]. Man erhält $\nu_0 = \omega_L/2\pi$ aus der LARMOR-Frequenz ($\omega_L = \gamma_S \cdot B$) eines Spins im Magnetfeld der Flussdichte $B \approx 100 \text{ mT}$. Dabei ist γ_S das gyromagnetische Verhältnis des Spin-Moments.

Bei Gl. (6.6) handelt es sich um eine Differential-Gleichung erster Ordnung. Die allgemeine Lösung dafür lautet:

$$p_i^-(t) = p_L^\infty (1 - e^{-t/\tau_i}) + (1 - p_0^+) e^{-t/\tau_i} \quad (6.7)$$

mit

$$p_L^\infty = \left[1 + \exp\left(-\frac{2E_{eb}^i}{k_B T}\right) \right]^{-1}. \quad (6.8)$$

Dabei ist im Gleichgewichtszustand $p_L^\infty = p_i^-(t \rightarrow \infty)$ die Wahrscheinlichkeit, dass sich das i -te Korn im niedrigeren Energieniveau befindet. p_0^+ ist die Anfangswahrscheinlichkeit für den energetisch höher gelegenen Zustand.

Der Kehrwert der Zeitkonstante für diesen thermischen Relaxationsprozess ist

$$\frac{1}{\tau_i} = \nu_0 \left[\exp\left(-\frac{E_b^i - E_{eb}^i}{k_B T}\right) + \exp\left(-\frac{E_b^i + E_{eb}^i}{k_B T}\right) \right]. \quad (6.9)$$

Die Energien E_b^i und E_{eb}^i hängen von der Kontaktfläche zum Ferromagneten (S_i) ab. Deshalb ist $1/\tau_i$ in Gl. (6.9) eine Funktion von S_i . Das heißt, die Relaxationszeit (τ_i) hängt von der Kontaktfläche des i -ten antiferromagnetischen Bereichs (S_i) ab. In Abb. 6.8 (a) ist τ_i als Funktion von S_i für verschiedene Parameter K_u , D und J_{eb} , die die Bedingung $E_a^i > E_{eb}^i/2$ also $2K_u D/J_{eb} > 1$ erfüllen, aufgetragen. Dabei wurde τ_i auf $1/\nu_0$ normiert und S_i ist die Einheitsfläche. Es ist zu erkennen, dass τ_i monoton mit S_i ansteigt. Im Rahmen dieses Modells gilt also: Die Relaxationszeit (τ_i) steigt mit der Kontaktfläche des antiferromagnetischen Bereichs (S_i) an.

Abbildung 6.8 (b) enthält die totale Energie (U_i) des i -ten Kornes als Funktion des Winkels Θ_i für verschiedene Kontaktflächen ($S_i = 1, 2, 3, 4$) nach Gl. (6.2). Mit steigendem S_i nimmt die zu überwindende Energiebarriere $E_b^i - E_{eb}^i$ bzw. $E_b^i + E_{eb}^i$ zu, was zu größeren Relaxationszeiten (τ_i) führt.

Nimmt man an, dass sich am Ende der Relaxationsprozesse ($t \rightarrow \infty$) fast alle Zustände im unteren Energieniveau befinden und näherungsweise $p_L^\infty \approx 1$ ist, dann vereinfacht sich Gl. (6.7) zu

$$p_i^-(t) = 1 - p_0^+ \cdot e^{-t/\tau_i}. \quad (6.10)$$

Über die im System vorhandenen Kontaktflächen (S_i) wurde bisher noch keine Aussage gemacht. Die TEM-Aufnahmen (Abschnitt 4.1.2) haben gezeigt, dass es

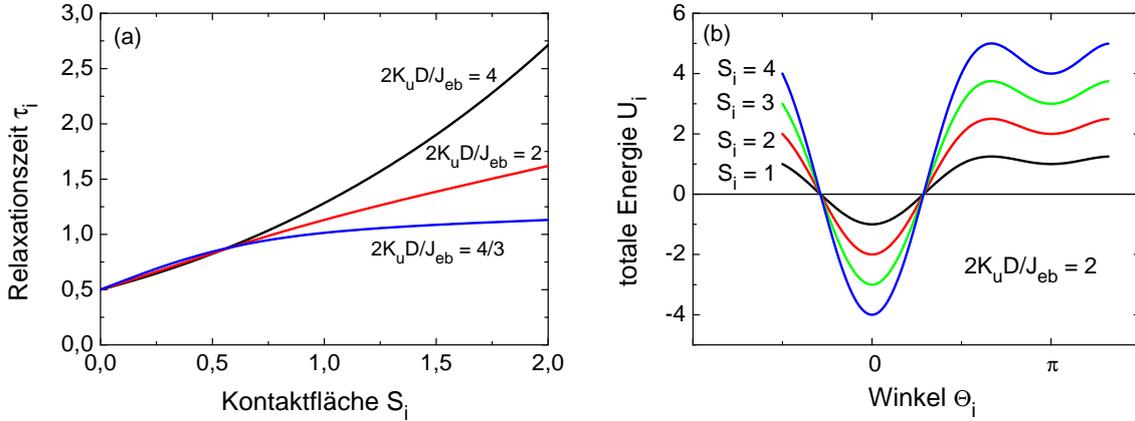


Abbildung 6.8: (a) Normierte Relaxationszeiten (τ_i) in Abhängigkeit von der Kontaktfläche (S_i) zwischen Antiferromagnet und Ferromagnet für verschiedene Modellparameter $2K_u D/J_{eb}$. (b) Totale Energie (U_i) als Funktion des Winkels Θ_i für verschiedene Kontaktflächen (S_i) nach Gl. (6.2) unter der Annahme $2K_u D/J_{eb} = 2$.

eine Verteilung der Korngrößen im Antiferromagneten gibt. Das heißt, die Kontaktflächen (S_i) sind im System nicht einheitlich. Da τ_i eine Funktion von S_i ist (Gl. 6.9), gibt es eine Verteilung der Zeitkonstanten $w(\tau)$, die durch die Verteilung $w(S)$ bestimmt wird.

Aus den experimentellen Daten wurde eine logarithmische Normalverteilung der Korndurchmesser (d) erhalten (Abschnitt 4.1.2). Werden die Kristallite im Antiferromagneten näherungsweise als Zylinder mit der Rotationsachse senkrecht zur Schichtebene betrachtet, dann ist $S_i = \pi(d_i/2)^2$ und die Größe $2\sqrt{S/\pi}$ ist logarithmisch-normal verteilt. Ein Beispiel für eine Verteilungsfunktion $w(S) = w(d)/(dS/dd)$ ist in Abb. 6.9 (a) dargestellt.

Die Verteilungsfunktion $w(\tau)$ berechnet sich aus $w(\tau) = w(S)/(d\tau/dS)$. Für das Beispiel aus Abb. 6.9 (a) ist die resultierende Verteilung $w(\tau)$ in Abb. 6.9 (b) dargestellt. Die Verteilung $w(\tau)$ setzt sich aus einer Lognormalverteilung und mehreren Exponentialfunktionen zusammen und ist für eine analytische Lösung des Problems nicht praktikabel.

Das Ziel ist, einen analytischen Zusammenhang zwischen H_{eb} und t zu erhalten. Zur Vereinfachung der Rechnung wird die Verteilung $w(\tau)$ durch eine Funktion $g(\tau)$ approximiert. Wie in Abb. 6.9 (b) dargestellt, ist für nicht zu kleine τ die Funktion $g(\tau) = c/\tau$ mit $c = \text{konst.}$ eine gute Näherung. Für $g(\tau)$ soll gelten

$$\int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}} g(\tau) d\tau = \int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}} \frac{c}{\tau} d\tau = 1. \quad (6.11)$$

Diese Idee stammt von FUJIKATA et al. [22] und besagt, dass bei der Verteilung $g(\tau)$ alle Relaxationszeiten zwischen einer minimalen und einer maximalen Relaxa-

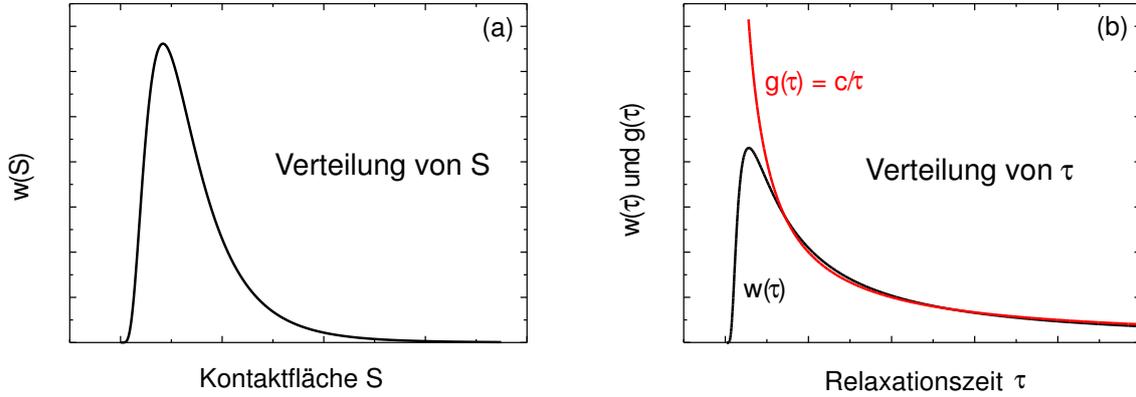


Abbildung 6.9: (a) Verlauf der Verteilungsfunktion für die Kontaktflächen $w(S)$, die sich aus der logarithmischen Normalverteilung (Gl. 4.7) der Korngrößen ergibt. (b) Die Verteilung der Relaxationszeiten $w(\tau)$ wird durch eine Funktion $g(\tau) = c/\tau$ approximiert.

tionszeit τ_{\min} bzw. τ_{\max} liegen. Diese Verteilung kann z. B. von einer Verteilung der Korngrößen zwischen einer minimalen und einer maximalen Korngröße stammen.

Nach Gl. (2.3) kann die Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) unter Berücksichtigung der Besetzungswahrscheinlichkeit für das niedrigere Energieniveau (p_i^-) durch

$$H_{\text{eb}}(t) = \sum_{i=1}^N \frac{J_{\text{eb}}}{\mu_0 M_S d_{\text{FM}}} p_i^-(t) = H_{\text{eb,max}} \sum_{i=1}^N p_i^-(t) \quad (6.12)$$

ausgedrückt werden. Dabei ist $H_{\text{eb,max}}$ die maximale Exchange-Bias Feldstärke, die bei $p_i^- = 1$ gemessen wird. Mit der Verteilungsfunktion $g(\tau)$ folgt

$$H_{\text{eb}}(t) = H_{\text{eb,max}} \int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}} p_i^-(t) g(\tau) d\tau. \quad (6.13)$$

Durch Einsetzen der Gleichungen (6.10) und (6.11) erhält man

$$H_{\text{eb}}(t) = H_{\text{eb,max}} (1 - p_0^+ c \int_{\tau_{\min}}^{\tau_{\max}} \frac{e^{-t/\tau}}{\tau} d\tau). \quad (6.14)$$

Das Integral kann nicht exakt gelöst werden. Durch Substitution kann es aber auf die Form der *Integraleponentialfunktion*

$$\int_z^{\infty} \frac{1}{x} e^{-x} dx = -\gamma - \ln z - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n z^n}{n \cdot n!} \quad (6.15)$$

gebracht werden, die durch eine Reihenentwicklung angenähert werden kann [239]. Dabei ist $\gamma \approx 0,5772$ die EULERSche Konstante. Als Näherungsformel für Gl. (6.14) erhält man unter der Bedingung $\tau_{\min} \ll t \ll \tau_{\max}$

$$H_{\text{eb}}(t) = H_{\text{eb,max}} \{1 + p_0^+ c \cdot [\gamma + \ln(t/\tau_{\max})]\}. \quad (6.16)$$

Die zeitunabhängigen Terme in Gl. (6.16) können noch zusammengefasst werden, so dass sich die zeitliche Änderung der Austauschverschiebung schreiben lässt als

$$H_{\text{eb}}(t) = h + K \ln t. \quad (6.17)$$

Der Parameter h beschreibt die anfängliche, schnelle Änderung von H_{eb} und K ist der Koeffizient für die zeitliche Änderung von H_{eb} . Das Vorzeichen von K wird durch das Vorzeichen von $H_{\text{eb,max}}$ bestimmt. Bei Experimenten ohne äußeres Magnetfeld oder mit dem Magnetfeld parallel zum Wachstumsfeld ist K positiv, wenn H_{eb} positiv ist. Bei positivem H_{eb} und antiparallelem Magnetfeld ist das Vorzeichen von K dagegen negativ.

Für $t \rightarrow 0$ und $t \rightarrow \infty$ ist Gl. (6.17) eine schlechte Näherung, weil die Logarithmusfunktion dann gegen $-\infty$ bzw. $+\infty$ strebt. Physikalisch ist das jedoch nicht möglich, denn $|H_{\text{eb}}|$ kann nicht unendlich groß werden. Deshalb gilt die Näherung (6.17) nur für nicht zu kleine und nicht zu große Zeiten.

Mit Hilfe des Zusammenhangs aus Gl. (6.17) lassen sich die experimentell bestimmten Werte für $H_{\text{eb}}(t)$ gut approximieren (Abb. 6.2, 6.3 und 6.4). Aus Gl. (6.9) wird außerdem ersichtlich, dass die Relaxationszeiten (τ_i) mit steigender Temperatur (T) abnehmen, d. h. H_{eb} steigt bei höheren Temperaturen schneller an. Bei höheren Temperaturen sind pro Zeiteinheit mehr Spins in der Lage, die Energiebarriere zu überwinden und dadurch ihre Energie zu minimieren. Dieses Verhalten wird auch im Experiment beobachtet (Abb. 6.4).

Zusammenfassend kann man also sagen: Die nachträgliche Ausbildung der Austauschisotropie kann im Rahmen dieses einfachen Modells auf thermisch aktivierte Relaxationsprozesse zwischen zwei Kopplungszuständen unterschiedlicher Energieniveaus zurückgeführt werden. Die logarithmische Zeitabhängigkeit von H_{eb} wird durch eine Verteilung der Relaxationszeiten (τ_i) bzw. der zu überwindenden Energiebarrieren (E_b^i) verursacht. Wären alle Energiebarrieren im gesamten Schichtsystem gleich, so würde eine exponentielle Zeitabhängigkeit von H_{eb} resultieren. Durch eine einfache Exponentialfunktion lassen sich die experimentellen Werte jedoch nicht gut beschreiben. Es muss also eine Verteilung der Energiebarrieren vorliegen, die zu einer Verteilung der Relaxationszeiten führt. Im Modell wurde die Verteilung der Relaxationszeiten auf die Verteilung der Korngrößen in der antiferromagnetischen Schicht zurückgeführt. Die Verteilung der Korngrößen wurde experimentell mit der TEM nachgewiesen (Abschnitt 4.1.2). Die logarithmische Zeitabhängigkeit kann als Näherung für die Überlagerung vieler Exponentialfunktionen mit verschiedenen Zeitkonstanten (τ_i) angesehen werden.

Kapitel 7

Stabilität der Austauschanisotropie

7.1 Thermische Stabilität

Besonders wichtig für den Einsatz von NiO als Pinning-Schicht in Spin-Valve Systemen ist die Temperaturabhängigkeit der Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}). Wie in Abschnitt 2.3.1 bereits erwähnt, nimmt H_{eb} mit steigender Temperatur ab. Der Feldbereich, in dem eine antiparallele Magnetisierung der beiden ferromagnetischen Schichten eines Spin-Valves vorliegt, wird dadurch zunehmend kleiner. Oberhalb der *Blocking-Temperatur* (T_{B}) ist die Austauschkopplung aufgehoben und die unidirektionale Anisotropie kann nicht mehr bestehen, also $H_{\text{eb}}(T \geq T_{\text{B}}) = 0$. Bei gleich großen Koerzitivfeldstärken der beiden ferromagnetischen Schichten bedeutet $H_{\text{eb}} = 0$, dass beide Schichten bei gleichen Feldstärken unmagnetisiert werden und kein GMR mehr auftreten kann. In der Praxis begrenzt die Blocking-Temperatur deshalb die Betriebstemperatur für einen Spin-Valve Sensor.

Im Idealfall sollte die Blocking-Temperatur eines Schichtsystems mit der NÉEL-Temperatur (T_{N}) des antiferromagnetischen Materials übereinstimmen. Ein derartiges Verhalten wird jedoch nur sehr selten beobachtet. Vielmehr nimmt H_{eb} kontinuierlich mit steigender Temperatur ab und erreicht bereits bei Temperaturen kleiner als T_{N} den Wert Null. Für die meisten antiferromagnetischen Materialien gilt deshalb $T_{\text{B}} < T_{\text{N}}$. Es gibt nur wenige Materialien bei denen $T_{\text{B}} \approx T_{\text{N}}$ gefunden wurde, ein Beispiel dafür ist CoO mit $T_{\text{N}} = 291$ K [120].

Alle in dieser Arbeit durchgeführten temperaturabhängigen Messungen von Magnetisierungskurven wurden mit dem VSM durchgeführt (Abschnitt 5.2). Abbildung 7.1 enthält die Hysteresekurven eines NiO(50 nm)/NiFe(5 nm)/Ta(2 nm) Schichtsystems wie sie bei verschiedenen Temperaturen (T) gemessen wurden. Die NiO-Schicht dieser Probe wurde bei 1,0 sccm O₂ hergestellt. Nach der Herstellung wurde das Schichtsystem für 20 Min. bei 533 K im Magnetfeld getempert. Die Temperatur während der VSM-Messung steigt von Abb. 7.1 (a) nach (d) an. Es ist zu erkennen, dass sich die Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) und die Koerzitivfeldstärke (H_{c}) mit der Temperatur stark ändern. Bei $T \approx 473$ K ist im Rahmen der Messgenauigkeit keine Austauschverschiebung mehr vorhanden und $H_{\text{eb}} \approx 0$ (Abb. 7.1, d); die

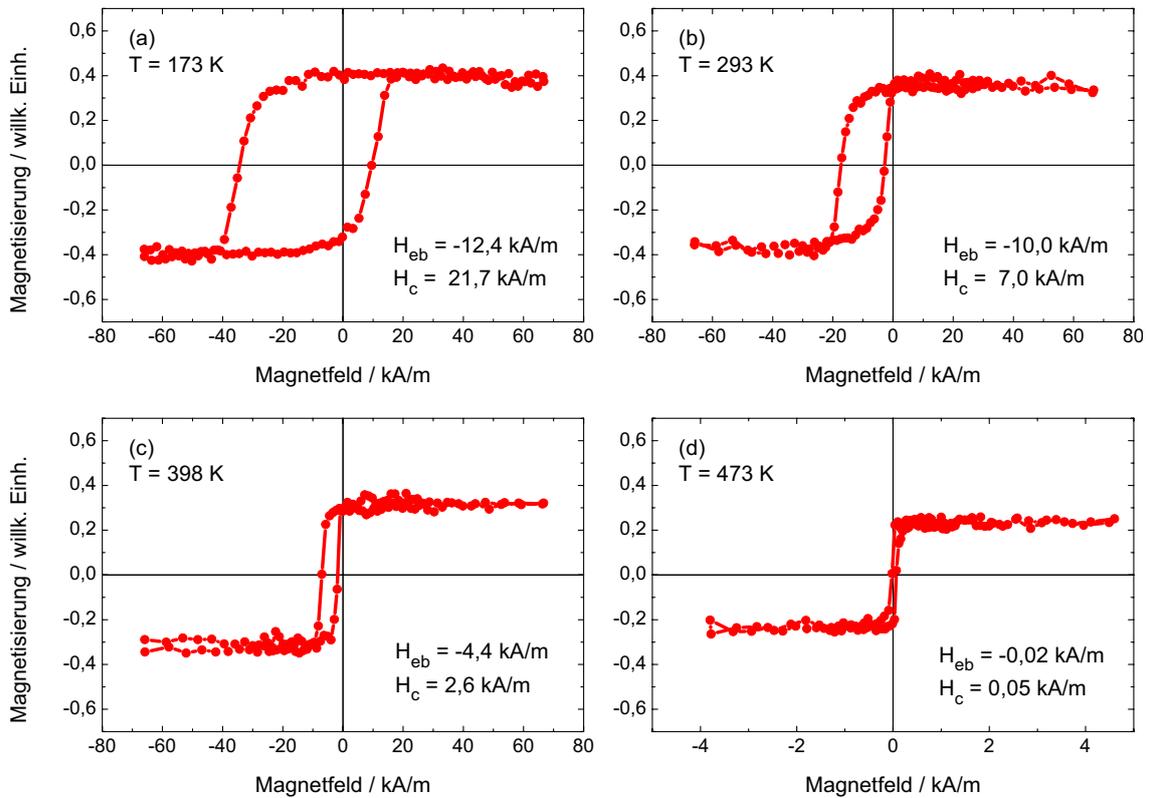


Abbildung 7.1: Magnetisierungskurven eines NiO/NiFe/Ta Schichtsystems bei verschiedenen Temperaturen (T). Bei $T \geq T_B \approx 473$ K ist die Austauschverschiebung (H_{eb}) nahezu Null (d).

Blocking-Temperatur ist erreicht.

Die Werte für H_{eb} und H_c wurden den Hysteresekurven entnommen und in Abhängigkeit von der Temperatur aufgetragen (Abb. 7.2). Es ergibt sich eine typische Temperaturabhängigkeit von H_{eb} und H_c für ein austauschgekoppeltes Schichtsystem aus Ferromagnet (FM) und Antiferromagnet (AF).

Im Rahmen der theoretischen Modelle zur Austauschisotropie (Abschnitte 2.3.2 und 6.2) wird die thermische Stabilität eines einzelnen antiferromagnetischen Korns durch die Relaxationszeit (τ_i) zwischen den zwei stabilen Kopplungszuständen bestimmt. Ist τ_i klein gegen die Messzeit, dann ist die antiferromagnetische Ordnung des Korns während der Messung instabil. Nur Körner, deren τ_i groß gegen die Messzeit ist, tragen zur unidirektionale Anisotropie bei. Aus den Modellen zum Exchange-Bias Effekt geht hervor, dass die Relaxationszeit (τ_i) für die Überwindung der lokalen Energiebarriere (ΔE_i) durch die Korngröße des AF bestimmt werden. Die Relaxationszeit nimmt mit der Kontaktfläche zwischen AF und FM zu. Nach Gl. (6.9) hängt τ_i aber auch von der Temperatur (T) ab und nimmt mit steigender Temperatur ab. Für die Temperaturabhängigkeit von H_{eb} bedeutet dies, dass bei steigender Temperatur die Austauschisotropie zunehmend durch die großen

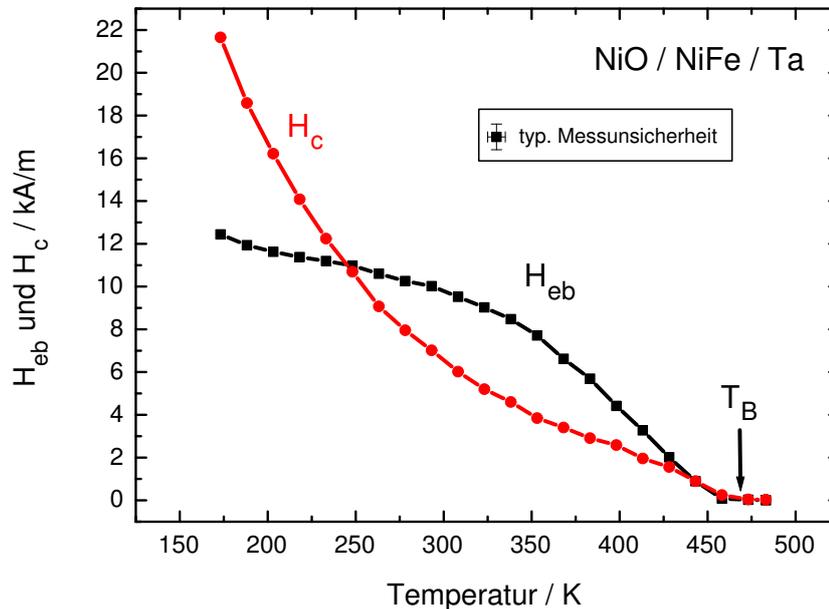


Abbildung 7.2: Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) und Koerzitivfeldstärke (H_c) in Abhängigkeit von der Temperatur.

Körner im AF bestimmt wird. Kleine Körner tragen aufgrund ihrer kurzen Relaxationszeiten nicht mehr zur Austauschverschiebung bei. Den Modellen zufolge hat die Verteilung der Korngrößen einen Einfluss auf die thermische Stabilität der makroskopischen Exchange-Bias Feldstärke und die maximale Blocking-Temperatur wird durch die Bereiche im AF mit maximaler Kopplungsenergie bestimmt.

7.2 Verbesserung der Stabilität durch Tempern

In Kapitel 6 wurde die in den NiO/NiFe/Ta Schichtsystemen beobachtete Zunahme der Austauschverschiebung nach der Herstellung beschrieben. Im Rahmen des dort aufgestellten Modells konnte die Erhöhung von H_{eb} auf thermisch aktivierte Relaxationsprozesse zurückgeführt werden. In diesem Abschnitt werden nun die Auswirkungen dieser Relaxationsprozesse sowie des Temperns im Magnetfeld auf die Stabilität der Austauschisotropie beschrieben.

Für die Anwendung der Schichtsysteme in Spin-Valves ist die Stabilität der Austauschisotropie von großer Bedeutung. Erstrebenswert ist eine möglichst große und thermisch stabile Anisotropie. Zusätzlich sollte die Richtung und der Betrag der Austauschverschiebung zeitlich konstant sein. Magnetische Nachwirkungen, die zur Veränderung der unidirektionalen Anisotropie führen, würden die Eigenschaften eines Spin-Valve-Sensors unweigerlich abwandeln. Dies könnte bis zur Funktionsunfähigkeit des Bauelements führen und muss deshalb verhindert werden.

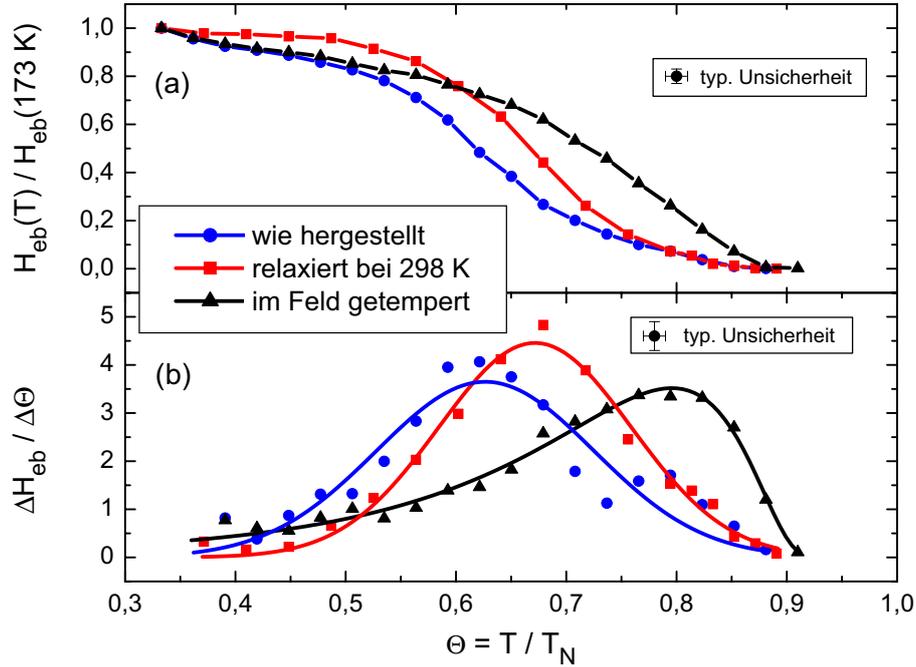


Abbildung 7.3: Die thermische Stabilität der Austauschanisotropie wird durch das Tempern verbessert. H_{eb} wurde auf den Maximalwert bei $T = 173 \text{ K}$ normiert. Die Temperatur (T) wurde auf die NÉEL-Temperatur von NiO ($T_N = 520 \text{ K}$) normiert.

Die Temperaturabhängigkeiten von H_{eb} sind in Abb. 7.3 (a) für drei unterschiedlich behandelte NiO(50 nm)/NiFe(5 nm)/Ta(2 nm) Schichtsysteme aufgetragen. Die NiO-Schichten dieser Proben wurden mit 0,6 sccm O_2 hergestellt. Damit die einzelnen Messreihen besser verglichen werden können, wurde H_{eb} auf den jeweiligen Maximalwert bei 173 K und die Temperatur auf die NÉEL-Temperatur von NiO ($T_N = 520 \text{ K}$) normiert. Damit ist die reduzierte Temperatur: $\Theta = T/T_N$.

Die Änderung der Exchange-Bias Feldstärke (ΔH_{eb}) bei einer Temperaturänderung ($\Delta \Theta$) kann als Maß für die Verteilung der lokalen Blocking-Temperaturen im Schichtsystem angesehen werden (Abb. 7.3, b). Nach den Modellen zur Austauschanisotropie (Abschnitt 2.3.2) ist ΔH_{eb} um so größer, je mehr Bereiche des AF eine lokale Blocking-Temperatur innerhalb des Temperaturintervalls $\Delta \Theta$ haben. Nach dem Überschreiten der lokalen Blocking-Temperatur trägt ein Bereich nicht mehr zur Austauschanisotropie bei. Die Verteilung von $\Delta H_{eb}/\Delta \Theta$ spiegelt die Verteilung der lokalen Blocking-Temperaturen wider.

Die aus den Messwerten berechneten $\Delta H_{eb}/\Delta \Theta$ in Abb. 7.3 (b) weisen eine (GAUSSsche) Normalverteilung

$$\frac{\Delta H_{eb}}{\Delta \Theta}(\Theta) = \frac{A}{\sqrt{2\pi}\sigma} \cdot \exp\left[-\frac{(\Theta - \Theta_M)^2}{2\sigma^2}\right] \quad (7.1)$$

auf, wenn die Proben nicht getempert wurden. A ist dabei die Amplitude und σ die Streuung der Messwerte um den Erwartungswert (Θ_M). In Θ_M liegt das Maximum und das Symmetriezentrum der Verteilung.

Im Fall der getemperten Proben wird das Zentrum der Verteilung in Richtung der NÉEL-Temperatur, die die Obergrenze für die Blocking-Temperatur ist, verschoben und gestaucht. Die Verteilung der lokalen Blocking-Temperaturen geht durch den Temperprozess in eine logarithmische Normalverteilung der Form

$$\frac{\Delta H_{\text{eb}}}{\Delta \Theta}(\Theta) = \frac{A}{\sqrt{2\pi}\sigma} \cdot \exp\left[-\frac{1}{2\sigma^2} \ln^2\left(\frac{\Theta_B - \Theta}{\Theta_B - \Theta_M}\right)\right] \quad (7.2)$$

über. Durch Anpassung einer Kurve nach Gl. (7.2) an die Messwerte können Erwartungswert (Θ_M) und maximale Blocking-Temperatur (Θ_B) bzw. $T_B = \Theta_B \cdot T_N$ bestimmt werden.

Die Temperaturabhängigkeiten von H_{eb} in Abb. 7.3 (a) zeigen, dass die nachträgliche Erhöhung der Austauschanisotropie (Kapitel 6) nicht nur zu größeren Austauschverschiebungen (Abb. 6.4), sondern auch zur Verbesserung der thermischen Stabilität der Kopplung führt. Im unteren und mittleren Temperaturbereich ($\Theta < 0,7$) werden nach der Relaxation der Austauschkopplung (■) höhere Exchange-Bias Feldstärken gemessen als direkt nach der Herstellung (●). Das Zentrum der Verteilung der lokalen Blocking-Temperaturen (Θ_M) wird zu etwas höheren Temperaturen verschoben und die Streuung der Messwerte (σ) nimmt ab. Die maximale Blocking-Temperatur beträgt in beiden Fällen $\Theta_B \approx 0,87$ bzw. $T_B \approx 452$ K.

Eine wesentliche Verbesserung der thermischen Stabilität wird allerdings erst durch das Tempern der Schichtsysteme im Magnetfeld (Abschnitt 3.4) erreicht. Insbesondere bei hohen Temperaturen ($\Theta > 0,7$) ist H_{eb} im Vergleich zu den ungetemperten Proben größer. Das Maximum der Verteilung der Blocking-Temperaturen wird durch den Temperprozess zu höheren Temperaturen verschoben. Die Verteilung rückt dadurch näher an die obere Schranke (T_N) und wird auf dieser Seite gestaucht. Aus der Normalverteilung wird durch das Tempern eine logarithmische Normalverteilung. Auch nach dem Tempern ist die maximale Blocking-Temperatur kleiner als T_N und beträgt $\Theta_B \approx 0,92$ bzw. $T_B \approx 478$ K.

Durch das nachträgliche Tempern der Schichtsysteme kann die thermische Stabilität der Austauschanisotropie also merklich verbessert werden. Um die Stabilität der antiferromagnetischen Zustände zu erhöhen, sind irreversible Änderungen in den AF-Körner der NiO-Schicht erforderlich. Der Einfluss des Temperns auf die Eigenschaften der Kopplung wird in Abschnitt 7.4 diskutiert.

Neben der thermischen Stabilität der Austauschanisotropie ist die Stabilität unter dem Einfluss eines äußeren Magnetfeldes, das nicht parallel zum Wachstumsfeld (H_w) bzw. „Temper-Feld“ gerichtet ist, wichtig. Verschiedene Versuchsreihen mit unterschiedlichen Materialkombinationen AF/FM [22–29] haben gezeigt, dass die Austauschanisotropie zwischen AF und FM durch ein Magnetfeld beeinflussbar ist und sich mit der Zeit im äußeren Feld neu ausrichtet. Die Zeitskala, auf der die dafür notwendige Umorientierung der antiferromagnetischen Zustände stattfindet,

wird durch die Stabilität der einzelnen Körner im polykristallinen AF bestimmt.

Zur Untersuchung der zeitlichen Stabilität der Austauschisotropie wurden NiO/NiFe/Ta Schichtsysteme zunächst bei Raumtemperatur in einem Magnetfeld ($H_{\text{ext}} = 80 \text{ kA/m}$) gelagert. Das Magnetfeld lag in der Schichtebene und war so gerichtet, dass die FM-Schichten entgegen ihrer unidirektionalen Anisotropierichtung magnetisch gesättigt waren ($H_{\text{ext}} \parallel H_w$), d. h. die Austauschkopplung wurde entgegen ihrer bevorzugten Richtung gehalten. In verschiedenen Zeitabständen (t) wurden die Magnetisierungskurven der Schichtsysteme mit dem KERR-Magnetometer aufgenommen (Abb. 7.4), woraus H_{eb} und H_c bestimmt wurden. Die unidirektionale Anisotropie richtet sich mit der Zeit im äußeren Magnetfeld neu aus und die Austauschverschiebung wechselt das Vorzeichen.

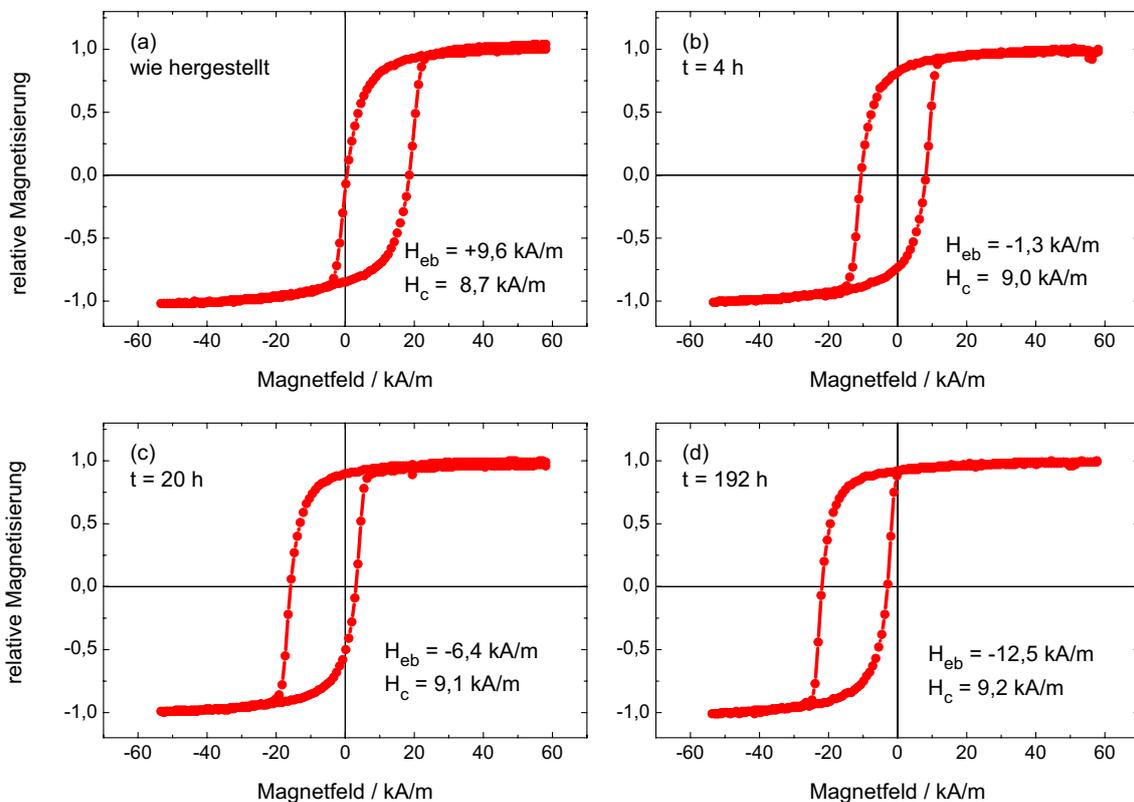


Abbildung 7.4: Invertierung der unidirektionalen Anisotropie durch ein äußeres Magnetfeld ($H_{\text{ext}} = +80 \text{ kA/m}$; $H_{\text{ext}} \parallel H_w$) bei Raumtemperatur in einem NiO/NiFe/Ta Schichtsystem.

Die zeitliche Veränderung von H_{eb} ist in Abb. 7.5 aufgetragen. Dabei wurde H_{eb} auf den Ausgangswert $H_{\text{eb},0} = H_{\text{eb}}(t = 0)$ am Anfang des Experiments normiert, um den Vergleich verschieden behandelter Proben zu erleichtern.

Werden die Proben direkt nach der Herstellung dem Magnetfeld (H_{ext}) ausgesetzt, so richtet sich die unidirektionale Anisotropie relativ schnell entsprechend der

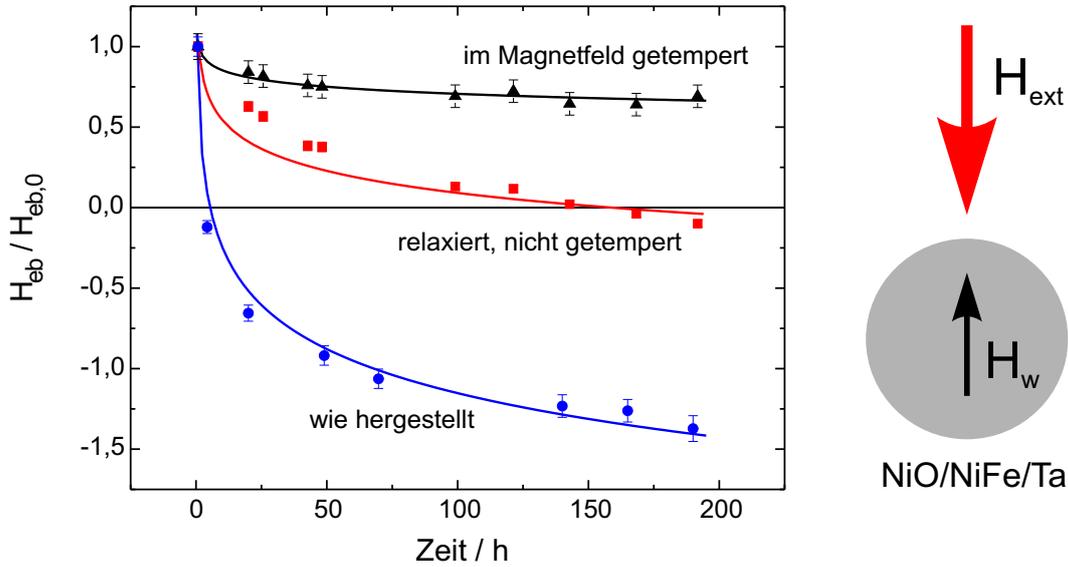


Abbildung 7.5: Relative Änderung von H_{eb} bei Raumtemperatur in Abhängigkeit von der Zeit (t) bei $H_{ext} \parallel H_w$. Die Stabilität der Austauschisotropie unter Einfluss eines äußeren Magnetfeldes wird durch das Tempern entscheidend verbessert. Die durchgezogenen Linien sind Anpassungskurven gemäß Gl. (6.17): $H_{eb}(t) = h - K \ln t$.

Richtung von H_{ext} neu aus (Abb. 7.5, ●). Mit der Zeit kommt es sogar zur Erhöhung von $|H_{eb}|$ bei invertierter Richtung. Dieser Effekt stimmt mit der in Abschnitt 6.2 beschriebenen thermisch aktivierten Relaxation der Austauschkopplung überein und zeigt, dass die Kopplung zwischen AF und FM nach der Herstellung der Schichtsysteme noch nicht vollständig ausgerichtet ist.

Wenn die Relaxation der Austauschkopplung abgeschlossen ist bevor ein Schichtsystem in das Magnetfeld eingebracht wird, so dreht sich die Anisotropierichtung langsamer als im zuvor beschriebenen Fall (Abb. 7.5, ■). Dennoch wird nach einiger Zeit ein Vorzeichenwechsel von H_{eb} beobachtet, was auf die fortschreitende Invertierung antiferromagnetischer Zustände im NiO schließen lässt.

Die Beeinflussung der Austauschisotropie durch das Gegenfeld (H_{ext}) ist wesentlich geringer, wenn die Proben nach der Herstellung getempert wurden. Die Exchange-Bias Feldstärke nimmt in diesem Fall auf etwa 75% des Ausgangswerts ($H_{eb,0}$) ab und bleibt danach nahezu konstant. Eine Invertierung von H_{eb} war in dem beobachteten Zeitraum nicht mehr möglich (Abb. 7.5, ▲). Durch das Tempern der Proben nach der Herstellung wird also nicht nur die thermische Stabilität der Austauschverschiebung erhöht (Abb. 7.3), sondern auch die Stabilität gegenüber äußeren (Stör-)Feldern. Die Mechanismen, die zu einer Stabilisierung der Austauschkopplung führen können, werden in Abschnitt 7.4 diskutiert.

Bei allen Experimenten dieser Art änderte sich die Koerzitivfeldstärke der

Schichtsysteme nur geringfügig, während sich H_{eb} beachtlich änderte (Abb. 7.4). Daraus wird deutlich, dass die beobachtete Drehung der Anisotropierichtung im Wesentlichen auf Zustandsänderungen der antiferromagnetischen Ordnung im NiO beruhen. Die ferromagnetischen Eigenschaften der NiFe-Schicht bleiben davon unberührt.

Die Stabilität der Austauschkopplung in einem äußeren Magnetfeld wurde zusätzlich bei verschiedenen Temperaturen gemessen. Die Experimente entsprachen den zuvor beschriebenen, jedoch unter Einwirkung eines kleineren Magnetfeldes ($H_{\text{ext}} = 4,3 \text{ kA/m}$), so dass die FM-Schicht noch nicht gesättigt war. Gemessen wurde dabei nicht die Exchange-Bias Feldstärke, sondern das magnetische Moment (m) der NiFe-Schicht parallel zum Wachstumfeld (H_{w}). Dazu wurden die Proben im Aufbau des VSM (Abschnitt 5.2) auf die entsprechende Temperatur gebracht und das Magnetfeld (H_{ext}) angelegt. Das magnetische Moment der Probe wurde dann in Abhängigkeit von der Zeit mit dem VSM gemessen (Abb. 7.6). Eine detaillierte Beschreibung des experimentellen Aufbaus befindet sich in [23].

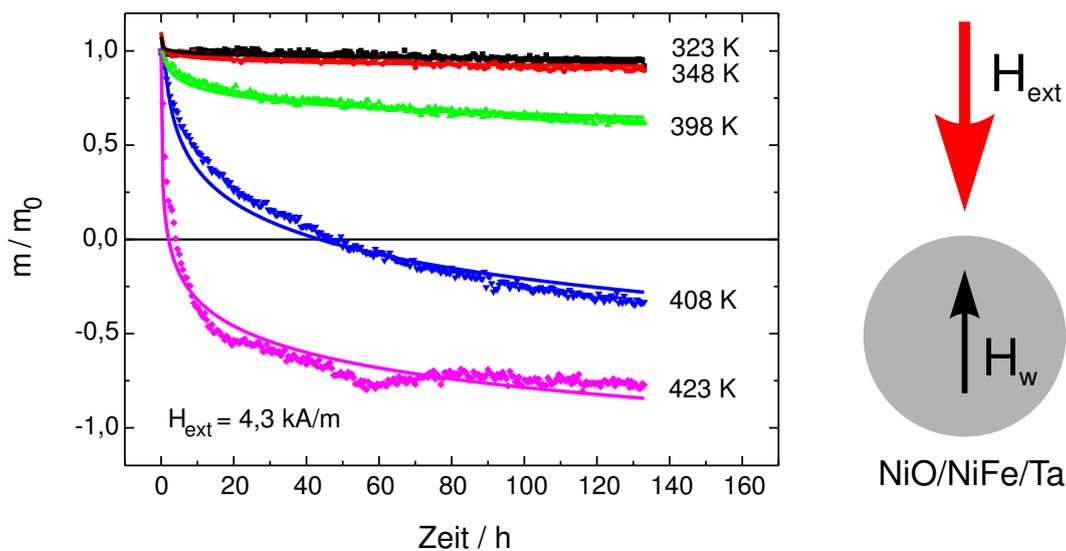


Abbildung 7.6: Stabilität der Austauschanisotropie bei erhöhten Temperaturen unter Einwirkung des Magnetfeldes $H_{\text{ext}} \parallel H_{\text{w}}$. Aufgetragen ist das auf den Ausgangswert (m_0) normierte magnetische Moment (m) in Abhängigkeit von der Zeit im Gegenfeld (H_{ext}). H_{ext} ist hier so klein, dass der FM bei Raumtemperatur nicht gesättigt wird.

Das gemessene magnetische Moment setzt sich aus den Momenten der einzelnen Domänen im FM zusammen. Wird die Austauschkopplung in einem Bereich des Schichtsystems invertiert, so weist das Moment dieses Bereichs in die entgegengesetzte Richtung. Diese Bereiche reduzieren das resultierende Moment und führen letztlich zur Umkehr des magnetischen Moments der gesamten Probe, wenn die neue Richtung die Kopplung dominiert.

Die in Abhängigkeit von der Zeit gemessenen magnetischen Momente sind in Abb. 7.6 für verschiedene Temperaturen aufgetragen. Die Messwerte wurden auf den Ausgangswert $m_0 = m(t = 0)$ normiert. Bei Temperaturen unter 350 K ändert sich das Moment nur wenig. Oberhalb von etwa 400 K ist jedoch eine deutliche Abnahme von m/m_0 mit der Zeit zu beobachten. In Abhängigkeit von der Temperatur dominiert nach einiger Zeit die dem Ursprungszustand entgegengesetzte Magnetisierungsrichtung und das resultierende magnetische Moment der Proben wechselt das Vorzeichen.

Das Interessante an diesen Ergebnissen ist, dass auch kleine Magnetfelder in der Lage sind, die Austauschkopplung in einem AF/FM Schichtsystem zu beeinflussen. Bei 400 K ist die Exchange-Bias Feldstärke gerade in der Größenordnung des äußeren Magnetfeldes: $H_{\text{eb}}(400 \text{ K}) \approx H_{\text{ext}} = 4,5 \text{ kA/m}$ (s. Abb. 7.2). Oberhalb dieser Temperatur nimmt die Invertierung antiferromagnetischer Bereiche im NiO drastisch zu, weil die Kopplung in vielen Bereichen durch das äußere Feld aufgehoben wird.

Betrachtet man diese Effekte im Rahmen der Modelle zur Austauschanisotropie (Abschnitte 2.3.2 und 6.2), so lassen sich die Ergebnisse wie folgt interpretieren: Durch die polykristalline Struktur des AF ist die Stärke der Austauschkopplung im Schichtsystem inhomogen. Thermisch aktiviert können immer mehr Bereiche des AF, die ggf. mit den Kristalliten der polykristallinen Schicht übereinstimmen, ihre Austauschkopplung parallel zum äußeren Magnetfeld ausrichten, wodurch sie ihre Energie minimieren. Diese Prozesse werden zunächst in den Bereichen des AF stattfinden, die eine relativ schwache Kopplung zum FM besitzen. Mit der Zeit wird die Austauschkopplung und damit die Magnetisierung des FM parallel zum äußeren Magnetfeld überwiegen und auch die antiferromagnetische Ordnung der Bereiche mit stärkerer Kopplung invertieren. Letztlich führen diese Prozesse zur thermisch aktivierten Relaxation der Austauschkopplung in Richtung des niedrigeren Energieniveaus, dessen Lage durch das äußere Magnetfeld bestimmt wird.

7.3 Einfluss der Mikrostruktur des NiO

In Kapitel 4 wurde deutlich, dass die mikroskopische Struktur und die Zusammensetzung der NiO-Schichten vom O_2 -Fluss beim reaktiven Beschichtungsprozess abhängen. Die Eigenschaften des Antiferromagneten beeinflussen die Austauschanisotropie und insbesondere die thermische Stabilität von H_{eb} (Abschnitt 2.3).

Alle Messungen, deren Ergebnisse in diesem Abschnitt dargestellt sind, wurden an NiO(50 nm)/NiFe(5 nm)/Ta(2 nm) Schichtsystemen durchgeführt. Der O_2 -Fluss während der NiO-Herstellung wurde variiert. Wenn im Folgenden von einem O_2 -Fluss gesprochen wird, dann ist immer der O_2 -Fluss beim reaktiven Sputtern der NiO-Schicht gemeint. Nach der Herstellung wurden alle Proben für 20 Min. bei 533 K in einem Magnetfeld von 80 kA/m getempert (Abschnitt 3.4).

Die Abhängigkeiten der Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) und der Koerzitivfeldstärke (H_c) vom O_2 -Fluss (f_{O_2}) sind in Abb. 7.7 dargestellt. Bei den angegebenen

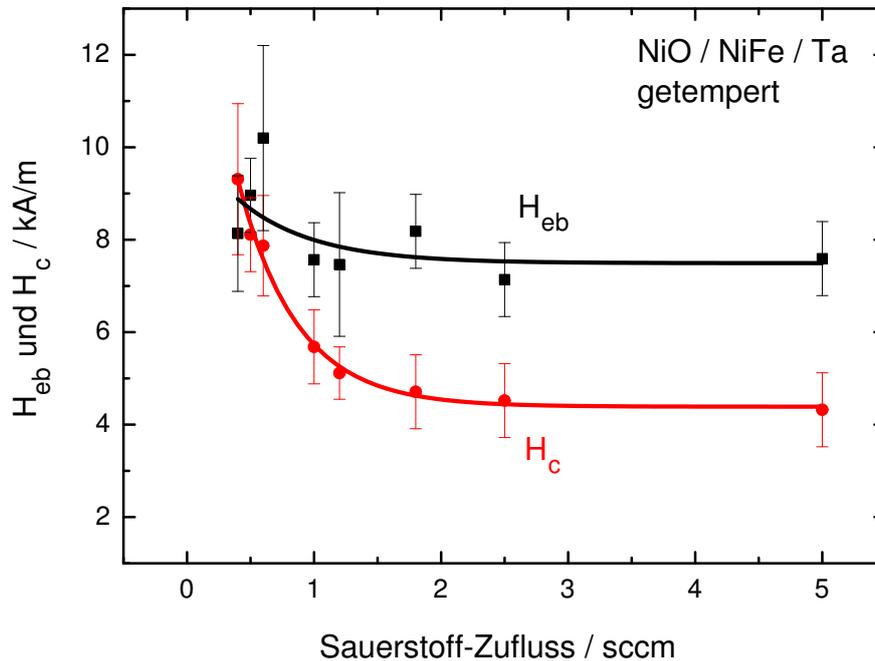


Abbildung 7.7: Abhängigkeit der Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) und der Koerzitivfeldstärke (H_c) vom O_2 -Fluss bei der NiO-Herstellung.

Werten handelt es sich um die Mittelwerte vieler Proben, die im Lauf der Zeit untersucht wurden. Die Fehlerbalken stellen die Streuung der Messwerte um den Mittelwert dar.

Bei $f_{O_2} < 0,4$ sccm besteht keine Austauschkopplung zwischen NiO und NiFe ($H_{eb} = 0$). Die ERD-Analysen (Abschnitt 4.2) und die Röntgendiffraktometrie (Abschnitt 4.1.1) haben gezeigt, dass bei $f_{O_2} = 0,32$ sccm eine Mischphase aus Ni und NiO vorliegt. Die metallischen Nickel-Anteile stören offenbar die antiferromagnetische Ordnung im NiO derart, dass keine unidirektionale Anisotropie entsteht.

In dem untersuchten Bereich ist H_{eb} vom O_2 -Fluss nahezu unabhängig. Nur bei niedrigen O_2 -Flüssen zwischen 0,4 und 0,6 sccm werden im Mittel etwas höhere Exchange-Bias Feldstärken gemessen. Anders verhält sich die Koerzitivfeldstärke der gekoppelten NiFe-Schicht. Mit steigendem O_2 -Fluss nimmt H_c deutlich ab und erreicht bei $f_{O_2} \approx 1,5$ sccm einen Sättigungswert.

Nach dem Modell von STILES und MCMICHAEL zur Deutung der Koerzitivfeldstärke in austauschgekoppelten polykristallinen Schichtsystemen (Abschnitt 2.3.2) wird H_c im Wesentlichen durch die inhomogene Kopplungsstärke zwischen AF und FM verursacht. Vertraut man auf diese Vorstellung, so liegt der Schluss nahe, dass bei hohen O_2 -Flüssen die Austauschkopplung im Schichtsystem weniger inhomogen ist als bei niedrigen O_2 -Flüssen. Die „Homogenisierung“ der Austauschkopplung könnte durch eine gleichmäßigere Oxidation des Nickels beim reaktiven Beschich-

tungsprozess mit höherem O_2 -Angebot verursacht werden. Dies ist allerdings nur eine Vermutung, die erst experimentell bestätigt werden müsste.

Die thermische Stabilität der Austauschisotropie in getemperten NiO/NiFe/Ta Schichtsystemen wurde in Abhängigkeit vom O_2 -Fluss bei der NiO-Herstellung untersucht. Abbildung 7.8 (a) zeigt die Exchange-Bias Feldstärken (H_{eb}) in Abhängigkeit von der reduzierten Temperatur ($\Theta = T/T_N$). Dabei wurde H_{eb} auf den jeweiligen Maximalwert bei 173 K normiert.

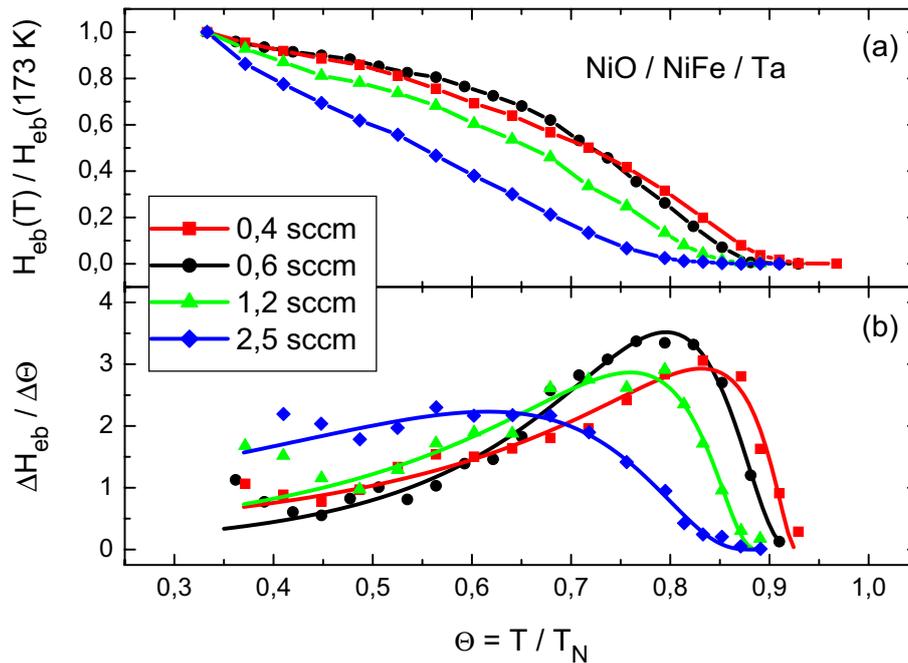


Abbildung 7.8: (a) Temperaturabhängigkeit der Exchange-Bias Feldstärke und (b) Verteilung der lokalen Blocking-Temperaturen für verschiedene O_2 -Flüsse bei der NiO-Herstellung.

Die Änderung der Exchange-Bias Feldstärke mit der reduzierten Temperatur ($\Delta H_{eb}/\Delta\Theta$) kann als Maß für die Verteilung der lokalen Blocking-Temperaturen im Schichtsystem angesehen werden (Abb. 7.8, b). Die Änderung von H_{eb} ist um so größer, je mehr Bereiche des Antiferromagneten eine lokale Blocking-Temperatur innerhalb des Temperaturintervalls $\Delta\Theta$ haben. Nach dem Überschreiten der lokalen Blocking-Temperatur tragen diese Bereiche nicht mehr zur unidirektionalen Anisotropie bei. Die Verteilung der Werte ($\Delta H_{eb}/\Delta\Theta$) lässt sich, wie in Abschnitt 7.2 bereits vorgenommen, durch eine logarithmische Normalverteilung (Gl. 7.2) annähern.

Aus Abb. 7.8 wird deutlich, dass die thermische Stabilität der Austauschkopplung mit steigendem O_2 -Fluss deutlich abnimmt. Die Verteilung der lokalen Blocking-Temperaturen in Teilbild (b) wird mit zunehmendem O_2 -Fluss zu niedrigeren Temperaturen verschoben. Daraus wird ersichtlich, dass im Mittel die lokalen Blocking-Temperaturen bei steigendem O_2 -Fluss abnehmen, wodurch die thermische

Stabilität der Austauschisotropie reduziert wird.

Durch Anpassung einer Kurve nach Gl. (7.2) an die Messwerte ($\Delta H_{\text{eb}}/\Delta\Theta$) kann die maximale Blocking-Temperatur eines Schichtsystems Θ_{B} bzw. $T_{\text{B}} = \Theta_{\text{B}} \cdot T_{\text{N}}$ bestimmt werden. Die Abhängigkeit der so ermittelten maximalen Blocking-Temperaturen (T_{B}) vom O_2 -Fluss ist in Abb. 7.9 aufgetragen. Die höchsten Blocking-Temperaturen $T_{\text{B}} \approx 485 \text{ K}$ bzw. $\Theta_{\text{B}} \approx 0,93 T_{\text{N}}$ wurden bei niedrigen O_2 -Flüssen zwischen 0,4 und 0,6 sccm gemessen. Mit steigendem O_2 -Fluss nimmt T_{B} näherungsweise exponentiell ab und strebt gegen einen Sättigungswert bei O_2 -Flüssen größer 1,5 sccm von $T_{\text{B}} \approx 450 \text{ K}$ bzw. $\Theta_{\text{B}} \approx 0,86 T_{\text{N}}$.

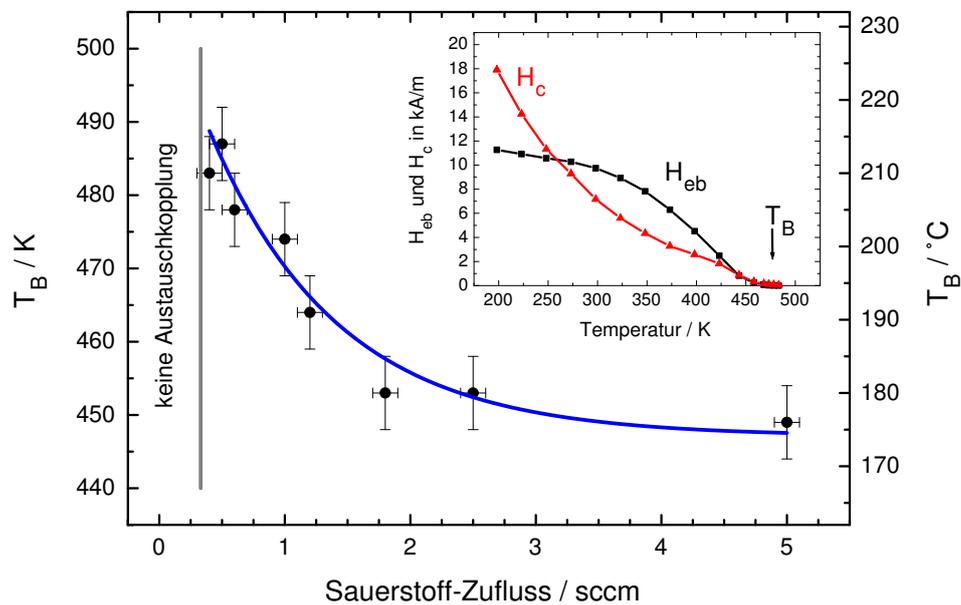


Abbildung 7.9: Die Blocking-Temperatur (T_{B}) nimmt mit steigendem O_2 -Fluss ab. Das eingesetzte Bild zeigt eine typische Temperaturabhängigkeit von H_{eb} und H_{c} mit der Definition von T_{B} .

Beim Vergleich der Blocking-Temperaturen (Abb. 7.9) mit den mittels ERDA bestimmten Element-Konzentrationen in den NiO-Schichten (Abb. 4.8) wird deutlich, dass bei nahezu stöchiometrischem Verhältnis (50 % Ni + 50 % O) die höchsten Blocking-Temperaturen resultieren. Bei hohem O_2 -Flüssen wurde im NiO mehr Sauerstoff als Nickel nachgewiesen. Mit zunehmender Abweichung von der exakten Stöchiometrie des NiO nimmt T_{B} ab.

Die Ergebnisse der Röntgendiffraktometrie (Abschnitt 4.1.1) stimmen mit den Resultaten der ERD-Analyse überein und zeigen zusätzlich, dass die Gitterkonstante des NiO mit steigendem O_2 -Fluss zunimmt. Überschüssiger Sauerstoff im NiO führt zur Dehnung des Kristallgitters. Außerdem haben die TEM-Untersuchungen gezeigt, dass die mittlere Korngröße bei hohem O_2 -Fluss niedriger ist als bei kleinem O_2 -Fluss (Abb. 4.6). Die Auswirkungen auf die thermische Stabilität der Austauschisotro-

pie werden im folgenden Abschnitt diskutiert.

7.4 Interpretation der Ergebnisse

Die Erhöhung der thermischen Stabilität der Austauschisotropie durch das Tempern im Magnetfeld wird im Rahmen der zuvor behandelten Modelle (Abschnitte 2.3.2 und 6.2) diskutiert.

Die Ergebnisse im Kapitel 6 haben gezeigt, dass die Austauschisotropie nach der Herstellung im Magnetfeld der Schichtsysteme noch nicht vollständig ausgebildet ist und es zu thermisch aktivierten Relaxationsprozessen zwischen zwei stabilen Zuständen der Austauschkopplung kommt, wobei sich die antiferromagnetische Ordnung in den Körnern unter Einfluss des FM nachträglich ausrichtet. Dabei wurde angenommen, dass es eine Verteilung der Relaxationszeiten gibt, die durch eine Verteilung der Korngrößen im AF verursacht wird. Die Verteilung der Relaxationszeiten entspricht einer Verteilung lokaler Energiebarrieren (ΔE) zwischen den beiden stabilen Kopplungszuständen eines antiferromagnetischen Korns.

Durch das Tempern wird dem System so viel Energie zugeführt, dass praktisch alle Bereiche des AF die lokale Energiebarriere zwischen den beiden Energieminima, die den stabilen Kopplungszuständen entsprechen, überwinden können und sich am Ende im energetisch günstigeren Zustand befinden. Beim Abkühlen des Schichtsystems im Magnetfeld unter die Blocking-Temperatur werden die Zustände „eingefroren“. Die Ausrichtung der antiferromagnetischen Bereiche alleine würde im Rahmen des Modells jedoch noch nicht zu einer Erhöhung der thermischen Stabilität der Kopplungszustände führen. Um dies zu erreichen, muss zusätzlich eine Erhöhung der Energiebarriere (ΔE) zwischen den beiden stabilen Zuständen erfolgen. Eine höhere Barriere wird erst bei höheren Temperaturen überwunden, die Relaxationszeit ist größer und die antiferromagnetische Ordnung des Korns ist thermisch stabiler (Gl. 2.10). Die Folge ist eine Verschiebung der lokalen Blocking-Temperaturen zu höheren Werten wie es im Experiment beobachtet wird.

Fraglich ist noch, wodurch die Erhöhungen der Energiebarrieren während des Temporns verursacht werden. Im Modell zur thermisch aktivierten Relaxation (Abschnitt 6.2) hängt die Energiebarriere ($\Delta E_i = E_b^i - E_{eb}^i$) von der uniaxialen Anisotropiekonstanten (K_u), der Kontaktfläche (S_i), der Schichtdicke (D) und der Kopplungskonstanten (J_{eb}) ab. Im Modell wurden D und J_{eb} als konstant betrachtet. Einfluss auf die Barrierenhöhe haben dann noch S_i und K_u .

Die TEM-Untersuchungen an getemperten und ungetemperten NiO/NiFe/Ta Proben haben gezeigt, dass sich die mittlere NiO-Korngröße durch das 20-minütige Tempern bei 533 K nicht ändert. In beiden Fällen betrug die mittlere Korngröße 9 nm. Experimente von LAI et al. [118] ergaben, dass die Korngröße in NiO-Schichten während des Temporns durch Rekristallisation wächst. Um ein substantielles Wachstum der Kristallite zu erreichen, waren allerdings wesentlich höhere Temperaturen als 533 K und längere Temperzeiten erforderlich. Denkbar wäre, dass durch das Tem-

pern die Beschaffenheit der Grenzfläche zwischen NiO und NiFe verändert wird. Durch geringfügige Diffusion des NiFe in die Korngrenzen des NiO hinein (und umgekehrt) würde die effektive Kontaktfläche (S_i) zwischen FM und AF vergrößert, wodurch die lokale Energiebarriere eines antiferromagnetischen Korns (ΔE) zunimmt. Dies ist eine mögliche Erklärung für die erhöhte thermische Stabilität der Austauschkopplung nach dem Tempern (Abb. 7.3 und 7.5).

Prinzipiell ist es auch möglich, dass sich die Anisotropie des AF durch das Tempern ändert. Im NiO wird die Anisotropie im Wesentlichen durch eine magnetische dipolare Wechselwirkung der Spins bestimmt [100]. Die Energie der Wechselwirkung ist dabei am niedrigsten, wenn sich die Spins in den (111)-Ebenen parallel anordnen (Abschnitt 2.2). Durch das Erhitzen der Schichtsysteme über die NÉEL-Temperatur und das anschließende Abkühlen im Magnetfeld kann sich die antiferromagnetische Ordnung im NiO neu formieren, wodurch sich die Anisotropiekonstante (K_u) ändern kann. Die Orientierung der Kristallite im NiO ist allerdings durch das Schichtwachstum vorgegeben und wird sich durch das Tempern bei den gegebenen Temperaturen nicht wesentlich ändern. Deshalb wird die Änderung von K_u durch das Tempern vermutlich nicht sehr groß sein. Dennoch hätte eine Änderung von K_u nach den vorliegenden Modellen einen Einfluss auf die thermische Stabilität der Austauschkopplung. Inwieweit es jedoch tatsächlich zur Erhöhung der Anisotropie im AF kommt lässt sich nicht genau feststellen. Die quantitative Messung der magnetischen Anisotropie in AF könnte z. B. durch *Antiferromagnetische Resonanz* erfolgen [100].

Letztlich ist der Einfluss der Anisotropie des AF auf den Exchange-Bias Effekt noch nicht eindeutig geklärt und es gibt dazu nur wenige experimentelle Untersuchungen [21]. Bisher durchgeführte Experimente [134, 240] weisen darauf hin, dass die Anisotropie des AF einen Einfluss auf die Exchange-Bias Feldstärke und die Blocking-Temperatur hat. Bei diesen Untersuchungen wurden die Zusammensetzungen der antiferromagnetischen Schichten variiert. Die Anisotropiekonstanten (K_u) wurden jedoch nicht explizit gemessen.

Eine Aussage über den Einfluss der Anisotropie auf den Exchange-Bias Effekt kann mit Hilfe des Modells von MALOZEMOFF [132, 133] getroffen werden (Abschnitt 2.3.2). Nach diesem Modell ist $H_{\text{eb}} \propto \sqrt{A_{\text{AF}} K_u}$ (Gl. 2.6). Dabei wird angenommen, dass A_{AF} nicht von der Temperatur (T) abhängt und $K_u(T) = K_0(1 - T/T_N)^2$ bei uniaxialer Anisotropie des AF ist [133]. K_0 ist die Anisotropiekonstante bei $T = 0\text{ K}$. Ersetzt man die NÉEL-Temperatur (T_N) durch die Blocking-Temperatur (T_B) so erhält man: $K_u(T) = K_0(1 - T/T_B)^2$. Nach diesem Modell ist also $H_{\text{eb}} \propto (1 - T/T_B)\sqrt{A_{\text{AF}} K_0}$. Die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung des FM (M_{FM}) wird dabei vernachlässigt. Demnach nimmt H_{eb} bei $T \leq T_B$ linear mit der Temperatur ab und bei konstanter Temperatur ist $H_{\text{eb}} \propto \sqrt{K_0}$. Der lineare Zusammenhang zwischen H_{eb} und T wurde bei den hier untersuchten NiO/NiFe Schichten allerdings nur in wenigen Fällen näherungsweise experimentell beobachtet (Abb. 7.8: 2,5 sccm O₂). Insofern ist dieses Modell nur eine Näherung.

Die reduzierte thermische Stabilität bei der Verwendung höherer O₂-Flüsse (Abb. 7.8 und 7.9) für die NiO-Herstellung kann auf strukturelle Änderungen im AF

zurückgeführt werden. Wird beim reaktiven Sputterprozess zu viel Sauerstoff angeboten, so wird dieser zum Teil auf Zwischengitterplätzen im NiO untergebracht. Der Sauerstoff-Überschuss wurde durch die ERD-Analyse (Abschnitt 4.2) nachgewiesen. Dies führt zur mittels Röntgendiffraktometrie bestätigten Dehnung des Kristallgitters (Abschnitt 4.1.1) bei steigendem O₂-Fluss. Der überschüssige Sauerstoff stellt eine Störung der antiferromagnetischen Ordnung im NiO dar. Die Mikrostruktur des NiO hat einen entscheidenden Einfluss auf die Anisotropie. Defekte im NiO-Kristallgitter beeinflussen die Kopplung der Spins untereinander, wodurch sich die Anisotropie des AF ändert. Nach dem oben beschriebenen Modell von MALOZEMOFF hängt die Stärke der Austauschkopplung von der Anisotropie des AF ab. Eine reduzierte Anisotropie des NiO durch die zunehmende Störung der antiferromagnetischen Ordnung ist vermutlich ein Grund für die abnehmende Stabilität der Austauschisotropie bei steigendem O₂-Fluss während der NiO-Herstellung.

Zusätzlich haben die TEM-Untersuchungen gezeigt, dass die mittlere Korngröße bei höheren O₂-Flüssen abnimmt (Abb. 4.6). Nach dem Modell zur thermisch aktivierten Relaxation der Austauschkopplung führen kleinere Kristallite mit kleineren Kontaktflächen (S_i) zu niedrigeren Kopplungsenergien und niedrigeren Energiebarrieren (ΔE). Die thermische Stabilität der Austauschkopplung nimmt mit der Größe der Kontaktfläche bzw. dem Kristallitdurchmesser ab. Dieses Verhalten wurde bereits mehrfach experimentell bestätigt [108, 124, 125, 128, 241]. Allgemein wurde dabei beobachtet, dass kleinere Körner im AF zu niedrigeren Blocking-Temperaturen führen. NISHIOKA [125] beobachtete niedrigere Aktivierungsenergien zur Überwindung der Austauschkopplung bei kleineren Körnern und erklärte dies ebenfalls durch ein Modell, das auf der thermisch aktivierten Relaxation der Kopplungszustände basierte.

Die Untersuchungen mit dem Raster-Kraftmikroskop (Abschnitt 4.3) haben ergeben, dass sich die Oberflächen-Rauigkeit der NiO-Schichten nicht messbar mit dem O₂-Fluss ändert. Unabhängig vom O₂-Fluss ist die Oberfläche des NiO extrem glatt. Die geringe Abnahme der Kristallitgrößen ändert die Oberflächen-Rauigkeit im Bereich der Messgenauigkeit nicht. Die niedrigen Blocking-Temperaturen bei hohen O₂-Flüssen (Abb. 7.8 und 7.9) werden demnach nicht durch eine Änderung der Oberflächen-Rauigkeit des NiO verursacht. Dennoch kann nicht ganz ausgeschlossen werden, dass sich die Beschaffenheit der Grenzfläche NiO/NiFe auf einer Skala ändert, die mit dem Raster-Kraftmikroskop nicht zugänglich ist. Ein Hinweis darauf ist die Änderung der Korngrößen mit dem O₂-Fluss.

Ob die Reduzierung der Blocking-Temperatur mit steigendem O₂-Anteil im Sputtergas primär durch die abweichende Stöchiometrie, die Dehnung des Kristallgitters oder die abnehmenden Korngrößen im NiO verursacht wird, kann nicht abschließend geklärt werden, da die Einflussgrößen miteinander verknüpft sind. Dennoch kann aus den Experimenten und der Analyse der Schichtsysteme geschlossen werden, dass die Stabilität der Austauschisotropie bei gestörter kristalliner Ordnung im NiO abnimmt.

Kapitel 8

Lokale Modifizierung der Austauschanisotropie

8.1 Bestrahlung mit Helium-Ionen

Die magnetischen Eigenschaften dünner Schichten lassen sich durch die Bestrahlung mit hochenergetischen Ionen verändern [30]. Mit fokussierten Ionenstrahlen ist es möglich, eine laterale magnetische Mikrostrukturierung in den Schichten zu realisieren. Experimente an austauschgekoppelten AF/FM Doppelschichten sowie an Spin-Valve Systemen haben gezeigt, dass die Austauschanisotropie, die Koerzitivfeldstärke und der Magnetowiderstand durch die Bestrahlung der Schichtsysteme mit Ionen gezielt manipuliert werden können [31–33, 242–245].

In dieser Arbeit wurden erstmals die Auswirkungen der Ionenbestrahlung auf die Austauschanisotropie in AF/FM Doppelschichten mit oxidischem AF (NiO) untersucht. Diese Experimente wurden in Kooperation mit der Arbeitsgruppe „Atomphysik und Angewandte Elektronenphysik“ von Herrn PROF. DR. H. SCHMORANZER vom Fachbereich Physik der Universität Kaiserslautern durchgeführt. Die Schichtherstellung und magnetische Charakterisierung erfolgte in Kassel. Die Bestrahlung mit He^+ -Ionen wurde in Kaiserslautern vorgenommen.

Die physikalischen Grundlagen der Wechselwirkung von Ionen mit Materie werden in Abschnitt 8.1.1 kurz behandelt. Der Einfluss der Ionenbestrahlung auf die magnetischen Eigenschaften austauschgekoppelter NiO/NiFe Doppelschichten wird anhand der experimentellen Ergebnisse in Abschnitt 8.1.2 beschrieben. Hier wird gezeigt wie mit Hilfe der Ionenbestrahlung die Austauschverschiebung in Richtung und Betrag sowie die Koerzitivfeldstärke gezielt verändert werden können. Eine qualitative Interpretation der Ergebnisse erfolgt in Abschnitt 8.1.3.

Letztlich ist ein Ziel, die Eigenschaften von Spin-Valve Systemen durch die Ionenbestrahlung definiert zu manipulieren. Der Einfluss der Ionenbestrahlung auf den GMR in FeMn basierten Spin-Valve Systemen wurde untersucht. Die Ergebnisse dieser Experimente werden in Abschnitt 8.1.4 vorgestellt.

8.1.1 Grundlagen der Ionenimplantation

Treffen beschleunigte Teilchen/Ionen auf einen Festkörper, so werden sie im Material abgebremst. Der Energieverlust der Teilchen pro Weglänge ($-dE/dx$) wird als *Bremsvermögen* bezeichnet. Das Abbremsen der Projektile im Festkörper wird im Wesentlichen durch zwei Mechanismen bestimmt [246]:

Elektronische Wechselwirkung: Energieübertrag von den einfallenden Teilchen auf die Elektronen der Festkörperatome (engl. *electronic stopping*). Durch unelastische Stöße mit den gebundenen Elektronen kommt es zur Anregung oder Ionisation der Atome im abbremsenden Medium.

Nukleare Wechselwirkung: Elastische Stöße mit den Atomkernen oder ganzen Atomen, wobei ein Teil der kinetischen Energie des Projektils auf das gestoßene Atom übertragen wird.

Unelastische Stöße mit Atomkernen, elastische Stöße mit gebundenen Elektronen und die Erzeugung von ČERENKOV-Strahlung wurden dabei vernachlässigt.

Es hängt von der Energie der Projektile und der Ordnungszahl des abbremsenden Mediums ab, welcher der beiden oben aufgeführten Abbremsmechanismen dominiert. Im Allgemeinen überwiegt bei hohen kinetischen Energien die elektronische Abbremsung, während es bei niedrigen Energien die Kernstöße sind. Das gesamte Bremsvermögen ist die Summe aus elektronischem (e) und nuklearem (n) Bremsvermögen:

$$-\frac{dE}{dx} = \left(-\frac{dE}{dx}\right)_e + \left(-\frac{dE}{dx}\right)_n. \quad (8.1)$$

Der Anteil des Bremsvermögens, der durch die elektronische Wechselwirkung verursacht wird kann durch die BETHE-BLOCH-Formel [247, 248]

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_e = N \frac{Z_P^2 Z_T e^4}{4\pi\epsilon_0^2 v^2 m_e} \left[\ln\left(\frac{2m_e v^2}{I}\right) - \ln\left(1 - \frac{v^2}{c^2}\right) - \frac{v^2}{c^2} \right] \quad (8.2)$$

beschrieben werden (aus [208]). Dabei ist Z_P die Kernladungszahl und v die Geschwindigkeit der einfallenden Teilchen (Projektile). Außerdem ist N die Anzahldichte der Targetatome mit der Kernladungszahl Z_T und $I \approx 11,5 \cdot Z_T$ das mittlere Ionisationspotential der Elektronen in eV. Weiterhin ist m_e die Elektronenmasse, e die Elementarladung und ϵ_0 die elektrische Feldkonstante.

Die Energieverlustrate durch elastische Kernstöße ist proportional zur Summe der pro Stoßereignis übertragenen Energie (T_n) [246]:

$$-\left(\frac{dE}{dx}\right)_n = N \int_0^{T_m} T_n d\sigma \quad (8.3)$$

Dabei ist T_m die maximal übertragbare Energie bei einem zentralen Kernstoß und $d\sigma = 2\pi p dp$ der differentielle Wirkungsquerschnitt mit dem Stoßparameter p . Die

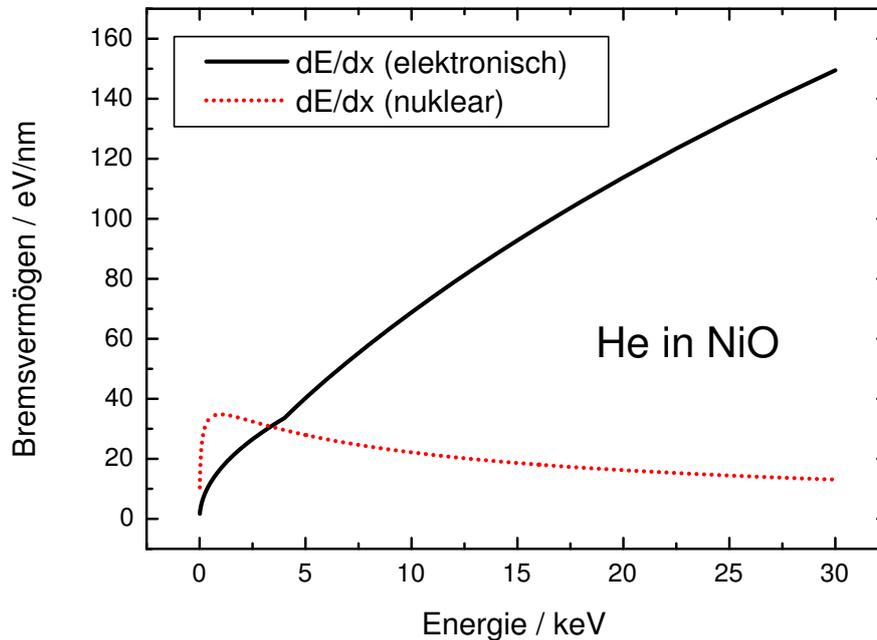


Abbildung 8.1: Berechnetes elektronisches und nukleares Bremsvermögen von He⁺-Ionen in NiO als Funktion der Ionenenergie.

Energie T_n kann mit Hilfe der klassischen Mechanik aus dem Bild der *Zweikörperstreuung* berechnet werden. T_n hängt vom Streuwinkel, der Energie und den Massen der beiden Stoßpartner ab.

Sind beide Beiträge zum gesamten Bremsvermögen bekannt, so kann die mittlere Gesamtreichweite

$$R = \int_0^{E_0} \left(-\frac{dE}{dx} \right)^{-1} dE. \quad (8.4)$$

eines Teilchens mit der Anfangsenergie E_0 berechnet werden.

Die Beiträge des elektronischen und des nuklearen Bremsvermögens für He⁺-Ionen, die auf ein NiO-Target treffen, wurden mit Hilfe der Simulations-Software SRIM-2000 (*Stopping and Range of Ions in Matter, Version 2000.40*) [249, 250] berechnet. Das Ergebnis ist in Abb. 8.1 dargestellt. Nach diesen Berechnungen ist es in erster Linie die elektronische Wechselwirkung, die bei Ionenenergien größer 3 keV zur Abbremsung der Ionen im Target führt. Die nuklearen Stöße werden erst relevant, wenn die Ionen schon einen Großteil ihrer Energie durch elektronische Wechselwirkung auf das Target übertragen haben und niedrigere Geschwindigkeiten besitzen. In der Nähe der Probenoberfläche, kurz nach Eintreten der Ionen in das Material, wird demnach die elektronische Wechselwirkung überwiegen, während die Ionen am Ende ihrer Wegstrecke im Target verstärkt durch nukleare Stöße abgebremst werden.

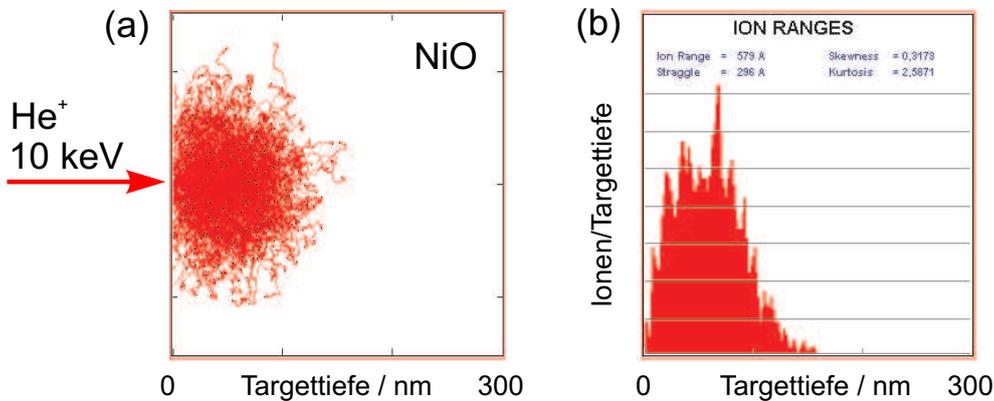


Abbildung 8.2: Berechnete Spuren (a) und Reichweitenverteilung (b) für 10^3 He^+ -Ionen der Energie 10 keV in einem NiO-Target.

In der Praxis ist die Projektion der Gesamtwegstrecke (R) eines Ions auf die Einfallsrichtung von besonderer Bedeutung. Sie gibt die Verteilung der implantierten Ionen in Abhängigkeit von der Targettiefe wieder. In Abb. 8.2(a) sind berechnete Spuren von He^+ -Ionen (10 keV) in NiO grafisch dargestellt. Die Projektion von R auf die Einfallsrichtung ist in Abb. 8.2(b) als Funktion der Targettiefe aufgetragen. Beide Verteilungen wurden für 10^3 He^+ -Ionen mit dem Programm SRIM berechnet. Mit steigender Ionenenergie liegt das Maximum der Verteilung tiefer im Target und die Verteilung wird breiter. Insofern ist die Ionenenergie ein Parameter, mit der die Verteilung der implantierten Ionen im Target beeinflusst wird.

Beim Abbremsen der Projektile im Target wird Energie auf die Targetatome übertragen. In Abhängigkeit von der übertragenen Energie können Targetatome von ihren Plätzen im Kristallgitter „weggestoßen“ werden. Diese Atome können wiederum andere Gitteratome versetzen, so dass ganze Stoßkaskaden im Target ausgelöst werden. Folgen dieser Stoßprozesse sind: Leerstellen im Kristallgitter (engl. *vacancies*), Zwischengitteratome und Cluster-Bildung entlang der Ionenbahnen [246]. Die Defekterzeugung ist bei schweren Ionen größer als bei leichten, da der Energieübertrag vom Massenverhältnis zwischen Projektil und Target abhängt. Bei vielen Anwendungen ist dieser Effekt durchaus erwünscht, um eine hohe Ausbeute an gestreuten Atomen pro einfallendem Ion zu erhalten: z. B. Kathodenerstäubung (Abschnitt 3.1), ERDA (Abschnitt 4.2). Das Ausmaß der Schädigung im Target kann z. B. durch die Anzahl der erzeugten Leerstellen im Kristallgitter quantifiziert werden. Berechnete Verteilungen der erzeugten Leerstellen in dünnen Schichten sind in den folgenden Abschnitten enthalten.

Für weitere Details zur Wechselwirkung zwischen hochenergetischen Ionen und Festkörpern sowie über die dadurch entstehenden Schäden im Material sei auf Fachliteratur und Lehrbücher zur „Ionenimplantation“ verwiesen: [208, 246, 249, 251].

8.1.2 Modifizierung der Austauschisotropie durch Ionenbestrahlung

Der Einfluss der Ionenbestrahlung auf die Austauschisotropie wurde an Schichtsystemen NiO(50 nm)/NiFe(5 nm)/Ta(2 nm) untersucht. Die Schichten wurden wie in Kapitel 3 beschrieben mittels Kathodenzerstäubung hergestellt und zur Stabilisierung der Austauschisotropie nach der Herstellung im Magnetfeld getempert (Abschnitt 7.2).

Da für die Durchführung dieser Experimente sehr viele identische Proben erforderlich waren, wurde ein spezielles Präparationsverfahren eingesetzt. Auf den Glassubstraten wurden vor der Beschichtung 1 mm dünne Masken aus Kupfer fixiert, die jeweils zehn Bohrungen (\varnothing 2,5 mm) enthielten. Die Substrate wurden dadurch nur an den Stellen der Bohrungen beschichtet. Um Abschattungseffekte beim Schichtwachstum zu vermindern, waren die Bohrungen stark angesenkt. Wie in der nebenstehenden Abbildung 8.3 schematisch dargestellt, wurden durch diese Technik zehn identische Schichtsysteme mit einem Durchmesser von jeweils 2,5 mm auf einem Glassubstrat untergebracht. Die Kupfermasken enthielten außerdem an einer Seite eine Markierung, die vor der Beschichtung parallel zum Wachstumfeld (H_w) ausgerichtet wurde und somit Richtung der unidirektionalen Anisotropie in den präparierten Schichtsysteme eindeutig kennzeichnete. Mit einem einzigen Beschichtungsvorgang wurden durch diese Technik 30 Proben auf drei Glassubstraten gleichzeitig hergestellt, wodurch die gesamte Prozesszeit erheblich reduziert wurde.

Die Bestrahlung der Schichtsysteme mit He^+ -Ionen erfolgte in einer Ionenstrahlanlage, die in der Arbeitsgruppe von PROF. DR. SCHMORANZER entwickelt wurde. Die Ionen werden dabei in einer PENNING-Ionenquelle erzeugt. Mit einer Extraktionselektrode werden die Ionen aus der Quelle gezogen und beschleunigt. Eine elektrostatische Linse fokussiert den divergent aus der Quelle austretenden Ionenstrahl. Die Beschleunigungsspannung für die Ionen kann bei dieser Anlage maximal 65 kV betragen. Durch einen Shutter kann der Ionenstrahl abgefangen und die Bestrahlungszeit begrenzt werden. Der Probenhalter befindet sich auf einem motorgesteuerten X/Y-Tisch, der die Probenbewegung im Vakuum ermöglicht. Während der Ionenbestrahlung liegt ein Magnetfeld (H_{ib}) am Ort der Probe an. Dieses, im Folgenden kurz als *Bestrahlungsfeld* bezeichnete, Magnetfeld wird durch zwei Permanentmagnete erzeugt und weist parallel zur Schichtebene. Der Durchmesser des Ionenstrahls auf der Probenoberfläche wurde so gewählt, dass gerade eine der zehn Proben auf ei-

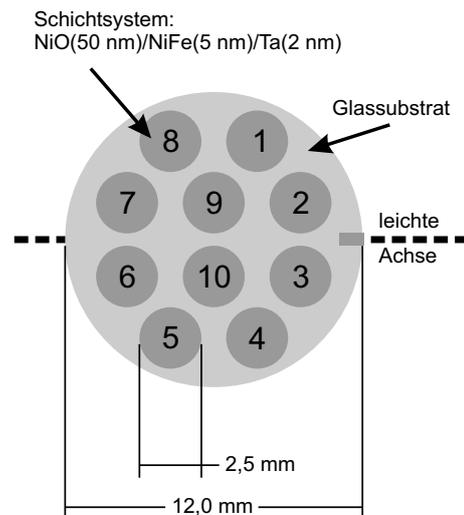


Abbildung 8.3: Probengeometrie.

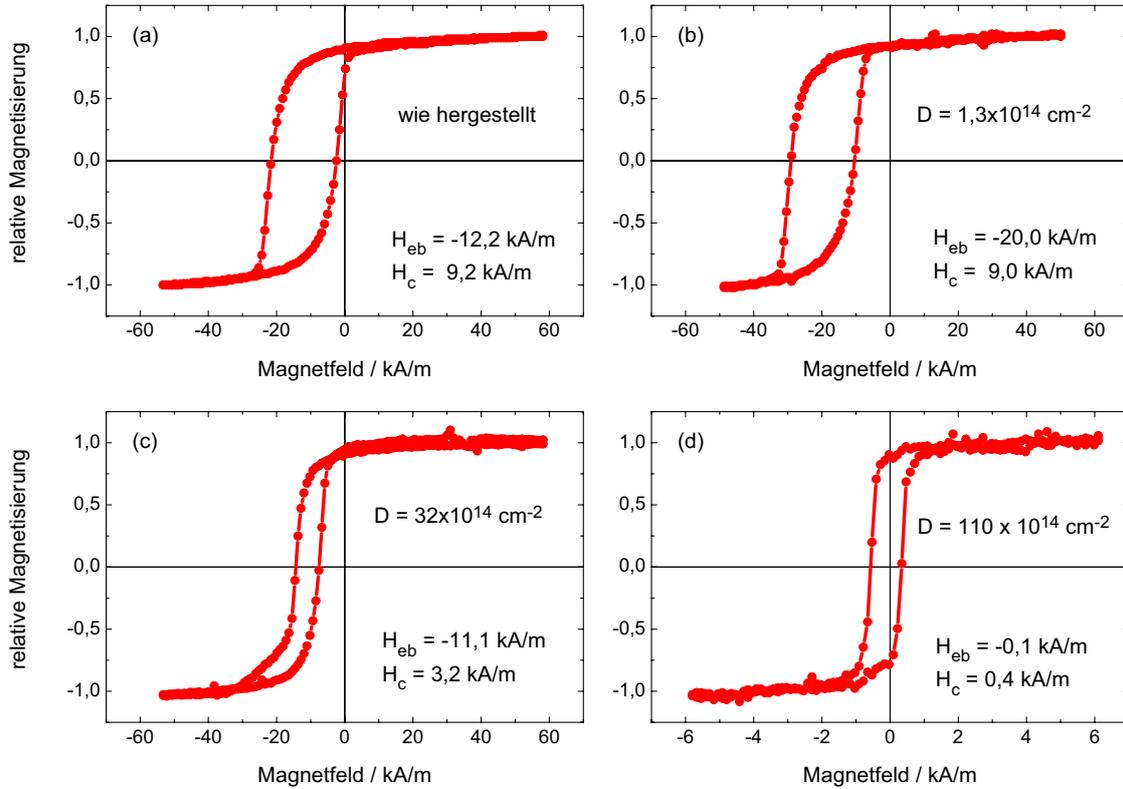


Abbildung 8.4: Magnetisierungskurven von NiO/NiFe/Ta Schichtsystemen nach der Herstellung (a) und nach der Bestrahlung mit unterschiedlichen Ionendosen (D) bei $H_{ib} \uparrow H_w$ (b–d).

nem Substrat bestrahlt wurde. Eine detaillierte Beschreibung der Ionenstrahlanlage befindet sich in [31].

Die Messung des Strahlstroms erfolgt mit einem in den Proben Tisch integrierten FARADAY-Becher, der mit einer aufgesetzten $100 \mu\text{m}$ Blende auch zur Messung des Strahlprofils verwendet wird [31]. Die Ionendosisrate (δ) berechnet sich aus

$$\delta = \frac{I}{F \cdot q}. \quad (8.5)$$

Dabei ist I der Strahlstrom, F die bestrahlte Fläche und q die elektrische Ladung pro Ion. Die Ionendosis (D) ist das Produkt aus Dosisrate und Bestrahlungszeit (t):

$$D = \delta \cdot t. \quad (8.6)$$

Die Veränderung der magnetischen Eigenschaften von NiO/NiFe/Ta Schichtsystemen durch die Bestrahlung mit He^+ -Ionen der Energie 10 keV wurde in Abhängigkeit von der Ionendosis untersucht. Dazu wurden die Magnetisierungskurven der Schichtsysteme vor und nach der Ionenbestrahlung mit dem KERR-Magnetometer

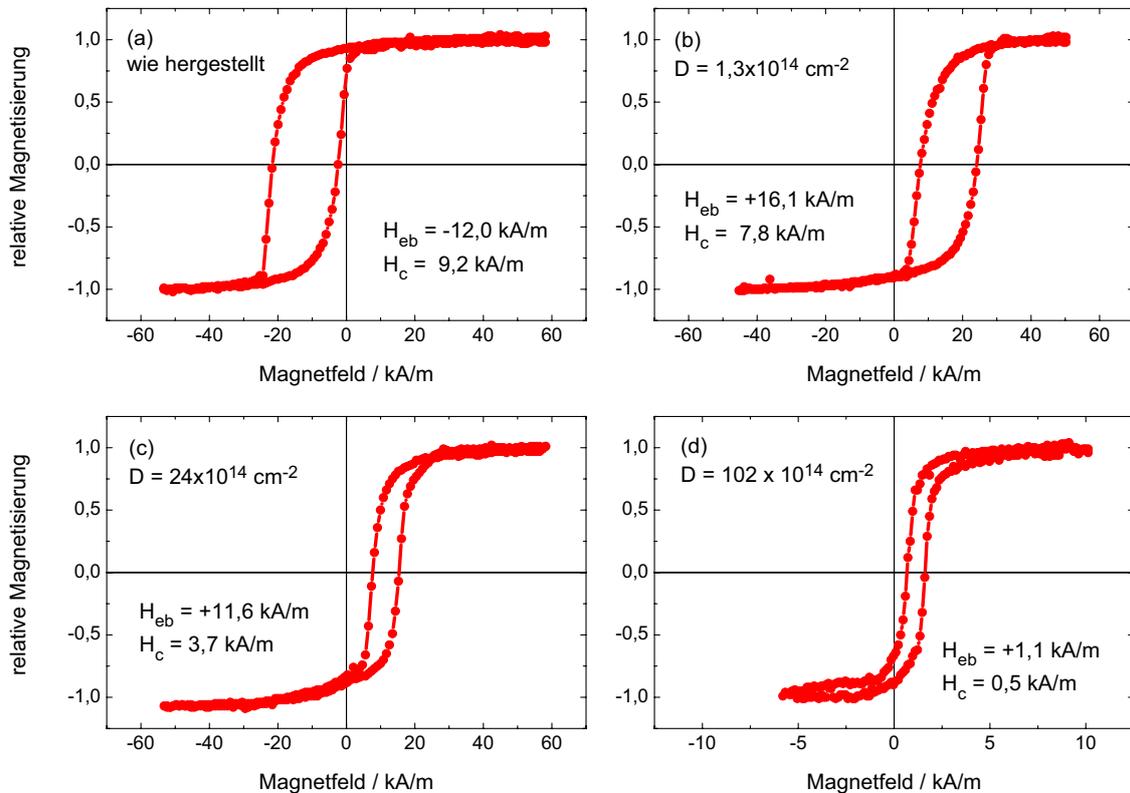


Abbildung 8.5: Magnetisierungskurven von NiO/NiFe/Ta Schichtsystemen nach der Herstellung (a) und nach der Ionenbestrahlung mit unterschiedlichen Dosen (D) bei $H_{ib} \parallel H_w$ (b–d).

gemessen. Abbildung 8.4 enthält vier exemplarische Hysteresekurven wie sie vor (a) und nach der Ionenbestrahlung (b–d) gemessen wurden. Das Bestrahlungsfeld war dabei parallel zum Wachstumfeld der Schichtsysteme gerichtet ($H_{ib} \parallel H_w$).

Durch die Bestrahlung mit relativ niedrigen Ionendosen ($D \approx 1 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$) wird die Exchange-Bias Feldstärke von $H_{eb} = -12,2 \text{ kA/m}$ nach der Herstellung (Abb. 8.4, a) auf $H_{eb} = -20 \text{ kA/m}$ erhöht (b). Die Koerzitivfeldstärke (H_c) bleibt dabei nahezu konstant. Mit steigender Ionendosis nimmt H_{eb} wieder ab (c) bis schließlich keine Austauschverschiebung mehr messbar ist (d). H_c nimmt ebenfalls ab und erreicht etwa den Wert einer „freien“ NiFe-Schicht, wenn keine Austauschverschiebung mehr vorhanden ist (d). Bei noch höheren Ionendosen nimmt das KERR-Signal der NiFe-Schicht stark ab bis nur noch Rauschen gemessen wird. Dies lässt bereits auf die Zerstörung der ferromagnetischen Schicht durch die Ionenbestrahlung mit hohen Dosen schließen.

Ein etwas anderes Verhalten zeigt sich, wenn das Bestrahlungsfeld (H_{ib}) antiparallel zum Wachstumfeld (H_w) gerichtet ist, also $H_{ib} \nparallel H_w$ (Abb. 8.5). Die NiFe-Schicht wird dabei entgegen ihrer durch die Austauschisotropie bevorzugten Magnetisierungsrichtung durch das Feld H_{ib} gesättigt. In Teilbild (b) ist zu

erkennen, dass die Richtung der Austauschverschiebung nach der Ionenbestrahlung invertiert ist. Die unidirektionale Anisotropie wurde durch die Ionenbestrahlung im Magnetfeld H_{ib} neu ausgerichtet. Auch in diesem Fall ist eine Erhöhung von $|H_{eb}|$ zu verzeichnen, obwohl die relative Zunahme von $|H_{eb}|$ etwas niedriger ist als bei $H_{ib} \uparrow \parallel H_w$. Mit steigender Ionendosis nimmt H_{eb} auch hier wieder ab (c) und wird ab einer Dosis von etwa 10^{16} cm^{-2} vollständig unterdrückt (d).

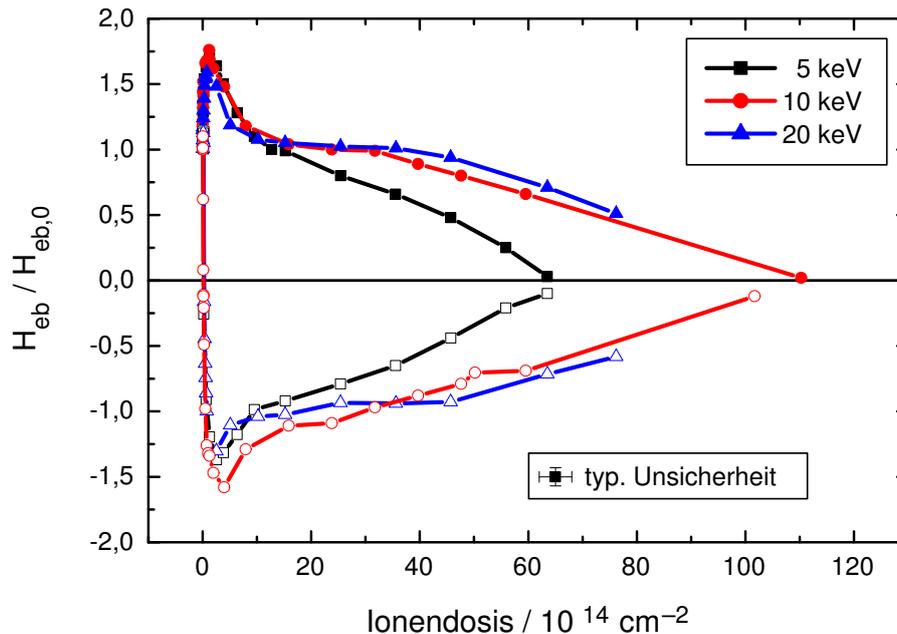


Abbildung 8.6: Relative Änderung von H_{eb} durch die Ionenbestrahlung mit verschiedenen Ionenenergien in Abhängigkeit von der Ionendosis. Volle Symbole: $H_{ib} \uparrow \parallel H_w$, leere Symbole: $H_{ib} \uparrow \parallel H_w$.

Die aus den Hysteresekurven ermittelten Werte für H_{eb} sind in Abb. 8.6 in Abhängigkeit von der Ionendosis aufgetragen. Dabei wurde H_{eb} auf den Wert nach der Herstellung ($H_{eb,0}$) der jeweiligen Probe normiert, wodurch die Auftragung der relativen Änderung von H_{eb} durch die Ionenbestrahlung entspricht. Die Experimente wurden mit drei verschiedenen Ionenenergien (5, 10 und 20 keV) durchgeführt.

In Abb. 8.6 ist die Invertierung der unidirektionalen Anisotropie bei $H_{ib} \uparrow \parallel H_w$ deutlich zu erkennen. In einem Dosisbereich zwischen 10^{13} und 10^{14} cm^{-2} erreicht $|H_{eb}|$ ein Maximum. Dort ist $|H_{eb}|$ um etwa 70 % erhöht. Bei weiter steigender Ionendosis nimmt $|H_{eb}|$ kontinuierlich ab. Ab einer Dosis von ungefähr 10^{16} cm^{-2} ist die Austauschverschiebung nahezu verschwunden. Spätestens ab 10^{17} cm^{-2} wird von der NiFe-Schicht kein magnetisches Signal mehr gemessen. Die Koerzitivfeldstärken der Schichtsysteme, die in Abb. 8.6 nicht eingezeichnet sind, nehmen mit wachsender Ionendosis stetig ab.

Auffällig ist, dass die Reduzierung von $|H_{eb}|$ mit steigender Dosis bei einer Ionenenergie von 5 keV wesentlich schneller voranschreitet als bei 10 und 20 keV. Dieses

Verhalten kann erklärt werden, wenn man berücksichtigt, dass die mittlere Reichweite der Ionen im Target von der Ionenenergie abhängt. Bei niedrigeren Energien dringen die Ionen nicht so tief in das Target ein und erzeugen in der Nähe der Targetoberfläche mehr Gitterdefekte als Ionen einer höheren Energie. Bei den Experimenten bestand die Geometrie: $\text{He}^+ \rightarrow \text{Ta}/\text{NiFe}/\text{NiO}$. Die Anzahl der pro einfallendem Ion und Nanometer erzeugten Leerstellen im Target wurden für die verschiedenen Ionenenergien in Abhängigkeit von der Targettiefe mit dem Programm SRIM-2000 [249, 250] für 10^5 He^+ -Ionen berechnet (Abb. 8.7). Die erzeugte Defektdichte in der Nähe der Grenzfläche NiFe/NiO und in den folgenden etwa 30 nm NiO nimmt mit steigender Ionenenergie ab. Die Beschaffenheit der Grenzfläche FM/AF und des AF in der Nähe der Grenzfläche sind entscheidend für die Austauschisotropie (vgl. Kapitel 2). Aus diesem Grund nimmt H_{eb} bei der Ionenenergie 5 keV mit steigender Dosis schneller ab. Bei höheren Energien werden die Defekte tiefer im NiO-Volumen erzeugt und der Einfluss auf die Austauschisotropie ist geringer.

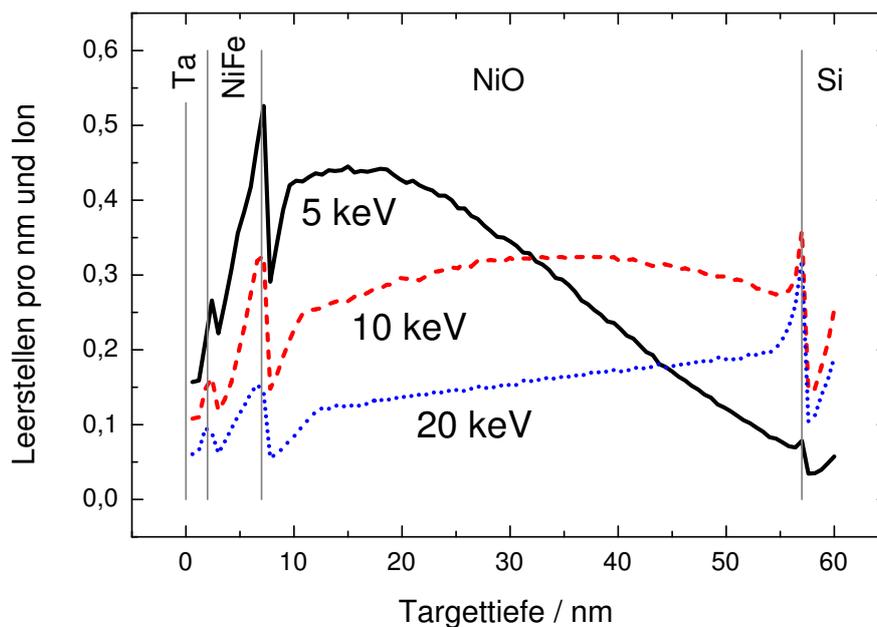


Abbildung 8.7: Berechnete Leerstellen pro Nanometer und einfallendem Primärion in Abhängigkeit von der Targettiefe für 5 keV, 10 keV und 20 keV He^+ -Ionen $\rightarrow \text{Ta}(2 \text{ nm})/\text{NiFe}(5 \text{ nm})/\text{NiO}(50 \text{ nm})/\text{Si}$.

Die Vermutung liegt nahe, dass es sich bei den beobachteten Effekten um thermisch aktivierte Prozesse handeln könnte wie sie in Abschnitt 6.2 beschrieben wurden. Experimentelle Untersuchungen [31, 244] haben jedoch bewiesen, dass dies nicht der Fall ist. Dazu wurden NiFe/FeMn Schichtsysteme mit He^+ -Ionen bestrahlt. Anschließend wurden sie in einem Magnetfeld bei 500 K getempert und auf Raumtemperatur abgekühlt, so dass die unidirektionale Anisotropie neu ausgerichtet wurde. Die durch die Ionenbestrahlung verursachte Erhöhung der Exchange-Bias Feldstärke

ke war nach dem Tempern immer noch vorhanden. Diese Experimente haben gezeigt, dass die Ionen irreversible Änderungen im Schichtsystem verursachen, die zur Änderung der Austauschisotropie führen.

Weiterhin wurde untersucht, ob mit Hilfe der Ionenbestrahlung beliebige Richtungen der unidirektionalen Anisotropie eingestellt werden können. Bei diesen Experimenten wurde der Winkel (ω) zwischen dem Bestrahlungsfeld (H_{ib}) und dem Wachstumfeld (H_w) variiert. Die einzelnen NiO/NiFe/Ta Schichtsysteme wurden mit $5,1 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ He⁺-Ionen der Energie 10 keV bestrahlt.

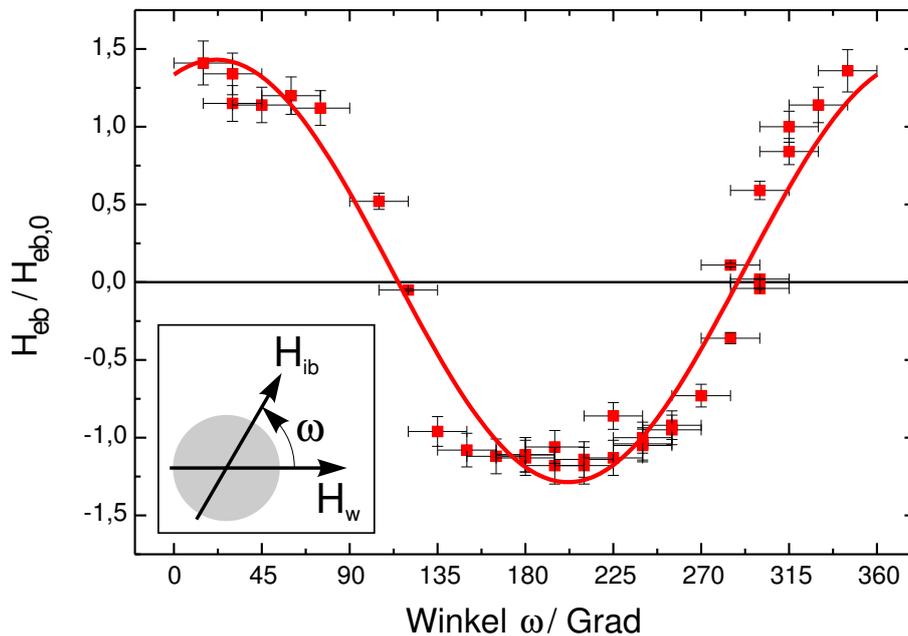


Abbildung 8.8: Relative Änderung der Exchange-Bias Feldstärke durch die Ionenbestrahlung unter verschiedenen Winkeln (ω) zwischen Wachstumfeld (H_w) und Bestrahlungsfeld (H_{ib}). Die Messung der Hysteresekurven erfolgte immer parallel zu H_w . Es ergibt sich näherungsweise ein kosinusförmiger Verlauf für $H_{eb}/H_{eb,0}$.

Abbildung 8.8 zeigt die relativen Änderungen der Exchange-Bias Feldstärke in Abhängigkeit vom Winkel ω . Das Magnetfeld der KERR-Messungen war dabei immer parallel zur Richtung von H_w . Die Winkel $\omega = 0^\circ$ und $\omega = 360^\circ$ entsprechen den Experimenten mit $H_{ib} \parallel H_w$ und $\omega = 180^\circ$ entspricht $H_{ib} \perp H_w$. Bei $\omega = 90^\circ$ und $\omega = 270^\circ$ wird die Richtung der unidirektionalen Anisotropie durch die Ionenbestrahlung gerade um 90° relativ zur Richtung von H_w gedreht. Die KERR-Messung liefert deshalb eine Hysteresekurve in schwerer Magnetisierungsrichtung mit $H_{eb} = 0$. Bei anderen Winkeln wird eine Austauschverschiebung gemessen, die der Projektion des Austauschfeldes nach der Ionenbestrahlung auf die Achse parallel zum Magnetfeld der KERR-Messung entspricht. Dadurch ergibt sich näherungsweise

eine $\cos(\omega)$ -Abhängigkeit von H_{eb} bzw. $H_{\text{eb}}/H_{\text{eb},0}$.

Die Ergebnisse dieser Experimente zeigen, dass die Richtung der unidirektionalen Anisotropie durch die Ionenbestrahlung im Magnetfeld beliebig eingestellt werden kann. Die Abweichungen vom kosinusförmigen Verlauf der Messwerte werden vermutlich durch die relativ große Ungenauigkeit bei der Einstellung des Winkels ω verursacht. Die Richtung von H_{ib} relativ zu H_{w} kann nur per Augenmaß anhand einer kleinen Markierung an einer Seite des Substrats (Abb. 8.3) vorgenommen werden. Gleiches gilt für die Ausrichtung der Probe im Magnetfeld des KERR-Magnetometers. Die Messunsicherheit für ω wurde deshalb mit $\Delta\omega \approx \pm 15^\circ$ abgeschätzt, was den Fehlerbalken in Abb. 8.8 entspricht.

8.1.3 Qualitatives Modell

Beim Abbremsen der Ionen wird Energie auf die Targetatome übertragen. Es kommt zu Versetzungen und Fehlstellen im Schichtsystem. Die Anzahl der erzeugten Defekte nimmt mit steigender Ionendosis zu. Dies kann als gesichert angesehen werden.

Im unteren Dosisbereich bis etwa $2 \cdot 10^{14}$ Ionen/cm² führt die mit der Ionendosis zunehmende Grenzflächen-Rauigkeit zwischen AF und FM zur Erhöhung der Austauschanisotropie. Dieses Verhalten kann im Rahmen des Modells von MALOZEMOFF (Abschnitt 2.3.2) durch die zusätzlich Bildung von Domänen im AF erklärt werden. Durch die steigende Anzahl an Defekten ist es für den AF günstiger in Domänen aufzuspalten.

Die Richtung der „neuen“, zusätzlichen Beiträge zur Austauschanisotropie hängt dabei von der Magnetisierungsrichtung des FM ab. Der FM ist während der Ionenbestrahlung durch das äußere Feld (H_{ib}) gesättigt, wodurch die Richtung vorgegeben wird. Ab einer gewissen Schwellendosis (Abb. 8.9) überwiegen die Kopplungen in der „neuen“ Richtung. Für eine Domäne ist es dann energetisch günstiger, sich entsprechend der Magnetisierungsrichtung des FM auszurichten. Die makroskopisch gemessene Austauschanisotropie nimmt dadurch mit steigender Ionendosis die Richtung der Magnetisierung des FM an.

Die im Volumen des AF durch die Ionenbestrahlung erzeugten Defekte tragen vermutlich ebenfalls zur beobachteten Erhöhung der Austauschverschiebung bei. Nach dem Modell der „verdünnten Antiferromagnete“ [148, 252] können auch Volumendefekte die unidirektionale Anisotropie verstärken. Durch die Defekte wird die Symmetrie der langreichweitigen antiferromagnetischen Ordnung gestört und der AF bricht in Domänenstrukturen auf. Nach diesem Modell trägt jegliche Unordnung im AF zur Erhöhung der Austauschanisotropie bei. Die Ergebnisse aus Abschnitt 7.3 weisen allerdings darauf hin, dass dies zur Reduzierung der thermischen Stabilität der Austauschanisotropie führen kann.

Die irreversible Erhöhung der Grenzflächen-Rauigkeit durch die Ionenbestrahlung kann durch einen erneuten Temperprozess nicht mehr rückgängig gemacht werden. Das erklärt, warum die relative Änderung von H_{eb} auch nach dem Tempern der Schichtsysteme erhalten bleibt wie es experimentell bestätigt wurde [31, 244].

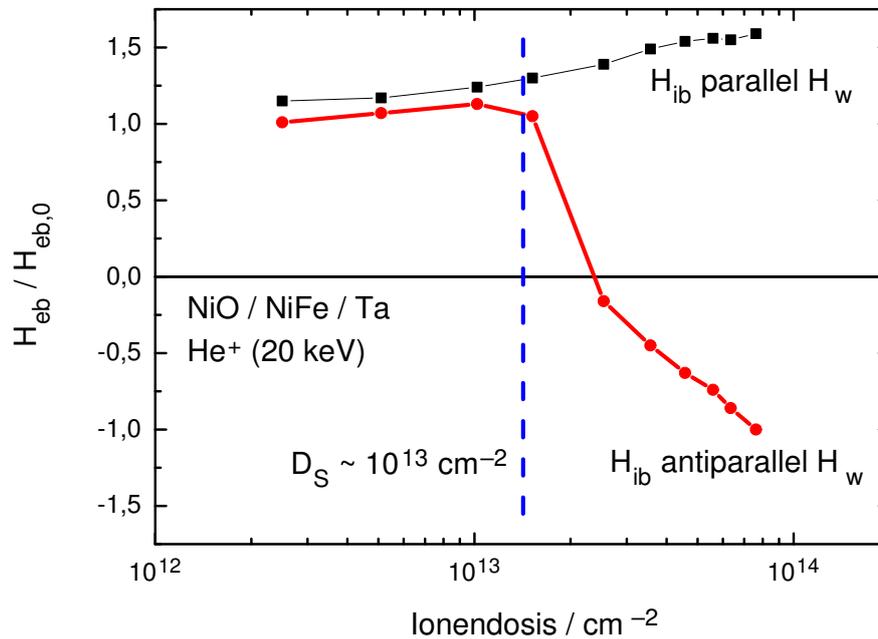


Abbildung 8.9: Zur Umkehr der makroskopisch gemessenen Austauschverschiebung muss bei $H_{ib} \parallel H_w$ (\bullet) eine Schwellendosis (D_S) der Größenordnung 10^{13} Ionen/ cm^2 eingebracht werden, während H_{eb} bei $H_{ib} \parallel H_w$ (\blacksquare) kontinuierlich mit der Dosis ansteigt.

Bei weiter steigender Ionendosis wird die Durchmischung der Schichten so stark, dass die Austauschisotropie wieder reduziert wird. Dass die Durchmischung bei steigender Dosis zunimmt ist sicher, denn ab etwa 10^{16} Ionen/ cm^2 wird kein KERR-Signal mehr gemessen, was auf die weitgehende Zerstörung der ferromagnetischen Schichten schließen lässt. Dies bestätigen auch die Ergebnisse in Abschnitt 8.1.4.

8.1.4 Einfluss der Ionenbestrahlung auf den GMR

Eine potentielle Anwendung der Manipulation der Austauschisotropie durch Ionenbestrahlung ist die gezielte Veränderung der Kennlinien magnetoresistiver Bauelemente wie Spin-Valves [32]. Wie in Abschnitt 8.1.2 gezeigt wurde, kann mit Hilfe der Ionenbestrahlung die Austauschverschiebung eines Schichtsystems in einem weiten Bereich verändert werden. Allerdings wird es durch die Bestrahlung mit He^+ -Ionen auch zur Durchmischung der einzelnen Schichten in dem System kommen. Der GMR hängt stark von der Beschaffenheit der Grenzflächen sowie der Defektdichte in einem Schichtsystem ab (s. Kapitel 1). Deshalb wird die Manipulation der Austauschisotropie durch Ionenbestrahlung auch den Magnetowiderstand beeinträchtigen. Um den Einfluss der Ionenbestrahlung auf den GMR zu untersuchen, wurden Spin-Valve Systeme mit verschiedenen Ionendosen bestrahlt und die Mag-

netowiderstandskurven gemessen.

Die Experimente wurden mit Si/Ta(5,3)/Co(3,7)/Cu(2,4)/Co(3,7)/FeMn(9,6)/Ta(5,3) Spin-Valve Systemen durchgeführt (nominelle Schichtdicken in nm). Die Schichtfolge entspricht also der Anordnung in Abb. 1.6 (links). Die Schichten wurden freundlicherweise von Herrn BERTHOLD OCKER mit einer kommerziellen Magnetron-Sputteranlage *Cyberite PVD* der Firma *Unaxis* hergestellt und für die Experimente zur Verfügung gestellt. Die Sputteranlage hat maximal 10 Targets ($\varnothing = 12'' = 30,48$ cm) und ist für die industrielle Produktion von Spin-Valves und MRAMs auf Substraten bis zu einem Durchmesser von $8'' (= 20,32$ cm) ausgelegt. Der Restgasdruck ist typischerweise im Bereich 10^{-9} mbar. Bei den untersuchten Proben handelte es sich um ca. $15 \cdot 15$ mm² große Teilstücke beschichteter $6'' (= 12,24$ cm) Si-Wafer mit (100)-Orientierung.

Eine typische Magnetisierungs- und Magnetowiderstandskurve dieser FeMn-Spin-Valves ist in Abb. 1.5 dargestellt. Die Eigenschaften der einzelnen Teilstücke eines Wafers unterschieden sich nur geringfügig, d. h. die Beschichtung der Wafer erfolgte sehr homogen. Die relativen Abweichungen der magnetischen und magnetoresistiven Messwerte vom Mittelwert lag unter 10 %.

Zuerst wurde der Einfluss der Ionenbestrahlung auf die magnetischen Eigenschaften der Schichtsysteme untersucht. Dazu wurden einzelne Proben mit verschiedenen Ionendosen bestrahlt. Die Energie der Ionen war konstant 10 keV. Mit dem KERR-Magnetometer wurden die Magnetisierungskurven der bestrahlten Bereiche aufgenommen. Abbildung 8.10 zeigt die aus den Messungen gewonnenen Werte der Austauschverschiebung (H_{eb}) in Abhängigkeit von der applizierten Ionendosis. Das Bestrahlungsfeld (H_{ib}) war entweder parallel zum Wachstumfeld (H_{w}) gerichtet (Abb. 8.10, oben) oder antiparallel (unten). Aufgetragen sind H_{eb} der gekoppelten Schicht und die Verschiebung der freien Schicht (H_{e}), die ein Maß für die magnetostatische Kopplung zwischen den beiden ferromagnetischen Kobalt-Lagen ist (s. Abschnitt 1.3.2).

Der Verlauf der Kurven in Abb. 8.10 entspricht im Wesentlichen den Ergebnissen der Experimente mit den NiO/NiFe/Ta Schichtsystemen (Abschnitt 8.1). Auch für NiFe/FeMn Doppelschichten wurden ähnliche Ergebnisse erhalten [244]. Die Richtung der Austauschverschiebung lässt sich durch das Magnetfeld während der Ionenbestrahlung verändern und die maximale Erhöhung von $|H_{\text{eb}}|$ um etwa 100 % erfolgt bei einer Ionendosis $D \approx 2 \cdot 10^{14}$ cm⁻². Bei weiter steigender Ionendosis nimmt H_{eb} als Folge der zunehmenden Durchmischung im Schichtsystem ab. H_{eb} ist Null bei $D \gtrsim 65 \cdot 10^{14}$ cm⁻² im Fall des parallelen Magnetfeldes (Abb. 8.10, oben), während dazu bei antiparallelem Magnetfeld etwas höhere Dosen von $D \gtrsim 85 \cdot 10^{14}$ cm⁻² erforderlich sind (Abb. 8.10, unten). Dieses unterschiedliche Verhalten lässt vermuten, dass die Unsicherheit bei den angegebenen Ionendosen größer ist als angenommen. Die Ursache dafür könnte eine Drift des Strahlstroms während einer Bestrahlungsserie sein.

Interessant ist die Änderung der Verschiebung der freien Schicht (H_{e}) bei steigender Ionendosis (D). Bei parallelem Magnetfeld (Abb. 8.10, oben) bleibt $H_{\text{e}}(D)$

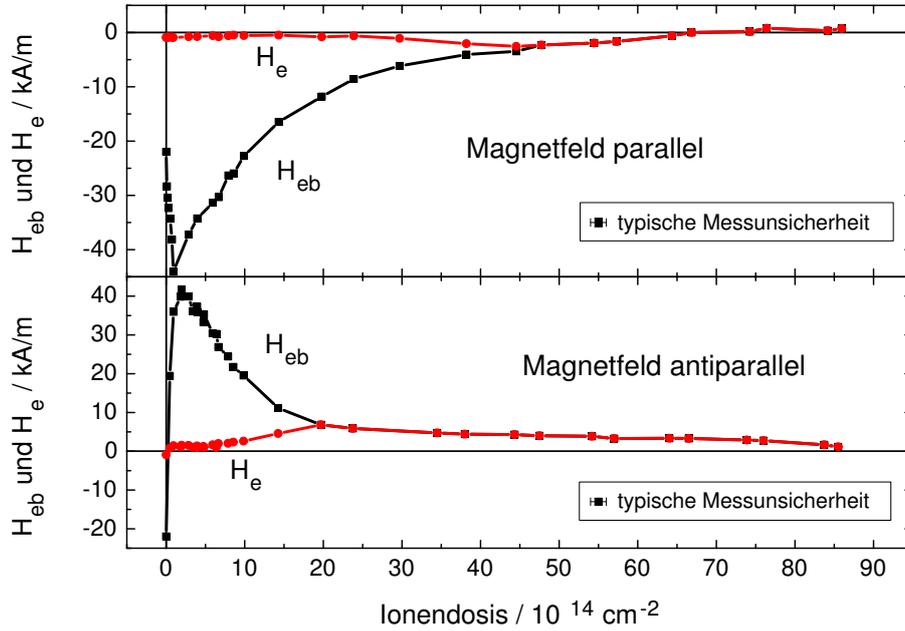


Abbildung 8.10: Änderung der Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) (■) und der Verschiebung der freien Schicht (H_e) (●) in Abhängigkeit von der Ionendosis bei $H_{ib} \parallel H_w$ (oben) und $H_{ib} \perp H_w$ (unten).

zunächst konstant. Ab $D \gtrsim 15 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ nimmt die magnetostatische Kopplung zwischen den beiden ferromagnetischen Schichten deutlich zu und H_e steigt an. Bei $D \gtrsim 45 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ ist die ferromagnetische Kopplung zwischen den Schichten so stark, dass sie sich magnetisch wie eine einzelne Schicht verhalten und bei gleich großen Feldstärken ummagnetisiert werden. Es wird nur noch eine Hysteresekurve mit doppelter Amplitude gemessen. Die Felder H_e und H_{eb} sind deshalb gleich groß.

Bei antiparallelem Magnetfeld (Abb. 8.10, unten) wechselt H_e bereits bei kleinen Ionendosen das Vorzeichen, wenn H_{eb} das Vorzeichen wechselt. Der Betrag von H_e ändert sich zunächst proportional zu H_{eb} . Dieses Verhalten verdeutlicht noch einmal den ferromagnetischen Charakter der Kopplung zwischen den beiden Schichten. Ab $D \gtrsim 5 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ ist hier ein starker Anstieg von H_e zu beobachten. Die magnetostatische Kopplung zwischen den beiden Kobalt-Schichten dominiert bei $D \gtrsim 20 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ und $H_e = H_{eb}$.

Die Ursache der mit steigender Ionendosis zunehmenden ferromagnetischen Kopplung zwischen den Co-Schichten liegt in der Aufrauung der Co/Cu Grenzflächen durch die Ionenbestrahlung. Die Ionen stoßen auf die Atome im Schichtsystem und übertragen dabei Energie auf die Schichtatome, was zur Durchmischung der einzelnen Lagen und Aufrauung der Grenzflächen führt. Nach dem Modell der „orange-peel“ Kopplung nimmt die Kopplungsenergie mit wachsender Rauigkeit der Grenzflächen zu (Gl. 1.6). Ist die ferromagnetische Kopplung stärker als die Austauschkopplung zwischen Antiferromagnet und Ferromagnet, so verhalten sich die

beiden Schichten wie eine einzelne ferromagnetische Schicht und werden bei gleich großen Feldstärken ummagnetisiert. In diesem Fall wird $H_e = H_{eb}$ gemessen.

Die magnetischen Messungen zeigen bereits, dass die Ionenbestrahlung irreversible Schäden im Schichtsystem und speziell an den Grenzflächen erzeugt. Der Magnetowiderstand ist sehr sensitiv auf Veränderungen und Verunreinigungen der Grenzflächen und wird deshalb von der Ionenbestrahlung nicht unabhängig sein. Experimentell wurde diese Vermutung durch die homogene Bestrahlung ganzer Proben (ca. $15 \cdot 15 \text{ mm}^2$) mit unterschiedlichen Ionendosen bestätigt. Zur flächenhaften Bestrahlung wurden mehrere aneinander angrenzende ca. 2 mm breite, parallel verlaufende Bahnen auf den Proben bestrahlt, so dass sich eine näherungsweise einheitliche Ionendosis für die gesamte Fläche ergab. Die Unsicherheit bei der Angabe der resultierenden Ionendosis ist dadurch größer.

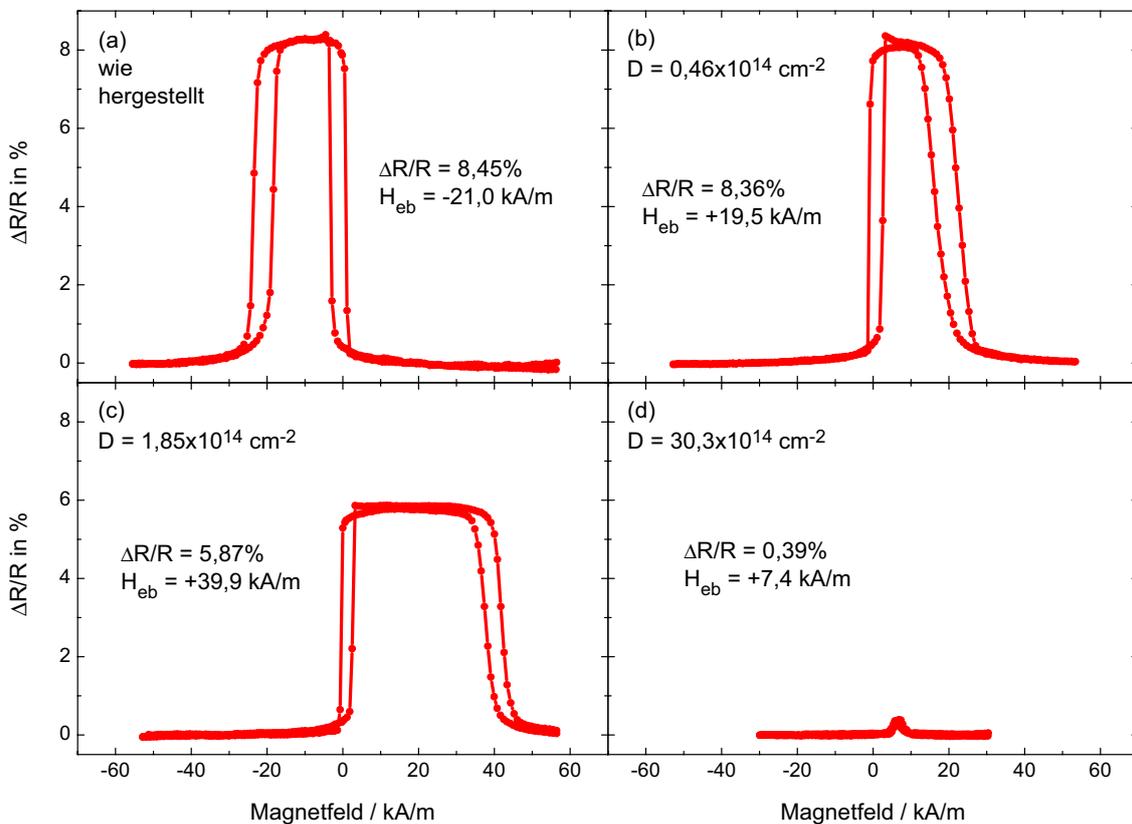


Abbildung 8.11: Magnetowiderstandskurven der FeMn-Spin-Valves vor (a) und nach (b–d) der Bestrahlung mit verschiedenen Ionendosen (D). Angegeben sind die Magnetowiderstandswerte ($\Delta R/R$) und Exchange-Bias Feldstärken (H_{eb}). Es war $H_{ib} \parallel H_w$, weshalb H_{eb} das Vorzeichen wechselt (a \rightarrow b).

Die Magnetowiderstandskurven von vier FeMn-Spin-Valves sind in Abb. 8.11 enthalten. Teilbild (a) zeigt die Kurve eines Schichtsystems, das nicht mit Io-

nen bestrahlt wurde. Der Magnetowiderstandswert beträgt $\Delta R/R = 8,45\%$ und $H_{\text{eb}} = -21$ kA/m. Durch die Bestrahlung mit einer relativ niedrigen Ionendosis ($D = 0,46 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$) und $H_{\text{ib}} \perp H_{\text{w}}$ kann die Richtung der Austauschisotropie invertiert werden (Abb. 8.11, b). Der Betrag von H_{eb} bleibt in etwa erhalten und $\Delta R/R$ nimmt nur sehr wenig auf $8,36\%$ ab. Durch die Ionenbestrahlung ist es also möglich, die Richtung der Austauschisotropie zu invertieren, ohne den Magnetowiderstandswert deutlich zu reduzieren.

Die maximale Änderung der Austauschverschiebung wird erst bei einer Ionendosis $D \approx 2 \cdot 10^{14} \text{ cm}^{-2}$ erreicht (Abb. 8.10). Durch die Bestrahlung mit einer Dosis dieser Größenordnung wird $\Delta R/R$ jedoch bereits erheblich beeinträchtigt, wie es in Abb. 8.11 (c) zu sehen ist. Zwar steigt die Exchange-Bias Feldstärke um fast 100 % auf $H_{\text{eb}} = 39,9$ kA/m an, aber gleichzeitig sinkt $\Delta R/R$ auf $5,87\%$. Bei den gewählten Bestrahlungsparametern lässt sich eine signifikante Erhöhung von H_{eb} unter Beibehaltung der Magnetowiderstandsamplitude in diesem Schichtsystem demnach nicht realisieren. Die strukturellen Änderungen im Schichtsystem, die zur Erhöhung der Austauschisotropie führen, haben bei diesen Ionendosen und dieser Ionenenergie bereits großen Einfluss auf die magnetoresistiven Eigenschaften.

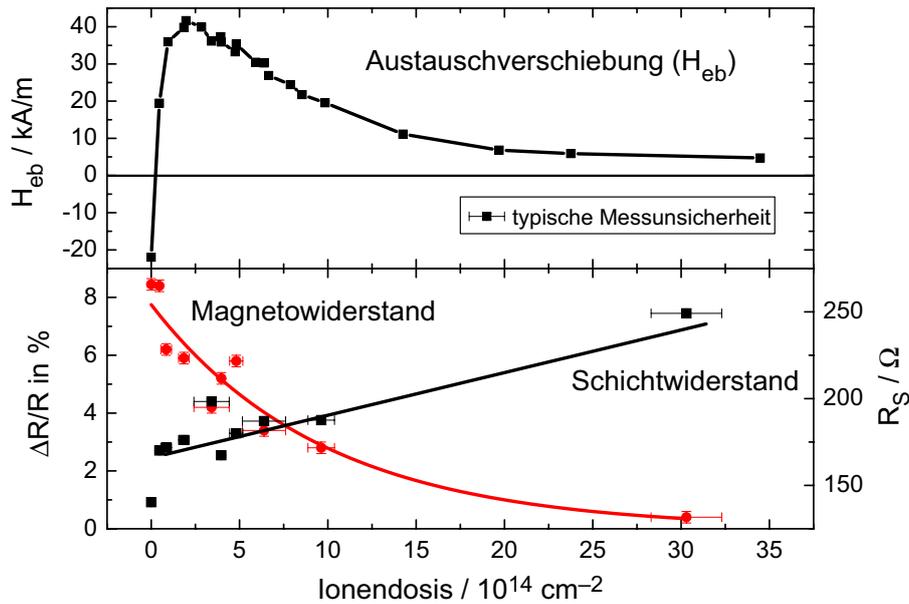


Abbildung 8.12: Der Magnetowiderstandswert ($\Delta R/R$) nimmt mit der Ionendosis ab, während der Schichtwiderstand (R_S) näherungsweise linear ansteigt (unten). Zum Vergleich ist oben die dosisabhängige Änderung von H_{eb} aus Abb. 8.10 aufgetragen.

Bei weiter steigender Ionendosis nimmt $\Delta R/R$ rasch ab bis schließlich kaum noch eine Amplitude messbar ist (Abb. 8.11, d). Es tragen zwei Effekte zur Reduzierung von $\Delta R/R$ bei. Aufgrund der fortschreitenden Durchmischung der Schichten nimmt die ferromagnetische Kopplung zwischen freier und gekoppelter Schicht zu

($H_e \approx H_{eb}$), wodurch der Feldbereich mit antiparalleler Magnetisierung zunehmend eingengt wird. Außerdem steigt die Defektdichte im Schichtsystem an und spin-unabhängige Streuprozesse nehmen zu, was die Spin-Asymmetrie und damit den Magnetowiderstandswert reduziert (s. Abschnitt 1.2).

Die aus den Magnetowiderstandskurven erhaltenen $\Delta R/R$ -Werte sind in Abb. 8.12 als Funktion der Ionendosis aufgetragen. Mit steigender Dosis nimmt $\Delta R/R$ näherungsweise exponentiell ab. Für den Zusammenhang zwischen Ionendosis (D) und $\Delta R/R$ wurde

$$\frac{\Delta R}{R}(D) = \frac{\Delta R}{R}(0) \cdot e^{-\beta D} \quad (8.7)$$

gefunden. Der Koeffizient (β) ist ein Maß für die pro einfallendem Ion hervorgerufene Schädigung des Schichtsystems. β wird von der Masse und Energie der Ionen sowie von den Schichteigenschaften abhängen.

Der Widerstand des Schichtsystems, der dem Sättigungswiderstand (R_S) entspricht, nimmt mit steigender Ionendosis näherungsweise linear zu (Abb. 8.12, unten). Dies ist ein Zeichen für die ansteigende Defektdichte im Schichtsystem, die zur Reduzierung der mittleren freien Weglänge der Elektronen beiträgt und den Widerstand erhöht (Gl. 1.3).

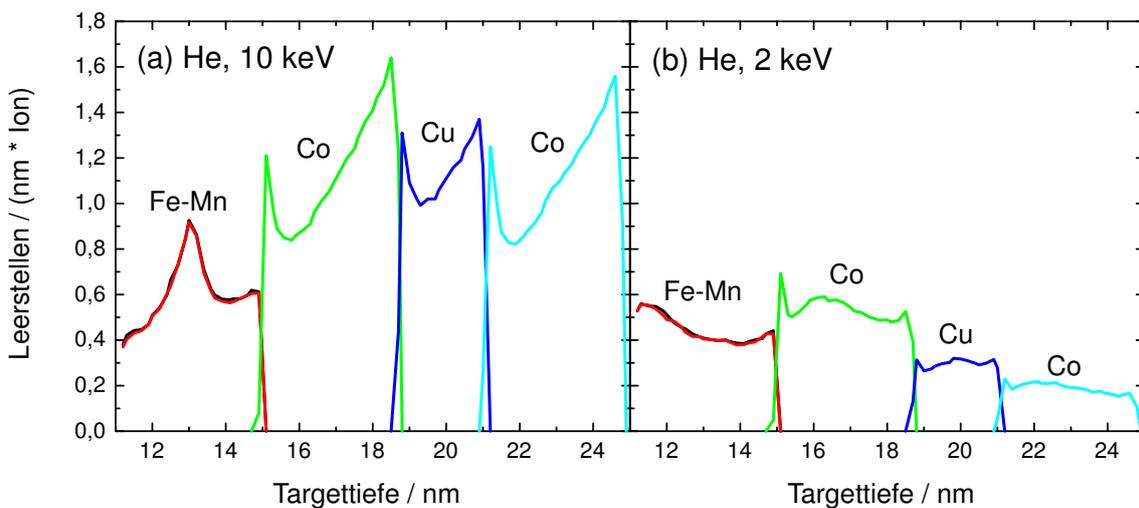


Abbildung 8.13: Berechnete Leerstellen pro Nanometer und einfallendem Ion in den einzelnen Schichten der untersuchten FeMn-Spin-Valves für 10^5 He^+ -Ionen der Energie 10 keV (a) und 2 keV (b).

Bei antiferromagnetisch gekoppelten Fe/Cr Vielfachschichten wurde durch Ionenbestrahlung mit 500 keV Xe^+ -Ionen bei niedrigen Dosen ($< 10^{13} \text{ cm}^{-2}$) sogar eine Erhöhung des Magnetowiderstandswerts beobachtet [253]. Die Autoren führten den Anstieg von $\Delta R/R$ auf eine Zunahme der Grenzflächen-Rauigkeit im Schichtsystem zurück, wodurch die Streuwahrscheinlichkeit an den Grenzflächen zunimmt.

Mit steigender Ionendosis nahm $\Delta R/R$ in Folge der zunehmenden ferromagnetischen Kopplung der Fe-Schichten ab.

Bei den hier untersuchten FeMn basierten Spin-Valves wurde keine Erhöhung von $\Delta R/R$ durch die Ionenbestrahlung gemessen. Die Bestrahlung mit 10 keV He⁺-Ionen bei den zur Manipulation der Exchange-Bias Feldstärke erforderlichen Ionendosen (10^{13} bis 10^{15} cm⁻²) führte immer zur Reduzierung von $\Delta R/R$. Berechnungen mit dem Programm SRIM-2000 [249, 250] zeigen, dass die Defektdichte bei einer Ionenenergie von 10 keV gerade im Bereich der, für den Magnetowiderstand ausschlaggebenden, Co/Cu/Co Schichten und der Grenzflächen maximal ist (Abb. 8.13, a). Bei niedrigeren Ionenenergien werden in diesem Bereich weniger Leerstellen erzeugt (Abb. 8.13, b). Die Dichte der Leerstellen im Bereich der Co/Cu/Co Schichten ist bei einer Ionenenergie von 2 keV wesentlich niedriger, weil die Ionen verstärkt in der FeMn-Schicht abgebremst werden.

8.2 Bestrahlung mit kurzen Laserpulsen

Eine lokale Manipulation der Austauschkopplung sollte sich nicht nur durch Ionenbestrahlung (Abschnitt 8.1), sondern auch durch lokales Aufheizen und Abkühlen einer Probe in einem äußeren Magnetfeld erreichen lassen. Bei der Verwendung kurzer, fokussierter Laserpulse zum Aufheizen eines dünnen Schichtsystems beträgt die thermische Länge, d. h. die Ausbreitung der thermischen Welle, nur einige Nanometer bis Mikrometer im Material. Die Temperaturerhöhung findet demnach nur im Bereich des Laserfokus statt. Mit kurzen Laserpulsen sollte es also prinzipiell möglich sein, ein Schichtsystem aus Antiferromagnet und Ferromagnet lokal über die NÉEL-Temperatur aufzuheizen, so dass die Austauschisotropie beim Abkühlen in einem Magnetfeld neu ausgerichtet wird.

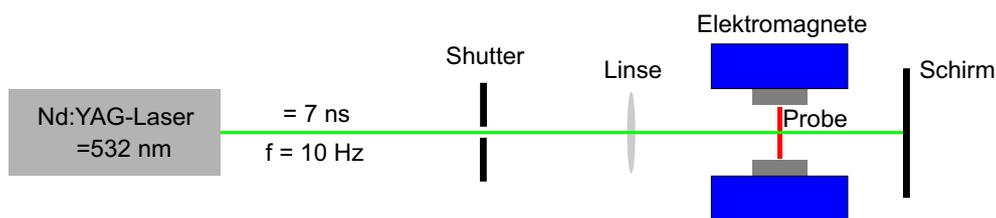


Abbildung 8.14: Experimenteller Aufbau zur Manipulation der Austauschisotropie durch kurze Laserpulse.

Erste Experimente zu diesem Verfahren wurden in Kooperation mit JOHANNES BOSBACH und CHRISTIAN HENDRICH aus der Arbeitsgruppe Experimentalphysik I der Universität Kassel durchgeführt. Die experimentelle Anordnung ist in Abb. 8.14 schematisch dargestellt. Zum Einsatz kam ein gepulster Nd:YAG-Laser, der Licht einer Wellenlänge $\lambda = 532$ nm bei einer Pulsdauer $\tau_p = 7$ ns abgibt. Die Wiederhol-

frequenz der Pulse betrug $f = 10$ Hz. Durch einen elektromechanischen Shutter war es möglich, eine bestimmte Anzahl von Laserpulsen für ein Experiment zu nutzen. Der Laserstrahl wurde durch eine Linse auf einen Durchmesser von etwa 3 mm auf der Probenoberfläche fokussiert. Die Probe befand sich dabei in einer Halterung aus Messing, so dass sie vom Laserstrahl ungehindert durchstrahlt werden konnte. Das Magnetfeld am Ort der Probe (H_{lb}) wurde durch Elektromagnete erzeugt und lag in der Schichtebene.

Verwendet wurden NiO(50 nm)/NiFe(5 nm)/Ta(2 nm) Schichtsysteme wie sie für die Experimente mit der Ionenbestrahlung (Abschnitt 8.1) benutzt wurden. Zehn Proben mit einem Durchmesser von jeweils 2,5 mm befanden sich auf einem Glassubstrat (Abb. 8.3). Die Proben wurden nach der Herstellung im Magnetfeld getempert, um die Stabilität der Austauschisotropie zu erhöhen (Abschnitt 7.2). Die Exchange-Bias Feldstärke der einzelnen Proben betrug nach dem Tempern typischerweise $H_{\text{eb},0} \approx 11$ kA/m (Abb. 8.17, a).

Für eine geeignete Wahl der Laserleistung ist es erforderlich, zunächst die Größenordnung des Temperaturanstiegs in einem solchen Schichtsystem während eines Laserpulses abzuschätzen. Für diese Abschätzung wird angenommen, dass der größte Teil der Strahlung in dem Schichtsystem absorbiert wird und die Wärme an das Substrat abgegeben wird. Das Glassubstrat wird als ideal optisch transparent betrachtet. Mit den Werten aus Tabelle 8.1 sind die Temperaturleitfähigkeiten von Quarz-Glas $\kappa_{\text{Glas}} = kM_{\text{mol}}/\rho c_p = 6,25 \cdot 10^{-7}$ m²/s und von NiO $\kappa_{\text{NiO}} = 2,54 \cdot 10^{-6}$ m²/s.

| | | |
|-------------------|-----------------------|---|
| Quarz-Glas | Wärmeleitfähigkeit | $k = 1,6$ W/(m K) |
| | molare Wärmekapazität | $c_p = 50$ J/(mol K) |
| | Dichte | $\rho = 2,65 \cdot 10^6$ g/m ³ |
| | molare Masse | $M_{\text{mol}} = 60$ g/mol |
| NiO | Wärmeleitfähigkeit | $k \approx 10$ W/(m K) |
| | molare Wärmekapazität | $c_p = 44$ J/(mol K) |
| | Dichte | $\rho = 6,72 \cdot 10^6$ g/m ³ |
| | molare Masse | $M_{\text{mol}} = 75$ g/mol |

Tabelle 8.1: Materialeigenschaften bei ca. 500 K [145, 203].

Die Ausbreitung der thermischen Welle im Material während der Einwirkung des Laserpulses der Dauer τ_P ist gegeben durch die thermische Länge [254]

$$l_{\text{th}} = \sqrt{\kappa \tau_P}. \quad (8.8)$$

Die Pulsdauer des Nd:YAG-Lasers beträgt $\tau_P = 7$ ns, womit die thermische Länge in NiO $l_{\text{th}} \approx 130$ nm beträgt. Das heißt, die Erwärmung der Probe beschränkt sich im Wesentlichen auf die Fläche des Laserspots, der mit einem Durchmesser von ca. 3 mm groß ist gegen die laterale Ausbreitung der thermischen Welle. Außerdem ist l_{th} größer als die Dicke des Schichtsystems, so dass der Laserpuls die komplette Schichtdicke von 57 nm aufheizt.

Wenn der Durchmesser bzw. der Radius (R_S) des Laserspots groß ist gegen die thermische Länge ($R_S \gg l_{th}$), geht man davon aus, dass sich die thermische Welle senkrecht zur Oberfläche in die Probe ausbreitet und die lateralen Wärmeverluste vernachlässigt werden können [254]. Man spricht in diesem Fall von einer planaren thermischen Welle. Für eine halb-unendliche Probe, die an der Oberfläche durch einen Laserpuls erwärmt wird, kann die eindimensionale Wärmeleitungsgleichung aufgestellt werden. Daraus kann die Temperatur (T) als Funktion der Ortskoordinate (z) senkrecht zur Oberfläche und der Zeit (t) berechnet werden [254]

$$T(z, t) = \frac{2AI_0}{k} \sqrt{\kappa t} \operatorname{erfc} \left(\underbrace{\frac{z}{2\sqrt{\kappa t}}}_{\eta} \right) = \frac{2AI_0}{k} \sqrt{\kappa t} \int_{\eta}^{\infty} \operatorname{erfc} \xi \, d\xi. \quad (8.9)$$

Dabei ist A der Absorptionsgrad der Probe, I_0 die Laserintensität, k die Wärmeleitfähigkeit und κ die Temperaturleitfähigkeit des Materials. Gleichung (8.9) gilt unter der Annahme, dass die Intensität des Laserpulses nicht mit der Zeit variiert, also $I(t \leq \tau_P) = I_0$. Die laterale Intensität des Laserstrahls soll dabei konstant sein: $I(r \leq R_S) = I_0$ und $I(r > R_S) = 0$.

Unberücksichtigt bleibt bei dieser Betrachtung, dass die thermischen Materialeigenschaften (k, κ) sowie der Absorptionsgrad (A) temperaturabhängig sind. Für viele Fälle können sie jedoch in guter Näherung als konstant angenommen werden [254]. Außerdem werden thermische Verluste, z. B. durch Abstrahlung, in diesem Modell nicht berücksichtigt.

Die Schichten sind im Vergleich zum Substrat sehr dünn ($57 \text{ nm} \ll 200 \text{ }\mu\text{m}$) und die meiste Strahlung wird in der Nähe der Oberfläche absorbiert. Für die Berechnung der Temperatur in der Schicht wird deshalb näherungsweise $z = 0$ gesetzt. Dadurch vereinfacht sich Gl. (8.9) zu

$$T(0, t) = \frac{2AI_0}{k} \sqrt{\kappa t / \pi} = \frac{2AF}{k\tau_P} \sqrt{\kappa t / \pi} \quad (8.10)$$

mit $F = I_0\tau_P$ der Fluenz des Lasers. Die Wärmeabfuhr wird im Wesentlichen durch die thermischen Eigenschaften des Glassubstrats bestimmt und begrenzt. Deshalb sind für die Berechnung des Temperaturanstiegs die thermischen Konstanten (κ, k) vom Glassubstrat maßgebend.

Die optische Absorption eines NiO/NiFe/Ta Schichtsystems wurde mit einem Spektrometer (Firma *Perkin Elmer*, Typ *Lambda 900*) mit optionalem Reflexionsaufsatz bestimmt. Dazu wurde der Transmissionsgrad und der Reflexionsgrad in Abhängigkeit von der Wellenlänge in einem Bereich von 300–850 nm bei senkrechtem Lichteinfall gemessen (Abb. 8.15). Die Beiträge vom Glassubstrat wurden bei jeder Messung abgezogen. Wegen der Energieerhaltung ist die Summe aus Transmissions-, Reflexions- und Absorptionsgrad gleich eins. Damit kann aus den gemessenen Spektren das Absorptionsspektrum berechnet werden. Bei $\lambda = 532 \text{ nm}$ beträgt der Absorptionsgrad des Schichtsystems $A = 0,21$. Dieser Wert wurde für die Berechnung des Temperaturanstiegs benutzt.

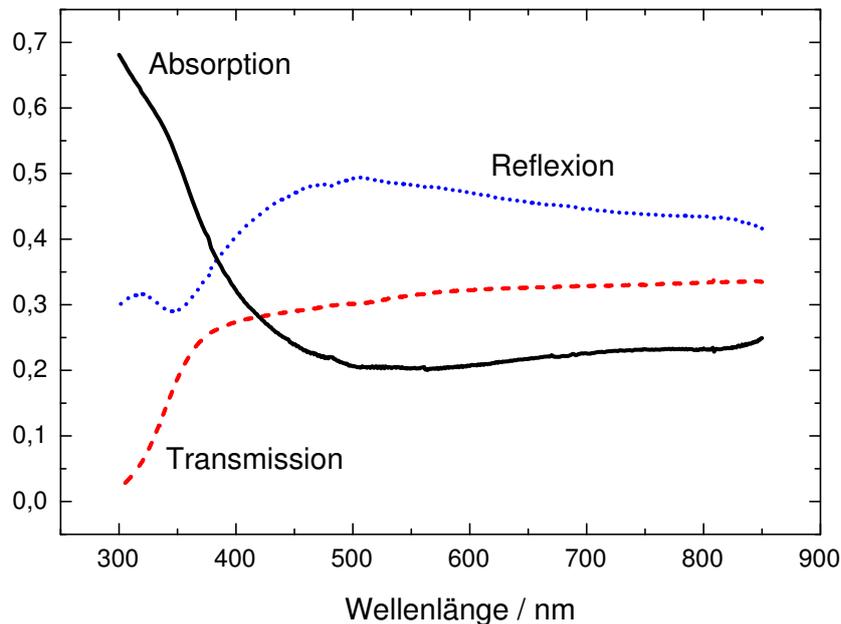


Abbildung 8.15: Transmissions-, Reflexions- und Absorptionsgrad eines NiO(50 nm)/NiFe(5 nm)/Ta(2 nm) Schichtsystems auf Glas.

Eigentlich handelt es sich um ein System aus Schicht und Substrat. Für eine exakte Berechnung der Temperatur müsste deshalb der Wärmeübergang zwischen Schicht und Substrat berücksichtigt werden. Dieser Wert ist jedoch nicht bekannt. Bei Gl. (8.10) handelt es sich also um eine grobe Abschätzung des Temperaturanstiegs während eines Laserpulses, die jedoch für die Planung der Experimente ausreichte.

In Abb. 8.16 ist die nach Gl. (8.10) berechnete Temperatur als Funktion der Zeit ($t \leq \tau_P$) aufgetragen. Dieser Abschätzung zufolge wird die Temperatur im Schichtsystem ab einer Fluenz $F \gtrsim 20 \text{ mJ/cm}^2$ über die NÉEL-Temperatur von NiO ($T_N = 520 \text{ K}$) ansteigen. Für die Experimente wurden deshalb Fluenzen zwischen 15 und 40 mJ/cm^2 gewählt, was bei den gegebenen Bedingungen einer mittleren Laserleistung von etwa 10 bis 30 mW entspricht.

Bei den ersten Experimenten wurden die Schichtsysteme mit jeweils 100 Laserpulsen bestrahlt. Die Fluenz des Laserlichts wurde zwischen 14 und 45 mJ/cm^2 variiert. Der Betrag des äußeren Magnetfeldes während der Laserbestrahlung war konstant $|H_{lb}| = 55 \text{ kA/m}$. Die Richtung des Feldes wurde entweder parallel zum Wachstumsfeld ($H_{lb} \parallel H_w$) oder antiparallel zu diesem ($H_{lb} \perp H_w$) gewählt.

Anschließend Messungen mit dem KERR-Magnetometer an den bestrahlten Bereichen zeigten bei niedrigen Fluenzen $F < 25 \text{ mJ/cm}^2$ stufenförmige Hysteresekurven, wie sie in Abb. 8.17(b) zu sehen ist. Während ein Teil des Schichtsystems noch die ursprüngliche Austauschverschiebung aufweist ($H_{eb} = -11 \text{ kA/m}$), wurde

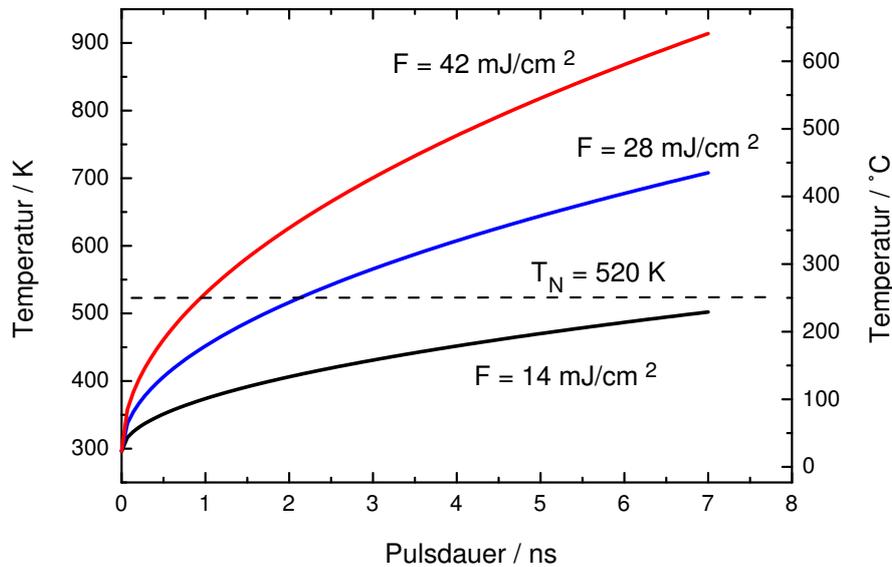


Abbildung 8.16: Geschätzter Temperaturanstieg im Schichtsystem nach Gl. (8.10) während eines 7 ns Laserpulses bei verschiedenen Fluenzen (F). Die NÉEL-Temperatur von NiO ($T_N = 520$ K) wird ab einer Fluenz $F \gtrsim 20$ mJ/cm² überschritten.

die Richtung der Austauschverschiebung in anderen Bereichen durch die Laserpulse und das äußere negative Magnetfeld umgekehrt ($H_{\text{eb}} = +4,51$ kA/m).

Die Ursache dieser Ergebnisse liegt in der Messtechnik des KERR-Magnetometers. Das KERR-Signal stammt aus einem Probenbereich mit einem Durchmesser von ca. 1,5 mm, wenn das Magnetometer ohne fokussierende Linse betrieben wird (s. Abschnitt 5.1.2). Innerhalb dieses Messbereichs müssen also Bereiche unterschiedlicher Austauschverschiebung existieren, um eine derartige stufenförmige Magnetisierungskurve zu erzeugen. Die während eines Laserpulses in der Schicht entstehende Temperatur ist nicht homogen, sondern näherungsweise gaußförmig um das Zentrum des Laserstrahls verteilt. Es erscheint daher plausibel, dass bei niedrigen Fluenzen die Temperatur im bestrahlten Bereich von der Mitte zum Rand des Laserspots hin abnimmt. Nur im Zentrum des Laserspots wird die Austauschkopplung aufgehoben und richtet sich beim anschließenden Abkühlen im äußeren Magnetfeld wieder neu aus. Das Temperaturprofil des Lasers spiegelt sich also in den „geschriebenen“ Informationen wider. Das gaußförmige Temperaturprofil des Lasers wird z. B. bei der magnetooptischen Datenspeicherung ausgenutzt, um höhere Datendichten zu erreichen (siehe z. B. [181, 221]).

Bei Fluenzen $F > 25$ mJ/cm² sind die kompletten Hysteresekurven durch die Austauschanisotropie verschoben. Je nach angelegter Magnetfeldrichtung ist die Austauschverschiebung nach der Bestrahlung mit 100 Pulsen entweder negativ (Abb. 8.17, c) oder positiv (Abb. 8.17, d). Diese Ergebnisse zeigen, dass die Richtung der Austauschanisotropie in dem Bereich, der durch die Laserpulse aufgeheizt wurde,

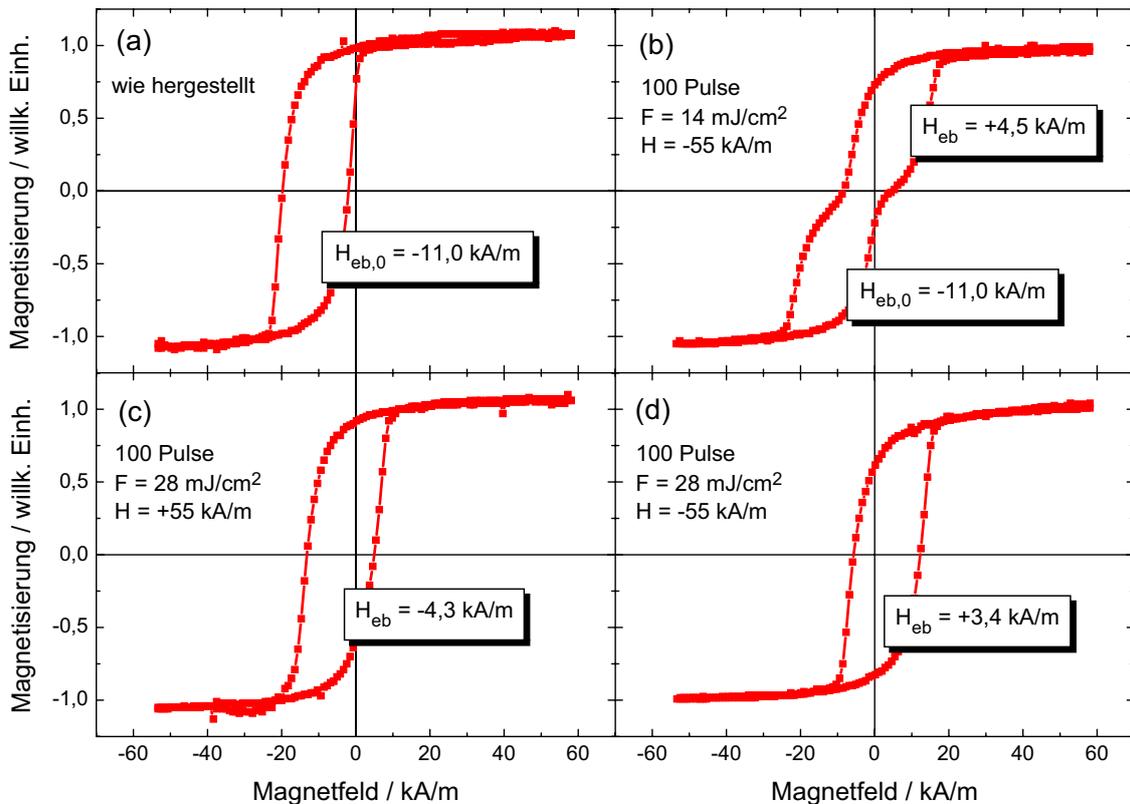


Abbildung 8.17: Typische Hysteresekurven der NiO/NiFe/Ta Schichtsysteme vor und nach der Bestrahlung mit 100 Laserpulsen: (a) vor der Bestrahlung, (b) nach Bestrahlung mit niedriger Fluenz $F = 14 \text{ mJ/cm}^2$ bei $H_{\text{lb}} \parallel H_{\text{w}}$, (c) nach Bestrahlung mit $F = 28 \text{ mJ/cm}^2$ bei $H_{\text{lb}} \parallel H_{\text{w}}$, (d) nach Bestrahlung mit $F = 28 \text{ mJ/cm}^2$ bei $H_{\text{lb}} \perp H_{\text{w}}$.

bei antiparallelem Magnetfeld invertiert werden kann. Eine vollständige Invertierung der Anisotropierichtung bei konstantem Betrag oder Erhöhung der Austauschverschiebung wie es mit der Ionenbestrahlung möglich ist (Abschnitt 8.1) konnte durch die Laserbestrahlung jedoch noch nicht erreicht werden. Die Exchange-Bias Feldstärke betrug unabhängig von der Richtung des äußeren Magnetfeldes nach der Laserbestrahlung etwa 40 % des ursprünglichen Wertes $H_{\text{eb},0}$.

Der Betrag von H_{eb} nach der Laserbestrahlung ist oberhalb einer Fluenz von etwa 25 mJ/cm^2 weitgehend unabhängig von der eingestrahlt Fluenz (Abb. 8.18, a). Ab ca. 60 mJ/cm^2 ist die vom Schichtsystem absorbierte Energie allerdings so groß, dass es zur Verdampfung des Schichtmaterials kommt.

Weitere Experimente ergaben, dass die relative Änderung der Exchange-Bias Feldstärke ($H_{\text{eb}}/H_{\text{eb},0}$) unabhängig von der Anzahl der Laserpulse ist (Abb. 8.18, b). Ein einzelner Laserpuls führt zum gleichen Ergebnis wie 100 Pulse. Auch die Stärke des äußeren Magnetfeldes hat keinen Einfluss auf die Änderung von H_{eb} durch die Laserbestrahlung (Abb. 8.18, c). Es genügt, die Magnetisierung der NiFe-Schicht im

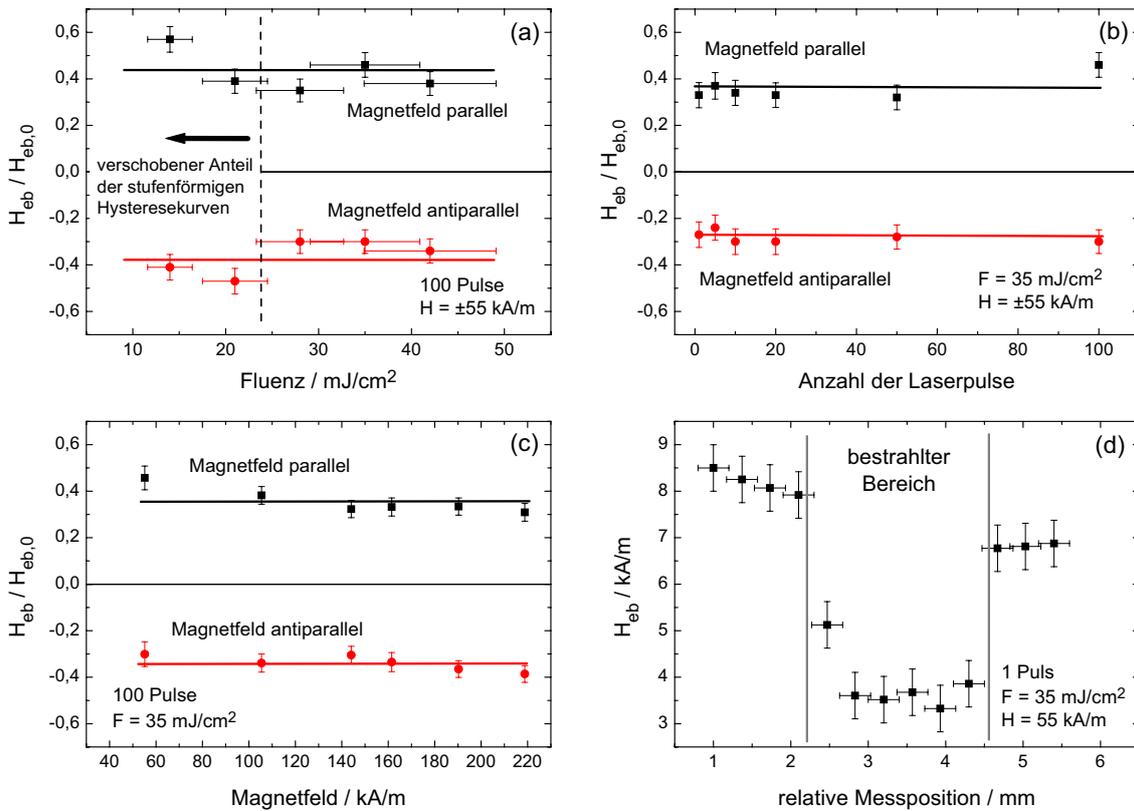


Abbildung 8.18: Relative Änderung der Exchange-Bias Feldstärke ($H_{eb}/H_{eb,0}$) durch die Laserbestrahlung in Abhängigkeit von der Fluenz (a), der Anzahl der Laserpulse (b) und dem äußeren Magnetfeld (H_{lb}) (c). Bei niedrigen Fluenzen (a) wird nur ein Teil der Hysteresekurven verschoben (vgl. Abb. 8.17, b). Die horizontalen Linien (a–c) entsprechen den Mittelwerten. Teilbild (d) zeigt H_{eb} an verschiedenen Punkten entlang einer Linie diagonal durch einen bestrahlten Bereich.

Feld auszurichten; das Feld muss die ferromagnetische Schicht sättigen.

In Abb. 8.18 (d) sind die gemessenen Exchange-Bias Feldstärken entlang einer Linie diagonal durch einen mit einem Laserpuls bestrahlten Bereich aufgetragen. Bei dem Schichtsystem handelt es sich um eine großflächige Probe mit 12 mm Durchmesser, die nur an einer Stelle bestrahlt wurde. Diese MOKE-Messungen wurden mit fokussierender Linse im Strahlengang aufgenommen, um eine höhere Ortsauflösung zu erhalten (s. Abschnitt 5.1.2). Die Ergebnisse zeigen, dass die Änderungen der Austauschisotropie auf den mit dem Laserpuls lokal aufgeheizten Bereich von 2,5–3 mm Durchmesser beschränkt sind. Die Zunahme von H_{eb} mit steigender Entfernung vom bestrahlten Bereich wird durch die abnehmende Schichtdicke der ferromagnetischen Schicht in Richtung des Randes der Probe verursacht ($H_{eb} \propto 1/d_{FM}$). Aus diesen Messungen wird deutlich, dass durch die Laserbestrahlung eine lokal begrenzte Manipulation der Austauschisotropie erzielt werden kann.

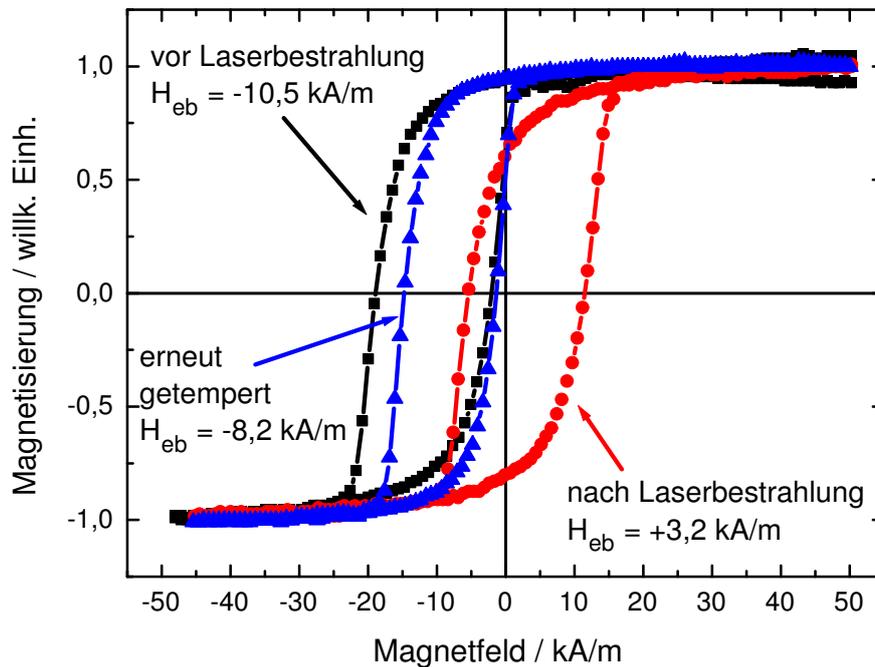


Abbildung 8.19: Durch einen zweiten Temperprozess, im Anschluss an die Laserbestrahlung, kann die ursprüngliche Austauschverschiebung nahezu wieder hergestellt werden.

Zu klären bleibt noch, warum der Betrag der Exchange-Bias Feldstärke durch die Laserbestrahlung reduziert wird. Eine mögliche Erklärung könnten strukturelle Schädigungen des Schichtsystems durch zu hohe Temperaturen während der Laserbestrahlung sein. In diesem Fall sollte es nicht möglich sein, die ursprüngliche Austauschverschiebung durch erneutes Tempern im Magnetfeld wieder herzustellen.

Abbildung 8.19 zeigt gemessene Hysteresekurven einer NiO/NiFe/Ta Probe vor der Laserbestrahlung (■), nach der Bestrahlung mit 20 Pulsen bei $F = 35 \text{ mJ/cm}^2$ und antiparallelem Magnetfeld (●) sowie nach einem anschließenden, zweiten Temperprozess bei 533 K im Magnetfeld (▲). Durch die Laserbestrahlung wurde $|H_{\text{eb}}|$ von ursprünglich 10,5 kA/m auf 3,2 kA/m reduziert. Mit dem nachfolgenden Temperprozess ließ sich die Austauschverschiebung jedoch wieder nahezu auf den ursprünglichen Wert erhöhen. Somit können strukturelle (irreversible) Schäden im Schichtsystem durch die Laserbestrahlung als Ursache für die Reduzierung von H_{eb} ausgeschlossen werden.

Der Grund für die niedrige Austauschverschiebung nach der Laserbestrahlung liegt vermutlich in der extrem kurzen Pulsdauer von nur 7 ns. Um die unidirektionale Anisotropie in den Schichtsystemen im äußeren Magnetfeld neu auszurichten, muss die antiferromagnetische Ordnung im NiO zunächst aufgehoben werden. Dies geschieht durch das lokale Aufheizen über die NÉEL-Temperatur mit Hilfe des Laserpulses. Beim Abkühlen im Magnetfeld richten sich die Domänen im Antiferro-

magneten entsprechend der Magnetisierung des FM neu aus.

Nach dem Modell zur thermisch aktivierten Relaxation der Austauschkopplung (Abschnitt 6.2) muss eine Aktivierungsenergie aufgebracht werden um die Energiebarriere zu überwinden, die die beiden Kopplungszustände voneinander trennt. Die Rate, mit der diese Barriere überwunden wird, ist von der Größenordnung 10^9 s^{-1} . Innerhalb der nur wenige Nanosekunden dauernden Aufheiz- und Abkühlphase kann sich deshalb wahrscheinlich immer nur ein Bruchteil der Bereiche im AF ausrichten. Die Zeit für die Ausrichtung der Kopplung an der Grenzfläche AF/FM ist vermutlich größer als die Abkühlzeit. Dadurch besteht keine einheitliche Richtung der Austauschisotropie und die Exchange-Bias Feldstärke ist reduziert. Dieser Zusammenhang wird speziell aus Gl. (6.7) ersichtlich. Wenn die Laser-Pulsdauer (τ_P) in der Größenordnung der Relaxationszeit (τ) ist, kann nur ein Bruchteil der Zustände in das andere Energieniveau wechseln. Innerhalb des mit dem Laser aufgeheizten Bereichs werden sich nur diejenigen Bereiche parallel zur Magnetisierung des FM ausrichten, deren Relaxationszeit klein gegen die Pulsdauer ist. Die Tatsache, dass sich die ursprüngliche Austauschisotropie durch erneutes Tempern im Magnetfeld wieder herstellen lässt (Abb. 8.19), bekräftigt diese Vermutung. Für eine Aufklärung dieses Phänomens müssten jedoch weitere Experimente mit etwas längeren (möglichst variablen) Pulsdauern von einigen 100 ns durchgeführt werden, so dass $\tau_P \gg \tau$ erfüllt ist.

Durch diese ersten Experimente konnte gezeigt werden, dass es prinzipiell möglich ist, die Austauschisotropie in ihrer Richtung durch kurze Laserpulse in einem durch den Laserfokus definierten Bereich zu manipulieren. Bei niedrigen Fluenzen kann sogar das Temperaturprofil des Lasers ausgenutzt werden, um die Wirkung auf kleinere Bereiche als den Laserspot zu beschränken. Über die Pulsdauer könnte eventuell zusätzlich die Höhe der Exchange-Bias Feldstärke gesteuert werden.

Mit dem hier vorgestellten Verfahren sollte es möglich sein, durch einen thermomagnetischen Schreibprozess, digitale Informationen auch in austauschgekoppelten Schichtsystemen aus Antiferromagnet und Ferromagnet zu speichern, ähnlich wie es bei den amorphen TbFe-Schichten geschieht. Liegt die Hysteresekurve des Schichtsystems komplett im negativen oder positiven Feldbereich ($|H_{\text{eb}}| > |H_S|$), dann stellt die Magnetisierungsrichtung, die durch die Austauschisotropie bestimmt wird, eine binäre Information (0 oder 1) dar. Die einmal geschriebenen Informationen ließen sich nicht durch äußere, noch so starke Magnetfelder löschen. Potentielle Anwendungen dieses Verfahrens wären z. B. die Kodierung der Magnetstreifen elektronischer Zahlungsmittel (Kreditkarten etc.) oder die Herstellung magnetischer Polstangen, -bänder und -räder wie sie für Positions- und Winkelmessungen benötigt werden.

Kapitel 9

Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde die Austauschanisotropie in Schichtsystemen, die aus einem Antiferromagneten (AF) und einem angrenzenden Ferromagneten (FM) bestehen, untersucht. Durch eine magnetische Kopplung zwischen AF und FM kann im Ferromagneten eine unidirektionale magnetische Anisotropie entstehen. Diese Anisotropie äußert sich bei der Messung des Ummagnetisierungsverhaltens des Schichtsystems in einer Verschiebung der Hysteresekurve des FM entlang der Magnetfeldachse und wird als „Exchange-Bias Effekt“ bezeichnet. Die Wirkung der Austauschanisotropie ist vergleichbar mit einem äußeren Magnetfeld, dem „Exchange-Bias Feld“ (H_{eb}), das der ferromagnetischen Schicht eine Vorzugsrichtung aufprägt.

Der Einfluss von Herstellungsbedingungen und Nachbehandlung der Schichtsysteme auf die thermische und zeitliche Stabilität der Austauschanisotropie in Systemen aus antiferromagnetischem NiO und ferromagnetischem NiFe (Permalloy) stand im Vordergrund der experimentellen Untersuchungen. Außerdem wurden zwei verschiedene Methoden aufgezeigt und analysiert, die eine nachträgliche Veränderung der Austauschanisotropie in diesen Schichtsystemen ermöglichen.

Die oxidischen Schichtsysteme wurden mittels HF-Kathodenzerstäubung (Sputtern) hergestellt. Für die Abscheidung der NiO-Schichten wurde ein reaktiver Zerstäubungsprozess mit Sauerstoff (O_2) als Reaktivgas eingesetzt. Durch Variation des O_2 -Partialdrucks beim Herstellungsprozess kann die chemische Zusammensetzung der Oxidschichten beeinflusst werden. Die physikalischen Eigenschaften der Schichten ändern sich beim Übergang vom Metall (Ni) zum Oxid (NiO) besonders stark.

Die Struktur und Zusammensetzung der NiO-Schichten bzw. Schichtsysteme wurden mit Röntgendiffraktometrie (XRD), Elastic Recoil Detection Analysis (ERDA), Transmissions-Elektronenmikroskop (TEM) und Raster-Kraftmikroskopie (AFM) analysiert. Die Ergebnisse zeigen, dass mit steigendem O_2 -Partialdruck bzw. O_2 -Zufluss bei der Herstellung das NiO-Kristallgitter zunehmend gedehnt wird und die Kristallitgrößen in den polykristallinen Schichten abnehmen. Mit Hilfe der XRD- und ERD-Analysen wurde gezeigt, dass es bei den NiO-Schichten einen Phasenübergang von einem Sauerstoff-Defizit (weniger als 50 % O) zu einem

Sauerstoff-Überschuss (mehr als 50 % O) gibt. Die chemische Zusammensetzung der NiO-Schichten wird also durch den O₂-Fluss bei der Herstellung bestimmt. Der Sauerstoff-Überschuss im NiO wurde für die Dehnung des Kristallgitters verantwortlich gemacht. Die AFM- und TEM-Untersuchungen haben ergeben, dass die Oberflächen und Grenzflächen der Schichten sehr glatt waren.

In NiO/NiFe/Ta, NiO/Ni/Ta und NiO/Fe/Ta Schichtsystemen wurde nach der Herstellung eine verzögerte, thermisch aktivierte Ausbildung der Austauschisotropie beobachtet, die sich in einer Erhöhung der Exchange-Bias Feldstärke (H_{eb}) um bis zu 100 % äußerte. Mit Hilfe eines Zwei-Energieniveau-Modells wurde dieser Effekt durch die thermisch aktivierte Relaxation instabiler Kopplungszustände erklärt. Die experimentell beobachtete logarithmische Zeitabhängigkeit der Änderung von H_{eb} wurde im Rahmen des Modells auf die Verteilung der Korngrößen im antiferromagnetischen NiO zurückgeführt. Die mittels TEM gemessene logarithmische Normalverteilung der Korngrößen im NiO führt zu einer Verteilung der Relaxationszeiten für die Zustandsänderungen im austauschgekoppelten System AF/FM.

Die thermische Stabilität der Austauschisotropie wurde in NiO/NiFe/Ta Schichtsystemen untersucht. Nachträgliches Tempern und Abkühlen der Proben im Magnetfeld verbesserte die thermische Stabilität entscheidend. Die lokalen Blocking-Temperaturen wurden durch das Tempern erhöht. Oberhalb der Blocking-Temperatur trägt ein lokal begrenzter Bereich des AF, der z. B. durch einen Kristalliten definiert sein kann, nicht mehr zur Austauschisotropie bei. Die zeitliche Stabilität der Anisotropierichtung unter Einwirkung eines äußeren Magnetfeldes wurde durch das Tempern ebenfalls verbessert. Als Ursachen für die verbesserte Stabilität der Austauschisotropie werden geringfügige Diffusion im Bereich der Grenzfläche NiO/NiFe und eine Änderung der uniaxialen Anisotropie des NiO durch das Tempern vermutet. Die optimale Stabilität der Austauschisotropie in NiO-Spin-Valves wird also nur durch einen zusätzlichen Temperprozess nach der Herstellung erreicht.

Der Sauerstoff-Zufluss während der reaktiven NiO-Herstellung wurde variiert, um den Einfluss der Mikrostruktur und chemischen Zusammensetzung des AF auf die Austauschisotropie zu untersuchen. Im Bereich des Phasenübergangs (Ni → NiO), wenn eine Mischphase aus Ni und NiO vorlag, wurde keine Austauschisotropie erhalten. Bei höheren O₂-Flüssen war H_{eb} nahezu unabhängig vom O₂-Fluss und betrug nach dem Tempern 8–11 kA/m. Die Koerzitivfeldstärke (H_{c}) nahm bei steigendem O₂-Anteil im Sputtergas von 9 auf 4,5 kA/m ab.

Die thermische Stabilität der Austauschisotropie nahm mit steigendem O₂-Fluss ab, wobei die Blocking-Temperaturen der NiO/NiFe/Ta Schichtsysteme von 490 auf 450 K reduziert wurden. Die Analysen (XRD, TEM, ERD) der NiO-Schichten zeigten, dass sich die Struktur und die chemische Zusammensetzung des NiO mit steigendem O₂-Fluss ändern. Bei hohen O₂-Flüssen enthielten die Schichten mehr als 50 % Sauerstoff, das Kristallgitter wurde gedehnt und die Korngrößen nahmen ab. Die Ursachen für die reduzierte thermische Stabilität der Austauschisotropie sind die gestörte kristalline Ordnung und abnehmende Korngrößen im NiO. Die Ergebnisse zeigen, dass der reaktive Herstellungsprozess sehr genau eingestellt

und kontrolliert werden muss, um die maximale Temperaturstabilität der Austausch-anisotropie zu erhalten. Bei technischen Anwendungen mit NiO-Spin-Valves sollte dies unbedingt berücksichtigt werden.

Die Möglichkeit der lokalen Veränderung der Austausch-anisotropie durch die Bestrahlung mit He^+ -Ionen in einem äußeren Magnetfeld wurde erstmals in austauschgekoppelten Schichtsystemen mit oxidischem AF (NiO) nachgewiesen. Die Ionenenergien waren dabei zwischen 5 und 20 keV. Durch die Bestrahlung mit $2 \cdot 10^{14}$ Ionen/cm² wurde eine Erhöhung von H_{eb} um etwa 70 % erzielt. Die Erhöhung der Exchange-Bias Feldstärke wird auf die Erzeugung von Defekten an der Grenzfläche NiO/NiFe sowie im Volumen des NiO zurückgeführt, wodurch die Domänenbildung im AF begünstigt wird. Die zunehmende Durchmischung der Schichten im System reduzierte H_{eb} bei steigender Ionendosis. Bei sehr hohen Ionendosen zwischen $5 \cdot 10^{15}$ und $1 \cdot 10^{16}$ Ionen/cm² wurden die magnetischen Eigenschaften der Schichtsysteme zerstört. Außerdem konnten die Koerzitivfeldstärken der NiO/NiFe Schichtsysteme durch die Ionenbestrahlung um mehr als einen Faktor 2 reduziert werden. Es wurde gezeigt, dass die Richtung der Austausch-anisotropie im Schichtsystem mit dieser Methode beliebig verändert werden kann. Durch das äußere Magnetfeld während der Ionenbestrahlung wird der Austausch-anisotropie eine neue Richtung aufgeprägt.

Der Einfluss der Ionenbestrahlung auf den Magnetowiderstand wurde an FeMn/Co/Cu/Co Spin-Valves untersucht. Die Invertierung der unidirektionalen Austausch-anisotropie unter Beibehaltung des ursprünglichen Magnetowiderstandswerts ($\Delta R/R \approx 8,4\%$) wurde erfolgreich demonstriert. Die Erhöhung von H_{eb} um maximal 100 % führte bei der Ionenenergie 10 keV zur Reduzierung von $\Delta R/R$ auf 5,9 %. Mit steigender Ionendosis nahm $\Delta R/R$ kontinuierlich ab und der Schichtwiderstand stieg an. Ab $3 \cdot 10^{15}$ Ionen/cm² war $\Delta R/R$ kleiner als 0,4 %. Die zunehmende Aufrauung der Grenzflächen und die Durchmischung der Schichten führte zusätzlich zu einer verstärkten magnetostatischen Kopplung („orange-peel coupling“) zwischen den beiden ferromagnetischen Kobalt-Schichten der Spin-Valves.

Die Mechanismen, die zur Modifikation der Austausch-anisotropie beitragen, sind allerdings noch nicht komplett verstanden. Insbesondere gilt zu klären, warum die Bestrahlung mit He^+ -Ionen bei Schichtsystemen mit den Antiferromagneten NiO und FeMn zu einer Verstärkung der Austausch-anisotropie führen kann, während dies bei anderen Materialien (z. B. PtMn, CrMn) nicht möglich zu sein scheint [245]. Derartige Untersuchungen sollten auch zum grundsätzlichen Verständnis der Mechanismen, die zum Exchange-Bias Effekt führen, beitragen. Interessante Fragestellungen ergeben sich aus der Kombination der Ionenbestrahlung austauschgekoppelter Schichtsysteme mit einer lithographischen Mikro- bzw. Nanostrukturierung. Die magnetische Strukturierung ist nicht nur für Anwendungen interessant, sondern kann auch zum grundsätzlichen Verständnis magnetischer Phänomene beitragen, die bei der lateralen Miniaturisierung von magnetischen Schichtsystemen auftreten. Für die Anwendung von Spin-Valves in magnetischen Arbeitsspeichern sind solche Erkenntnisse besonders wichtig. Die MRAMs werden sich nur etablieren können,

wenn die Speicherdichte mit anderen Technologien (z. B. DRAM, SRAM, FeRAM) vergleichbar oder höher ist.

Weiterhin wurde in dieser Arbeit ein thermomagnetisches Verfahren zur lokalen Veränderung der Austauschisotropie in NiO/NiFe/Ta Schichtsystemen durch die Bestrahlung mit kurzen Laserpulsen in einem äußeren Magnetfeld vorgestellt. Die Richtung der Austauschisotropie kann damit lokal, d. h. im Bereich des Laserspots, verändert werden. Die Veränderung von H_{eb} war unabhängig von der Laserfluenz, der Anzahl der Laserpulse und der Stärke des äußeren Magnetfeldes. H_{eb} wurde dabei allerdings auf etwa 40 % des Ausgangswerts reduziert. Der Grund dafür ist vermutlich die extrem kurze Pulsdauer von 7 ns, die etwa in der Größenordnung der Zeiten für die Ausrichtung der Spins im antiferromagnetischen NiO liegt. Aus diesem Grund sollten nachfolgende Experimente mit längeren Pulsdauern von etwa 100 ns durchgeführt werden.

Mit diesem thermomagnetischen Verfahren sollte es prinzipiell möglich sein, ähnliche Resultate wie mit der Ionenbestrahlung zu erzielen. Eine irreversible Erhöhung von H_{eb} wird dabei allerdings nicht erwartet. Sollte diese Methode zu vergleichbaren Ergebnissen führen, so stellt sie eine einfache Alternative zur Modifizierung der Austauschisotropie durch Ionenbestrahlung dar. Eine laterale magnetische Strukturierung der Schichtsysteme, wäre mit diesem Verfahren wesentlich einfacher zu erzielen. Analog zum thermomagnetischen Schreibprozess bei der magnetooptischen Datenspeicherung könnten Informationen durch die Richtung der Austauschisotropie permanent gespeichert werden.

Literaturverzeichnis

- [1] D. A. THOMPSON and J. S. BEST: *The future of magnetic data storage technology*. IBM J. Res. Develop. **44** (2000), 311–322.
- [2] IBM Storage Technology Division, San Jose: *IBM Travelstar 60GH and 40GH 2.5-inch hard disk drives (Datasheet)*, 2001.
- [3] S. MENGEL: *XMR Technologien*. Technologiefrüherkennung, VDI-Technologiezentrum Physikalische Technologien, Düsseldorf, 1997.
- [4] M. N. BAIBICH et al.: *Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices*. Phys. Rev. Lett. **61** (1988), 2472–2475.
- [5] G. BINASCH et al.: *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*. Phys. Rev. B **39** (1989), 4828–4830.
- [6] J. HONG et al.: *Spin-valve head with specularly reflective oxide layers for over 100 Gb/in²*. IEEE Trans. Magn. **38** (2002), 15–19.
- [7] S. A. WOLF et al.: *Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future*. Science **294** (2001), 1488–1495.
- [8] W. H. MEIKLEJOHN and C. P. BEAN: *New magnetic anisotropy*. Phys. Rev. **102** (1956), 1413–1414.
- [9] W. H. MEIKLEJOHN and C. P. BEAN: *New magnetic anisotropy*. Phys. Rev. **105** (1957), 904–913.
- [10] C. P. O. TREUTLER: *Magnetic sensors for automotive applications*. Sens. Actuators A **91** (2001), 2–6.
- [11] C. GIEBELER et al.: *Robust GMR sensors for angle detection and rotation speed sensing*. Sens. Actuators A **91** (2001), 16–20.
- [12] G. RIEGER et al.: *GMR sensors for contactless position detection*. Sens. Actuators A **91** (2001), 7–11.
- [13] S. MENGEL: *Magnetoelektronik*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. D10.1–19.

- [14] A. CHO: *Microchips That Never Forget*. Science **296** (2002), 246–249.
- [15] J.-G. ZHU and Y. ZHENG: *The Micromagnetics of Magnetoresistive Random Access Memory*. Top. Appl. Phys. **83** (2002), 289–325.
- [16] D. J. MONSMA et al.: *Perpendicular hot-electron spin-valve effect in a new magnetic-field sensor – The spin-valve transistor*. Phys. Rev. Lett. **74** (1995), 5260–5263.
- [17] D. J. MONSMA, R. VLUTTERS and J. C. LODDER: *Room Temperature-Operating Spin-Valve Transistors Formed by Vacuum Bonding*. Science **281** (1998), 407–409.
- [18] S. L. BURKETT et al.: *Effect of corrosion on magnetic properties for FeMn and NiO spin valves*. J. Appl. Phys. **81** (1997), 4912–4914.
- [19] W. F. EGELHOFF et al.: *Magnetoresistance values exceeding 21 % in symmetric spin valves*. J. Appl. Phys. **78** (1995), 273–277.
- [20] H. J. M. SWAGTEN et al.: *Specular reflection in spin valves bounded by NiO layers*. IEEE Trans. Magn. **34** (1998), 948–953.
- [21] J. NOGUÉS and I. K. SCHULLER: *Exchange bias*. J. Magn. Magn. Mater. **192** (1999), 203–232.
- [22] J. FUJIKATA et al.: *Thermal fluctuation aftereffect of exchange coupled films for spin valve devices*. J. Appl. Phys. **83** (1998), 7210–7212.
- [23] A. PAETZOLD: *Stabilität der antiferromagnetischen Kopplung in dünnen NiO/NiFe-Doppelschichten*. Diplomarbeit, Universität Kassel, 1999.
- [24] P. A. A. VAN DER HEIJDEN et al.: *Influence on relaxation of exchange biasing in NiO/Ni₆₆Co₁₈Fe₁₆ bilayers*. J. Appl. Phys. **83** (1998), 7207–7209.
- [25] P. A. A. VAN DER HEIJDEN et al.: *Thermally assisted reversal of exchange biasing in NiO and FeMn based systems*. Appl. Phys. Lett. **72** (1998), 492–494.
- [26] D. HAN et al.: *Magnetic and thermal relaxation in (NiFe/CoFe)/PtMn and NiFe/NiMn bi-layers for spin valve heads*. J. Appl. Phys. **87** (2000), 6424–6426.
- [27] T. HUGHES, H. LAIDLER and K. O’GRADY: *Thermal activation of magnetization reversal in spin-valve systems*. J. Appl. Phys. **89** (2001), 5585–5591.
- [28] M. J. CAREY et al.: *Thermally assisted decay of pinning in polycrystalline exchange biased systems*. J. Appl. Phys. **89** (2001), 6579–6584.
- [29] R. H. TAYLOR et al.: *Thermal relaxation of the pinned layer magnetization in NiO spin valves*. J. Appl. Phys. **85** (1999), 5036–5038.

- [30] C. CHAPPERT et al.: *Planar patterned magnetic media obtained by ion irradiation*. Science **280** (1998), 1919–1922.
- [31] D. ENGEL: *Lateral strukturierte Änderung magnetischer Eigenschaften von Exchange Bias-Schichtsystemen durch He-Ionenbeschuss und Elektronenstrahl-lithographie*. Diplomarbeit, Universität Kaiserslautern, 2000.
- [32] L. FOLKS et al.: *Track width definition of giant magnetoresistive sensors by ion irradiation*. IEEE Trans. Magn. **37** (2001), 1730–1732.
- [33] A. MOUGIN et al.: *Magnetic micropatterning of FeNi/FeMn exchange bias bilayers by ion irradiation*. J. Appl. Phys. **89** (2001), 6606–6608.
- [34] S. S. P. PARKIN et al.: *Giant magnetoresistance in antiferromagnetic Co/Cu multilayers*. Appl. Phys. Lett. **58** (1991), 2710–2712.
- [35] A. E. BERKOWITZ et al.: *Giant magnetoresistance in heterogeneous Cu-Co alloys*. Phys. Rev. Lett. **68** (1992), 3745–3748.
- [36] J. Q. XIAO et al.: *Giant magnetoresistance in nonmultilayer magnetic systems*. Phys. Rev. Lett. **68** (1992), 3749–3752.
- [37] FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH (Herausgeber): *Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung*. Institut für Festkörperforschung, 1999.
- [38] P. GRÜNBERG: *Riesenmagnetowiderstand in magnetischen Schichtstrukturen*. Phys. Bl. **51** (1995), 1077–1081.
- [39] P. GRÜNBERG: *Exchange anisotropy, interlayer exchange coupling and GMR in research and application*. Sens. Actuators A **91** (2001), 153–160.
- [40] U. HARTMANN (ed.): *Magnetic Multilayers and Giant Magnetoresistance*. Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2000.
- [41] G. REISS, H. BRÜCKL und A. HÜTTEN: *Riesenmagnetowiderstand – Transfer in die Anwendung*. Phys. Bl. **54** (1998), 339–341.
- [42] B. HEINRICH and J. A. C. BLAND (eds.): *Ultrathin Magnetic Structures II*. Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1994.
- [43] W. RAITH (Herausgeber): *Festkörper*. Bergmann-Schaefer: Lehrbuch der Experimentalphysik, Walter de Gruyter, Berlin, New York, 1992.
- [44] C. KITTEL: *Einführung in die Festkörperphysik*. 12. Auflage, Oldenburg Verlag, München, Wien, 1999.
- [45] N. F. MOTT: *Electrons in Transition Metals*. Adv. Phys. **13** (1964), 325–422.
- [46] I. A. CAMPBELL and A. FERT: *Transport Properties in Ferromagnets*. North Holland, Amsterdam, 1982.

- [47] J. C. SLONCZEWSKI: *Exchange through a tunneling barrier*. J. de Phys. Coll. **49** (1988), 1629–1630.
- [48] A. FERT und C. VOUILLE: *Magnetoresistance overview: AMR, GMR, TMR, CMR*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. D1.1–14.
- [49] B. DIENY et al.: *Recent results on the giant magnetoresistance in magnetic multilayers (anisotropy, thermal variation and CCP-GMR)*. J. Magn. Magn. Mater. **151** (1995), 378–387.
- [50] A. CHAIKEN et al.: *Temperature dependence of magnetoresistance in Fe-Cr-Fe sandwiches*. J. Appl. Phys. **69** (1991), 4798–4800.
- [51] P. GRÜNBERG et al.: *Layered magnetic structures: Evidence for antiferromagnetic coupling of Fe layers across Cr interlayers*. Phys. Rev. Lett. **57** (1986), 2442–2445.
- [52] S. S. P. PARKIN et al.: *Oscillations in exchange coupling and magnetoresistance in metallic superlattice structures: Co/Ru, Co/Cr and Fe/Cr*. Phys. Rev. Lett. **64** (1990), 2304–2307.
- [53] S. S. P. PARKIN: *Systematic variation of the strength and oscillation period of indirect magnetic exchange coupling through the 3d, 4d, and 5d transition metals*. Phys. Rev. Lett. **67** (1991), 3598–3601.
- [54] P. GRÜNBERG: *Magnetische Übergitter – Oszillierende Zwischenschichtkopplungen in magnetischen Schichtsystemen*. Phys. Bl. **49** (1993), 27–30.
- [55] P. BRUNO: *Theory of interlayer exchange coupling*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. B8.1–39.
- [56] M. A. RUDERMAN and C. KITTEL: *Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons*. Phys. Rev. **96** (1954), 99–102.
- [57] K. YOSIDA: *Magnetic properties of Cu-Mn alloys*. Phys. Rev. **106** (1957), 893–898.
- [58] P. GRÜNBERG: *Magnetische Übergitter: Zwischenschichtkopplung und Magnetowiderstand*. Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen, Forschungszentrum Jülich, März 1993, S. 28.1–28.27.
- [59] R. SCHAD et al.: *Giant magnetoresistance in Fe/Cr-superlattices with very thin Fe layers*. Appl. Phys. Lett. **64** (1994), 3500–3503.
- [60] D. BÜRGLER: *Zwischenschichtaustauschkopplung: Abhängigkeit vom Schichtaufbau und der Qualität der Grenzflächen*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. B10.1–20.

- [61] P. GRÜNBERG: *Zwischenschichtaustauschkopplung: Pänomenologische Beschreibung, Materialabhängigkeit*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. B9.1–21.
- [62] T. DAMM: *Magnetische und elektrische Eigenschaften von Spin-Valve-Systemen aus Co, Cu und NiFe*. Diplomarbeit, Universität Kassel, 1999.
- [63] T. C. SCHULTHESS and W. H. BUTLER: *Magnetostatic coupling in spin valves: Revisiting Néel's formula*. J. Appl. Phys. **87** (2000), 5759–5761.
- [64] J. F. BOBO et al.: *Pinholes in antiferromagnetically coupled multilayers: Effects on hysteresis loops and relation to biquadratic exchange*. Phys. Rev. B **60** (1999), 4131–4141.
- [65] D. B. FULGHUM and R. E. CAMLEY: *Magnetic behavior of antiferromagnetically coupled layers connected by ferromagnetic pinholes*. Phys. Rev. B **52** (1995), 13436–13443.
- [66] CH. LOCH: *Struktur und thermische Stabilität von Spin-Valve Systemen*. Dissertation, Universität Kassel, 1999.
- [67] F. STOBIECKI et al.: *Temperature dependence of magnetization reversal and GMR in spin valve structures*. Acta Phys. Pol. A **97** (2000), 523–526.
- [68] B. DIENY: *Giant magnetoresistance in spin-valve multilayers*. J. Magn. Magn. Mat. **136** (1994), 335–359.
- [69] P. P. FREITAS et al.: *Spin-valve structures exchange biased with a-Tb_{0.23}Co_{0.77} layers*. J. Appl. Phys. **75** (1994), 6480–6482.
- [70] J. C. S. KOOLS: *Exchange-biased spin-valves for magnetic storage*. IEEE Trans. Magn. **32** (1996), 3165–3184.
- [71] H. J. M. SWAGTEN et al.: *Enhanced giant magnetoresistance in spin-valves sandwiched between insulating NiO*. Phys. Rev. B **53** (1996), 9108–9114.
- [72] H. SAKAKIMA et al.: *Large MR ratios in spin valves bounded with insulating antiferromagnets*. J. Magn. Magn. Mater. **198–199** (1999), 9–11.
- [73] W. F. EGELHOFF et al.: *Oxygen as a surfactant in the growth of giant magnetoresistance spin valves*. J. Appl. Phys. **82** (1997), 6142–6151.
- [74] A. VELOSO et al.: *Magnetoresistance enhancement in specular, bottom-pinned, Mn₈₃Ir₁₇ spin valves with nano-oxide layers*. Appl. Phys. Lett. **77** (2000), 1020–1022.
- [75] Y. HUAI, Z. T. DIAO and J. ZHANG: *Nano-oxide layers and PtMn-based specular spin valves and heads*. IEEE Trans. Magn. **38** (2002), 20–25.

- [76] W. F. EGELHOFF et al.: *The trade-off between large magnetoresistance and small coercivity in symmetric spin valves*. J. Appl. Phys. **79** (1996), 8603–8606.
- [77] W. CLEMENS: *GMR Sensoren in der industriellen Anwendung*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. D5.1–14.
- [78] R. COEHOORN: *Giant magnetoresistance in exchange-biased spin-valve layered structures and its application in read heads*. Magnetic Thin Films and Industrial Applications (U. HARTMAN, ed.), Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1996.
- [79] R. MCGUIRE and R. I. POTTER: *Anisotropic magnetoresistance in ferromagnetic 3d alloys*. IEEE Trans. Magn. **11** (1975), 1018.
- [80] H. EBERT, A. VERNES and J. BANHART: *Anisotropic electrical resistivity of ferromagnetic Co-Pd and Co-Pt alloys*. Phys. Rev. B **54** (1996), 8479–8486.
- [81] D. THOMPSON et al.: *Thin film magnetoresistors in memory, storage and related applications*. IEEE Trans. Magn. **11** (1975), 1039–1049.
- [82] J. S. MOODERA and L. R. KINDER: *Ferromagnetic-insulator-ferromagnetic tunneling: Spin-dependent tunneling as large magnetoresistance in trilayer junctions*. J. Appl. Phys. **79** (1996), 4724–4729.
- [83] J. G. SIMMONS: *Generalized formula for the electric tunnel effect between similar electrodes separated by a thin insulating film*. J. Appl. Phys. **34** (1963), 1793–1803.
- [84] M. JULLIÈRE: *Tunneling between ferromagnetic films*. Phys. Lett. **54A** (1975), 225–226.
- [85] T. MIYAZAKI and T. TEZUKA: *Giant magnetic tunneling effect in Fe/Al₂O₃/Fe junction*. J. Magn. Magn. Mater. **139** (1995), L231.
- [86] J. S. MOODERA et al.: *Large magnetoresistance at room temperature in ferromagnetic thin film tunnel junctions*. Phys. Rev. Lett. **74** (1995), 3273–3276.
- [87] J. M. SCHMALHORST: *Magnetische, thermische und dielektrische Stabilität von magnetischen Tunnelementen*. Dissertation, Universität Bielefeld, 2001.
- [88] P. H. DEDERICHS: *Spinabhängiges Tunneln*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. D8.1–21.
- [89] J. S. MOODERA and G. MATHON: *Spin polarized tunneling in ferromagnetic junctions*. J. Magn. Magn. Mater. **200** (1999), 248–273.
- [90] J. S. MOODERA, J. NASSAR and G. MATHON: *Spin-Tunneling in Ferromagnetic Junctions*. Annu. Rev. Mater. Sci. **29** (1999), 381–432.

- [91] J. SCHELTEN: *Tunnelmagnetowiderstand*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. D7.1–24.
- [92] R. VON HELMOLT et al.: *Giant Negative Magnetoresistance in perovskitelike $La_{2/3}Ba_{1/3}MnO_x$ ferromagnetic films*. Phys. Rev. Lett. **71** (1993), 2331–2333.
- [93] C. N. R. RAO: *Colossal magnetoresistance in rare earth manganates*. Materials Today **1/3** (1998), 9.
- [94] M. CARARA and R. L. SOMMER: *Giant magneto-impedance in highly textured (110)[001] $FeSi_{0.03}$* . J. Appl. Phys. **81** (1997), 4107–4109.
- [95] S. CHIKAZUMI: *Physics of Magnetism*. Krieger, Malabar, Florida, 1964.
- [96] S. BLÜGEL: *Magnetische Anisotropie und Magnetostriktion (Theorie)*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. C1.1–65.
- [97] P. BRUNO: *Physical origins and theoretical models of magnetic anisotropy*. Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen, Forschungszentrum Jülich, 1993, S. 24.1–27.
- [98] R. ALLENSPACH: *Grenzflächenanisotropie*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. C3.1–16.
- [99] M. PRUTTON: *Thin ferromagnetic films*. Butterworths, London, 1964.
- [100] G. T. RADO and H. SUHL (eds.): *Magnetism I*. Academic, New York, 1963.
- [101] B. HILLEBRANDS: *Magnetische Anisotropien in Schichtsystemen und ihre experimentelle Bestimmung*. Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen, Forschungszentrum Jülich, 1993, S. 25.1–17.
- [102] F. KEFFER and W. O’SULLIVAN: *Problem of spin arrangements in MnO and similar antiferromagnets*. Phys. Rev. **108** (1957), 637–644.
- [103] A. E. BERKOWITZ and K. TAKANO: *Exchange anisotropy — a review*. J. Magn. Magn. Mater. **200** (1999), 552–570.
- [104] T. LIN et al.: *Exchange-coupled $Ni-Fe/Fe-Mn$, $Ni-Fe/Ni-Mn$ and $NiO/Ni-Fe$ films for stabilization of magnetoresistive sensors*. IEEE Trans. Magn. **31** (1995), 2585–2590.
- [105] D. MAURI et al.: *Novel method for determining the anisotropy constant of $MnFe$ in a $NiFe/MnFe$ sandwich*. J. Appl. Phys. **62** (1987), 2929–2932.
- [106] M. TSUNODA et al.: *Microstructure of antiferromagnetic layer affecting on magnetic exchange coupling in trilayered $Ni-Fe/25$ at% $Ni-Mn/Ni-Fe$ films*. J. Magn. Magn. Mater. **171** (1997), 29–44.

- [107] CH. BINEK, A. HOCHSTRAT and W. KLEEMANN: *Exchange bias in a generalized Meiklejohn-Bean approach*. J. Magn. Magn. Mater. **234** (2001), 353–358.
- [108] K. NISHIOKA et al.: *Thickness effect on ferro/antiferromagnetic coupling of Co/CrMnPt systems*. J. Appl. Phys. **83** (1998), 3233–3238.
- [109] H. XI and R. M. WHITE: *Antiferromagnetic thickness dependence of exchange biasing*. Phys. Rev. B **61** (2000), 80–83.
- [110] C. TSANG et al.: *Exchange induced unidirectional anisotropy at FeMn-Ni₈₀Fe₂₀ interfaces*. J. Appl. Phys. **52** (1981), 2471–2473.
- [111] R. JUNGLUT et al.: *Exchange bias in MBE-grown Ni₈₀Fe₂₀/Fe₅₀Mn₅₀ bilayers*. J. Magn. Magn. Mater. **148** (1995), 300–306.
- [112] J. NOGUÉS et al.: *Role of interfacial structure on exchange-biased FeF₂-Fe*. Phys. Rev. B **59** (1999), 6984–6993.
- [113] T. J. MORAN, J. M. GALLEGRO and I. K. SCHULLER: *Increased exchange anisotropy due to disorder at permalloy/CoO interfaces*. J. Appl. Phys. **78** (1995), 1887–1891.
- [114] J. X. SHEN and M. T. KIEF: *Exchange coupling between NiO and NiFe thin films*. J. Appl. Phys. **79** (1996), 5008–5010.
- [115] D.-H. HAN et al.: *NiFe/NiO bilayers with high exchange coupling and low coercive fields*. J. Appl. Phys. **81** (1997), 4996–4998.
- [116] D.-H. HAN et al.: *Texture and surface/interface topological effects on the exchange and coercive fields of NiFe/NiO bilayers*. J. Appl. Phys. **81** (1997), 340–343.
- [117] S. SOEYA et al.: *NiO structure-exchange anisotropy relation in the Ni₈₁Fe₁₉/NiO films and thermal stability of its NiO films*. J. Appl. Phys. **79** (1996), 1604–1610.
- [118] C.-H. LAI et al.: *The effect of microstructure and interface conditions on the anisotropic exchange field in NiO/NiFe*. IEEE Trans. Magn. **32** (1996), 3419–3421.
- [119] G. CHOE and S. GUPTA: *High exchange anisotropy and high blocking temperature in strongly textured NiFe(111)/FeMn(111) films*. Appl. Phys. Lett. **70** (1997), 1766–1768.
- [120] P. J. VAN DER ZAAG et al.: *Difference between blocking and Néel temperatures in the exchange biased Fe₃O₄/CoO system*. Phys. Rev. Lett. **84** (2000), 6102–6105.

- [121] J. FUJIKATA et al.: *Thermal stability of spin valve with NiO/ α -Fe₂O₃ bilayer antiferromagnets*. IEEE Trans. Magn. **34** (1998), 954–956.
- [122] H. HASEGAWA et al.: *Spin-valves with antiferromagnetic α -Fe₂O₃ layers*. IEEE Trans. Magn. **32** (1996), 4618–4620.
- [123] M. KÖHLER: *Antiferromagnetisches α -Fe₂O₃ als Pinning-Schicht für Spin-Valve Systeme*. Diplomarbeit, Universität Kassel, 2002.
- [124] H. N. FUKU et al.: *Influence of crystal structure and oxygen content on exchange-coupling properties of IrMn/CoFe spin-valve films*. Appl. Phys. Lett. **75** (1999), 3680–3682.
- [125] K. NISHIOKA: *Thermal decay of ferro/antiferromagnetic exchange coupling in Co/CrMnPt systems*. J. Appl. Phys. **86** (1999), 6305–6309.
- [126] D. ALDERS et al.: *Temperature and thickness dependence of magnetic moments in NiO epitaxial films*. Phys. Rev. B **57** (1998), 11623–11631.
- [127] Y. TSUCHIYA et al.: *Exchange anisotropy of CrN_x/FeN_y/CrN_x trilayer thin films prepared by reactive sputtering*. Mater. Trans. JIM **38** (1997), 91–98.
- [128] A. F. KHAPIKOV et al.: *Temperature dependence of exchange field and coercivity in polycrystalline NiO/NiFe film with thin antiferromagnetic layer: Role of antiferromagnet grain size distribution*. J. Appl. Phys. **87** (2000), 4954–4956.
- [129] J. P. NOZIÈRES et al.: *Blocking temperature distribution and long-term stability of spin-valve structures with Mn-based antiferromagnets*. J. Appl. Phys. **87** (2000), 3920–3925.
- [130] S. SOEYA et al.: *Distribution of blocking temperature in bilayered Ni₈₁Fe₁₉/NiO films*. J. Appl. Phys. **76** (1994), 5356–5360.
- [131] J. NOGUÉS et al.: *Large exchange bias and its connection to interface structure in Fe₂-Fe bilayers*. Appl. Phys. Lett. **68** (1996), 3186–3188.
- [132] A. P. MALOZEMOFF: *Random-field model of exchange anisotropy at rough ferromagnetic-antiferromagnetic interfaces*. Phys. Rev. B **35** (1987), 3679–3682.
- [133] A. P. MALOZEMOFF: *Mechanisms of exchange anisotropy*. J. Appl. Phys. **63** (1988), 3874–3879.
- [134] C.-H. LAI et al.: *Exchange anisotropy in NiFe/Fe-doped NiO bilayers*. J. Appl. Phys. **81** (1997), 4990–4992.
- [135] S. G. E. TE VELTHUIS et al.: *Training effects and the microscopic magnetic structure of exchange biased Co/CoO bilayers*. J. Appl. Phys. **87** (2000), 5046–5048.

- [136] K. ZHANG, T. ZHAO and H. FUJIWARA: *Training effect of exchange biased iron-oxide/ferromagnet systems*. J. Appl. Phys. **89** (2001), 6910–6912.
- [137] D.-H. HAN et al.: *Stress effects on exchange coupling field, coercivity and uniaxial anisotropy field of NiO/NiFe bilayer thin film for spin valves*. J. Appl. Phys. **81** (1997), 4519–4521.
- [138] E. LINVILLE et al.: *Stress effects on the magnetic properties of FeMn and NiMn spin valves*. IEEE Trans. Magn. **34** (1998), 894–896.
- [139] J. NOGUÉS et al.: *Positive exchange bias in FeF₂-Fe bilayers*. Phys. Rev. Lett. **76** (1996), 4624–4627.
- [140] N. C. KOON: *Calculations of exchange bias in thin films with ferromagnetic/antiferromagnetic interfaces*. Phys. Rev. Lett. **78** (1997), 4865–4868.
- [141] N. J. GÖKEMEIJER et al.: *Long-range exchange coupling between a ferromagnet and an antiferromagnet across a nonmagnetic spacer layer*. J. Appl. Phys. **81** (1997), 4999–5001.
- [142] T. MEWES et al.: *Oscillatory exchange bias effect in FeNi/Cu/FeMn and FeNi/Cr/FeMn trilayer systems*. J. Appl. Phys. **87** (2000), 5064–5066.
- [143] Y. IJIRI et al.: *Perpendicular coupling in exchange-biased Fe₃O₄/CoO superlattices*. Phys. Rev. Lett. **80** (1998), 608–611.
- [144] T. MORAN et al.: *Perpendicular coupling at Fe-FeF₂ interfaces*. Appl. Phys. Lett. **72** (1998), 617–619.
- [145] I. S. GRIGORIEV and E. Z. MEILIKHOV (eds.): *Handbook of Physical Quantities*. CRC, 1997.
- [146] M. KIWI: *Exchange bias theory*. J. Magn. Magn. Mater. **234** (2001), 584–595.
- [147] W. H. MEIKLEJOHN: *Exchange anisotropy — a review*. J. Appl. Phys. **33** (1962), 1328–1335.
- [148] P. MILTÉNYI: *Mikroskopischer Ursprung der Austauschkopplung an ferromagnetischen/antiferromagnetischen Grenzflächen*. Dissertation, RWTH Aachen, März 2000.
- [149] R. L. STAMPS: *Mechanisms for exchange bias*. J. Phys. D: Appl. Phys. **33** (2000), R247–R268.
- [150] M. D. STILES and R. D. MCMICHAEL: *Model for exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers*. Phys. Rev. B **59** (1999), 3722–3733.

- [151] M. D. STILES and R. D. MCMICHAEL: *Temperature dependence of exchange bias in polycrystalline ferromagnet-antiferromagnet bilayers*. Phys. Rev. B **60** (1999), 12 950–12 956.
- [152] M. D. STILES and R. D. MCMICHAEL: *Coercivity in exchange-bias bilayers*. Phys. Rev. B **63** (2001), 64405.
- [153] E. FULCOMER and S. H. CHARAP: *Thermal fluctuation aftereffect model for some systems with ferromagnetic-antiferromagnetic coupling*. J. Appl. Phys. **43** (1972), 4190–4199.
- [154] W. D. WESTWOOD, N. WATERHOUSE and P. S. WILCOX: *Tantalum thin films*. Academic, London, 1975.
- [155] A. K. CHU et al.: *Microstructure and corrosion resistance of room-temperature RF sputtered Ta₂O₅ thin films*. J. Electr. Mat. **28** (1999), 1457–1460.
- [156] J. L. VOSSEN and W. KERN (eds.): *Thin Film Processes*. Academic, San Diego, 1978.
- [157] G. KIENEL und K. RÖLL (Herausgeber) : *Vakuumbeschichtung 2 – Verfahren und Anlagen*. VDI-Verlag, Düsseldorf, 1995.
- [158] H. FREY und G. KIENEL (Herausgeber) : *Dünnschichttechnologie*. VDI-Verlag, Düsseldorf, 1987.
- [159] K. WASA and S. HAYAKAWA: *Handbook of Sputter Deposition Technology*. Noyes, Park Ridge, New Jersey, 1992.
- [160] G. KIENEL (Herausgeber): *Vakuumbeschichtung 4, Anwendungen. Teil I*. VDI-Verlag, Düsseldorf, 1993.
- [161] G. KIENEL (Herausgeber): *Vakuumbeschichtung 5, Anwendungen. Teil II*. VDI-Verlag, Düsseldorf, 1993.
- [162] K. K. SCHUEGRAF (ed.): *Handbook of Thin-Film Deposition Processes and Techniques*. Noyes Publications, New Jersey, 1988.
- [163] J. L. VOSSEN and W. KERN (eds.): *Thin Film Processes II*. Academic, San Diego, 1991.
- [164] T. ABE and T. YAMASHINA: *The deposition rate of metallic thin films in the reactive sputtering process*. Thin Solid Films **30** (1975), 19–27.
- [165] J. HELLER: *Reactive sputtering of metals in oxidizing atmospheres*. Thin Solid Films **17** (1973), 163–176.
- [166] E. KUSANO and D. M. GOULART: *Time-dependent simulation modelling of reactive sputtering*. Thin Solid Films **193** (1990), 84–91.

- [167] E. KUSANO: *Modelling of the time-dependent process changes and hysteresis in Ti-O₂ reactive sputtering*. J. Appl. Phys. **73** (1993), 8565–8574.
- [168] S. SCHILLER, G. BEISTER and W. SIEBER: *Reactive high rate d.c. sputtering: Deposition rate, stoichiometry and features of TiO_x and TiN_x films with respect to the target mode*. Thin Solid Films **111** (1984), 259–268.
- [169] S. BERG et al.: *The use of nitrogen flow as a deposition rate control in reactive sputtering*. J. Vac. Sci. Technol. A **4** (1986), 594–597.
- [170] C. D. TSIOGAS et al.: *Practical aspects for the use of plasma emission monitoring in reactive magnetron sputtering processes*. Vacuum **45** (1994), 1181–1186.
- [171] K. REICHELT: *Keimbildung und Wachstum von Schichten*. Dünne Schichten und Schichtsysteme, Kernforschungsanlage Jülich, 1986, S. 27–57.
- [172] F. C. FRANK and J. H. VAN DER MERWE: *One-dimensional dislocations (I+II)*. Proc. Roy. Soc. Lond. A **198** (1949), 205–225.
- [173] M. VOLMER und A. WEBER: *Keimbildung in übersättigten Gebilden*. Z. Phys. Chem. **119** (1926), 277–301.
- [174] I. N. STRANSKI und L. KRASTANOW: *Zur Theorie der orientierten Ausscheidung von Ionenkristallen aufeinander*. Sitzungsber. Kaiserl. Akad. Wiss. Wien (1938), 797–810.
- [175] B. A. MOVCHAN and A. V. DEMCHISHIN: *Study of the structure and properties of thick vacuum condensates of nickel, titanium, tungsten, aluminum oxide and zirconium dioxide*. Fiz. Met. Metalloved **28** (1969), 653–660.
- [176] 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.
- [177] J. A. THORNTON: *Influence of substrate temperature and deposition rate on structure of thick sputtered Cu coatings*. J. Vac. Sci. Technol. **12** (1975), 830–835.
- [178] H. FREY, G. KIENEL und K. RÖLL (Herausgeber) : *Vakuumbeschichtung 1–5*. VDI-Verlag, Düsseldorf, 1993–1995.
- [179] W. PUPP und H. K. HARTMANN: *Vakuumentchnik – Grundlagen und Anwendungen*. Hanser, München, Wien, 1991.
- [180] Leybold-Heraeus, Hanau: *Gebrauchsanweisung: Ionivac IM 110*.
- [181] F. HUBENTHAL: *Tiefenabhängige Dotierung von Selten-Erd-Übergangsmetall-Schichten*. Dissertation, Universität Kassel, 2001.

- [182] CH. LOCH: *Magnetowiderstand und Amorphisierung in Kobalt-Titan-Kupfer-Schichten*. Diplomarbeit, Universität Kassel, 1995.
- [183] B. D. CULLITY: *Elements of x-ray diffraction*. 2. ed., Addison-Wesley, 1978.
- [184] H. KIRSCHNER: *Einführung in die Röntgen-Feinstruktur-Analyse*. Vieweg, Braunschweig, 1990.
- [185] W. MASSA: *Kristallstrukturbestimmung*. B. G. Teubner, Stuttgart, 1994.
- [186] H. S. PEISER, H. P. ROOKSBY and A. J. C. WILSON (eds.): *X-ray diffraction by polycrystalline materials*. Chapman & Hall Limited, London, 1960.
- [187] W. PIES und A. WEISS: *Kristallstrukturdaten anorganischer Verbindungen (Band 7)*. Landolt-Börnstein - Gruppe III: Kristall- und Festkörperphysik (K.-H. HELLWEGE und A. M. HELLWEGE, Herausgeber), Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1975.
- [188] T. STOBIECKI: *Schriftliche Mitteilung*. März 2002.
- [189] I. C. FARIA et al.: *Toward efficient electrochromic NiO_x films: A study of microstructure, morphology, and stoichiometry of radio frequency sputtered films*. J. Electrochem. Soc. **145** (1998), 235–240.
- [190] M. KNOLL und E. RUSKA: *Das Elektronenmikroskop*. Z. Physik **78** (1932), 318–339.
- [191] E. RUSKA: *Über Fortschritte im Bau und in der Leistung des magnetischen Elektronenmikroskops*. Z. Physik **87** (1934), 580–602.
- [192] H. ALEXANDER: *Physikalische Grundlagen der Elektronenmikroskopie*. B. G. Teubner, Stuttgart, 1997.
- [193] S. L. FLEGLER, J. W. HECKMAN und K. L. KLOMPARENS: *Elektronenmikroskopie*. Spektrum Akad. Verlag, Heidelberg, 1995.
- [194] P. J. GOODHEW und F. J. HUMPHREYS: *Elektronenmikroskopie: Grundlagen und Anwendungen*. McGraw-Hill, London, 1991.
- [195] L. REIMER: *Transmission Electron Microscopy*. 4. ed., Springer Series in Optical Science, Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1997.
- [196] H. NIEDRIG (Herausgeber): *Optik*. 9. Auflage, Bergmann-Schaefer: Lehrbuch der Experimentalphysik, Walter de Gruyter, Berlin, New York, 1993.
- [197] J. ZWECK: *Moderne elektronenmikroskopische Untersuchungsmethoden in der Festkörperphysik*. Habilitationsschrift, Universität Regensburg, 1992.
- [198] L. LIU et al.: *Annealing effects of tantalum thin films sputtered on [001] silicon substrate*. Mat. Sci. Engineering C **16** (2001), 85–89.

- [199] C. D. WILCOX et al.: *UTHSCSA ImageTool (IT) – Version 3.0*. University of Texas Health Science Center, San Antonio, Texas, 1995–2002, <http://www.ddsdx.uthscsa.edu>.
- [200] K. BARMAK et al.: *Grain growth and ordering kinetics in CoPt thin films*. J. Appl. Phys. **79** (1996), 5330–5332.
- [201] D. T. CARPENTER, J. M. RICKMAN and K. BARMAK: *A methodology for automated quantitative microstructural analysis of transmission electron micrographs*. J. Appl. Phys. **84** (1998), 5843–5854.
- [202] L. SACHS: *Angewandte Statistik*. 7. Auflage, Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1992.
- [203] D. R. LIDE (ed.): *Handbook of Chemistry and Physics*. 76. ed., CRC, 1995.
- [204] E. BERGER et al.: *Schmelzgleichgewichte und Grenzflächenerscheinungen*. Landolt-Börnstein: Eigenschaften der Materie in ihren Aggregatzuständen, 3. Teil (K. SCHÄFER und E. LAX, Herausgeber), Springer, Berlin, 1956.
- [205] I. HOTOVÝ et al.: *Preparation of nickel oxide thin films for gas sensors applications*. Sens. Actuators B **57** (1999), 147–152.
- [206] I. HOTOVÝ et al.: *The influences of preparation parameters on NiO thin film properties for gas-sensing application*. Sens. Actuators B **78** (2001), 126–132.
- [207] M. CARTIER et al.: *Influence of deposition angle on the properties of NiO spin-valves*. J. Appl. Phys. **91** (2002), 1436–1443.
- [208] G. SCHATZ und A. WEIDINGER: *Nukleare Festkörperphysik*. 3., durchgesehene Auflage, B. G. Teubner, Stuttgart, 1997.
- [209] G. DOLLINGER et al.: *High resolution depth profile analysis by elastic recoil detection with heavy ions*. Fresenius J. Anal. Chem. **353** (1995), 311–315.
- [210] W. ASSMANN et al.: *ERDA with very heavy ion beams*. Nucl. Instr. Methods B **118** (1996), 242–250.
- [211] G. DOLLINGER et al.: *Limits in elastic recoil detection analysis with heavy ions*. Nucl. Instr. Methods B **118** (1996), 291–300.
- [212] G. DOLLINGER et al.: *Elastic recoil detection with single atomic layer depth resolution*. Nucl. Instr. Methods B **136–138** (1998), 603–610.
- [213] A. BERGMAIER: *Telefonische Mitteilung*. Dezember 2001.
- [214] G. BINNING, C. F. QUATE and CH. GERBER: *Atomic Force Microscope*. Phys. Rev. Lett. **56** (1986), 930–933.

- [215] T. R. ALBRECHT and C. F. QUATE: *Atomic resolution imaging of a non-conductor by atomic force microscopy*. J. Appl. Phys. **62** (1987), 2599–2602.
- [216] F. J. GIESSIBL: *Atomic resolution of the silicon (111)-(7×7) surface by atomic force microscopy*. Science **267** (1995), 68–71.
- [217] R. HOWLAND and L. BENATAR: *A practical guide to scanning probe microscopy*. Park Scientific Instruments, 1997.
- [218] A. HUBERT and R. SCHÄFER: *Magnetic Domains*. Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 1998.
- [219] FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH (Herausgeber): *Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen*. Institut für Festkörperforschung, 1993.
- [220] A. HUBERT: *Kerroteptische Mikroskopie*. Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen, Forschungszentrum Jülich, 1993, S. 34.1–15.
- [221] S. KNAPPMANN: *Untersuchung von Schichtsystemen für die magnetooptische Datenspeicherung mit Hilfe der Kerr-Mikroskopie*. Dissertation, Universität Kassel, 2000.
- [222] M. OTTO: *Kerr-Mikroskopie zur Domänenbeobachtung bei Schichten mit in-plane Magnetisierung*. Diplomarbeit, Universität Kassel, 2001.
- [223] U. HARTMANN: *Magnetisch abbildende Rastersondenverfahren*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. B7.1–30.
- [224] W. ENGEL et al.: *A UHV-compatible photoelectron emission microscope for applications in surface science*. Ultramicroscopy **36** (1991), 148–153.
- [225] G. SCHÜTZ und P. FISCHER: *Zirkularer magnetischer Röntgendichroismus*. Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen, Forschungszentrum Jülich, 1993, S. 22.1–16.
- [226] J. KERR: *On rotation of the plane of polarization by reflection from the pole of a magnet*. Phil. Mag. (5.) **3** (1877), 321–343.
- [227] B. THIEL: *Vergleichende magnetooptische Untersuchungen an ferromagnetischen Einkristallen und polykristallinen Aufdampfschichten zur Ermittlung der wahren optischen Konstanten*. Dissertation, Universität Regensburg, 1978.
- [228] G. TRAEGER, L. WENZEL and A. HUBERT: *Computer experiments on the information depth and the figure of merit in magnetooptics*. Phys. stat. sol. (a) **131** (1992), 201–227.

- [229] H. EBERT und Y. PERLOV: *Magneto-optische Effekte (Theorie)*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. C5.1–24.
- [230] M. KRATZER: *Kerr-optische Bestimmung der magnetischen Anisotropie in dünnen Schichten*. Diplomarbeit, Universität Kassel, 1995.
- [231] S. SUGANO and N. KOJIMA (eds.): *Magneto-Optics*. Springer, Berlin, Heidelberg, New York, 2000.
- [232] W. VOIGT: *Magneto- und Elektrooptik*. Teubner, Leipzig, 1908.
- [233] R. VOLLMER: *Lineare und nichtlineare Magnetooptik an ultradünnen ferromagnetischen Schichten und Vielfachschichten*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. C7.1–30.
- [234] E. BEHRENDT: *Meßplatz zur Untersuchung weichmagnetischer Schichten mittels des magneto-optischen Kerreffekts*. Diplomarbeit, Universität Kassel, 1996.
- [235] R. ZORN: *Magnetometrie*. Magnetische Schichtsysteme in Forschung und Anwendung, Forschungszentrum Jülich, 1999, S. A6.1–19.
- [236] U. KÖBLER: *Vibrationsmagnetometer, Faradaywaage, SQUID und Meßbeispiele*. Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen, Forschungszentrum Jülich, 1993, S. 3.1–24.
- [237] L. B. VALDES: *Resistivity Measurements on Germanium for Transistors*. Proc. IRE **42** (1954), 420–427.
- [238] L. I. MAISSEL and R. GLANG (eds.): *Handbook of Thin Film Technology*. McGraw-Hill, New York, 1970.
- [239] M. ABRAMOWITZ and I. A. STEGUN (eds.): *Handbook of Mathematical Functions*. Dover Publications, New York, 1972.
- [240] M. J. CAREY and A. E. BERKOWITZ: *Exchange anisotropy in coupled films of $Ni_{81}Fe_{19}$ with NiO and $Co_xNi_{1-x}O$* . Appl. Phys. Lett. **60** (1992), 3060–3062.
- [241] K. NISHIOKA et al.: *Grain size effect on ferro-antiferromagnetic coupling of $NiFe/FeMn$ systems*. J. Appl. Phys. **80** (1996), 4528–4533.
- [242] Z. B. GUO et al.: *Influence of Ga^+ ion irradiation on magnetoresistance and exchange bias of $IrMn/CoFe/Cu/CoFe/NiFe$ spin valve*. Solid State Communications **120** (2001), 459–462.
- [243] T. MEWES et al.: *Suppression of exchange bias by ion irradiation*. Appl. Phys. Lett. **76** (2000), 1057–1059.

- [244] A. MOUGIN et al.: *Local manipulation and reversal of the exchange bias field by ion irradiation in FeNi/FeMn double layers*. Phys. Rev. B **63** (2001), 60409(R).
- [245] J. JURASZEK et al.: *Tuning exchange bias and coercive fields in ferromagnet/antiferromagnet bilayers with ion irradiation*. J. Appl. Phys. **91** (2002), 6896–6898.
- [246] H. RYSSEL und I. RUGE: *Ionenimplantation*. B. G. Teubner, Stuttgart, 1978.
- [247] H. BETHE: *Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie*. Ann. Physik **5** (1930), 325–400.
- [248] F. BLOCH: *Bremsvermögen von Atomen mit mehreren Elektronen*. Z. Physik **81** (1933), 363–376.
- [249] J. F. ZIEGLER, J. P. BIERSACK and U. LITTMARK: *The Stopping and Range of Ions in Solids*. Pergamon, New York, 1985.
- [250] J. F. ZIEGLER et al.: *SRIM-2000 – The Stopping and Range of Ions in Matter*. IBM Co., 1984–2002, <http://www.srim.org>.
- [251] J. F. ZIEGLER (ed.): *Ion Implantation: Science and Technology*. Academic, Orlando, 1984.
- [252] P. MILTÉNYI et al.: *Diluted antiferromagnets in exchange bias: Proof of the domain state model*. Phys. Rev. Lett. **84** (2000), 4224–4227.
- [253] D. M. KELLY et al.: *Increases in giant magnetoresistance by ion irradiation*. Phys. Rev. B **50** (1994), 3481–3484.
- [254] A. M. PROKHOROV et al.: *Laser Heating of Metals*. A. Hilger, Bristol, Philadelphia, New York, 1990.

Magnetische Größen und Einheiten

Die magnetischen Größen werden in der internationalen Literatur nicht einheitlich bezeichnet. Tabelle 1 zeigt die in dieser Arbeit benutzten Größen und Einheiten mit ihren Umrechnungsfaktoren.

| Größe | Symbol | SI-Einheit | cgs-Einheit |
|-------------------|--------|---------------------------|--------------------------|
| magn. Flussdichte | B | 1 T = 1 Vs/m ² | 10 ⁴ G |
| magn. Feldstärke | H | 1 A/m | 4π · 10 ⁻³ Oe |
| Magnetisierung | M | 1 A/m | 4π · 10 ⁻³ Oe |

Tabelle 1: Magnetische Größen und Einheiten im Internationalen Einheitensystem SI (Système International d'Unités) und im cgs-System (centimeter-gram-second system).

In der internationalen Literatur wird für die magnetische Feldstärke oft die Einheit Oersted (Oe) benutzt. In dieser Arbeit wird die magnetische Feldstärke in der gesetzlichen Einheit A/m angegeben¹. Als Faustregel für die Umrechnung kann man sich merken: 1 Oe ≈ 80 A/m oder 1 kA/m ≈ 12,5 Oe.

| | mT | G | kA/m | Oe |
|---------------|------|------|------|------|
| 1 mT | 1 | 10 | 0,8 | 10 |
| 1 G | 0,1 | 1 | 0,08 | 1 |
| 1 kA/m | 1,25 | 12,5 | 1 | 12,5 |
| 1 Oe | 0,1 | 1 | 0,08 | 1 |

Tabelle 2: Gerundete Umrechnungsfaktoren für gebräuchliche Einheiten der magnetischen Feldstärke und der Flussdichte in Luft.

Bei der Messung der magnetischen Feldstärke mit dem GAUSS-Meter wird genau genommen die magnetische Flussdichte der Luft gemessen. Der Begriff der Feldstärke wird in dieser Arbeit jedoch auch dann benutzt, wenn es sich streng genommen um die magnetische Flussdichte der Luft handelt. Da die relative Permeabilität von Luft nur geringfügig von der des Vakuums ($\mu_r = 1$) abweicht, kann in diesem Fall die Feldstärke aus $B = \mu_0 H$ berechnet werden, d. h. die geringe magnetische

¹Diese Bezeichnung entspricht den Normen ISO 1000 und DIN 1301.

Polarisation der Luft wird vernachlässigt. Dabei ist $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{ Vs/Am}$ die magnetische Feldkonstante und μ_r die relative Permeabilität. In der neueren Literatur wird bei der Angabe von magnetischen Feldstärken gelegentlich nicht mehr zwischen Flussdichte und Feldstärke unterschieden und die Feldstärke in der Einheit Tesla (T) angegeben, was weitere Verwirrung stiftet.

Tabelle 2 wurde unter Berücksichtigung der Beziehung $B = \mu_0 H$ für die „Umrechnung“ zwischen den verschiedenen Einheiten von Feldstärke und Flussdichte in Luft erstellt; sie kann beim Abschätzen der Größenordnungen hilfreich sein.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen der Experimente, Analysen und dieser Arbeit beigetragen haben und auf deren Hilfsbereitschaft ich mich immer verlassen konnte.

An erster Stelle danke ich Herrn PROF. DR. KLAUS RÖLL, dass er mir die Durchführung dieser Arbeit ermöglichte. Seine weiterführenden Denkanstöße und seine ständige Hilfs- und Diskussionsbereitschaft haben wesentlich zum Gelingen beigetragen. Ganz besonders dankbar bin ich, dass er mir die Teilnahme an zahlreichen Tagungen und Arbeitstreffen ermöglichte und die Reisen finanzierte.

Allen Mitarbeitern bzw. ehemaligen Mitarbeitern der Experimentalphysik IV „Dünne Schichten und Magnetismus“ möchte ich für die nette Zusammenarbeit, die nie fehlende Hilfsbereitschaft und ihre konstruktiven Vorschläge danken: EDITH BRÜHL, THORSTEN DAMM, DR. FRANK HUBENTHAL, DR. STEPHAN KNAPP-MANN, MARTIN KÖHLER, HUBERT KRAUSE, LARS MARTIN, HANS-CHRISTIAN MILDE, KARL-HEINZ OTTO, MARC OTTO, DR. CHRISTIAN PATAK und DR. LAKIS STAVROU. Herrn DR. KLAUS THOMA danke ich besonders für seine engagierte Hilfe vor allem bei theoretischen und mathematischen Fragestellungen.

DR. ARNO EHRESMANN, DIETER ENGEL, ASTRID KRONENBERGER, INGO KRUG und ALEXANDRA SCHINDLER aus der Arbeitsgruppe „Atomphysik und Angewandte Elektronenphysik“ der Universität Kaiserslautern danke ich für die ergiebige und freundschaftliche Kooperation sowie den regen Gedankenaustausch. Die zahlreichen Ideen von DIETER ENGEL gaben immer wieder Anstoß zu neuen Experimenten und Modellen.

Den Mitarbeitern der Experimentalphysik I „Cluster und Nanostrukturen“ danke ich für die gemeinsame Planung und Durchführung der Laser-Experimente sowie der AFM-Messungen. Daran beteiligt waren insbesondere JOHANNES BOSBACH, CHRISTIAN HENDRICH und MATTHIAS ALSCHINGER. Herrn THOMAS EBERT aus der Arbeitsgruppe „Makromolekulare Chemie und Molekulare Materialien“ danke ich für die schnelle Durchführung der optischen Absorptionmessungen.

Herrn PROF. DR. THOMASZ STOBIECKI und seinen Mitarbeitern von der Universität für Bergbau und Metallurgie in Kraków (Polen) danke ich für die Durchführung der Röntgendiffraktometrie und die Diskussionen über die Ergebnisse. Für die aufschlussreichen ERD-Analysen und die Auswertungen bedanke ich mich bei Herrn DR. ANDREAS BERGMAIER von der Technischen Universität München.

Herrn PROF. DR. JOSEF ZWECK und Frau MELANIE BLOMENHOFER von der Universität Regensburg danke ich für die vielen gelungenen TEM-Aufnahmen und die telefonischen Gespräche über deren Interpretation.

Den Herren DR. WOLFRAM MAASS und BERTHOLD OCKER von der Firma *Singulus Technologies* (damals bei der Firma *Unaxis* beschäftigt) möchte ich für die Bereitstellung der Spin-Valve Schichtsysteme für unsere Experimente danken. Außerdem danke ich ihnen sowie dem gesamten Team der ehemaligen Entwicklungsabteilung „Magnetoelektronik“ der Firma *Unaxis* für die freundliche Aufnahme, Zusammenarbeit und die vielen Diskussionen während meiner Aufenthalte in Alzenau, durch die ich viel gelernt habe.

Allen Mitarbeitern der Uniwerkstätten Kassel danke ich für die professionelle Ausführung aller Aufträge und die hilfreichen Verbesserungsvorschläge. Unserer Dekanatssekretärin Frau GASTON danke ich für die engagierte Abwicklung aller Verwaltungsangelegenheiten.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft (DFG) danke ich für die finanzielle Absicherung meiner Promotion im Rahmen des Graduiertenkollegs „Materialien und Komponenten für die Mikrosystemtechnik“. In diesem Zusammenhang möchte ich auch Herrn DR. KLAUS MASSELI danken, der sich stets für die Interessen und Probleme der Stipendiaten eingesetzt hat.

Besonderer Dank gilt meinen Eltern KARIN und REINHARD, die mir durch ihre jahrelange Unterstützung das Studium und die anschließende Promotion überhaupt erst ermöglicht haben.

Meiner Freundin TANJA, die gerade in den letzten Monaten auf viele gemeinsame Stunden verzichtet hat, danke ich für ihr Verständnis.

Veröffentlichungen

Die Ergebnisse dieser Arbeit wurden zum Teil in internationalen Fachzeitschriften und Tagungsbänden veröffentlicht.

- D. Engel, A. Kronenberger, M. Jung, A. Ehresmann, H. Schmoranzner, A. Paetzold and K. Röhl: *Modifications of the exchange bias field of NiO/NiFe bilayer systems by ion bombardment*. Submitted to Phys. Rev. B (2002).
- A. Paetzold and K. Röhl: *Thermally activated self-alignment of exchange coupling in NiO/NiFe bilayers*. J. Appl. Phys. **91** (2002), 7748–7750.
- A. Paetzold, K. Röhl, A. Bergmaier and G. Dollinger: *ERD analysis of reactively sputtered NiO films for spin-valve structures*. Jahresbericht 2001, Beschleunigerlaboratorium der LMU und TU München.
- A. Paetzold, C. Loch and K. Röhl: *Thermal stability of film systems for spin-valve applications*. In Functional Materials (K. Grassie et al., ed.), Euromat 99, pp. 24–29. Wiley-VCH, Weinheim (2000). ISBN 3-527-30254-9.
- W. Maaß, M. Denk, B. Ocker, H. Rohrman, N. Kling, A. Paetzold and K. Röhl: *Exchange coupling of reactively sputtered NiO to Co and NiFe layers*. Proximity, Magnetic Storage Industry Sourcebook (1999–2000).

Tagungsbeiträge

- A. Paetzold and K. Röhl: *Thermally activated self-alignment of exchange coupling in NiO/NiFe bilayers*. 46th Conference on Magnetism and Magnetic Materials. Seattle, Washington, November 12–16, 2001.
- A. Paetzold, W. Maaß, J. Langer, C. König, R. Mattheis, M. Diegel, M. Weiler und K. Röhl: *Herstellung der AlO_x-Barriere für magnetische Tunnelkontakte mit einem niederenergetischen Plasmastrahl*. Poster-Präsentation (AM 9.8) auf der Frühjahrstagung des Arbeitskreises Festkörperphysik der DPG. Hamburg, 26.–30. März 2001.
- W. Maaß, A. Paetzold, R. Mattheis, K.-U. Barholz, M. Diegel, S.O. Demokritov, B.F.P. Roos, A. Beck and B. Hillebrands: *Formation of Al₂O₃-Barrier in Magnetic Tunnel Junctions by an Atomic Ion Beam*. 8th Joint MMM-Intermag Conference. San Antonio, Texas, January 7–11, 2001.
- A. Paetzold und K. Röhl: *Stabilität der Austauschkopplung in NiO/NiFe-Schichten*. Fachvortrag (AM 11.8) auf der Frühjahrstagung des Arbeitskreises Festkörperphysik der DPG. Regensburg, 27.–31. März 2000.
- A. Paetzold, K. Thoma and K. Röhl: *Formation and Magnetic Properties of NiO/NiFe Bilayers*. Poster-Präsentation beim 228. WE-Heraeus-Seminar, Metal-Nonmetal Structures for Magnetoelectronics. Physikzentrum Bad Honnef, 5.–7. Januar 2000.

Lebenslauf

| | | |
|---------------------|-----------|---|
| Name | | Andreas Paetzold |
| Geboren | | 02.09.1972 in Kassel |
| Eltern | | Karin und Reinhard Paetzold |
| E-Mail | | a.paetzold@web.de |
| Schulbildung | 1979–1983 | Grundschule, Heiligenrode |
| | 1983–1989 | Wilhelm-Leuschner-Schule, Heiligenrode |
| | 1989–1992 | Herderschule, Kassel |
| Wehrdienst | 1992–1993 | Bundesmarine, Bremerhaven und Flensburg |
| Studium | 1993–1999 | Diplom-Physik, Universität Kassel |
| Promotion | 1999–2002 | Promotionsstipendium im Graduiertenkolleg „Materialien und Komponenten der Mikrosystemtechnik“, Experimentalphysik, Universität Kassel |