

5. Resultate: Filmmagnetismus

5.1 Fe/MgO(001)

Im folgenden sollen die magnetischen Eigenschaften von Fe/MgO(001) vorgestellt werden, wie sie schichtdickenabhängig bei konstanter Wachstumstemperatur im Bereich von 2 - 100 nm gemessen wurden. Der Schwerpunkt liegt dabei auf den magnetoelastischen Kopplungskonstanten B_1 und B_2 von Eisen. Parallel dazu wurden stets auch Magnetisierung und magnetische Anisotropie der jeweiligen Filme untersucht.

Magnetisierung und magnetische Anisotropie

In **Abb. 5-1** sind repräsentative Hysteresekurven gezeigt, die entlang zweier verschiedener Kristallrichtungen gemessen wurden. **(a)** Für die Messung entlang der leichten Magnetisierungsrichtung (Fe[100]) stimmt die gemessene Sättigungsmagnetisierung im Rahmen des Messfehlers von $\pm 10\%$ mit dem Volumenwert von Eisen $M_{Fe} = 1,76$ MA/m überein. Die Koerzitivfeldstärke beträgt ca. 2 kA/m. **(b)** Entlang der schweren Richtung (Fe[110]) wird zur Sättigung ein magnetisierendes Feld von $H \approx 50$ kA/m benötigt. Auch hier wird der Volumenwert für die Magnetisierung gemessen.

Zwei typische Messkurven der magnetischen Anisotropie für verschiedene Filmorientierungen sind in **Abb. 5-2** gezeigt. Aufgetragen ist die remanente Magnetisierung der Filme in Abhängigkeit des Rotationswinkels des in der Filmebene magnetisierenden Feldes. **(a)** Bei Orientierung von Fe[100] parallel zur langen Biegebalkenachse erfolgt

(mit steigendem Rotationswinkel) bei 45° eine sprunghafte Änderung der remanenten Magnetisierung in $[\bar{1}00]$ -Richtung von $1,76 \text{ MA/m}$ auf Null, weil die Magnetisierung in die senkrecht dazu stehende $[010]$ -Richtung klappt, d.h. zur kurzen Biegebalkenachse. Aufgrund der Messgeometrie ist \vec{M} jetzt nicht detektierbar (vgl. Abschnitt 2.4.2). Entsprechend kippt \vec{M} bei 135° in die $[100]$ -Richtung.

(b) Für die zweite verwendete Messgeometrie mit der schweren Magnetisierungsrichtung (Fe $[110]$) entlang der langen Biegebalkenachse springt die Magnetisierung folgerichtig bei 90° . Der Messwert für die Magnetisierung ist hier reduziert, weil bei remanenter Messung entlang der schweren Richtung die Magnetisierung wegen der Anisotropieenergie parallel $[100]$ bzw. $[010]$ ausgerichtet ist. Diese ist um 45° gegen die Messrichtung verdreht, weshalb nur die Komponente $M_x = 1/\sqrt{2}M_S \approx 1,2 \text{ MA/m}$ der Sättigungsmagnetisierung M_S detektiert wird.

Zusammenfassend wurden im untersuchten Schichtdickenbereich von 2 - 100 nm keine Hinweise auf Abweichungen von der Volumenphase hinsichtlich Magnetisierung oder magnetischer Anisotropie gefunden. Lediglich die 2 nm dicken Filme hatten im Vergleich eine leicht erhöhte Sättigungsmagnetisierung, die aber im Rahmen des Messfehlers noch dem Volumenwert zuzuordnen ist.

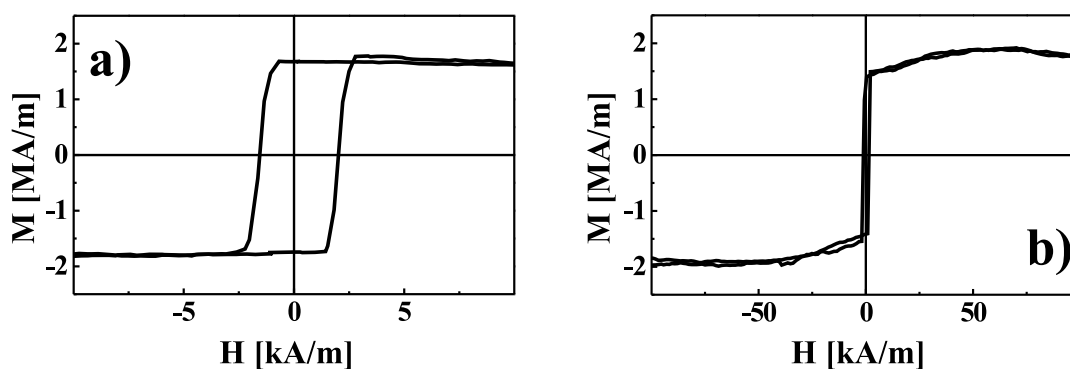


Abb. 5-1: Magnetisierungshysteresen von Fe/MgO(001): (a) 5,5 nm, gemessen entlang Fe $[100]$; (b) 4,5 nm, gemessen entlang Fe $[110]$.

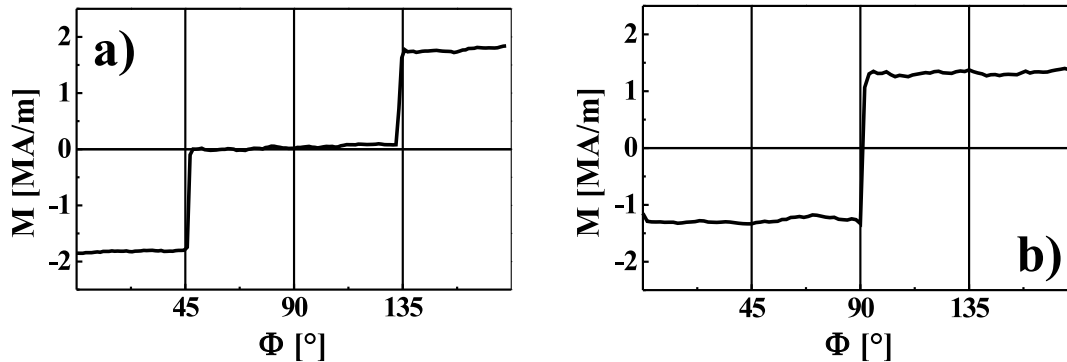


Abb. 5-2: Abhängigkeit der remanenten Magnetisierung M entlang Fe[100] vom *in plane* Rotationswinkel des magnetisierenden Feldes Φ : (a) 5,5 nm Fe/MgO(001)[100]; (b) 4,5 nm Fe/11 nm Cr/MgO(001)[110].

Das Verhalten von B_1

Ausgangspunkt für die Untersuchung der magnetoelastischen Kopplung dünner Fe-Filme waren frühere Messungen unserer Arbeitsgruppe am System Fe/MgO(001) [19]. Anhand einer Serie 100 nm dicker Fe-Filme ist damals die Kopplungskonstante B_1 vermessen und eine Abweichung vom Volumenwert $B_1^{Vol} = -3,44 \text{ MJ/m}^3$ festgestellt worden. Es konnte ein direkter Zusammenhang zwischen dem Betrag der gemessenen effektiven magnetoelastischen Kopplungskonstante B_1^{eff} und der zugehörigen mittleren Verspannung $\langle \sigma \rangle$ der gewachsenen Fe-Filme nachgewiesen werden, der in **Abb. 5-3** dargestellt ist. Im untersuchten Spannungsbereich ist lineares Verhalten zu erkennen. Bereits bei (für epitaktische Systeme kleinen) Spannungen von 0,1 GPa ($\epsilon \approx 0,05\%$) treten signifikante Abweichungen vom Volumenwert auf. Bei ca. 0,7 GPa ($\epsilon \approx 0,35\%$) findet sogar ein Vorzeichenwechsel von B_1^{eff} statt. Der zugehörige Anstieg ist der magnetoelastischen Kopplungskonstante D_1 zuzuordnen, die mit $D_1 = 1,1 \text{ GJ/m}^3 \pm 10\%$ erstmals quantitativ bestimmt wurde.

Die Variation der mittleren Filmspannung in den 100 nm Fe-Filmen ist durch eine Veränderung der Wachstumstemperatur erreicht worden (Abschnitt 4.2). Aufgrund der hohen Filmdicke sind die Filmspannungen deutlich kleiner als die maximal mögliche Misfit-Spannung von 6,8 GPa. Ziel der hier vorgestellten Untersuchungen war es des-

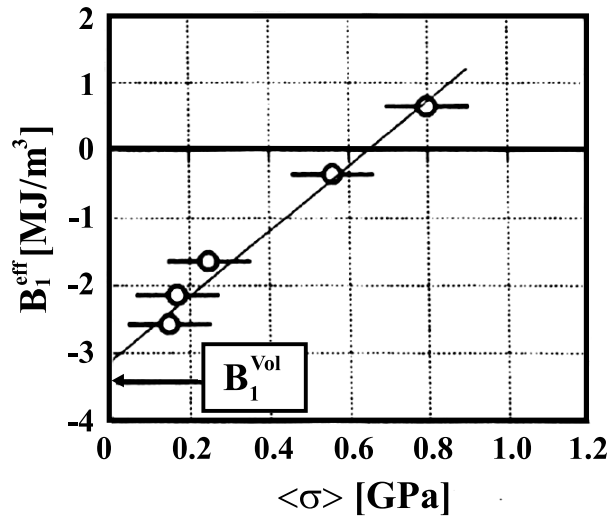


Abb. 5-3: Die effektive magnetoelastische Kopplungskonstante B_1^{eff} von Fe als Funktion der mittleren Filmspannung $\langle \sigma \rangle$: eine Messserie 100 nm dicker Fe-Filme auf MgO(001), aus [11].

halb, den weiteren Verlauf der in **Abb. 5-3** gezeigten Messkurve für den Bereich höherer Filmspannungen zu vermessen. Dies ist bei Fe/MgO(001) nur mit pseudomorph gewachsenen, atomar flachen Fe-Filmen möglich (Abschnitt 4.2), weshalb die Untersuchungen auf den Schichtdickenbereich von 2 - 100 nm ausgedehnt wurden. Eine Variation der mittleren Filmspannung kann dann über eine Veränderung der nominellen Schichtdicke erreicht werden.

Im System Fe/MgO(001) können sehr hohe Spannungen nur bei relativ dünnen Filmen mit Schichtdicken im Nanometerbereich realisiert werden. Bei den verschiedenen theoretischen Erklärungsansätzen zur magnetoelastischen Kopplung (Abschnitt 2.3) werden auch Oberflächen- und Grenzflächeneinflüsse diskutiert, die invers zur Schichtdicke abfallen und darum in dünnen Schichten relevant werden. Um diese Schichtdickenabhängigkeiten auszuschließen, müssen die dünnen Filme auch gering verspannt hergestellt werden. Das epitaktische Wachstum von Fe auf Cr-Pufferschichten bot die Möglichkeit, den Misfit für Fe bezüglich MgO(001) weitgehend zu relaxieren. Eine Variation der mittleren Filmspannung von Fe-Schichten gleicher Dicke ist damit über die Variation der Dicke der Cr-Pufferschicht möglich, und insbesondere konnten so dünne, geringverspannte Fe-Filme hergestellt werden.

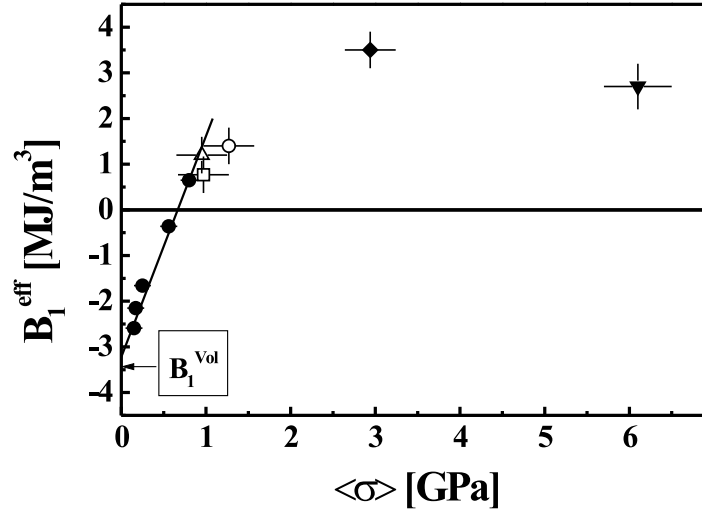


Abb. 5-4: Abhängigkeit der effektiven magnetoelastischen Kopplungskonstante B_1^{eff} verschiedener Fe(001)-Filme von der mittleren mechanischen Filmspannung $\langle\sigma\rangle$: 100 nm Fe/MgO(001) (●); 10 nm Fe/12 nm Cr/MgO(001) (□); 5,5 nm Fe/25 nm Cr/MgO(001) (△); 5,5 nm Fe/50 nm Cr/MgO(001) (○); 5,5 nm Fe/MgO(001) (◆); 2 nm Fe/MgO(001) (▼).

Die vollständige Messserie von B_1^{eff} für zugverspanntes Fe ist in **Abb. 5-4** gezeigt, einschließlich der Messpunkte der alten Serie aus **Abb. 5-3** (●). Der lineare Verlauf zu Beginn reicht vom (extrapolierten) Volumenwert bei $\sigma = 0$ GPa, $B_1^{Vol} = -3,2$ MJ/m³ (in Übereinstimmung mit dem Literaturwert $B_1^{Vol} = -3,44$ MJ/m³ [104]), bis zu einer Filmspannung von $\sigma \approx 1,0$ GPa, mit dem Vorzeichenwechsel von B_1^{eff} bei ca. 0,7 GPa. Ab etwa 1 - 2 GPa ($\epsilon \approx 0,5 - 1\%$) wird das lineare Verhalten durchbrochen. So erreicht B_1^{eff} bei einer mittleren Filmspannung von etwa 3,0 GPa einen Sättigungswert von +3,5 MJ/m³. Noch höhere Filmspannungen bis 6,0 GPa bewirken dann sogar eine leichte Reduktion auf $B_1^{eff} \approx +2,7$ MJ/m³. Der Anschluss an die alte Messserie wurde mit 5,5 bzw. 10,0 nm dicken Fe-Filmen auf Cr-Pufferschicht bis 50 nm Dicke erreicht. Hier ist zu berücksichtigen, dass die Fehlerbalken der dünnen Fe-Filme für die hochempfindliche Messung der Magnetostriktion gegenüber denen mit 100 nm Schichtdicke erhöht sind.

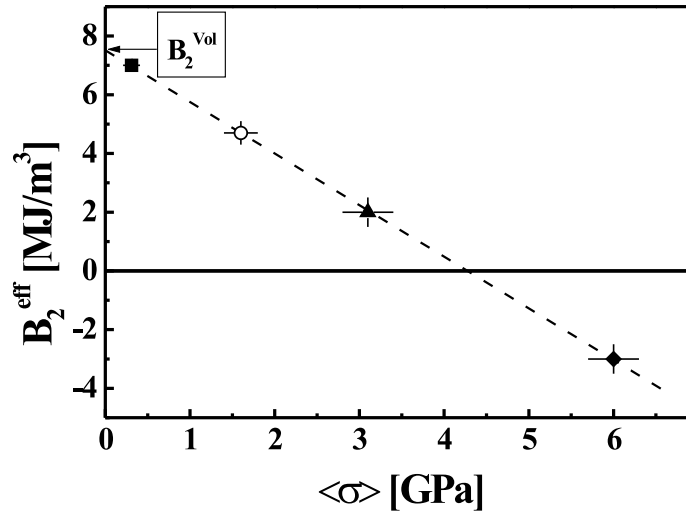


Abb. 5-5: Abhängigkeit der magnetoelastischen Kopplungskonstante B_2^{eff} verschiedener Fe(001)-Filme von der mittleren mechanischen Filmspannung $\langle\sigma\rangle$: 50 nm Fe/MgO(001) (■); 4,5 nm Fe/11 nm Cr/MgO(001) (○); 4,5 nm Fe/MgO(001) (▲); 2,0 nm Fe/MgO(001) (◆).

Das Verhalten von B_2

Zur vollständigen Beschreibung der magnetoelastischen Kopplung von Eisen in dünnen Filmen wurde erstmals auch die magnetoelastische Kopplungskonstante B_2 systematisch vermessen. Dafür musste die Messgeometrie so verändert werden, dass die Fe[110]-Richtung entlang der langen Biegebalkenachse zu liegen kommt. Nur so ist eine unabhängige Messung von B_2 möglich (Abschnitt 2.4.2). Die zugehörigen Fe-Filme sind analog der Beschreibung im letzten Abschnitt gewachsen und deren Filmspannungen ebenso ermittelt worden.

In **Abb. 5-5** ist die magnetoelastische Kopplungskonstante B_2^{eff} als Funktion der mittleren Filmspannung $\langle\sigma\rangle$ gezeigt. Ausgehend vom extrapolierten Volumenwert $B_2^{\text{Vol}} = +7,5 \text{ MJ/m}^3$ bei $\sigma = 0 \text{ GPa}$ (Literaturwert: $B_2^{\text{Vol}} = +7,62 \text{ MJ/m}^3$ [104]) ergibt sich ein linearer Verlauf bis zu hohen Filmspannungen von $\sigma = 6,0 \text{ GPa}$. Alle B_2^{eff} -Werte liegen auf einer Ausgleichsgeraden. Ein Vorzeichenwechsel von B_2^{eff} tritt bei einer mittleren Filmspannung von $\sigma \approx 4,0 \text{ GPa}$ auf. Um Schichtdickenabhängigkeit

auszuschließen, sind auch zwei Fe-Filme der gleichen nominellen Filmdicke (4,5 nm), aber mit verschiedener mittlerer Filmspannung gewachsen worden. Filme mit geringeren Spannungen wurden wieder auf einer Cr-Pufferschicht aufgewachsen.

Die Kopplungskonstante B_2^{eff} zeigt ebenso wie B_1^{eff} eine starke Abhängigkeit von der Filmspannung, wobei auch hier ein Vorzeichenwechsel stattfindet. Im Gegensatz zu B_1^{eff} ist lineares Verhalten über den gesamten untersuchten Zugspannungsbereich zu beobachten. Der Betrag der Steigung der Ausgleichsgeraden ist deutlich kleiner als vergleichsweise bei B_1^{eff} und der Vorzeichenwechsel ist folgerichtig zu höheren Filmspannungen verschoben. Entsprechend den Ausführungen in Abschnitt 2.4.2 wurde die zu B_2^{eff} gehörende magnetoelastische Kopplungskonstante D_2 gemäß Gl. 2.45 zu $D_2 = -0,37 \text{ GJ/m}^3 \pm 10\%$ bestimmt. Die B^{eff} -Werte unverspannter Fe(001)-Schichten stimmen für beide Kopplungskonstanten gut mit Volumenwerten aus der Literatur überein.

5.2 Fe/GaAs(001)

Die bis hierher vorgestellten Messungen zur magnetoelastischen Kopplung am System Fe/MgO(001) sind ausschließlich auf zugverspannte Fe-Filme ($\epsilon > 0$) beschränkt. Um das Verhalten von B^{eff} auf der Druckspannungsseite zu untersuchen, müssen Fe-Filme mit $\epsilon < 0$ hergestellt werden. Das System Fe/GaAs(001) eröffnet aufgrund des negativen Misfit von $-1,3\%$ die Möglichkeit, solche druckverspannten Fe(001)-Filme zu wachsen. Wie die in Kapitel 4 diskutierten Wachstumsuntersuchungen von Fe/GaAs(001) zeigen, kommt es im Grenzflächenbereich zwischen Fe und GaAs bei 450 K zur Ausbildung einer Interdiffusionsschicht mit Verbindungen zwischen Fe und GaAs ($\text{Fe}_3\text{Ga}_{2-x}\text{As}_x$, Fe_2As), die dort eine Halbierung des magnetischen Moments bewirkt [26]. Unsere Spannungsmessungen zeigen außerdem, dass auch bei 300 K diese Interdiffusion nicht vollständig unterdrückt ist. Es stellt sich daher die Frage, wie sich die zugehörige Magnetisierung und magnetische Anisotropie verhalten, und ob die magnetoelastische Kopplung davon beeinflusst wird.

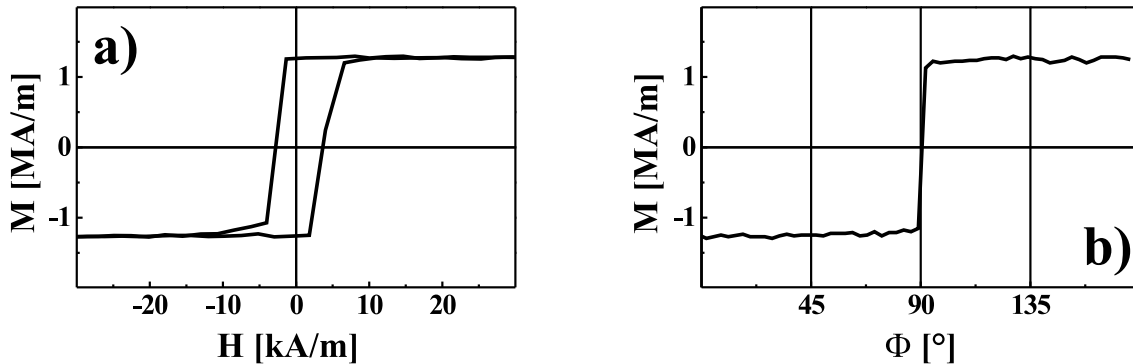


Abb. 5-6: Remanente Magnetisierungsmessung von 25 nm Fe/GaAs(001)[110], 450 K: (a) Hysteresekurve; (b) magnetische Anisotropiekurve.

Magnetisierung und magnetische Anisotropie

Abb. 5-6 zeigt repräsentative Messkurven von Magnetisierung und magnetischer Anisotropie. In (a) ist die remanent gemessene Hysteresekurve eines 25 nm dicken Fe-Filmes abgebildet. Gemessen wurde hier entlang der schweren Fe[110]-Richtung, weshalb die Magnetisierung mit $M_x = 1,25$ MA/m um einen Faktor $1/\sqrt{2}$ gegenüber der Sättigungsmagnetisierung M_S reduziert ist. Mithin ergibt sich $M_S = 1,77$ MA/m $\pm 10\%$, in guter Übereinstimmung mit dem Volumenwert von $M_{Fe} = 1,76$ MA/m. Die Koerzitivfeldstärke beträgt etwa 3 kA/m. Die zugehörige Anisotropiekurve (b) zeigt ebenfalls Volumenverhalten. Wie zu erwarten, kippt bei dieser Substratorientierung die remanente Magnetisierung nach einem Rotationswinkel von 90° von Fe[010] nach Fe[$\bar{1}00$].

In den hier vorgestellten Messungen wurden Filme mit Schichtdicken > 6 nm untersucht. Sie zeigen alle Volumenverhalten hinsichtlich der Magnetisierung und magnetischen Anisotropie. Vergleicht man die Fe-Filme verschiedener Depositionstemperaturen, so zeigen die Filme höherer Temperatur verglichen mit den bei 300 K gewachsenen tendenziell eine leicht reduzierte Sättigungsmagnetisierung, die aber im Rahmen des Messfehlers von 10% dem Volumenwerte von Fe zuzuordnen ist. Wegen der (einige Nanometer breiten) Interdiffusionsschicht an der Fe-GaAs-Grenzfläche mit einem reduzierten magnetischen Moment der verschiedenen Fe-Ga-As-Legierungen sind die gemessenen Volumen-

werte für die Magnetisierung zunächst überraschend. Allerdings sind die untersuchten Filmdicken mit $d_F \geq 6$ nm deutlich größer, als die Breite der Interdiffusionsschicht. Hinzu kommt, dass ein reduziertes magnetisches Moment aufgrund der Durchmischung in der Grenzsicht nur auf wenige Monolagen zu Beginn des Fe-Wachstums beschränkt ist [26]. Da die Messung der Magnetisierung über die gesamte Schichtdicke mittelt, wird der Einfluss der Zwischenschicht unterdrückt. Unsere Messungen zu Magnetisierung und magnetischer Anisotropie stehen damit in Einklang mit der Literatur.

Das Verhalten von B_1

Zur Messung von B_1 muss der Magnetisierungsvektor entlang der Fe[100]-Richtung (Messrichtung x) zu liegen kommen, d.h. die [100]-Richtung von GaAs(001) entlang der langen Biegebalkenachse orientiert sein. Der erforderliche Zuschnitt der ca. 100 μm dicken GaAs-Substrate erfolgte von Hand und ist sehr schwierig, da die [100]-Richtung keine Spaltfläche für GaAs ist. Eine geringe Ausbeute verwendbarer Substrate war die Folge.

Die Messung der Spannungsabhängigkeit der magnetoelastischen Kopplungskonstante B_1 gestaltet sich aufgrund des Wachstums von Fe/GaAs(001) experimentell schwierig. Sind die Filmkraftkurven bei Fe/MgO(001) geprägt vom Lagenwachstum eines pseudomorphen, ausschließlich zugverspannten Filmes, so ist bei Fe/GaAs(001) der Verlauf der Filmspannung wegen der Interdiffusionszwischenschicht vergleichsweise komplex. Die unerwartete anfängliche Zugspannung (abgelöst von einer späteren Druckspannung) macht es schwierig, für die gewachsenen Filme eine mittlere Verspannung anzugeben (**Abb. 4-9**). Deshalb erfolgt zunächst eine schichtdickenabhängige Auswertung der an diesem System gemessenen B_1^{eff} -Werte. Dazu ist in **Abb. 5-7** die nominell gemessene magnetoelastische Kopplungskonstante B_1^{eff} in Abhängigkeit der Filmdicke d_F für vier verschiedenen Fe-Filme aufgetragen. Man erkennt, dass mit zunehmender Filmdicke die magnetoelastische Kopplungskonstante B_1^{eff} gegen einen Wert von $\approx +2,9$ MJ/m³ konvergiert.

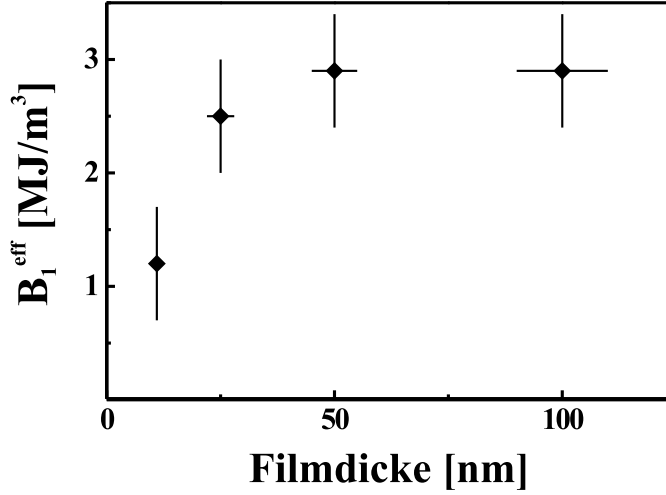


Abb. 5-7: Fe/GaAs(001) bei 300 K: gemessene effektive magnetoelastische Kopplungskonstante B_1^{eff} als Funktion der Filmdicke.

Das Einlaufen dieser Kurve steht in Einklang mit der Filmkraftkurve in **Abb. 4-9**. Danach wird eine anfängliche Zugspannung, die auf die Interdiffusion zurückzuführen ist, ab etwa 6 nm von einer Druckspannung mit $\sigma \approx 0,5$ GPa abgelöst, die im weiteren Wachstumsverlauf beibehalten wird. Geht man davon aus, dass sich der (verspannungsabhängige) Betrag von B_1^{eff} additiv aus Beiträgen übereinanderliegender, verschieden verspannter Schichten zusammensetzt [12], so muss mit zunehmender Zahl gleichmäßig druckverspannter Lagen auch der integrale B_1^{eff} -Wert des Gesamtfilmes sich dem zu dieser Druckspannung gehörenden Wert annähern. Möchte man bezüglich der magnetoelastischen Kopplung quantitative Aussagen für druckverspannte Fe-Filme machen, so muss aus dem integralen Wert von B_1^{eff} des gesamten Filmes derjenige Anteil $B_{1,druck}^{eff}$ extrahiert werden, der zu den ausschließlich druckverspannten Filmlagen gehört. Normiert auf die Schichtdicke gilt:

$$B_1^{eff} = \frac{d_0}{d_F} \cdot B_{1,zug}^{eff} + \frac{d_F - d_0}{d_F} \cdot B_{1,druck}^{eff} \quad (5.1)$$

mit der Gesamtfilmdicke d_F , der Filmdicke d_0 , bis zu der Zugspannung vorherrscht und der dazu gehörenden magnetoelastischen Kopplungskonstante $B_{1,zug}^{eff}$.

d_F	B_1^{eff}	σ	$B_{1,druck}^{eff}$
[nm]	[MJ/m ³]	[GPa]	[MJ/m ³]
11	+1,2	—	—
25	+2,5	-0,30	+3,5
50	+2,9	-0,49	+3,4
100	+2,9	-0,43	+3,1

Tab. 5.1: Fe/GaAs(001) bei 300 K. Fe–Filmdicke d_F , nominelle Kopplungskonstante B_1^{eff} wie gemessen, Filmspannung σ und zugehörige magnetoelastische Kopplungskonstante $B_{1,druck}^{eff}$ der ausschließlich druckverspannten Filmschicht.

Die für die Ermittlung von $B_{1,druck}^{eff}$ für ausschließlich druckverspannte Fe–Schichten notwendigen Messwerte sind in **Tab. 5.1** aufgelistet. Ausgangspunkt ist ein 11 nm dicker Fe–Film (d_0), der nach **Abb. 4-9** jenseits des Zugspannungsbereiches auf der Druckspannungsseite der Filmkraftkurve liegt und damit weit entfernt von der anfänglichen Interdiffusionszwischenschicht ist. Für diesen (überwiegend zugverspannten) Film wurde der Wert der Kopplungskonstante mit $B_1^{eff} = +1,2$ MJ/m³ gemessen. Dieser Wert stellt als $B_{1,zug}^{eff}$ nun den Ausgangspunkt für $B_{1,druck}^{eff}$ –Werte dar, die zu (ausschließlich) druckverspannten Fe–Schichten oberhalb von 11 nm Filmdicke gehören und nach Gl. 5.1 berechnet wurden. Die zugehörige Filmspannung σ entspricht der mittleren Steigung der Filmkraftkurve zwischen 11 nm und dem jeweiligen Wert der gemessenen Gesamtfilmdicke. Insgesamt konnten so drei Werte $B_{1,druck}^{eff}$ für ausschließlich druckverspannte Fe(001)–Schichten auf GaAs–Substraten ermittelt werden, die nun direkt mit den B_1^{eff} –Werten zugverspannter Fe–Filme auf MgO(001) verglichen werden können.

Abb. 5-8 zeigt den vollständigen gemessenen Kurvenverlauf für B_1^{eff} als Funktion von $\langle\sigma\rangle$ zug- und druckverspannter Fe–Filme. Kommt man von der Zugspannungsseite ($\sigma \geq 0$) mit negativen Werten für B_1^{eff} , so würde man bei Fortsetzung der gedachten Kurve negative B_1^{eff} –Werte mit Beträgen von 3 - 4 MJ/m³ erwarten. Stattdessen haben alle drei druckverspannten Fe–Filme positive B_1^{eff} –Werte von 3,1 - 3,5 MJ/m³. Sie liegen damit, obwohl nur sehr gering verspannt, weit entfernt vom Volumenwert $B_1^{Vol} = -3,44$ MJ/m³, den auch unverspannt gewachsene Fe–Filme aufweisen. Legt man

in Gedanken eine kontinuierliche Kurve in das Diagramm, so ergäbe sich für die Steigung auf der Druckspannungsseite ein negativer Wert, im Gegensatz zu den Ergebnissen zugverspannter Fe(001)–Filme auf MgO–Substraten. Das Verhalten der magnetoelastischen Kopplungskonstante für kleine negative Gitterverzerrungen ist damit sehr überraschend, da sowohl Betrag als auch Vorzeichen von B_1^{eff} der druckverspannten Fe–Schichten im Widerspruch zu den theoretischen Überlegungen aus Abschnitt 2.3.2 stehen.

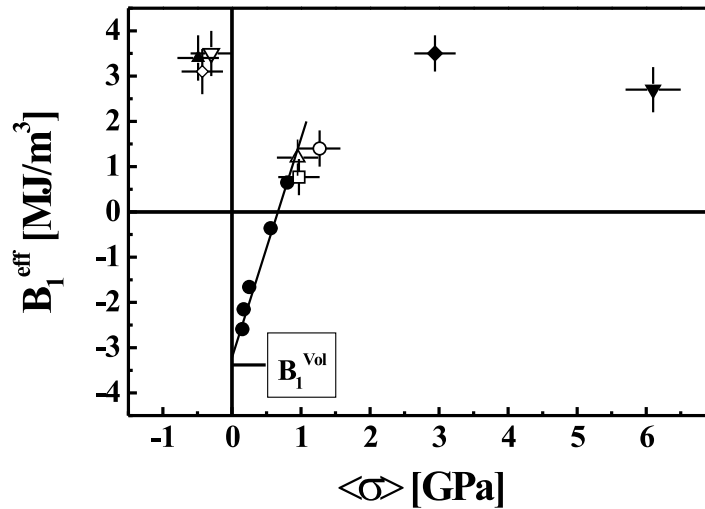


Abb. 5-8: Die magnetoelastische Kopplungskonstante B_1^{eff} zug- und druckverspannter Fe(001)–Filme: 100 nm Fe/MgO(001) (●); 10 nm Fe/12 nm Cr/MgO(001) (□); 5,5 nm Fe/25 nm Cr/MgO(001) (△); 5,5 nm Fe/50 nm Cr/MgO(001) (○); 5,5 nm Fe/MgO(001) (◆); 2 nm Fe/MgO(001) (▼); 25 nm Fe/GaAs(001) (▽); 50 nm Fe/GaAs(001) (▲); 100 nm Fe/GaAs(001) (◇).

Das Verhalten von B_2

Die Messung der magnetoelastischen Kopplungskonstante B_2 druckverspannter Fe(001)–Filme auf GaAs–Substraten bedurfte zunächst wieder einer angepassten Messgeometrie, bei der Fe[110] parallel zur langen Biegebalkenachse zu liegen kommt. Dazu mussten die GaAs–Wafer ebenfalls entlang der [110]–Richtung zugeschnitten werden.

d_F [nm]	B_2^{eff} [MJ/m ³]	σ [GPa]	$B_{2,druck}^{eff}$ [MJ/m ³]
6	+3,8	—	—
25	+6,4	-0,75	+7,2
25	+6,0	-0,53	+6,7

Tab. 5.2: Fe/GaAs(001) bei 300 K: Fe Filmdicke d_F , nominelle Kopplungskonstante B_2^{eff} wie gemessen, Filmspannung σ und zugehörige magnetoelastische Kopplungskonstante $B_{2,druck}^{eff}$ der ausschließlich druckverspannten Filmschicht.

Die Zuordnung von B_2^{eff} -Werten zu druckverspannten Fe-Schichten erfolgt analog zu den Ausführungen im vorangegangenen Abschnitt (Gl. 5.1). Die Messwerte sind in **Tab. 5.2** aufgelistet. Referenzfilm für die Separation der ausschließlich druckverspannten Filmschicht ist hier ein Fe-Film mit $d_F = 6$ nm (d_0), dessen Deposition genau am Umkehrpunkt zwischen Zug- und Druckspannungsbereich abgebrochen wurde. Bezogen auf den zugehörigen Wert von $B_2^{eff} = +3,8$ MJ/m³ ($B_{2,zug}^{eff}$) erhält man wieder $B_{2,druck}^{eff}$ -Werte für den Druckspannungsbereich zweier Fe-Filme mit nominellen Gesamtschichtdicken von jeweils 25 nm. Diese $B_{2,druck}^{eff}$ -Werte können wieder direkt mit den B_2^{eff} -Werten der Messungen von Fe/MgO(001) verglichen werden.

In **Abb. 5-9** ist die vollständige Spannungsabhängigkeit von B_2^{eff} dargestellt, einschließlich der druckverspannten Fe(001)-Filme auf GaAs(001). Der lineare Verlauf der B_2^{eff} -Kurve für zugverspannte Filme mit $\sigma \geq 0$ setzt sich auf der Druckspannungsseite mit $\sigma \leq 0$ nicht fort. Bei relativ geringen Verspannungen von $\sigma \approx -0,6$ GPa werden B_2^{eff} -Werte von ca. +7 MJ/m³ gemessen, die kleiner als der Volumenwert sind ($B_2^{Vol} = +7,62$ MJ/m³).

Das Verhalten von B_2^{eff} für kleine Gitterverzerrungen ($\pm\epsilon$) vergleicht sich mit dem von B_1^{eff} . Auch hier reicht bei Gitterkompression ($\epsilon < 0$) eine kleine Verzerrung aus, um das lineare Verhalten, das für $\epsilon > 0$ beobachtet wird, zu durchbrechen. Allerdings weist B_2^{eff} im Vergleich zu B_1^{eff} für kleine $\pm\epsilon$ insgesamt eine deutlich geringere Verzerrungsabhängigkeit im funktionalen Zusammenhang $B^{eff} = f(\epsilon)$ auf. Die Kopplungskonstante

B_2 von Eisen gehört gemäß Gl. 2.16 zu ϵ_{12} und damit zu einer Scherkomponente des Verzerrungstensors $\tilde{\epsilon}$. Im Gegensatz dazu gehört B_1 zur Verzerrung ϵ_{11} in Richtung der kubischen Hauptachse. Es ist möglich, dass die im Eisengitter vorhandene Richtungsabhängigkeit der Bandstruktur ursächlich für diesen Unterschied ist.

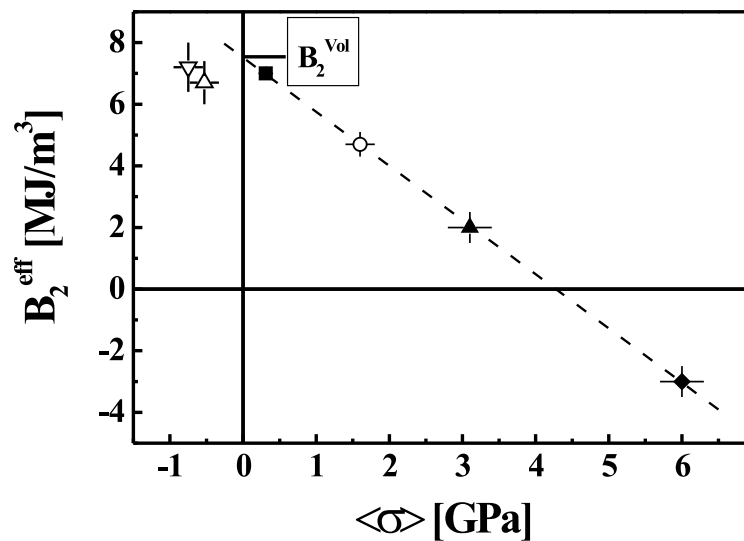


Abb. 5-9: Die Kopplungskonstante B_2^{eff} zug- und druckverspannter Fe(001)-Filme: 50 nm Fe/MgO(001) (■); 4,5 nm Fe/11 nm Cr/MgO(001) (○); 4,5 nm Fe/MgO(001) (▲); 2,0 nm Fe/MgO(001) (◆); 25 nm Fe/GaAs(001) (▽)(△)

5.3 Zusammenfassende Diskussion

Wie in den vorangegangenen Abschnitten ausführlich gezeigt wurde, kann die magnetoelastische Kopplung dünner Eisenfilme signifikant von denen des Volumenmaterials abweichen. Um die Ursache dieser Abweichung zu verstehen, bieten sich zwei Erklärungsansätze an.

(i) Die naheliegendste Annahme ist die, dass aufgrund der reduzierten Symmetrie dünner Filme der Einfluss von Oberflächen und Grenzflächen bei der magnetoelastischen Kopplung zu erwarten ist. Das führt zu einer schichtdickenabhängigen, effektiven magnetoelastischen Kopplungskonstante B^{eff} :

$$B^{eff} = B^{Vol} + \frac{B^{OF}}{d_F} \quad (5.2)$$

mit der Filmdicke d_F , dem Volumenwert B^{Vol} und Oberflächen- bzw. Grenzflächenbeiträgen B^{OF} [13, 105]. Bei steigender Filmdicke sinkt der Einfluss von B^{OF} gegen Null und die gemessene effektive magnetoelastische Kopplungskonstante B^{eff} nimmt den Volumenwert an.

(ii) Alternativ dazu kann die magnetoelastische Energie als Reihenentwicklung in Potenzen der Verspannung ϵ angenommen werden. Unter Einbeziehung höherer Reihenglieder folgt damit für die magnetoelastische Kopplungskonstante von Eisen:

$$B^{eff} = B^{Vol} + D \cdot \epsilon_0 \quad (5.3)$$

mit der Kopplungskonstante höherer Ordnung D und der lateralen Verzerrung ϵ_0 . Bei konstantem D hätte eine Variation von ϵ eine Abweichung von B^{eff} vom Volumenwert zur Folge, unabhängig von der Dicke der Schicht.

Eine Reihe von theoretischen und experimentellen Untersuchungen beschäftigen sich mit dem Einfluss der magnetoelastischen Kopplung auf die Änderung der magnetischen Anisotropie von Nickel [20, 106, 107, 108]. Dabei kommt es in dünnen Ni-Filmen in einem begrenzten Schichtdickenbereich zu einem Übergang von *in plane* zu *out of plane* Ausrichtung des Magnetisierungsvektors. Als treibende Kraft wird u.a. die magnetoelastische

Kopplung vorgeschlagen. Gleichzeitig wird konstatiert, dass der Beitrag einer Grenzfläche gemäß Gl. 5.2 allenfalls eine untergeordnete Rolle spielt. Resultate von O’Handley et al. sowie *ab initio* Rechnungen, die gleichzeitig sowohl Grenzflächeneinflüsse als auch Verspannungsabhängigkeiten der magnetoelastischen Kopplung berücksichtigen, zeigen übereinstimmend, dass der Grenzflächenbeitrag erst unterhalb einer Schichtdicke von 1 ML (!) Ni signifikant wird; dessen Vernachlässigung erscheint für dünne Ni-Filme demzufolge gerechtfertigt.

In dieser Arbeit wurden die Messungen zur magnetoelastischen Kopplung von Fe-Filmen auf Schichtdicken bis hinunter zu 2 nm ausgedehnt. Sowohl in der Literatur als auch im Rahmen dieser Arbeit wurden keine Hinweise auf nennenswerte Einflüsse von Oberflächen oder Grenzflächen auf magnetische und magnetoelastische Eigenschaften des untersuchten Fe-Kristallgitters dieser Schichtdicke gefunden. Unterhalb von 2 nm können diese Effekte auf Grund reduzierter Dimension (*finale size*) jedoch nicht mehr vernachlässigt werden, weil **1.** eine Oberflächenkorrugation von einigen Monolagen in ultradünnen Fe-Filmen eine teilweise Relaxation der magnetostriktiven Spannung erlaubt, was aufgrund des Biegebalkenmessprinzips geringere B^{eff} -Messwerte zur Folge hätte; **2.** Untersuchungen 1 nm dicker Filme reduzierte Magnetisierung zeigen, die wegen der magnetoelastischen Kopplung auch kleinere B^{eff} -Werte zur Folge haben kann, und **3.** die Beträge magnetoelastischer Kopplungskonstanten der Oberfläche deutlich von den zugehörigen Volumenwerten abweichen können [109].

Das Modell der Verzerrungsabhängigkeit (Gl. 5.3) beschreibt auch die in dieser Arbeit gemessenen Daten für Eisen besser, als die Korrektur des Volumenverhaltens durch einen Grenzflächenbeitrag (Gl. 5.2). Dafür gibt es eine ganze Reihe von Hinweisen. Zum einen erreicht die magnetoelastische Kopplungskonstante den Volumenwert für verspannte, 100 nm dicke Filme nicht, obwohl dort aufgrund der hohen Schichtdicke der Einfluss von Oberflächen- und Grenzflächenbeiträgen definitiv vernachlässigt werden kann. Zum anderen zeigen identisch verzerrte, wesentlich dünnere Fe-Filme (< 10 nm) denselben B_1^{eff} -Wert, wie die 100 nm dicken Fe-Schichten. Unverspannte dicke wie dünne Fe(001)-Filme zeigen hingegen Volumenwerte der magnetoelastischen Kopplungskonstante.

In der vorliegenden Arbeit wurde zusätzlich zur magnetoelastischen Kopplungskonstan-

te B_1 erstmals auch die magnetoelastische Kopplungskonstante B_2 von Fe systematisch vermessen. Auch B_2^{eff} zeigt eine ausgeprägte Abhängigkeit von der Gitterverzerrung. Während im Fall von B_1^{eff} bei zugverspannten Filmen bereits bei $\epsilon \approx 0,35\%$ ein Vorzeichenwechsel auftritt, ist die Verzerrungsabhängigkeit für B_2^{eff} geringer ausgeprägt, weshalb der (ebenfalls beobachtete) Vorzeichenwechsel später stattfindet. Außerdem ist bei B_1^{eff} ab etwa 1% Gitterverzerrung ein deutliches Abweichen vom anfänglichen linearen Verlauf zu erkennen, wohingegen B_2^{eff} über den gesamten untersuchten positiven Verzerrungsbereich lineares Verhalten zeigt, mit der zugehörigen Kopplungskonstante höherer Ordnung $D_2 = -0,37 \text{ GJ/m}^3 \pm 10\%$. Die zu B_2 gehörende Messrichtung ist gemäß Gl. 2.16 mit der Scherkomponente ϵ_{12} des Verzerrungstensors $\tilde{\epsilon}$ gekoppelt. Im Gegensatz dazu gehört die Kopplungskonstante B_1 zu ϵ_{11} (in Richtung der kubischen Hauptachse [100]). Da die magnetoelastische Kopplung mit der Bandstruktur gekoppelt ist, ist sie auch genau wie diese von der Kristallrichtungen abhängig. Offensichtlich beeinflusst die biaxiale Verzerrung des Fe-Gitters die magnetoelastische Kopplung entlang der Hauptachsen des kubischen Kristalls (B_1) deutlich stärker, als entlang der Diagonalen der Fe-Gitterzelle (B_2).

Die verspannungsabhängige Korrektur wird auch von Sander et al. favorisiert [12, 110]. Deren Untersuchungen zur magnetoelastischen Kopplungskonstante B_1 am System Fe/W(100) sind in Übereinstimmung mit unseren Resultaten. Die auf den Wolframsubstraten gewachsenen, ca. +0,6% verzerrten Fe(001)-Schichten zeigen bezüglich ϵ dieselbe lineare Anhängigkeit für B_1^{eff} wie unsere Messungen. Der von Sander et al. ermittelte Wert für die magnetoelastische Kopplungskonstante zweiter Ordnung $D_1 = 1,0 \text{ GJ/m}^3$ ist in Übereinstimmung mit Fe/MgO(001) ($D_1 = 1,1 \text{ GJ/m}^3 \pm 10\%$).

Durch das Wachstum von Fe auf GaAs(001) bot sich erstmals auch die Möglichkeit, das Verhalten beider magnetoelastischen Kopplungskonstanten von Eisen für den Fall der druckverspannten Gitterzelle zu untersuchen. B_1^{eff} zeigt bereits bei kleinen negativen Verzerrungen $\epsilon \approx -0,2\%$ ein positives Vorzeichen, was ein drastisches Abweichen vom Volumenwert ($B_1^{Vol} = -3,44 \text{ MJ/m}^3$) darstellt. Für B_2^{eff} wird kein Vorzeichenwechsel gefunden, der gemessene Wert weicht aber auch hier von der Volumenphase ab. Der Einfluss der Interdiffusion an der Fe-GaAs-Grenzfläche auf das Verhalten der mag-

netoelastischen Kopplung kann jedoch ausgeschlossen werden. Die Diffusionsschicht ist stark lokalisiert und zeigt ein verändertes magnetisches Verhalten lediglich für die ersten Monolagen, was deutlich unterhalb der hier vermessenen Schichtdicken ($d_F \geq 6$ nm) liegt. Bei der Auswertung der B^{eff} -Werte erfolgt außerdem eine Separierung von ausschließlich druckverspannten Fe-Schichten im Bereich oberhalb 6 - 11 nm. Und schließlich geben Messungen von Magnetisierung und magnetischer Anisotropie keine Hinweise auf Abweichungen von der Volumenphase.

Fähnle et al. haben *ab initio* Rechnungen zur magnetoelastischen Kopplung höherer Ordnung für Eisen mittels der FLAPW-Methode (*full-potential linearized-augmented-plane-wave* [111]) durchgeführt [22]. Für das Austausch-Korrelationspotential wurde sowohl die LSDA (*local-spin-density-approximation* [112]) als auch die GGA (*generalized-gradient-approximation* [113]) verwendet. Damit konnte die totale Energie des Kristalls hinsichtlich der magnetoelastischen Kopplung höherer Ordnung als Funktion von ϵ berechnet werden. Als Ergebnis wird im Verzerrungsbereich bis $\pm 4\%$ ein Verhalten der magnetoelastischen Energie höherer Ordnung gemäß:

$$E_{MEL}^{(2)} \propto \epsilon^2 \quad (5.4)$$

gefunden. Außerdem liefern die Rechnungen quantitative Werte für B_1^{Vol} und D_1^{eff} . Letzterer vergleicht sich mit dem von uns gemessenen Wert für D_1 . Die Unterscheidung ist notwendig, weil der experimentell ermittelbare Wert für D_1 tatsächlich eine komplizierte Verknüpfung der theoretisch exakten Kopplungskonstanten erster und zweiter Ordnung, $b^{\gamma,l}$ und $m_j^{\gamma,l}$, ist (vgl. Gl. 2.26 in Abschnitt 2.3.2). **Tabelle 5.3** vergleicht die berechneten mit den experimentellen Werten.

Die *ab initio* Rechnungen mit LSDA und GGA geben für B_1^{Vol} zwar das richtige Vorzeichen wieder, können aber je nach Funktionalansatz bis zu einem Faktor 3 - 4 differieren; sowohl untereinander als auch im Vergleich mit dem Experiment. Für D_1^{eff} stimmen beide theoretischen Werte untereinander überein, sind hinsichtlich des experimentellen Wertes jedoch um einen Faktor 3 zu niedrig. Den Rechnungen zufolge soll B_1^{eff} für kleine ϵ bis etwa $\pm 4\%$ lineares Verhalten zeigen, was in krassem Widerspruch

	B_1^{Vol} [MJ/m ³]	D_1^{eff} [MJ/m ³]
LSDA	-10,09	373
GGA	-2,42	383
Experiment ¹	-3,2	1100
Experiment ²	-3,0	1000

Tab. 5.3: Gegenüberstellung der mit zwei verschiedenen Funktionalansätzen von Fähnle et al. [22] berechneten Werte der magnetoelastischen Kopplungskonstanten B_1^{Vol} und D_1^{eff} mit unseren experimentellen Daten (Experiment¹) und den Daten von Sander et al. (Experiment²) [110]

zu unseren Messungen steht. Diese zeigen für $\epsilon > +1\%$ eine Abweichung vom linearen Verhalten und für $\epsilon < 0$ ein negatives Vorzeichen für D_1^{eff} .

Bei der erläuterten Behandlung des Problems von Fähnle et al. ist jedoch genügend Spiel, um ein Abweichen von einem linearen Verlauf der B_1^{eff} -Kurve zu erklären. Im Ansatz der Rechnung wird die magnetoelastische Kopplung mit Termen erster, zweiter und höherer Ordnung zugelassen. Bei der Auswertung zur Berechnung der Energieabhängigkeit kann jedoch nicht ausgeschlossen werden, dass sich die höheren Terme gerade so kompensieren, dass in Gl. 5.4 mit $E_{MEL}^{(2)} \propto \epsilon^2$ nur Terme bis zur zweiten Ordnung relevant sind. Bei der Berechnung von D_1^{eff} gemäß Gl. 2.26 muss diese Kompensation aber nicht zwingend bestehen bleiben, wodurch eine Auswertung unter Berücksichtigung von Gliedern bis lediglich 2. Ordnung in den Rechnungen unvollständig bleibt.

Die theoretische Behandlung von Eisen wird durch das komplexe strukturelle Verhalten erschwert. In **Abb. 5-10** ist dieses allotrope Verhalten (Allotropie: Strukturvielfalt) im Zustandsdiagramm $T(p)$ wiedergegeben. Unter Normaldruck zeigt Fe bei hohen Temperaturen die bcc- δ -Phase ($a = 2,93 \text{ \AA}$), im Bereich 910 - 1310 °C die fcc- γ -Struktur ($a = 3,64 \text{ \AA}$, $\mu = 1,0 \mu_B$) und für $T < 910 \text{ °C}$ die ferromagnetische bcc- α -Phase ($a = 2,861 \text{ \AA}$, $\mu = 2,2 \mu_B$). Fe bildet aufgrund dieses Verhaltens eine Ausnahme, weil die Hochtemperaturphase (fcc- γ) ein kleineres Atomvolumen aufweist als die weniger dicht gepackte Tieftemperaturphase (bcc- α). Die nach der Stellung im Periodensystem

erwartete hexagonale ϵ -Struktur tritt nur unter hohen Drücken auf [114].

Schon die grundlegende Frage nach der bei Raumtemperatur stabilen ferromagnetischen Phase von Eisen (bcc- α) wird beispielsweise nur in Rechnungen mittels GGA (und nicht LSDA) korrekt wiedergegeben [115]. Bei der Behandlung der magnetoelastischen Kopplung zeigen jüngste Rechnungen zur Kopplungskonstante B_2^{eff} sowohl mit LSDA als auch mit GGA bereits für den Volumenwert B_2^{Vol} ein falsches Vorzeichen, weshalb insgesamt eine Verbesserung des theoretischen Ansatzes abgewartet werden muss [116].

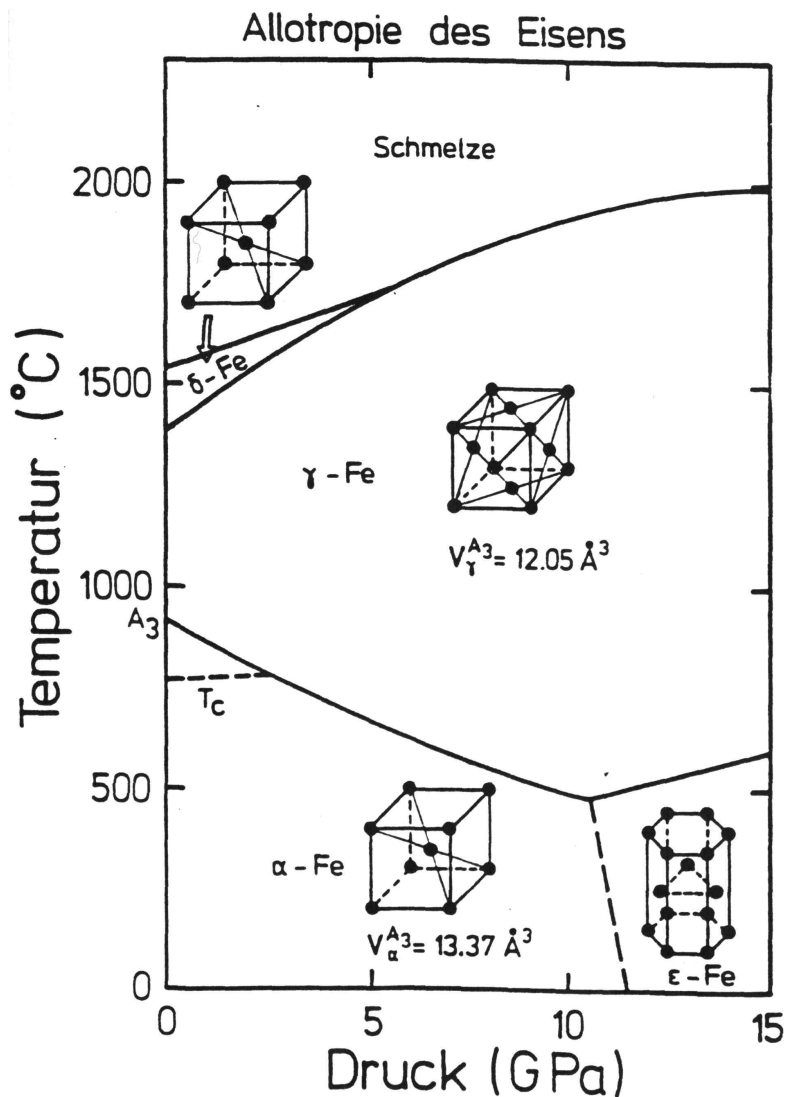


Abb. 5-10: Temperatur-Druck-Phasendiagramm von Fe (aus [114]). Die Strukturvielfalt (Allotropie) von Eisen erschwert die theoretischen Rechnungen.

Zusätzlich zur bisherigen Diskussion können auch anisotrope Spannungsrelaxation und mögliche strukturelle Veränderungen beim Filmwachstum Einfluss auf die magnetoelastische Kopplung nehmen, wie Untersuchungen von Co/W(001) zeigen [117]. Das im Volumen hexagonale Co erfährt beim Wachstum auf der kubischen W(001)-Oberfläche eine anisotrope Gitterverzerrung. Diese Anisotropie beeinflusst zusätzlich die magnetoelastische Kopplung von Co. Außerdem kommt es zu einem Wechsel der kristallinen Struktur von hcp nach fcc. Unabhängig von der Filmverzerrung ist die Konzentration dieser sog. Doppel-HCP-Struktur stark mit der magnetoelastischen Kopplung korreliert, so dass selbst im Falle unverspannter Co-Filme eine Abweichung der magnetoelastischen Kopplung vom Volumenwert von mehr als einer Größenordnung (!) auftritt. Für eine vollständige Beschreibung der magnetoelastischen Kopplung müssen in diesem Falle spannungsabhängige Korrekturterme, Anisotropien und strukturelle Einflüsse berücksichtigt werden. Für einfache epitaktischer Systeme, wie Fe/MgO(001), Fe/GaAs(001) oder Ni/Cu(001), mit biaxialer Filmspannung und ohne (wesentliche) strukturelle Veränderungen beim Wachstum, wird die magnetoelastische Kopplung jedoch gut von einer spannungsabhängigen Korrektur beschrieben.

