2 Magnetismus dünner Filme

In diesem Kapitel erläutere ich die Bedingungen für das Auftreten magnetischer Domänen in ferromagnetischen dünnen Filmen. Dazu beschreibe ich zunächst die Wechselwirkungen der magnetischen Momente. Die zugehörigen Energien hängen von der Magnetisierungsrichtung ab und bestimmen daher die Anisotropien, also die leichten und schweren Magnetisierungsrichtungen des Films. Sie legen auch das Domänenmuster fest und beeinflussen dessen Transformation im äußeren Magnetfeld. Insbesondere gehe ich auf Spinreorientierungsübergänge ein, bei denen die leichte Magnetisierungsrichtung durch die Konkurrenz verschiedener Anisotropiebeiträge in Abhängigkeit von Temperatur und Schichtdicke wechselt. Und ich beschreibe den thermodynamischen Grundzustand des Domänenmusters ultradünner Filme in der Nähe der Spinreorientierung, einen Streifendomänenzustand, und thematisiere dessen Verhalten im äußeren Magnetfeld. Schließlich wende ich mich der Frage zu, welche Rolle die Streifendomänen beim Ummagnetisierungsvorgang des Films spielen.

2.1 Magnetische Domänen

Der thermodynamische Grundzustand der magnetischen Momente in einem Ferromagneten ist im Allgemeinen ein Domänenzustand [Hub 98]. Zwar richtet die ferromagnetische Austauschwechselwirkung benachbarte Momente parallel aus, sie ist aber nur kurzreichweitig. Große homogen magnetisierte Bereiche erzeugen Streufelder, die infolge der langreichweitigen Dipol-Dipol Wechselwirkung energetisch ungünstig sind. In einem Domänenzustand hingegen ist die Streufeldenergie reduziert. Es muß aber Energie für den Aufbau von Domänenwänden aufgebracht werden, da die magnetischen Momente darin kontinuierlich ihre Richtung ändern und auch energetisch ungünstige Einstellungen einnehmen.

Die freie Energiedichte einer Domänenkonfiguration setzt sich zusammen aus den Beiträgen der Austauschenergie, der Streufeldenergie, der magnetokristallinen Anisotropieenergie, der magneto-elastischen Energie und der Zeemanenergie (Abb. 2.1). Nur im thermodynamischen Gleichgewicht ist der tatsächliche Domänenzustand auch der mit dem Minimum an freier Energie. Bei dünnen Filmen liegt häufig ein metastabiler Zustand vor, der theoretisch schwer vorhergesagt werden kann.

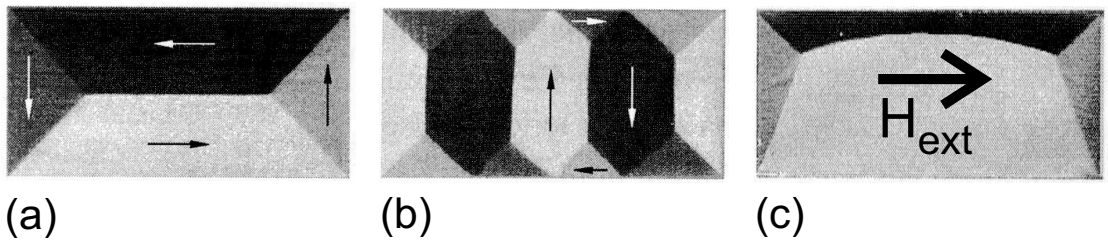

Abbildung 2.1: Magnetische Domänen eines 240nm dicken Elements aus Permalloy ($Ni_{81}Fe_{90}$) nach [Hub 98]. Die leichte Achse der Magnetisierung liegt bei (a) und (c) in der Horizontalen und bei (b) in der Vertikalen. Bei (c) liegt zudem ein äußeres Magnetfeld H_{ext} an.

In den Domänenwänden drehen die magnetischen Momente aus der Magnetisierungsrichtung der einen Domäne in die Magnetisierungsrichtung der anderen. Steht die Rotationsachse senkrecht auf der Domänenwand, so spricht man von einer Blochwand, sonst von einer Néelwand. Blochwände treten im Volumen und an senkrecht magnetisierten Oberflächen auf, während Néelwände für in der Ebene magnetisierte Oberflächen typisch sind.

Die Breite der Domänenwand wird bestimmt durch ein Gleichwicht von Austauschenergie E_{exch} und Anisotropieenergie E_{aniso}, für die gilt

$$E_{exch} = A \int (\nabla M)^2 dV \tag{2.1}$$

und

$$E_{aniso} = K \cos^2 \theta + \text{Terme höherer Ordnung.} \tag{2.2}$$

Hier bezeichnet M die Magnetisierung, A die Austauschsteifigkeit, θ den Winkel relativ zur Oberflächennormale und K die effektive Anisotropiekonstante. Während E_{exch} bei breiten Wänden klein ist, in denen die magnetischen Momente geringfügiger gegeneinander verkippt sind, ist E_{aniso} in schmalen Wänden minimal, denn darin sind nur wenige Momente in schweren Richtungen eingestellt. Die Domänenwandenergie einer Blochwand ist

$$E_{bloch} = 4\sqrt{AK}. \tag{2.3}$$

Magnetische Domänen sind von großer technologischer Bedeutung, denn sie stellen in Festplatten und magnetooptischen Disketten die Träger der Bitinformation dar [Man 95, Jor 96, Ric 99]. Zudem treten sie in den Elektroden magnetischer Tunnelelemente auf, die bei künftigen nichtflüchtigen Datenspeichern zum Einsatz kommen sollen, und beeinflussen das Schaltverhalten des zum Auslesen der Daten gemessenen Tunnelmagnetowiderstandes [Len 01].

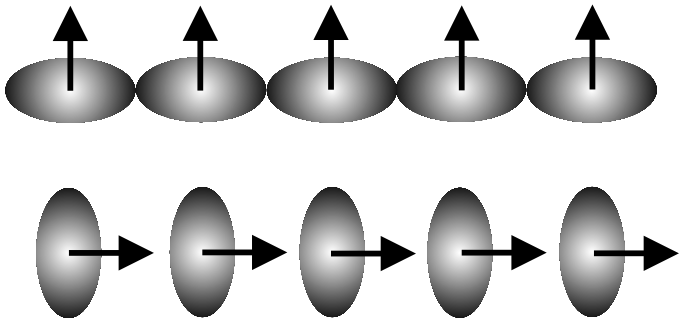

Abbildung 2.2: Magnetokristalline Anisotropie: Aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung hängen der Überlapp der Wellenfunktionen und die Kristallfeldenergie von der Magnetisierungsrichtung ab. Das ist hier schematisch gezeigt.

2.2 Magnetische Anisotropie

Die magnetische Anisotropie bezeichnet den Beitrag zur Energie des Ferromagneten, der von der Richtung der Magnetisierung abhängt. Dazu gehören die Formanisotropie und die magnetokristalline Anisotropie, zu der Oberflächen infolge der Symmetriebrechung in anderem Maße beitragen als das Volumen. Diese Oberflächenanisotropie spielt insbesondere bei ultradünnen Filmen eine wichtige Rolle [Jon 94].

Die Formanisotropie ist eine Folge der langreichweitigen Dipol-Dipol-Wechselwirkung. Sie bezeichnet die Streufeldenergie, die durch die Geometrie des Magneten bestimmt wird. In einem dünnen Film ist das Streufeld bei Magnetisierung in der Filmebene minimal, während es bei senkrechter Magnetisierung maximal ist. Die Formanisotropie zwingt die Magnetisierung dünner Filme daher in die Ebene.

Die Ursache der magnetokristallinen Anisotropie ist die Spin-Bahn-Kopplung, die das magnetische Moment eines Elektrons mit dem effektiven Magnetfeld koppelt, das aus der Bahnbewegung des Elektrons um den Atomkern resultiert. Diese Bahnbewegung findet an den Ionenrümpfen des Kristallgitters statt. Daher entsteht eine Kopplung des Spins an das Kristallgitter (Abb. 2.2). Magnetische Kristallanisotropien sind im Volumen jedoch häufig recht klein, weil die sphärische Symmetrie der Elektronenbewegung gebrochen ist. Die atomaren Wellenfunktionen bilden Hybridorbitale, die invariant unter Transformationen der Symmetriegruppe des Kristalls sind und von Zuständen entgegengesetzter Drehimpulsquantenzahl gleichberechtigt besetzt werden können. Der Gesamtdrehimpuls ist dadurch weitgehend unterdrückt (sog. *Quenching*). Die Spin-Bahn-Wechselwirkung überträgt jedoch einen kleinen Teil des Spinmoments auf das Bahnmoment, so dass die Unterdrückung geringfügig wieder aufgehoben wird [Blu 99].

Die magnetokristalline Anisotropie spiegelt die Symmetrie des Kristallgitters wider. Entwickelt man die Anisotropie in Potenzen der Richtungskomponenten der Magnetisierung, so ist in kubischer Symmetrie (z.B. bei Fe und Ni) der erste von Null verschiedene Term von 4. Ordnung (K_4, vgl. Abb. 2.3), während in hexagonaler Symmetrie (z.B. Co) ebenso wie in verzerrt aufgewachsenen Filmen und an Oberflächen auch Terme 2. Ordnung auftreten.

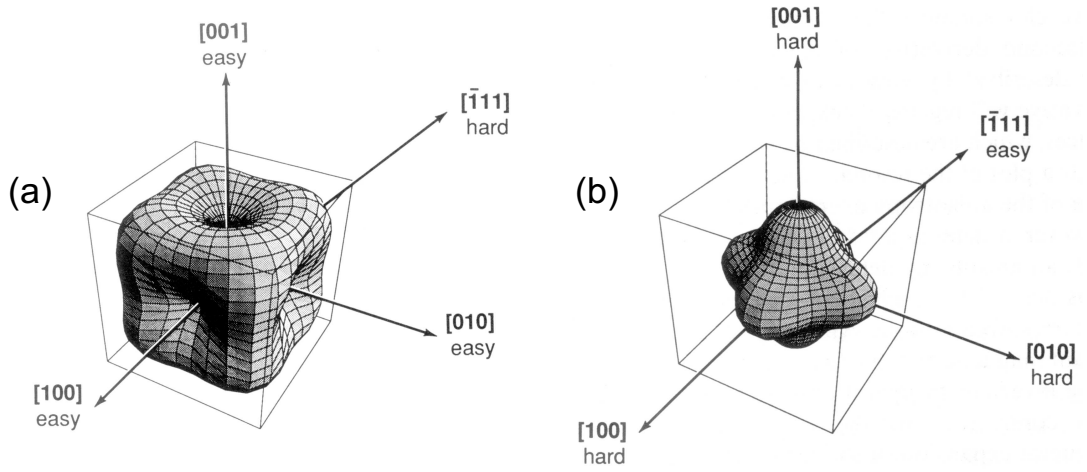

Abbildung 2.3: Anisotropieenergieoberflächen für kubische Systeme. (a) Typisch für bcc Fe ($K_{b,4} > 0$) und (b) typisch für fcc Ni ($K_{b,4} < 0$) nach [Prz 94].

An Oberflächen und Grenzflächen sind die Beiträge zur magnetokristallinen Anisotropie wesentlich größer als im Volumen, denn Atome, die sich nahe einer Grenzfläche befinden, sehen sich einer reduzierten Symmetrie und einer veränderten lokalen Umgebung ausgesetzt [Nee 51]. In dünnen Filmen ist der Beitrag der Oberflächenanisotropie umgekehrt proportional zur Schichtdicke d. Der orientierungsabhängige Teil der freien Energie[1] $G = E_{aniso}$ (vgl. Gl. 2.2) eines dünnen magnetischen Films kann daher in erster Näherung wie folgt geschrieben werden [Jon 94]:

$$G = K\cos^2\theta = \left(K_{form} + K_{b,2} + \frac{K_{s,2}}{d}\right)\cos^2\theta. \tag{2.4}$$

Dabei bezeichnet der erste Summand die Formanisotropie ($K_{form} = -\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$, M_s ist die Sättigungsmagnetisierung), $K_{b,2}$ ist der Volumenanteil 2. Ordnung der magnetokristallinen Anisotropie ($K_{b,2} = 0$ bei Fe und Ni) und der letzte Summand ist der Oberflächenanteil. Ein Vergleich der Anisotropiekonstanten (vgl. Tabelle 2.1) zeigt, dass K_{form} und $K_{s,2}$ bei kubischen 3d-Übergangsmetallen wesentlich größer sind als die magneto-kristalline Volumenanisotropie $K_{b,4}$, daher ist die obige Näherung gerechtfertigt.

Der Vergleich zeigt auch, dass $|K_{form}| < |K_{s,2}|$ ist. Die Richtung der leichten Magnetisierungsachsen von Fe und Ni wird also bei sehr dünnen Filmen von der Oberflächenanisotropie bestimmt: Fe-Filme haben senkrechte Anisotropie, während Ni in der Ebene magnetisiert ist. Bei dicken Filmen dagegen ist die Formanisotropie ausschlaggebend; sie zwingt die Magnetisierung in beiden Systemen in die Ebene.

[1] Energie bezeichnet hier genau genommen eine Energiedichte mit der Einheit $\frac{J}{m^3}$.

		Fe (bcc)	Ni (fcc)
K_{form}	$\left(\frac{meV}{Atom}\right)$	$1,41 \cdot 10^{-1}$	$1,28 \cdot 10^{-2}$
$K_{b,4}$	$\left(\frac{meV}{Atom}\right)$	$4,02 \cdot 10^{-3}$	$-8,63 \cdot 10^{-3}$
$K_{s,2}$	$\left(\frac{meV}{Atom}\right)$	$-5 \cdot 10^{-1}$	$3,2 \cdot 10^{-1}$

Tabelle 2.1: Werte der Anisotropiekonstanten von Volumen und dünnen Filmen der Übergangsmetalle Fe und Ni nach [Blu 99] und [Bru 93] ($K_{s,2}$). Man beachte, dass $K_{s,2}$ für eine freitragende (100)-orientierte Monolage berechnet wurde und daher den Einfluss des Substrats noch nicht berücksichtigt.

Materialien mit senkrechter Anisotropie sind von besonderem technologischen Interesse. Von ihrem Einsatz als Datenspeichermedien erhofft man sich höhere Speicherdichten als von in der Ebene magnetisierten [Ric 99]. Senkrecht magnetisierte magnetische Domänen (magnetische Bits) sind durch dünnere Wände voneinander getrennt als in der Ebene magnetisierte, bei denen die Domänenwände in ausgefranste Strukturen zerfallen, um die magnetostatische Energie zu reduzieren. Zudem sind die Bits in senkrecht magnetisierten Medien stabiler, da die entgegengesetzt magnetisierten Domänen sie in einem Zustand mit geschlossenen Flusslinien eingestellt halten [Man 95]. Speichermedien mit senkrechter Anisotropie (z.B. Magnetooptische Disketten) sind entweder RE-TM Filme[2], also amorphe Legierungen von Seltenen Erden (RE) und Übergangsmetallen (TM) wie $(\mathrm{Tb_yGd_{1-y}})_\mathrm{x}\,(\mathrm{Fe_zCo_{1-z}})_{1-\mathrm{x}}$, oder es sind Co/Pt-Vielfachschichten[3].

2.3 Spinreorientierungsübergang

Favorisieren Oberflächen- und Volumenbeiträge zur Anisotropie unterschiedliche leichte Magnetisierungsrichtungen (man vergleiche z.B. K_{form} und $K_{s,2}$ von Fe in Tab. 2.1), so stehen sie nach Gleichung 2.4 bei dünnen Filmen zueinander in Konkurrenz. Bei der kritischen Filmdicke und -temperatur ist $K = 0$. Dort findet ein Spinreorientierungsübergang statt, bei dem die leichte Magnetisierungsrichtung von

[2]Die Ursache der senkrechten Anisotropie in der vor 30 Jahren entdeckten RE-TM Materialklasse war bis vor kurzem unklar, denn die Materialien zeigen keine erkennbare Kristall- oder Mikrostruktur, die für die senkrechte Ausrichtung der magnetischen Momente verantwortlich sein könnte. Es wurde angenommen, dass kurzreichweitige, durch den Wachstumsprozess hervorgerufene atomare Ordnungen für die Anisotropie verantwortlich seien, indem sich Paare gleicher Atome in der Filmebene und Paare ungleicher Atome senkrecht dazu anordnen und so lokal eine anisotrope Struktur bilden. Dies konnte jetzt experimentell bestätigt werden [Har 01].

[3]Der Grund für die senkrechte leichte Richtung bei den Co/Pt-Vielfachschichten ist die Oberflächen- bzw. Grenzflächenanisotropie von Co. Zudem spielt die Zwischenschichtaustauschkopplung eine Rolle [Man 95].

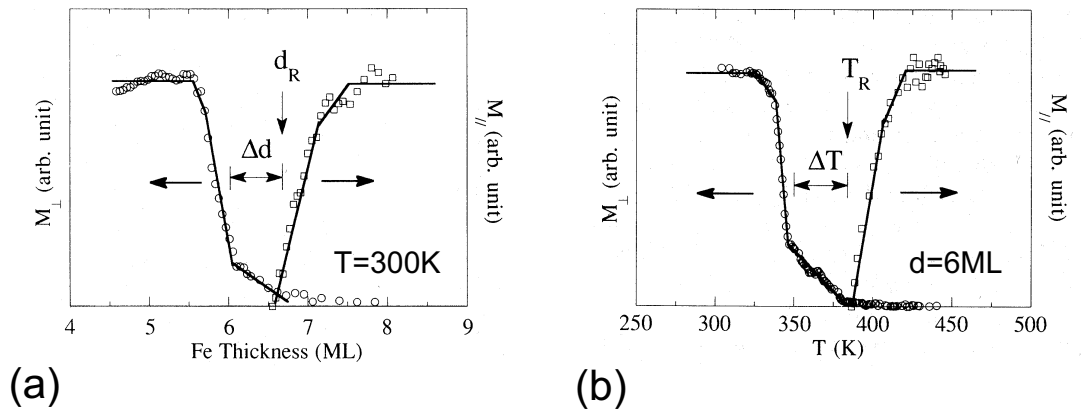

Abbildung 2.4: (a) Schichtdickenabhängigkeit und (b) Temperaturabhängigkeit des Spinreorientierungsübergangs von Fe/Ag(100) nach [Qiu 93]. Dargestellt sind jeweils die Remanenz der senkrechten und die der parallelen Magnetisierungskomponente, $M_\perp$ bzw. $M_\parallel$, die mittels polarem bzw. longitudinalem MOKE bestimmt wurden. ΔT und Δd sind asymmetrische „*Pseudo Gaps*“, in denen offensichtlich eine kompliziertere magnetische Struktur vorliegt.

der Senkrechten in die Filmebene klappt (Abb. 2.4 und 2.5(a))[4] [Jon 94].

Die Anisotropiekonstanten selbst sind von der Temperatur abhängig. Bei Co-Einkristallen beispielsweise wechselt bei $T = 500\,\mathrm{K}$ die Anisotropiekonstante 2. Ordnung $K_{b,2}$ ihr Vorzeichen. Bei niedrigeren Temperaturen ist die leichte Richtung die c-Achse des hexagonalen Kristalls, während sie bei höheren Temperaturen in der Grundebene des Kristall liegt [Kne 62]. Der temperaturabhängige Spinreorientierungsübergang wird bei einigen Konzepten zum Erreichen von *Magnetic Super Resolution*(MSR) ausgenutzt [Hir 96]. MSR wird seit kurzem zum Auslesen der Bitinformation von magnetooptischen Speichermedien sehr hoher Kapazität verwendet.

In der Nähe der Spinreorientierung ($K = 0$) können Anisotropien höherer Ordnung eine wichtige Rolle spielen. Bei den Übergangsmetallen mit kubischer Kristallstruktur (Fe, Ni) kommt nun $K_{b,4}$, der Volumenbeitrag der magnetokristallinen Anisotropie, zum Tragen. Nimmt man solche Terme vierter Ordnung (K_4) hinzu, so ist die freie Energie

$$G = K\cos^2\theta + K_4\sin^2\theta\cos^2\theta. \tag{2.5}$$

Die Minimierung von G bezüglich des Winkels θ ergibt je nach Verhältnis von K und K_4 vier verschiedene Lösungen [Elm 99], die in Abb. 2.5(b) dargestellt sind. Je

[4] Bei Ni/Cu(100) gibt es zwei Spinreorientierungsübergänge: Aufgrund magneto-elastischer Verspannungen ist die Volumenanisotropie 2. Ordnung $K_{b,2} < 0$. Sie überwindet die Formanisotropie und zwingt bei genügend dicken Filmen die Magnetisierung aus der Ebene. Dickere Filme relaxieren, so dass die leichte Magnetisierungsrichtung durch die Formanisotropie bestimmt wird und wie bei ganz dünnen Filmen wieder in der Filmebene liegt [Bab 97].

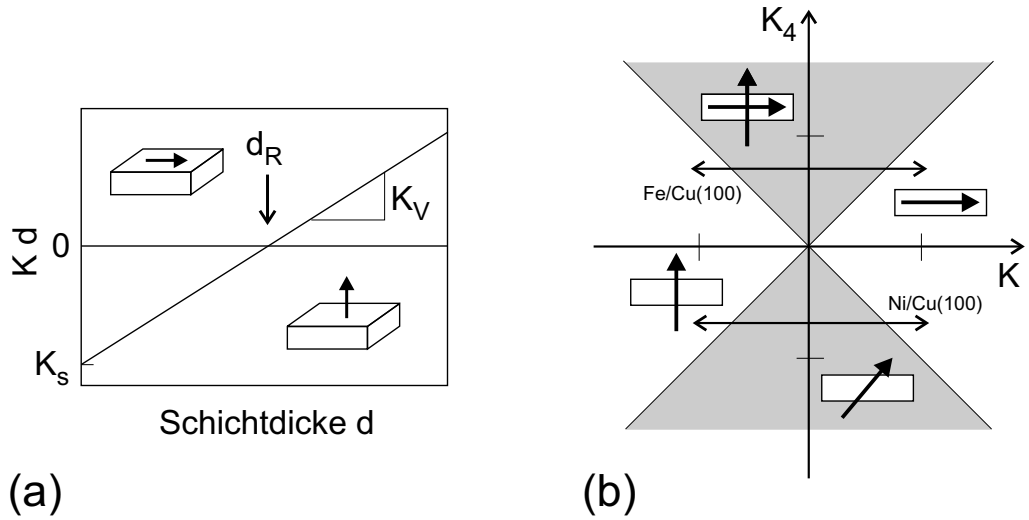

Abbildung 2.5: (a) Schichtdickenabhängigkeit der effektiven Anisotropiekonstante K gemäß Gl. 2.4 für den Fall $K_{s,2} < 0$ und $K_{form} + K_{b,2} > 0$ (z.B. Fe). Bei der kritischen Schichtdicke d_R findet ein Spinreorientierungsübergang statt. (b) Leichte Magnetisierungsrichtungen im Anisotropieraum von K und K_4.

nach dem Vorzeichen von K_4 ist der Phasenübergang (Nulldurchgang von K) entweder diskontinuierlich ($K_4 > 0$) oder die leichte Richtung der Magnetisierung dreht kontinuierlich ($K_4 < 0$). Bei den Übergangsmetallen verläuft die Spinreorientierung bei Fe daher in einem Sprung, während bei Ni über einen geneigten Zustand ein kontinuierlicher Übergang stattfindet.

Äußere magnetische Felder beeinflussen die Energiebalance der Anisotropiebeiträge, da sie auf den Magnetisierungsvektor ein Drehmoment ausüben. Wird das Feld in Richtung einer leichten Achse angelegt, so wird diese Magnetisierungsrichtung stabilisiert. Bei der Spinreorientierung verschiebt sich dadurch die kritische Schichtdicke bzw. die kritische Temperatur [5]. Die freie Energie in Anwesenheit eines äußeren Magnetfeldes H ist:

$$G = K\cos^2\theta + K_4\sin^2\theta\cos^2\theta - \vec{H}\cdot\vec{M}. \tag{2.6}$$

Millev *et al.* haben für $K_4 > 0$ und $K_4 < 0$ Phasendiagramme berechnet, die die optimalen Magnetisierungseinstellungen eines ferromagnetischen dünnen Films mit uniaxialer Anisotropie im äußeren Magnetfeld beschreiben [Mil 98], also die Einstellungen der Magnetisierung, die nach Gl. 2.6 energetisch günstig sind (Abb. 2.6). Aus dem Phasendiagramm lässt sich ablesen, welche Form Magnetisierungskurven in der Nähe der Spinreorientierung annehmen: In Abb. 2.6(b) ist gezeigt, dass die Magnetisierung beim Anlegen eines Feldes $H_{\|}$ in schwerer Richtung zunächst eine Phase mit

[5] In ac-Suszeptibilitätsmessungen konnte die Verschiebung der Spinreorientierungsschichtdicke von ultradünnen Filmen Co/Au(100) im äußeren Feld nachgewiesen werden [Put 01].

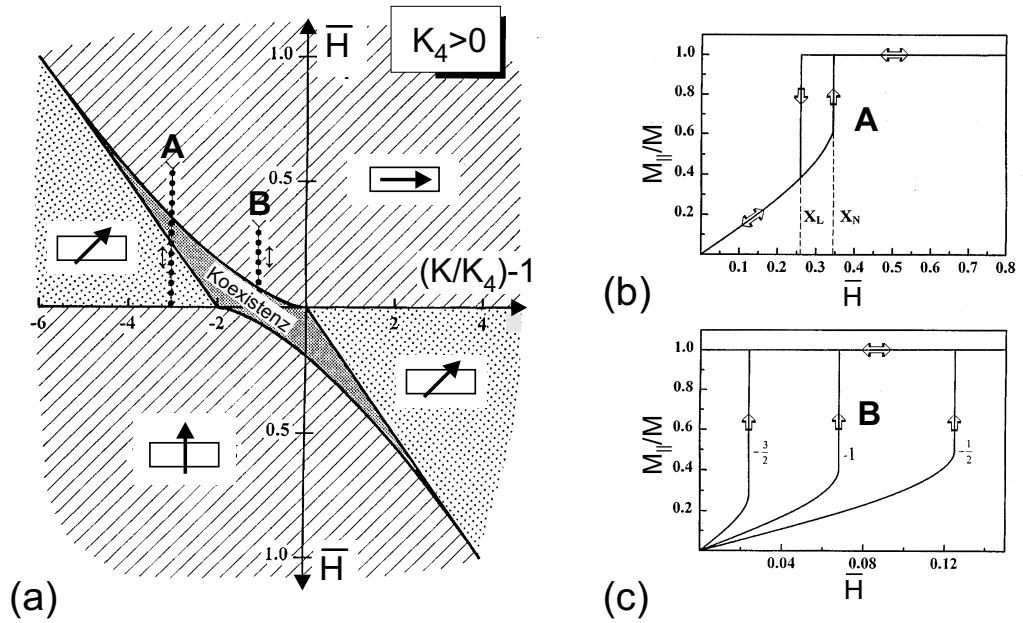

Abbildung 2.6: (a) Phasendiagramm der Magnetisierungseinstellungen im äußeren Magnetfeld für $K_4 > 0$, (b) und (c) Magnetisierungskurven entlang A und B nach [Mil 98].

verkippter leichter Richtung durchläuft, in der der Magnetisierungsvektor kohärent in Feldrichtung dreht. Dabei steigt die Komponente $M_{\|}$ kontinuierlich an, auch in der bei höheren Magnetfeldern anschließenden Phase der Koexistenz von verkippter Richtung und leichter Richtung parallel zum Feld. Erst beim Erreichen des Feldes der Stärke X_N springt der Magnetisierungsvektor in eine Einstellung parallel zum Feld und die Magnetisierungskurve verläuft auf dem Sättigungsniveau $M_{\|} = M$. Bei Reduktion des äußeren Magnetfeldes wird diese Einstellung bis an die untere Grenze der Koexistenzphase (X_L) beibehalten. Dann springt der Magnetisierungsvektor in den gekippten Zustand und bei weiterer Verringerung der Feldes wird die Kurve des kontinuierlichen Anstiegs von $M_{\|}$ in umgekehrter Richtung durchlaufen. Bei der Umkehr des äußeren Magnetfeldes schließlich verhält sich der Magnetisierungsvektor analog, dann ist $M_{\|}(-H_{\|}) = -M_{\|}(H_{\|})$. Damit ist die Magnetisierungskurve vollständig beschrieben. Abb. 2.6(c) zeigt entsprechend die Formen der Kurven direkt bei der Spinreorientierung, die mittlere Kurve beschreibt den Fall $K = 0$.

Da die Domänenwandenergie bei abnehmendem K ebenfalls kleiner wird, kann die Streufeldenergie auch durch Domänenbildung verringert werden. Dieser Aspekt wurde bei den gezeigten Phasendiagrammen vernachlässigt. Tatsächlich ist er zur Interpretation von Magnetisierungskurven dünner Filme bei der Spinreorientierung aber unabdingbar [Oep 00].

2.4 Streifendomänenzustand

Die eindomänige, senkrecht magnetisierte Phase eines ferromagnetischen dünnen Films wird in der Nähe des Spinreorientierungsübergangs instabil, da dort der Oberflächenanteil der Kristallanisotropie gegenüber der langreichweitigen Dipol-Dipol-Wechselwirkung an Einfluss verliert. Die Dipolenergie wäre bei in der Ebene liegender Magnetisierung am geringsten. Ist die kristalline Anisotropie, insbesondere die Oberflächenanisotropie $K_{s,2}$, noch stark genug, so dreht die leichte Richtung aber nicht in die Ebene, sondern die homogene Magnetisierung bricht in einen Domänenzustand auf, bei dem die einzelnen Domänen senkrecht zum Film magnetisiert sind. Die Streufeldenergie wird dabei durch die entgegengerichtete Einstellung der Magnetisierungsvektoren benachbarter Domänen verringert. Die Verringerung der Streufeldenergie steht aber mit der Erhöhung der Domänenwandenergie in Konkurrenz. Daher tritt in der Nähe der Spinreorientierung eine räumlich modulierte magnetische Struktur auf, die im einfachsten Fall aus Streifendomänen besteht [Jen 94].

Die Periodizität der Grundzustands-Domänenstruktur ist typisch für eine System von Dipolen zweier Phasen A und B, deren kurzreichweitige Wechselwirkung mit einer langreichweitigen konkurriert [Seu 95]. Bezeichnet man mit ϕ die Anzahldichte von Dipolen der Phase A[6], so setzt sich die Energie des Domänenmusters wie folgt zusammen [NgV 95]:

$$E = \frac{1}{2} b \int d^2r |\nabla \phi(\vec{r})|^2 - \frac{\mu^2}{2} \int \int d^2r d^2r \frac{\phi(\vec{r})\phi(\vec{r'})}{|\vec{r} - \vec{r'}|^3} \tag{2.7}$$

Dabei beschreibt der erste Term die Domänenwandenergie (b ist hier die Austauschsteifigkeit) und der zweite Term ist der Beitrag der Dipolwechselwirkung (μ ist das Dipolmoment). Im Fourierraum kann das Doppelintegral in ein einfaches verwandelt werden, die Fouriertransformierte der Energie ist dann [Seu 95]

$$F(q) = \frac{1}{2} \left(-\mu^2 G(q) + bq^2 \right) \tag{2.8}$$

Hier bezeichnet $G(q)$ die 2D-Fouriertransformierte von $g(\vec{r} - \vec{r'}) = \frac{1}{|\vec{r} - \vec{r'}|^3}$. $G(q)$ ist positiv und proportional zu $|q|$ für kleine q. Daher gibt es ein Minimum von $F(q)$ bei einer bestimmten Wellenzahl q. Dies entspricht einem periodisch variierenden Domänenmuster.

Auf ferromagnetische dünne Filme übertragen sind A und B die entgegengesetzten Magnetisierungseinstellungen und μ das magnetische Moment. Das periodische Domänenmuster ist z.B. von den Yttrium-Eisen-Granatfilmen (YIG) mit starker senkrechter Anisotropie bekannt. Aus Gl.2.8 erkennt man, dass eine Erhöhung von

[6] $\phi(\vec{r}) = 1$ bedeutet, dass sich das System am Ort $\vec{r}$ nur aus Bestandteilen der Phase A zusammensetzt, $\phi(\vec{r}) = 0$ bedeutet, dass es nur aus B besteht.

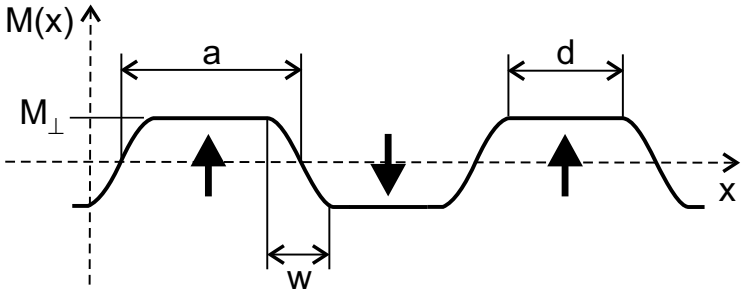

Abbildung 2.7: Profil der Magnetisierung im Streifendomänenzustand.

b mit einer Erniedrigung von q einhergeht. Das entspricht dem an YIG-Filmen beobachteten Verhalten, dass die Streifenbreite bei Erhöhung der uniaxialen (senkrechten) Anisotropie zunimmt, da Domänenwände infolge erhöhter Steifigkeit mehr Energie kosten [Zve 97].

An ultradünnen magnetischen Filmen sollten in der Nähe eines Spinreorientierungsübergangs aus denselben Gründen wie bei den Granatfilmen Streifendomänen beobachtet werden können. Dabei ist jedoch mit einer höheren Empfindlichkeit der Streifenbreite auf die Parameter Schichtdicke, Temperatur und äußeres Magnetfeld zu rechnen, weil diese die effektive Anisotropie der Filme hier relativ stark beeinflussen (Nulldurchgang von K). Im Experiment wird am Spinreorientierungsübergang dünner Filme eine reduzierte Magnetisierung beobachtet (vgl. *Pseudo Gaps* in Abb. 2.4). Dies könnte anstelle einer gekippten leichten Magnetisierungsrichtung also auch das Vorliegen eines Domänenzustandes anzeigen, dessen Strukturgröße unterhalb des Integrationsbereichs der verwendeten Technik (hier: MOKE) liegt und deshalb die im Mittel verschwindende Magnetisierung anzeigt. Streifendomänen mit sub-μm Breite wurden an magnetischen dünnen Filmen zudem bereits in einigen wenigen Studien mit Elektronenmikroskopie beobachtet [All 92, Vat 00, Pha 03, Ram 03].

Eine konkrete Berechnung der bei $T = 0$ in ultradünnen magnetischen Filmen zu erwartenden Streifenbreiten wird von Yafet und Gyorgy vorgenommen [Yaf 88]. Sie betrachten die Domänenstruktur eines in der x, y-Ebene liegenden Films, deren Magnetisierungsprofil in x-Richtung mit der Periode $2a$ variiert und in y-Richtung konstant ist, also ein Streifenmuster. Zwischen den Streifen treten Domänenwände der Breite w auf, wo der Magnetisierungsvektor in der y, z-Ebene rotiert (Blochwände). Das Profil hat die in Abb. 2.7 gezeigte Form: In Bereichen der Breite $d = a - w$ ist die senkrechte Komponente der Magnetisierung

$$M_z(x) = \pm M_0 \quad (M_0 : \text{Sättigungsmagnetisierung}) \tag{2.9}$$

und in den Domänenwänden

$$M_z(x) = \pm M_0 \cos\left(\frac{\pi x}{w}\right). \tag{2.10}$$

Dort tritt zudem eine y-Komponente der Magnetisierung auf:

$$M_y(x) = \pm\sqrt{1 - M_z^2}. \tag{2.11}$$

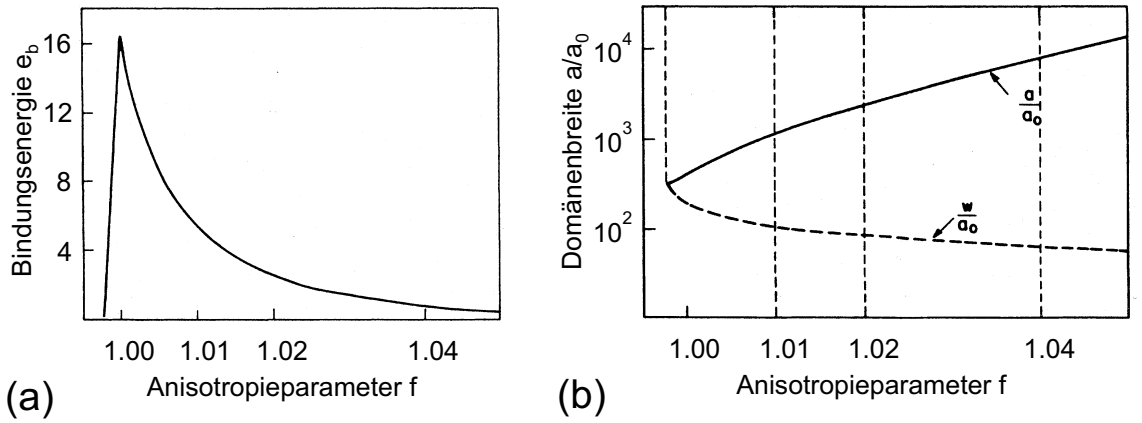

Abbildung 2.8: (a) Bindungsenergie e_b und (b) Streifen- und Domänenwandbreiten (a bzw. w, a_0 Gitterkonstante) der Streifendomänenstruktur einer Monolage Gd [Yaf 88].

Die Gesamtenergie dieser Struktur setzt sich aus Austauschenergie, Anisotropie und Dipolenergie (=Streufeldenergie) zusammen, wobei zur letzteren die Selbstenergie innerhalb eines Streifens und die Wechselwirkung zwischen den Streifen beiträgt. Minimierung bezüglich a und w führt schließlich zu den Energien und Formen von Domänen einer Monolage.

Abb. 2.8(a) zeigt die auf die Dipolenergie normierte Bindungsenergie e_b eines solchen Domänenzustandes einer Monolage Gadolinium, aufgetragen über dem Anisotropieparameter f, der das Verhältnis der (Oberflächen-)Anisotropieenergie zur Dipolenergie angibt:

$$f = -\frac{K_{s,2}/a_0}{c\frac{\mu_0}{2}M_0^2}. \tag{2.12}$$

Hier bedeutet a_0 die Gitterkonstante und $c = 1,0782$ eine das quadratische Kristallgitter repräsentierende Konstante, die bei der Ermittlung des lokalen Dipolfeldes auftritt. Bindungsenergien $e_b > 0$ bedeuten, dass die Domänenenstruktur den energetisch günstigsten Zustand darstellt. Das ist für $f > 1$ immer der Fall, allerdings nimmt die Bindungsenergie mit zunehmender Anisotropie rasch ab. Bei großen f dürfte eine einmal eingestellte homogene Magnetisierung daher über lange Zeit stabil bleiben und ein Domänenzustand kann schon in sehr kleinen äußeren Feldern in den homogenen Zustand überführt werden. Selbst die maximale Bindungsenergie (bei $f = 1$) entspricht bei Gd nur einem Feld von etwa 20 Oe.

In Abb. 2.8(b) sind Streifen- und Wandbreiten über f aufgetragen. Auffällig ist, dass die Streifenbreite mit ansteigender Anisotropie beinahe exponentiell anwächst, wobei schnell makroskopische Dimensionen erreicht werden und der Domänenzustand eines Films endlicher Ausdehnung nicht von homogener Magnetisierungs-

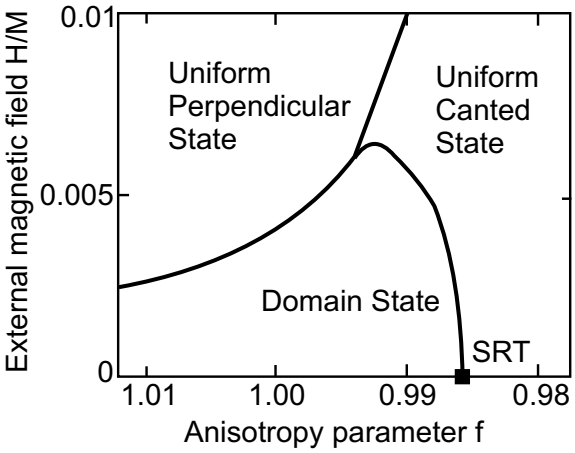

Abbildung 2.9:
Phasendiagramm für 4 ML Fe. Für Werte des Anisotropieparameters f unterhalb der Spinreorientierung (SRT) ist ein Streifendomänenzustand stabil, der im äußeren Feld in einen eindomänig senkrecht bzw. geneigt magnetisierten Zustand übergeht [Ber 97].

einstellung zu unterscheiden ist. Das Minimum der Werte von f, bei denen ein Domänenzustand auftritt, liegt unterhalb von 1:

$$f_{min} = 1 - \frac{1}{16cR}. \tag{2.13}$$

Dabei ist R das Verhältnis von Austausch- und Dipolenergie. Der Fall $f = 1$ war bislang als Spinreorientierungsübergang betrachtet worden, tatsächlich kommt $f = f_{min}$ diese Rolle zu, denn erst dort findet im Nullfeld der Übergang zwischen einem homogen in-plane magnetisierten Zustand und einem Streifendomänenzustand statt (mit $a = w$).

Auch für Filme mit Schichtdicken von mehreren (n) Monolagen und für Übergangsmetalle (hier Fe) lassen sich Anisotropieparameter f_n und Streifenbreiten a_n berechnen:

$$f_n = 1 + (f-1)n^2 c \frac{R_{Gd}}{R_{Fe}} \tag{2.14}$$

$$\frac{a_n}{a_0} = \frac{1}{n}\frac{a}{a_0}\frac{R_{Fe}}{R_{Gd}}. \tag{2.15}$$

Dabei sind $R_{Gd} = 25$ und $R_{Fe} = 140$ [Yaf 88]. Berger und Erickson [Ber 97] erweitern das hier vorgestellte Modell, indem sie zulassen, dass die Magnetisierung innerhalb der Streifen unterschiedlich stark verkippt ist und die entgegengesetzt magnetisierten Streifen verschieden breit sind. Abb. 2.9 zeigt das berechnete Phasendiagramm der energetisch günstigsten Einstellungen der Magnetisierung in einer Schicht aus 4 Monolagen (ML) Eisen.

Ein temperaturabhängiges Bild der Domänenstruktur bei der Spinreorientierung entwerfen Abanov et al. [Aba 95]. Sie beschreiben die Streifendomänenphase analog zu einem zweidimensionalen Flüssigkristall. Der Übergang von der senkrecht magnetisierten (eindomänigen) Phase zur in der Filmebene magnetisierten (planaren) Phase verläuft danach in drei Schritten (siehe Phasendiagramm Abb. 2.10): Mit

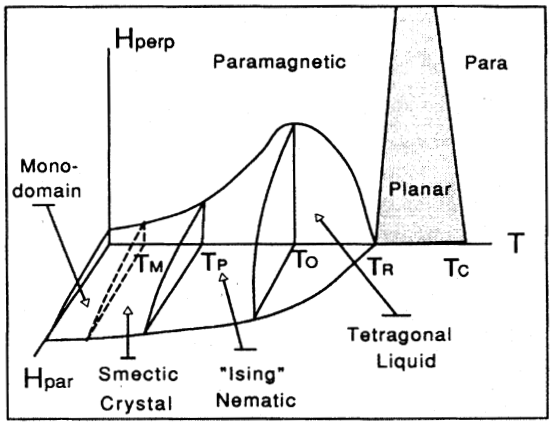

Abbildung 2.10:
Phasendiagramm eines ultradünnen Filmes im dreidimensionalen, aus $H_{\parallel}$, $H_{\perp}$ und T aufgespannten Raum. Bei realen Systemen ist die *Paramagnetic Phase* der eindomänige Zustand, der Übergang findet bei externen Feldern von wenigen Oe statt. [Aba 95]

zunehmender Temperatur werden sukzessive eine smektische, eine Ising-nematische und eine tetragonal-flüssige Phase durchlaufen. Dabei zeichnet sich die smektische Phase durch eine feste Orientierungsfernordnung und eine algebraisch zerfallende Positionsfernordnung der Domänenstreifen aus, die gebundene Paare von Dislokationen, d.h. Abweichungen von der Streifenstruktur wie Verzweigungen, zulässt. In der Ising-nematischen Phase treten auch ungebundene Dislokationen auf, die Positionsfernordnung zerfällt dabei exponentiell. Die Orientierungsfernordnung der Streifen bleibt aber bestehen, da sich die Domänenwände entlang ausgezeichneter Richtungen der Substratoberfläche einstellen. Bei noch höheren Temperaturen schließlich schmilzt auch die Orientierungsfernordnung, die Domänen sind keine Streifen mehr, sondern zeigen entsprechend der Anisotropien des (hier) kubischen Substrats 90°-Ecken. Kürzlich wurden die smektische und die tetragonal-flüssige Phase experimentell mit SEMPA[7] an ultradünnen Filmen von Fe/Cu(100)[8] beobachtet [Vat 00].

2.5 Ummagnetisierungsprozess

Der Ummagnetisierungsprozess eines eindomänigen magnetischen Partikels wird durch das Stoner-Wohlfarth-Modell beschrieben: Im äußeren magnetischen Feld H setzt sich der richtungsabhängige Teil der freien Energie aus Anisotropie- und Zeemanenergie zusammen. Wird das äußere Feld H senkrecht zum Film angelegt, so gilt in Erweiterung von Gleichung 2.4:

$$G(\theta) = K\cos^2\theta - \mu_0 H M \cos\theta. \tag{2.16}$$

[7] Scanning Electron Microscopy with Polarization Analysis (SEMPA)

[8] In dieser Studie wurden bei Zimmertemperatur gewachsene Filme untersucht, bei denen die Curietemperatur unterhalb der Reorientierungstemperatur lag, d.h. die tatsächliche Spinreorientierung wurde nicht untersucht.

Die stabilen Einstellungen der Magnetisierung sind die Minima dieser Funktion, die Nullstellen der 1. Ableitung

$$\frac{dG}{d\theta} = (-2K\cos\theta + \mu_0 HM)\sin\theta. \tag{2.17}$$

Abhängig von der leichten Richtung der Anisotropie des Films erfüllen diese Nullstellen in unterschiedlichen Intervallen auch die hinreichende Bedingung für Minima[9]. Wir betrachten hier gleich die senkrechte Komponente der Magnetisierung $M_\perp = M\cos\theta$ und unterscheiden dabei zwei Fälle:

1. $K > 0$, d.h. die leichte Richtung liegt in der Ebene. Hier findet man:

$$M_\perp(H) = \begin{cases} \frac{\mu_0 M^2}{2K} H & \text{für} \quad |H| < \frac{2K}{\mu_0 M} \\ \pm M & \text{für} \quad \pm H \geq \frac{2K}{\mu_0 M}. \end{cases} \tag{2.18}$$

2. $K < 0$, d.h. die leichte Richtung steht senkrecht auf dem Film. Dann gilt:

$$M_\perp(H) = \begin{cases} +M & \text{für} \quad H \geq \frac{2K}{\mu_0 M} \\ -M & \text{für} \quad H \leq \frac{2K}{\mu_0 M}. \end{cases} \tag{2.19}$$

Das magnetische Feld $H_{SW} = \frac{2K}{\mu_0 M}$ nennt man Stoner-Wohlfarth-Feld. Auffällig ist, dass es bei $K < 0$ für Felder kleiner als H_{SW} zwei stabile Einstellungen der Magnetisierung gibt, wobei nur die Einstellung parallel zum äußeren Feld das thermodynamische Gleichgewicht darstellt. Beim Ummagnetisierungsprozess mit Magnetfeld entlang einer leichten Richtung verbleibt die Magnetisierung jedoch in der metastabilen Einstellung, bis das entgegengerichtete Feld die Koerzitivfeldstärke erreicht hat, und klappt erst dann um, sonst müsste die Magnetisierung bei kohärenter Drehung energetisch ungünstige Richtungen durchlaufen. So entsteht eine Hysterese. Die Form der Magnetisierungskurven $M_\perp(H)$ ist in Fig. 2.11 dargestellt. [10]

In dünnen magnetischen Filmen werden viel geringere Koerzitivfelder H_c gemessen (typisch sind $H_c = \frac{H_{SW}}{100}$). Dieser *Brownsches Paradoxon* genannte Sachverhalt kann erklärt werden, wenn man den Ummagnetisierungsprozess nicht als kohärente Drehung aller Spins versteht, sondern als Wachstum entgegengesetzt magnetisierter Domänen. Domänenwachstum erfolgt durch Domänenwandverschiebung, einen Prozess, der im Idealfall nur sehr wenig Energie benötigt. Die Herkunft der Domänenkeime erklärt man entweder mit einer Nukleation bei geringem Koerzitivfeld oder aber

[9] $\frac{d^2G}{d\theta^2} > 0$

[10] Man beachte, dass Fall (1) allgemein die zum Feld parallele Magnetisierungskomponente $M_{\parallel H}(H)$ beschreibt, wenn H in einer schweren Richtung angelegt wird. Fall (2) beschreibt $M_{\parallel H}(H)$ allgemein für leichte Richtungen.

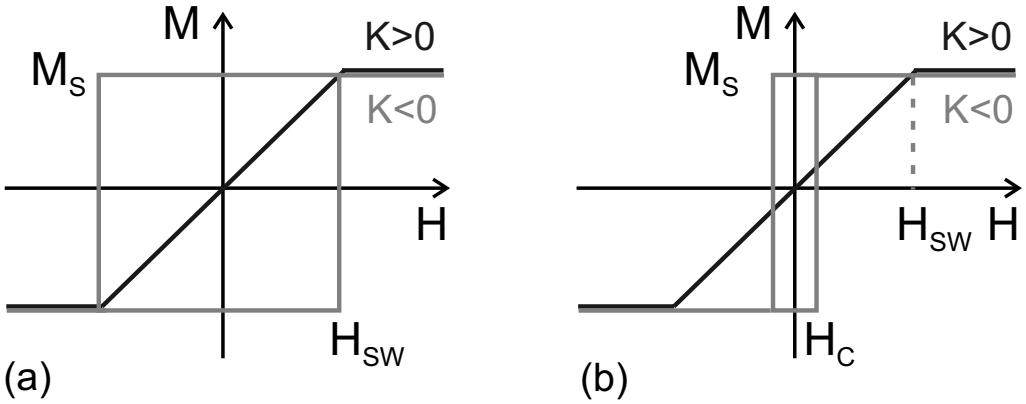

Abbildung 2.11: Magnetisierungskurven bei senkrechtem äußeren Magnetfeld und leichter Magnetisierungsrichtung in der Ebene ($K > 0$) und senkrecht dazu ($K < 0$) (a) bei einem eindomänigen magnetischen Partikel nach dem Stoner-Wohlfarth-Modell und (b) bei reduziertem Koerzitivfeld in einem dünnen Film.

damit, dass das Koerzitivfeld lokal so stark erhöht ist, dass die Ummagnetisierung nie ganz vollständig ist. Beides sind mögliche Folgen lokaler Variationen der Anisotropie an der Filmoberfläche, die durch erniedrigte Symmetrie z.B. an Defekten oder Stufenkanten hervorgerufen werden. [Arr 91]

Die Koerzitivfelder realer Filme steigen mit abnehmender Schichtdicke stark an, weil die Filmrauhigkeit dann eine größere Rolle spielt (vgl. Abb. 2.12). Rauhigkeit erzeugt lokale Fluktuationen der Domänenwandenergie, da sie die Wandfläche verändert und die Anisotropien beeinflusst. Die Bewegung einer Domänenwand durch ein von Rauhigkeit verändertes (zweidimensionales) Potential kann in einem eindimensionalen Modell beschrieben werden. An den Minima dieses Potentials sind die Domänenwände gepinnt. Nur durch thermische Aktivierung oder durch Anlegen eines äußeren Feldes kann eine Domänenwand in sog. Barkhausensprüngen die Maxima des Potentials überwinden und weiter über die Probe wandern. [Bru 90]:

Die Dynamik der Ummagnetisierung ist außer von der Morphologie grundsätzlich von der Stärke des äußeren Magnetfeldes und von der Temperatur bestimmt. Bei niedrigen Feldern, im sog. *Creep*-Bereich, spielt die thermische Aktivierung der Domänennukleation und von Barkhausensprüngen der Domänenwand eine entscheidende Rolle. Die Rate der Nukleation R folgt ebenso wie die Geschwindigkeit der Wandbewegung v einem Arrhenius-Gesetz:

$$R(H) = R_0 \exp\left(-\frac{E_N - 2HM_sV_N}{k_BT}\right) \tag{2.20}$$

$$v(H) = v_0 \exp\left(-\frac{E_B - 2HM_sV_B}{k_BT}\right). \tag{2.21}$$

Hier bezeichnen E_N und E_B die Aktivierungsenergien der Nukleation und der Barkhausensprünge. V_N ist das Volumen der nukleierten Domänen und V_B das Film-

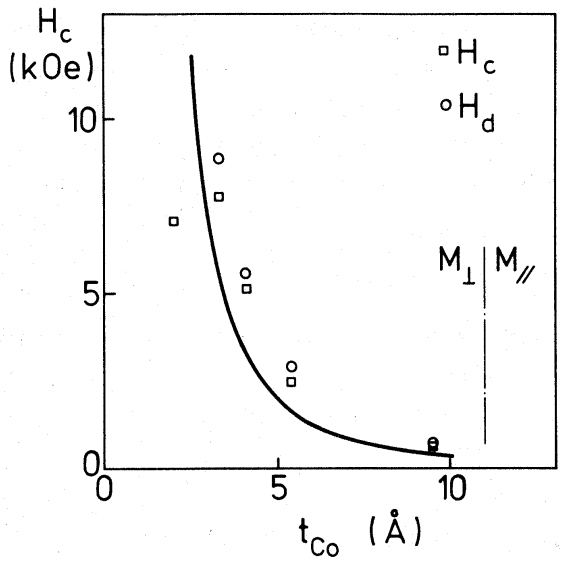

Abbildung 2.12:
Koerzitivfeldstärke H_c und Entmagnetisierungsfeld $H_d$in Abhängigkeit der Schichtdicke t_{Co}, gemessen an Au/Co/Au und berechnet mit dem eindimensionalen Modell der durch Rauhigkeit induzierten Potentiale. [Bru 90]

volumen, das bei einem Barkhausensprung ummagnetisiert wird. Aus R und v kann man mit Hilfe des Fatuzzo-Modells die zeitliche Entwicklung der Ummagnetisierung bestimmen [Fat 62].

Im Experiment zeigt sich, dass die Aktivierungsenergien E_N und E_B bei dünnen Filmen mit einer gewissen Verteilung auftreten. Lassen sich Barkhausensprünge leichter aktivieren als die lokale Keimbildung, so breiten sich die entgegengesetzt magnetisierten Domänen zwar sehr schnell im gesamten Film aus, schwer aktivierbare Stellen verhindern aber das vorhergesagte exponentielle Wachstum. Ist die Nukleation dagegen leichter zu aktivieren als die Barkhausensprünge, so dauert die Ummagnetisierung länger, da die Domänenkeime lokal bei unterschiedlichen Magnetfeldern entstehen. [Pom 90]

Bei hohen magnetischen Feldern in der Größenordnung der im Stoner-Wohlfarth-Modell vorhergesagten Koerzitivfelder H_{SW} verläuft die Ummagnetisierung in Form einer kohärenten Präzession der Magnetisierung um die Richtung des Magnetfeldes. In einem Dämpfungsprozess stellt sich die Magnetisierung dabei auf der Zeitskala von Nanosekunden unter kontinuierlicher Abnahme der Präzessionsamplitude parallel zur Feldrichtung ein. Die Dynamik wird mit einer Landau-Lifschitz-Bewegungsgleichung beschrieben und im Wesentlichen von der Dämpfungskonstante α bestimmt [Sta 99]:

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = -\gamma \vec{M} \times \vec{H} + \frac{\alpha}{M_s} \vec{M} \times \frac{d\vec{M}}{dt}. \tag{2.22}$$

Der erste Term auf der rechten Seite ist der Präzessionsterm, γ ist dabei das gyromagnetische Verhältnis und H ist als ein effektives Feld zu verstehen, das sowohl äußere Magnetfelder als auch Anisotropien berücksichtigt. Der zweite (sog.

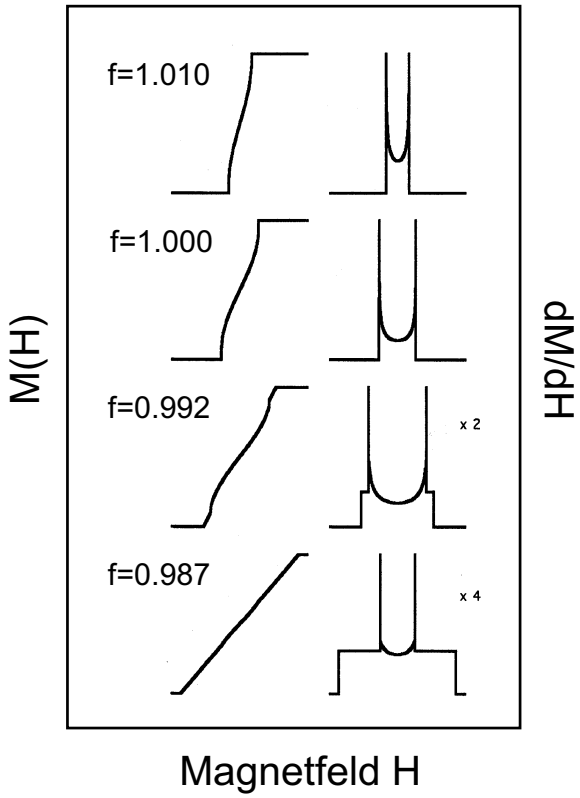

Abbildung 2.13:
Berechnete Magnetisierungskurven und Suszeptibilität eines 4 ML Fe Films für verschiedene Werte des Anisotropieparameters nach [Ber 97].

Gilbert-Term) beschreibt die Dämpfung. Hohe Ummagnetisierungsgeschwindigkeiten können erreicht werden, wenn zusätzlich zum entgegengerichteten Magnetfeld ein Schaltfeld senkrecht zur Magnetisierung verwendet wird. Hierzu reichen Feldpulse von wenigen Pikosekunden Dauer aus [Bac 99].

Domänenwachstum durch thermisch aktivierte Nukleationen und Barkhausensprünge sowie die beschriebene kohärente Dynamik der magnetischen Momente sollten sich auch im Ummagnetisierungsverhalten eines dünnen Filmes nahe der Spinreorientierung zeigen können. Fraglich ist aber, welcher der beiden Prozesse überwiegt:

Bei Berücksichtigung von Anisotropien höherer Ordnung durchläuft nach Abb. 2.6(a) die leichte Magnetisierungsrichtung des ferromagnetischen dünnen Films in der Nähe der Spinreorientierung ($K/K_4 = 0$) bei Erhöhung des senkrecht zum Film angelegten Magnetfeldes $H_\perp$ zunächst eine Phase der Koexistenz von senkrechter und geneigter Magnetisierungsrichtung. Bei ausreichend großem Magnetfeld gibt es dann einen diskontinuierlichen Übergang in den senkrecht magnetisierten Zustand, der bei Reduzierung des Magnetfeldes zunächst metastabil ist und bei Umkehr des Magnetfeldes in der Phase der Koexistenz in den verkippt magnetisierten Zustand übergeht. Die Magnetisierungskurve weist daher eine zu Abb. 2.6(c) äquivalente, sanduhrförmige Hystereseform auf (wobei $M_\parallel$ und $H_\parallel$ gemäß [Mil 98] durch $M_\perp$ bzw. $H_\perp$ zu ersetzen sind). Entsprechend ist oberhalb der Spinreorientierung im senkrecht angelegten Feld ($K > K_4 > 0$) eine Magnetisierungskurve der in Abb. 2.6(b) gezeigten Form zu erwarten.

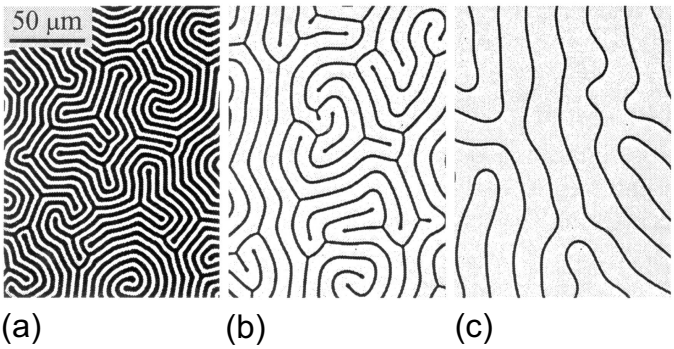

Abbildung 2.14: Domänenstruktur eines Yttrium-Eisen-Granatfilms (a) in Remanenz und (b,c) im ansteigenden äußeren Magnetfeld [Hub 98].

Auch das Streifendomänenmodell ermöglicht die Beschreibung der bei der Ummagnetisierung auftretenden Prozesse. So können Magnetisierungskurven für verschiedene Werte des Anisotropieparameters berechnet werden, die den in Abb. 2.6 gezeigten ähneln, wenn man den aus der Phase der Koexistenz resultierenden Hystereseeffekt vernachlässigt. Sie lassen sich mit experimentellen Befunden in Einklang bringen [Ber 96a]. Abb. 2.13 zeigt Magnetisierung und Suszeptibilität beim Übergang von $K > 0$ nach $K < 0$ bei der Spinreorientierung (vgl. Abb. 2.11). Die Spitzen in der Suszeptibilität werden als diskontinuierlicher Übergang zwischen Domänenzustand und homogener Magnetisierung verstanden. Entsprechend dem im Phasendiagramm (Abb. 2.9) gezeigten Verhalten nimmt die Sprungfeldstärke mit zunehmender Anisotropie kontinuierlich ab.

Es sollte hier erwähnt werden, dass Magnetisierungskurven von Filmen mit starker senkrechter Anisotropie (z.B. Granatfilme) den in Abb. 2.13 gezeigten Kurven ähneln [Hub 98, Zve 97]. Der zugrunde liegende Ummagnetisierungsprozess verläuft in zwei Schritten: Zunächst wachsen die in Magnetfeldrichtung polarisierten Streifen in der Breite (Majoritätsstreifen), während die entgegengesetzt polarisierten schmaler werden, bis eine Mindeststreifenbreite erreicht ist (Minoritätsstreifen) (Abb. 2.14(b)). Dann nehmen die Abstände der Minoritätsstreifen zu, was wie ein Phasenübergang 2. Ordnung in den eindomänigen Zustand erscheint (Abb. 2.14(c)).

Jensen [Jen 94] beschreibt den Ummagnetisierungsprozess des Streifendomänenzustandes bei ultradünnen Filmen analog zu den YIG-Filmen mit Streifenwachstum durch Domänenwandverschiebungen. Das Wachstum ist proportional zum angelegten Feld. Bevor die maximale Verschiebung erreicht ist, wird die homogen senkrechte Phase instabil, was zur sprunghaften Änderung der Magnetisierung führt. In einem kleinen Intervall von Werten des Anisotropieparameters $f < f_{min}$ ist der Prozess komplexer: Hier ist im Nullfeld die Einstellung von der Magnetisierung parallel zur Filmebene günstig. Bei Erhöhung des senkrechten äußeren Magnetfeldes dreht der Magnetisierungsvektor zunächst kohärent im Feld, vor Erreichen der senkrechten Einstellung wird aber eine Domänenphase durchlaufen.

Auch Kashuba und Pokrovsky [Kas 93b] beschreiben den Ummagnetisierungsprozess mit Majoritäts- und Minoritätsstreifen. Sie leiten daraus auch die Form der

Magnetisierungskurven ab:

$$M(H) = \frac{2}{\pi} M_S arcsin \frac{H}{H_{cr}}. \tag{2.23}$$

Hier ist M_S die Sättigungsmagnetisierung und H_{cr} bezeichnet das kritische Feld, bei dem der Phasenübergang in den gesättigten Zustand übergeht. Kashuba und Pokrovsky finden bei den dünnen Filmen nahe der Spinreorientierung auch Unterschiede zu den Filmen mit starker Anisotropie: Im Nullfeld wird experimentell eine Asymmetrie der Verteilung von entgegengesetzt magnetisierten Domänen beobachtet. Zur Erklärung wird ein Hystereseeffekt vorgeschlagen, der aus Pinning von Domänenwänden resultiert [Kas 93b].