



1. Einleitung

Magnetische Materialien mit ausgezeichneten Eigenschaften nehmen in der heutigen Welt eine immer größere Rolle ein. Wichtige Bereiche hierfür sind unter anderem Permanentmagnete für Elektromotoren oder magnetische Datenspeichermedien. Die Weiterentwicklung vorhandener Produkte oder gar neue Anwendungen sind dabei nur mit stetiger Optimierung der intrinsischen und extrinsischen Materialparameter der Magnetwerkstoffe möglich.

Betrachtet man die zeitliche Entwicklung der magnetischen Datenspeichermedien, so ist diese durch eine ständige Zunahme der Speicherdichte geprägt, was durch immer kleinere Bits realisiert werden konnte. Soll dieser Trend fortgesetzt und in den TBit/in²-Bereich vorgestoßen werden, sind sehr bald Bitgrößen nötig, welche an physikalische Grenzen stoßen.

Moderne Speichermedien bestehen aus granularen Schichten, wobei ein Bit aus einer Vielzahl von Körnern besteht. Bei der fortlaufenden Miniaturisierung der Bits werden die Bitgrenzen zunehmend unscharf, was in einem schlechteren Signal-Rausch-Verhältnis resultiert. Durch immer kleiner werdende Körner kann dies hinausgezögert werden. Abhängig von Material sind aber minimale Korngrößen gegeben, da die Magnetisierung bei zu kleinen Körnern thermisch instabil wird. Dieser Effekt wird Superparamagnetismus genannt. Damit also auch kleinste Körner thermisch stabil sind, müssen sehr hartmagnetische Materialien verwendet werden. Allerdings weisen hartmagnetische eindomänige Körner sehr große Koerzitivfelder auf, welche nicht mit konventionellen Schreibköpfen realisiert werden können. Das Bit kann also nicht mehr beschrieben werden. Um eine Beschreibbarkeit zu gewährleisten, müssten also weichmagnetische Materialien verwendet werden. Man spricht hier von einem Trilemma (Abb. 1.1). Die Lösung dieses Trilemmas erfordert neue Speicherkonzepte magnetischer Festplatten und stellt eine große Herausforderung für die aktuelle Forschung dar.

Kapitel 1: Einleitung

Vielversprechende Konzepte werden im Rahmen dieser Arbeit am Beispiel des hartmagnetischen Materialsystem FePt untersucht.

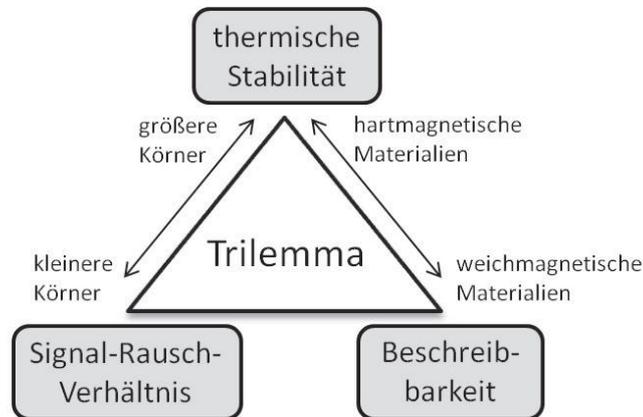


Abb. 1.1: Schematische Darstellung des Trilemmas der Datenspeicherung.

Was $L1_0$ -FePt als zukünftiges Speichermedium so interessant macht, ist die äußerst hohe Kristallanisotropie [1-2] und die hervorragende Korrosionsbeständigkeit [3]. So sind auch kleinste Körner aus $L1_0$ -FePt bis zu einem Teilchenradius von $r = 2$ nm thermisch noch stabil, was eine deutliche Steigerung der Speicherdichte bis zu 50 TBit/in² ermöglicht. Eine hohe Kristallanisotropie bringt auf der anderen Seite ein großes Schreibfeld mit sich, welches moderne Schreibköpfe unter Umständen nicht zur Verfügung stellen können. Im Fokus gegenwärtiger Forschung sind daher Methoden, wie dieses Schreibfeld verkleinert werden kann [4-26]. Eine vielversprechende Technik ist hierfür das „thermisch assistierte Schreiben“ [4, 14, 17-19], bei welchem das Speichermedium lokal stark erhitzt wird und somit das benötigte Schreibfeld reduziert wird. Eine weitere Methode das Koerzitivfeld zu reduzieren, ist die Kombination von hart- und weichmagnetischen Materialien, welche erstmals von Kneller und Hawig [27] vorgeschlagen wurden und Verbundmaterialien [5-16, 18, 20-24, 28] genannt werden.

Eine andere stark im Fokus stehende Methode, die Speicherkapazität zu erhöhen, ist die Verwendung von nanostrukturierten Speichermedien [14, 17-18, 29-32], bei welchen jede Nanostruktur (ein sogenannter Dot) genau ein Bit darstellt. Mit einer regelmäßigen Anordnung kann so ein optimales Signal-zu-Rausch-Verhältnis

erreicht werden. In bisherigen Veröffentlichungen über nanostrukturierte Speichermedien sind die Nanostrukturen meist mit Elektronenstrahlolithografie [33-35], Block-Copolymer-Lithografie [36-38] oder chemischer Synthese [39-42] hergestellt worden. Da bei dem ersteren Verfahren die Dots nacheinander belichtet werden müssen, ist dieses aus Zeitgründen nicht für eine großflächige Strukturierung geeignet. Bei den beiden zuletzt genannten Verfahren wird zwar die gesamte Fläche in einem Prozess strukturiert, allerdings wird sich eine regelmäßige Ordnung nur über wenige μm einstellen. Mittels Nanoprägelithografie (Nanoimprint-Lithografie) lassen sich magnetische Nanostrukturen regelmäßig über eine große Fläche herstellen, welche nur durch die Dimension des Stempels beschränkt ist [43-45].

Im ersten Teil dieser Arbeit soll das temperaturabhängige Verhalten von dünnen $L1_0$ -FePt-Schichten im gesamten ferromagnetischen Temperaturbereich untersucht werden, welche unterhalb einer bestimmten Schichtdicke inselförmige Nanostrukturen bilden. Ferner werden Abhängigkeiten von Ordnungsgrad, Teilchendurchmesser und Morphologie, welche über die Schichtdicke direkt beeinflusst werden, in die Untersuchungen mit einbezogen. Mit diesen Untersuchungen können dann intrinsische Materialparameter, wie die Kristallanisotropie K_1 und die Sättigungspolarisation J_s temperaturabhängig bestimmt werden. Des Weiteren wird über die Temperaturabhängigkeit des Koerzitivfeldes die vorliegende Art des Ummagnetisierungsmechanismus analysiert. Zusätzlich können inselförmige Nanostrukturen als erste Modellsysteme für nanostrukturierte Speichermedien dienen.

Im zweiten Teil der Arbeit wird zunächst ein Verfahren entwickelt, mit welchem sich $L1_0$ -FePt-Nanostrukturen mit einem Durchmesser von 100 nm, 80 nm, 60 nm und 40 nm und herausragenden magnetischen Eigenschaften über eine Fläche von 2 mm x 2 mm regelmäßig strukturieren lassen. Durch eine großflächige Nanostrukturierung lassen sich zudem die Eigenschaften einzelner Dots auch mit SQUID-Magnetometrie charakterisieren. Neben der Dotgrößenabhängigkeit wird in diesem Kapitel insbesondere auf den Einfluss des Trockenätzens eingegangen.



Kapitel 1: Einleitung

In diesem Rahmen wird die Störung der Kristallstruktur nach dem Ätzzvorgang genauestens untersucht und analysiert, inwiefern diese durch eine nachträgliche Anlassbehandlung rückgängig gemacht werden kann. Ferner wird mit temperaturabhängigen Messungen der Ummagnetisierungsmechanismus vor und nach dem Anlassprozess bestimmt und miteinander verglichen.

Die Arbeit wird mit der Untersuchung von großflächig strukturierten regelmäßigen Verbundnanostrukturen abgeschlossen, wobei zwischen zwei Arten unterschieden wird. Beim ersten Typ Verbundnanostrukturen werden zunächst reine $L1_0$ -FePt-Nanostrukturen hergestellt und dann nachträglich mit einer dünnen Eisenschicht besputtert, der andere Typ Verbundnanostrukturen wird direkt aus einer geschlossenen Verbundschicht aus $L1_0$ -FePt und Eisen hergestellt. Neben dem Einfluss der Eisenschichtdicke wird in diesem Kapitel vor allem das Kopplungsverhalten von Eisen und $L1_0$ -FePt untersucht.

Ziel dieser Arbeit soll dabei nicht sein, einen funktionsfähigen Datenspeicher auf der Basis zukünftiger Speichertechnologien zu bauen. Die Arbeit dient vielmehr der Erforschung der benötigten physikalischen Grundlagen zukünftiger Datenspeicher, um so das Potential neuer Datenspeicherkonzepte und deren Umsetzung besser abschätzen zu können.



2. Grundlagen des Magnetismus

In diesem Kapitel soll auf den Magnetismus allgemein und auf verschiedene magnetische Phänomene wie Dia-, Para- und Ferromagnetismus eingegangen werden. Der Ursprung des Magnetismus sind die Bahn- und Spinmomente der Elektronen. Ferner ist der Magnetismus ein rein quantenmechanisches Phänomen, was an einem einfachen Beispiel aus der Molekülphysik verdeutlicht werden soll: Betrachtet man ein Wasserstoffmolekül, so muss aufgrund des fermionischen Charakters der beiden Elektronen die Gesamtwellenfunktion antisymmetrisch sein, wobei sich die Gesamtwellenfunktion als Produkt von Orts- und Spinwellenfunktion schreiben lässt [46]. Ist also die Ortswellenfunktion symmetrisch, so müssen die Spins antiparallel stehen, die Spinmomente kompensieren sich und das Wasserstoffmolekül ist diamagnetisch. Andererseits stehen die Spins parallel, falls die Ortswellenfunktion antisymmetrisch ist, wodurch das Wasserstoffmolekül paramagnetisch wäre. Die Energiedifferenz zwischen diesen beiden Zuständen wird als Austauschenergie bezeichnet und es zeigt sich mit quantenmechanischen Rechnungen, dass im Falle des Wasserstoffmoleküls die diamagnetische Konfiguration die energetisch günstigere ist. Dagegen ist beim Sauerstoffmolekül der paramagnetische Zustand der günstigere.

2.1. Grundtypen des Magnetismus

2.1.1. Diamagnetismus

Ein diamagnetisches Material ist dadurch gekennzeichnet, dass es ohne externes Magnetfeld keine magnetischen Momente aufweist, sondern dass sich diese erst mit einem externen Feld bilden und stets antiparallel zum Magnetfeld ausrichten, was eine negative Suszeptibilität bedeutet. Bei der Betrachtung der Ursachen des

Kapitel 2: Grundlagen des Magnetismus

Diamagnetismus lassen sich im Wesentlichen zwei Fälle unterscheiden. Zum einen kann Diamagnetismus durch gebundene Elektronen verursacht werden, zum anderen auch durch freie Leitungselektronen.

Ersterer wird Langevin-Diamagnetismus [47-48] genannt und kann auch rein klassisch verstanden werden. Vereinfacht dargestellt umkreisen gebundene Elektronen die positiven Atomkerne. Durch ein externes Magnetfeld wirkt dann eine Lorentz-Kraft auf die Elektronen, wodurch nach der Lenz'schen Regeln ein entgegen gerichtetes Moment induziert wird. Mit quantenmechanischen Rechnungen, welche von einem Hamilton-Operator mit zusätzlichem Vektorpotential ausgehen, kann dieser Diamagnetismus berechnet werden. Die magnetische Suszeptibilität kann mit dem Term

$$\chi_{\text{Langevin}} = \frac{\partial J}{\partial B} = -\mu_0 \frac{e^2}{6m} N \sum_i^{\text{Atom}} \langle r_i^2 \rangle \quad (2.1)$$

berechnet werden, wobei J die Sättigungspolarisation, B die magnetische Flussdichte, μ_0 die Vakuumpermeabilität, m die Elektronenmasse, N die Atomdichte und r_i^2 das mittlere Abstandsquadrat der Elektronen beschreibt.

Der Diamagnetismus der Leitungselektronen wird als Landau-Diamagnetismus [47-48] bezeichnet und kann nur rein quantenmechanisch berechnet werden. Durch ein externes Magnetfeld werden die Elektronen des Leitungsbands auf Kreisbahnen gezwungen. Dies hat zur Folge, dass die Zustandsdichte jetzt nicht mehr kontinuierlich mit der Energie ist, sondern auf sogenannte Landau-Niveaus diskretisiert. Eine Magnetfelderhöhung führt so zu einer Energieerhöhung ΔU , was gleichbedeutend mit einer Magnetisierung ist. Die Suszeptibilität lässt sich dann mit

$$\chi_{\text{Landau}} = -\frac{\mu_0}{V} \frac{\partial^2 \Delta U}{\partial B^2} = \frac{\partial J}{\partial B} = -\frac{1}{3} \mu_0 \mu_B^2 \left(\frac{m}{m^*}\right)^2 \frac{n(E_F)}{V} \quad (2.2)$$

darstellen. V stellt hierbei das Volumen, $n(E_F)$ die Zustandsdichte an der Fermi-Kante, m^* die effektive Elektronenmasse und μ_B das Bohr'sche Magneton dar. Typischerweise nehmen sowohl χ_{Langevin} als auch χ_{Landau} Werte in der Größenordnung von 10^{-6} bis 10^{-5} an [49], wobei der Landau-Diamagnetismus nur bei elektrisch leitenden Materialien vorkommt.

2.1.2. Paramagnetismus

Als Paramagnetismus bezeichnet man das Phänomen, wenn sich magnetische Momente, die auch ohne externes Magnetfeld in einem Material vorhanden sind, aber keine magnetische Ordnung ausbilden, parallel zu einem äußeren Magnetfeld ausrichten. Die Ursachen hierfür können sehr unterschiedlich sein.

Statistisch orientierte Momente in einem Festkörper werden sich parallel zu einem äußeren Magnetfeld orientieren, um die Gesamtenergie zu minimieren. Nach der Ensembletheorie wirkt die Temperatur diesem Effekt entgegen, wodurch sich die magnetischen Momente mit zunehmendem Magnetfeld nur allmählich parallel ausrichten. Diese Art von Paramagnetismus wird Curie-Paramagnetismus [47-48] genannt. Der Magnetisierungsverlauf folgt der Brillouin-Funktion $B_J(\alpha)$.

$$M = M_S \cdot B_J(\alpha); \tag{2.3}$$

$$B_J(\alpha) = \frac{2J+1}{2J} \coth\left(\frac{2J+1}{2J}\alpha\right) - \frac{1}{2J} \left(\coth\frac{1}{2J}\alpha\right)$$

mit
$$\alpha = \frac{\mu_0 H_{\text{ext}} g \mu_B J}{k_B T} \tag{2.4}$$

In Gleichung (2.3) beschreibt M die Magnetisierung, g den Landé-Faktor und J die Gesamtdrehimpulsquantenzahl. H_{ext} beschreibt das externe Magnetfeld.

Kapitel 2: Grundlagen des Magnetismus

Im Gegensatz zum Curie-Paramagnetismus sind beim van-Vleck'schen Paramagnetismus [47-48] im Grundzustand keine magnetischen Momente vorhanden. Dies ist beispielsweise für Eu_2O_3 der Fall. Bei diesem Material sind die f-Orbitale nach den Hund'schen Regeln so besetzt, dass Spin- und Bahnmomente genau gleich groß, aber entgegengesetzt sind. Ein thermisch angeregter Zustand kann aber durchaus in einem magnetischen Moment resultieren.

Der Paramagnetismus der Leitungselektronen wird Pauli-Paramagnetismus genannt [47-48]. In diesem Fall sind ohne äußeres Magnetfeld beide Teile des Leitungsbands (Spin-up und Spin-down) mit der gleichen Anzahl von Elektronen besetzt, was in einem verschwindenden magnetischen Moment resultiert. Mit äußerem Magnetfeld wird der Teil des Leitungsbandes, in welchem die Spins der Elektronen antiparallel zum Magnetfeld stehen, um den Faktor $\mu_B \mu_0 H_{\text{ext}}$ energetisch begünstigt, der andere Teil um denselben Faktor energetisch ungünstiger. Durch Umklappen der Spins bilden die Elektronen wieder ein gemeinsames Fermi-Niveau, wodurch ein magnetisches Moment entsteht, welches parallel zum Magnetfeld ausgerichtet ist.

$$\chi_{\text{Pauli}} = \frac{\partial J}{\partial B} = \mu_0 \mu_B^2 \frac{n(E_F)}{V} = - = -\frac{1}{3} \left(\frac{m}{m^*} \right)^2 \chi_{\text{Landau}} \quad (2.5)$$

Typischerweise nimmt χ_{Pauli} Werte in der Größenordnung 10^{-6} bis 10^{-5} an und kommt nur in elektrisch leitenden Materialien vor. Dagegen kann die Suszeptibilität des Curie-Paramagnetismus Werte von 10^{-3} bis 10^{-2} annehmen [50].

2.1.3. Ferromagnetismus

Ferromagnetische Materialien sind durch eine spontane magnetische Ordnung gekennzeichnet, bei welcher die permanent vorhandenen magnetischen Momente parallel zueinander stehen.

Bei den Elementen der Übergangsmetalle (Fe, Co und Ni) tragen die äußeren 3d-Orbitale den Magnetismus und werden dabei maßgeblich durch das Kristallfeld

gestört. Aus diesem Grund kommt es zu einer Auslöschung der Bahnmomente in diesen 3d-Orbitalen und die Elektronen weisen somit reinen Spin-Charakter auf, was einen Landé-Faktor von 2 bedeutet.

Bei den Elementen der Seltenerdmetalle (Nd, Pr, Dy, Sm, Gd, ...) sind die 4f-Orbitale für den Ferromagnetismus verantwortlich, allerdings befinden sich die 4f-Orbitale im Inneren und werden durch die s- und d-Orbitale höherer Schalen abgeschirmt. Der Bahnmagnetismus wird also nicht ausgelöscht und der Landé-Faktor wird wie bei einem freien Atom berechnet.

Ein Maß, ob ein Material Ferromagnetismus aufweist, ist durch das Stoner-Kriterium gegeben [51]. Ähnlich dem Pauli-Paramagnetismus untersucht man hier, wie viele Elektronen bei einer zunächst noch gleichmäßigen Spin-Verteilung durch eine Magnetisierung umklappen. Diese bringt einen Gewinn an Austauschenergie, welche sich nach Gleichung (2.6) berechnen lässt, wobei ΔN die Anzahl der umklappenden Spins darstellt.

$$\phi_A = -2\Delta N^2 \frac{\mu_0 \mu_B^2}{V} N_W \quad (2.6)$$

N_W wird Weiß'sche Molekularfeldkonstante genannt und ist proportional zum Austauschintegral J_{ij} , welches im Heisenbergmodell benutzt wird, um die Austauschenergie zu berechnen [52].

Zusätzlich muss kinetische Energie aufgewendet werden, da durch eine Polarisation Elektronen mit Spin-down bzw. Spin-up energetisch bevorzugt bzw. benachteiligt werden.

$$\phi_{\text{kin}} = 2\Delta N^2 \frac{1}{n(E_F)} \quad (2.7)$$

Eine Skizze zur Erläuterung der beiden Energieterme ist in Abb. 2.1 schematisch dargestellt.

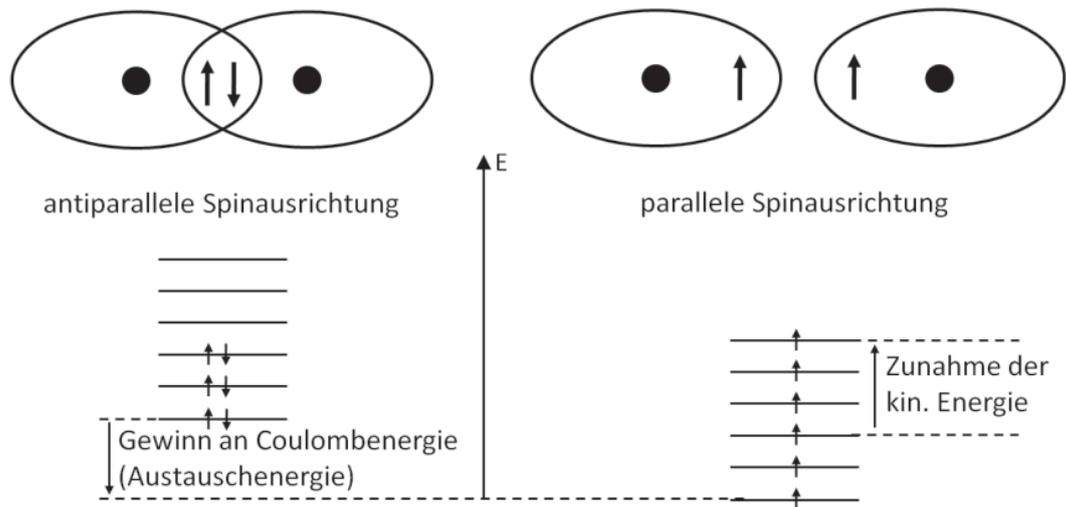


Abb. 2.1: Schematische Darstellung zur Erklärung des Ferromagnetismus [53].

Ist die Summe beider Energien kleiner Null, wird sich eine ferromagnetische Ordnung ausbilden. Bis auf einige Konstanten sind damit nur das Austauschintegral J_{ij} und die Zustandsdichte an der Fermi-Kante $n(E_F)$ für eine ferromagnetische Ordnung ausschlaggebend. Als Stoner-Kriterium wird Ungleichung (2.8) bezeichnet. Sie ist für ferromagnetische Materialien erfüllt.

$$const \cdot n(E_F) \cdot J_{ij} > 1 \quad (2.8)$$

2.1.4. Curie-Temperatur

Im Allgemeinen wirkt die thermische Energie der ferromagnetischen Ordnung entgegen. Dies hat zur Folge, dass magnetische Kenngrößen wie die Sättigungspolarisation oder das Koerzitivfeld für einen Ferromagneten mit steigender Temperatur meist abnehmen. Bei einer kritischen Temperatur wird die ferromagnetische Ordnung in einem Phasenübergang zweiter Ordnung vollständig zerstört. Diese Temperatur wird als Curie-Temperatur [47-48] bezeichnet. Oberhalb dieser Temperatur reagieren die einzelnen magnetischen Momente unabhängig voneinander auf ein äußeres Magnetfeld, was einem paramagnetischen Verhalten entspricht.

2.2. Ferromagnetische Hysteresekurve

Um die Kenngrößen eines magnetischen Materials zu bestimmen, bedient man sich häufig den sogenannten Hysteresekurven, welche das Antwortverhalten der untersuchten Probe auf ein externes Magnetfeld widerspiegeln.

Ein ferromagnetisches Material ist zunächst thermisch entmagnetisiert und weist nach außen hin kein magnetisches Moment auf. Wird an ein thermisch entmagnetisiertes ferromagnetisches Material ein stärker werdendes Magnetfeld angelegt, so werden sich die einzelnen Momente parallel zu diesem orientieren. Man spricht hier von der Neukurve, welche in Abb. 2.2. dargestellt ist.

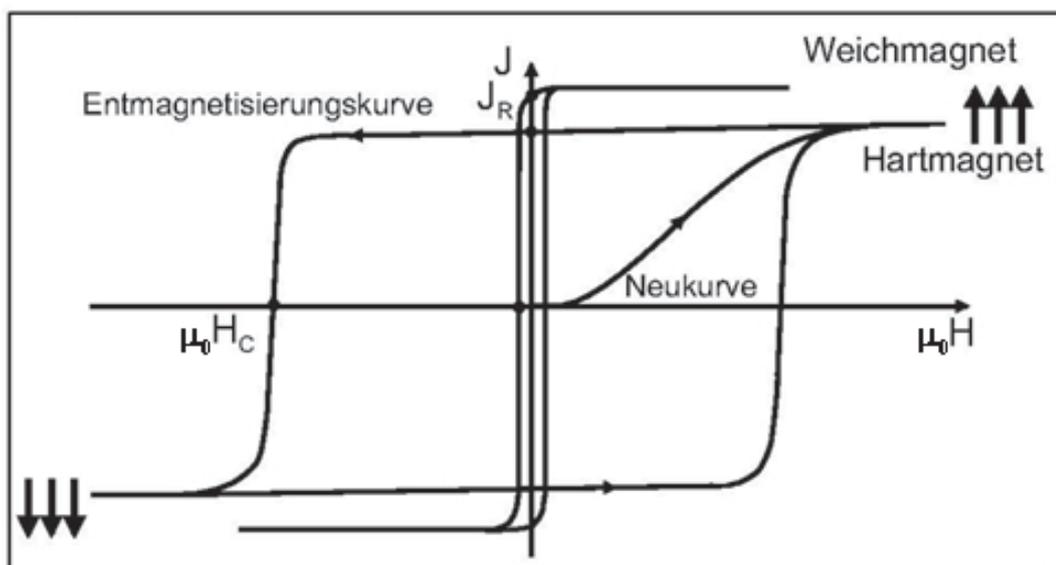


Abb. 2.2: Darstellung einer weichmagnetischen und einer hartmagnetischen Hysteresekurve. Typischerweise wird die Polarisation J oder das magnetische Moment m über das angelegte Feld H aufgetragen, um eine Hysteresekurve darzustellen [54].

Zumindest zu Beginn der Neukurve erfolgt die Magnetisierung reversibel [55]. Nimmt das Feld weiter zu, so steigt auch die Polarisation J stetig an bis die Sättigungspolarisation erreicht ist. Bei einer Abnahme des Magnetfeldes nimmt die Polarisation dann nicht den Verlauf der Neukurve an, sondern nimmt nur sehr langsam ab, so dass auch ohne externes Feld eine gewisse Polarisation vorhanden ist. Man spricht hier von der Remanenz J_R . Auch ein der Polarisation entgegen gerichtetes Magnetfeld wird diese nicht sofort in die entgegengesetzte Richtung



Kapitel 2: Grundlagen des Magnetismus

umklappen lassen, sondern es ist ein gewisses Gegenfeld nötig. Ein Maß, bei welcher Feldstärke dies geschieht, ist das Koerzitivfeld, bei welchem die Polarisierung durch ein äußeres Magnetfeld auf null reduziert worden ist. Bei weichmagnetischen Materialien kann das Koerzitivfeld Werte von wenigen mT haben, während bei stark hartmagnetischen Materialien das Koerzitivfeld 1 T deutlich übersteigen kann.