

Tieftemperatur-Magnetkraftmikroskopie
an dünnen Manganperowskit-Filmen
und Hochtemperatursupraleiter-Einkristallen

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
des Fachbereichs Physik
der Universität Hamburg

vorgelegt von
Marcus Liebmann
aus Lübeck

Hamburg
2003

Gutachter der Dissertation:

Prof. Dr. R. Wiesendanger

Prof. Dr. J. Kötzler

Gutachter der Disputation:

Prof. Dr. R. Wiesendanger

Prof. Dr. H. P. Oepen

Datum der Disputation:

17.03.2003

Vorsitzender des Prüfungsausschusses:

Dr. K. Petermann

Vorsitzender des Promotionsausschusses:

Prof. Dr. G. Huber

Dekan des Fachbereichs Physik:

Prof. Dr. F.-W. Büßer

Inhaltsangabe

Die vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Abbildung magnetischer Strukturen auf Manganperowskiten und Hochtemperatur-Supraleitern mit der Methode der Magnetkraftmikroskopie.

Im ersten Teil wird zunächst eine Übersicht über Grundlagen des Magnetismus und der magnetischen Mikroskopie gegeben. Ein besonderer Schwerpunkt liegt auf der Magnetkraftmikroskopie als einer Anwendung der Rasterkraftmikroskopie und den zugrundeliegenden Wechselwirkungen und Kontrastmechanismen. Um magnetische Strukturen bei tiefen Temperaturen, im Ultrahochvakuum (UHV) und im Magnetfeld untersuchen zu können, wurde ein Rasterkraftmikroskop im *Hamburg-Design* mit interferometrischer Detektion und *xy*-Verschiebetisch in eine UHV-Anlage mit Helium-Badkryostat und supraleitendem Split-Coil-Magneten integriert. Der Aufbau dieses Systems sowie die *in-situ*-Präparation von magnetischen Dünnschichtspitzen und die Charakterisierung ihrer Abbildungseigenschaften werden ausführlich geschildert.

Im zweiten Teil werden die magnetischen Strukturen dünner Manganperowskitfilme, $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO) und $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$ (LCMO), auf einem LaAlO_3 -Substrat feldabhängig in filmartigen Sequenzen untersucht. Beide Systeme zeigen einen kolossalen Magnetowiderstand und eine substratinduzierte senkrechte Anisotropie. Die Domänenstruktur von LSMO im thermisch demagnetisierten Zustand sowie nach Sättigung in einem parallelen Feld kann im Bild der schwachen Streifendomänen beschrieben werden. Feldabhängige Phänomene wie Hysterese, Nukleation und Wachstum sowie der Barkhausen-Effekt konnten mit der Methode der Differenzbilder eingehend untersucht werden. Im Falle von LCMO wurde der Schwerpunkt auf die Abhängigkeit der Domänenstruktur von der Filmdicke und dem Sauerstoffgehalt gelegt.

Der letzte Teil beschäftigt sich mit der temperatur- und feldabhängigen Abbildung des Flussliniengitters auf einem einkristallinen Hochtemperatur-Supraleiter ($\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$). Übergänge zwischen fester, flüssiger und glasartiger Phase konnten beobachtet werden.

Abstract

In this work, the examination of magnetic structures on manganese perovskites and high temperature superconductors by means of magnetic force microscopy is described.

In the first part, a survey of basic aspects of magnetism and magnetic imaging is given. Magnetic force microscopy as an application of scanning force microscopy is introduced together with the underlying interactions and mechanisms of contrast formation. In order to study magnetic structures at low temperatures, in ultrahigh vacuum (UHV), and in magnetic fields, a scanning force microscope (*Hamburg design*) with interferometric detection and a xy table is implemented in an UHV system with liquid helium bath cryostat and a superconducting split-coil magnet. The set-up of this system as well as the *in situ* preparation of magnetic thin film tips and the characterization of their imaging performance is described.

In the second part, magnetic structures of thin films of manganese perovskites, $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ (LSMO) and $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$ (LCMO), on a LaAlO_3 substrate are investigated in field dependent, movie-like sequences. Both systems exhibit a colossal magnetoresistance and a substrate induced perpendicular anisotropy. The domain structure of LSMO in the thermally demagnetized state and after saturation in an in-plane field can be explained in terms of dense stripe domains. Field dependent phenomena like hysteresis, nucleation and growth as well as the Barkhausen effect are analyzed by means of difference images. For LCMO, the dependence on film thickness and oxygen content is emphasized.

The last part deals with the temperature and field dependent imaging of flux line lattices of a high temperature superconductor ($\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$). Phase transitions between solid, glass and liquid are observed.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Magnetkraftmikroskopie: Grundlagen	3
2.1	Magnetismus	3
2.1.1	Magnetostatische Felder	4
2.1.2	Energien eines Ferromagneten	5
2.2	Magnetische Mikroskopie	7
2.3	Rasterkraftmikroskopie	10
2.3.1	Prinzip	10
2.3.2	Frequenzmodulationstechnik	11
2.4	Magnetkraftmikroskopie	13
2.4.1	Wechselwirkungen	13
2.4.2	Kontrastmechanismen	16
2.4.3	MFM-Modus	20
2.5	Tiefemperatur-Rasterkraftmikroskope	21
2.6	Instrumenteller Aufbau	22
2.6.1	Vakuumsystem	22
2.6.2	Magnetkryostat	23
2.6.3	Thermische Ankopplung	25
2.6.4	Mikroskop	27
2.7	Magnetische Dünnschichtspitzen	29
2.7.1	Präparation	30
2.7.2	Abbildungseigenschaften	31
2.7.3	Streufeld	34
2.7.4	Auswertung von Domänengrößen und Kontrasten	37
3	Manganperowskite	41
3.1	Einleitung	41
3.1.1	Struktur	42
3.1.2	Doppelaustausch-Modell	43
3.2	LSMO / LAO	45

3.2.1	Wachstum und Struktur	46
3.2.2	Magnetische Eigenschaften	48
3.2.3	Domänenstruktur im Nullfeld	50
3.2.4	Feldabhängige Untersuchungen	54
3.2.5	Hysterese	57
3.2.6	Nukleation und Wachstum	60
3.2.7	Barkhausen-Effekt	65
3.2.8	Zylindrische Domänen	68
3.2.9	Korrelation mit der Topographie	69
3.3	LCMO / LAO	71
3.3.1	Struktur	71
3.3.2	Magnetische Eigenschaften	73
3.3.3	Domänenstruktur im Nullfeld	76
3.3.4	Feldabhängige Untersuchungen	79
4	Supraleiter	84
4.1	Einleitung	84
4.1.1	Grundlegende Eigenschaften	85
4.1.2	Typ-II-Supraleiter	88
4.2	Hochtemperatur-Supraleiter	90
4.2.1	BSCCO	91
4.2.2	Vortex-Phasendiagramm	92
4.3	Magnetkraftmikroskopie auf BSCCO	94
4.3.1	Schmelzen des Vortextgitters	94
4.3.2	Feldabhängiges Verhalten	98
	Zusammenfassung und Ausblick	101
	Literaturverzeichnis	103
	A Kontraste im Abbildungsmechanismus	114
	B Streifendomänen	116
	C Publikationen und Konferenzbeiträge	119
	Danksagung	122

Kapitel 1

Einleitung

Das Phänomen des Magnetismus war schon in der Antike bekannt, spätestens, seit in der Nähe des Ortes Magnesia Steine gefunden wurden, die Eisen anziehen vermochten. Schon lange, bevor es systematische Untersuchungen dazu gab, wurde der Magnetismus in der Seeschifffahrt genutzt. Der erste, der sich ausgiebig und wissenschaftlich mit diesem Phänomen befasste, war der englische Arzt William Gilbert (1544-1603) [1]. Er entwarf ein magnetisches Modell der Erdkugel (*Terrella*) und demonstrierte die Funktionsweise einer Kompassnadel am königlichen Hof.

Heute hat die Untersuchung magnetischer Eigenschaften der verschiedensten Materialien im Zuge der Verbreitung elektronischer Medien und der Miniaturisierung zunehmend an Bedeutung gewonnen. Die Herstellung magnetischer dünner Schichten ist zur zwingenden Grundlage für die Speichertechnologie und die Sensorik geworden. Für die Verwendung in Festplatten muss die Beständigkeit der Information, also der magnetischen Domänen, gegenüber äußeren Feldern und erhöhten Temperaturen bei minimalem Volumen über Jahre hinaus gewährleistet sein. Beim Auslesen von Informationen, sei es in Schreib-/Leseköpfen oder in einem Drehzahlsensor für die Automobilindustrie, sind Reproduzierbarkeit, festgelegte Signalstärken und Robustheit im Betrieb entscheidend. Der für diese Bauteile grundlegende Riesenmagnetowiderstands-Effekt (GMR) wurde erst 1988 von Grünberg gefunden [2], kam aber schon 1996 in ersten kommerziellen Geräten zum Einsatz.

Die immer weiter fortschreitende Miniaturisierung macht Untersuchungen notwendig, die bis in den Bereich der Grundlagenforschung vorstoßen. So muss am Schaltverhalten kleiner Teilchen analysiert werden, wo die Grenze der Verkleinerung durch thermisch aktivierte Ummagnetisierung (Superparamagnetismus) liegt, die eine dauerhafte Speicherung magnetischer Information in beliebig kleinen Einheiten unmöglich macht. Die Kopplung mag-

netischer und elektronischer Eigenschaften bei Effekten wie Riesenmagnetowiderstand, kolossalem Magnetowiderstand (CMR) und Tunnelmagnetowiderstand (TMR) stellt erhebliche Anforderungen sowohl in theoretischer Hinsicht als auch was die Qualität der beteiligten Materialien und dünnen Schichten betrifft. Nicht zuletzt deshalb ist die zeitliche und räumliche Beobachtung elementarer Vorgänge für das Verständnis und zu einem späteren Zeitpunkt auch für die Qualitätssicherung von großer Bedeutung.

Während die Nutzung des GMR-Effekts bereits vollständig in die Produktion integriert ist, sind CMR-Materialien wie die in dieser Arbeit untersuchten Manganperowskite noch Gegenstand intensiver Grundlagenforschung. Dazu gehört auch die Untersuchung der magnetischen Struktur und möglicher Rückwirkungen auf das elektronische und magnetoresistive Verhalten

Die vielen CMR-Materialien eigene Perowskit-Struktur kennzeichnet auch viele Hochtemperatur-Supraleiter (HTSL). Das ebenfalls hier untersuchte System $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ (BSCCO) gehört zu den Typ-II-Supraleitern, in die ein von außen angelegtes Magnetfeld unter bestimmten Umständen in Form so genannter Flussschläuche (Vortices) eindringen kann. Diese können, ähnlich wie die Domänenstruktur ferromagnetischer Proben, mit Hilfe magnetischer Mikroskopietechniken beobachtet werden.

Die hier vorliegende Arbeit beschäftigt sich mit der Untersuchung verschiedener ferromagnetischer Manganperowskit-Filme und supraleitender BSCCO Einkristalle mittels der Methode der Magnetkraftmikroskopie, angewandt bei tiefen Temperaturen (5,2 K), im Ultrahochvakuum und in äußeren Magnetfeldern. Sie gliedert sich wie folgt: zunächst werden einige Grundlagen der magnetisch sensitiven Mikroskopie behandelt, insbesondere der Magnetkraftmikroskopie. Dabei werden sowohl die kontrastgebenden Wechselwirkungen als auch apparative und präparative Voraussetzungen sowie Methoden der Auswertung berücksichtigt. Kapitel 3 beschäftigt sich zuerst mit der Untersuchung eines dünnen ferromagnetischen $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ -Films (LSMO) im Hinblick auf die Struktur sowie die Nukleation und das Wachstum der Domänen bei verschiedenen Magnetfeldern. Schließlich wird die Sauerstoff- und Schichtdickenabhängigkeit der Domänenstruktur von $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ -Filmen (LCMO) untersucht. Das letzte Kapitel stellt die Abbildung magnetischer Flussschläche an einem BSCCO Einkristall und die temperaturabhängige Entwicklung des Vortextgitters dar. Mit einer Zusammenfassung und einem Ausblick schließt diese Arbeit.

Kapitel 2

Magnetkraftmikroskopie: Grundlagen

Das Verhalten magnetischer Körper gab lange Zeit große Rätsel auf. Schon früh war bekannt, dass Form und Temperatur den Magnetismus von Eisen beeinflussen. Auch verhielt sich ansonsten unmagnetische Materie in Gegenwart von Eisen plötzlich wie ein magnetisches Material. Die Sichtbarmachung des zugrundeliegenden Kraftfeldes gelang durch die Herstellung feiner Nadeln, die, waren sie einmal magnetisiert, die Richtung des Feldes anzeigten. Eine Fortführung dieses Prinzips ist die Verteilung von Eisenspäne, die sich entlang der Feldlinien anordnen. Zum Anfang dieses Kapitels sollen einige Grundlagen des Magnetismus, soweit sie für diese Arbeit von Bedeutung sind, dargestellt werden. Anschließend sollen zur Einordnung der hier behandelten Magnetkraftmikroskopie die Möglichkeiten magnetischer Abbildung kurz beschrieben werden. Schließlich werden instrumentelle Voraussetzungen sowie die kontrastgebenden Wechselwirkungen und Abbildungseigenschaften erörtert.

2.1 Magnetismus

Magnetische Materialien lassen sich grob in drei Klassen einteilen: Diamagneten, Paramagneten und Ferromagneten. Ein Ferromagnet ist ein Material, das auch in Abwesenheit eines äußeren Magnetfeldes eine spontane Magnetisierung zeigt. Voraussetzung dafür ist die Existenz eines atomaren, permanenten magnetischen Momentes und eine Kopplung dieses Momentes an seine Nachbaratome, die eine Parallelstellung begünstigt. Fehlt diese Kopplung oder ist klein gegen die thermische Energie, kommt es nicht zu einer

langreichweitigen Ordnung, und es liegt Paramagnetismus ($0 < \chi \ll 1$) vor:¹ Eine makroskopische Magnetisierung kommt nur im äußeren Feld zustande und ist parallel zu diesem. Fehlt auch ein permanentes, atomares magnetisches Moment, so ergibt sich Diamagnetismus ($\chi < 0$ und $|\chi| \ll 1$), der sich halbklassisch als Larmor-Präzession der Elektronenbahnen verstehen lässt. Für eine detaillierte Darstellung sei auf die Lehrbücher [3–5] verwiesen.

2.1.1 Magnetostatische Felder

Das Verhalten klassischer elektromagnetischer Felder wird durch die Maxwell-Gleichungen vollständig beschrieben. Obwohl in vielerlei Hinsicht elektrisches und magnetisches Feld komplementär zueinander sind, gibt es doch eine wesentliche Asymmetrie, die aus der Abwesenheit freier magnetischer Ladungen resultiert. Sie findet ihren Ausdruck in der Quellenfreiheit der magnetischen Flussdichte $\vec{B}$:

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0. \quad (2.1)$$

Betrachtet man weiterhin nur statische Phänomene in stromlosen Körpern, so vereinfacht sich die letzte Maxwell-Gleichung, die die Wirbel der magnetischen Feldstärke $\vec{H}$ beschreibt, zu

$$\nabla \times \vec{H} = 0. \quad (2.2)$$

Dadurch eröffnet sich die Möglichkeit, $\vec{H}$ als Gradient eines skalaren Potentials zu schreiben:

$$\vec{H} = -\nabla \Phi. \quad (2.3)$$

Diese Gleichungen gelten nicht nur im Vakuum, sondern ebenso in massiven magnetisierbaren Körpern. Daraus ergeben sich an den Grenzflächen die Bedingungen, dass die Normalkomponente der magnetischen Flussdichte $\vec{n} \cdot \vec{B}$ und die Lateralkomponente der magnetischen Feldstärke $\vec{n} \times \vec{H}$ stetig sein müssen, wobei $\vec{n}$ den Normalenvektor zur Grenzfläche bezeichnet. Beide magnetischen Feldgrößen sind über die Magnetisierung $\vec{J}$ miteinander verknüpft:²

$$\vec{B} = \mu_0 \vec{H} + \vec{J} = \mu_0 (1 + \chi) \vec{H} \quad (2.4)$$

mit der Suszeptibilität χ . Für die Einheiten gilt $[\vec{B}] = [\vec{J}] = \text{T}$ und $[\vec{H}] = \text{A/m}$. Da die Magnetisierung an der Grenzfläche eines Körpers zum

¹ χ stellt die magnetische Suszeptibilität dar; zur Definition siehe Abschnitt 2.1.1.

²In vielen Fällen wird auch die Magnetisierung über $\vec{B} = \mu_0 (\vec{H} + \vec{M})$ und $\vec{J} = \mu_0 \vec{M}$ definiert und mit $\vec{M}$ bezeichnet.

Vakuum auf Null absinkt, die Normalkomponente $B_z = \vec{n} \cdot \vec{B}$ aber stetig ist, muss die Normalkomponente $\vec{n} \cdot \vec{H}$ um den Betrag $2\vec{n} \cdot \vec{J}/\mu_0$ springen. Als Ursache dieses Sprunges kann man eine magnetische Oberflächenladungsdichte $\sigma = \vec{J} \cdot \vec{n}$ einführen. Analog dazu verursacht eine räumliche Veränderung der Magnetisierung im Volumen eine magnetische Raumladungsdichte $\rho_{\text{mag}} = -\nabla \cdot \vec{J}$. Die Ausdrücke $\sigma\Phi$ und $\rho_{\text{mag}}\Phi$ haben dann die Dimension einer Flächen- bzw. Volumen-Energiedichte. Bei der Verwendung dieser Terminologie muss man sich jedoch immer vor Augen halten, dass sich alle magnetischen Ladungen über den gesamten Körper hinweg gegenseitig kompensieren und nur eine Auswirkung der Ausrichtung ortsfester magnetischer Dipole sind. Für die Interpretation von Kontrasten in der magnetischen Mikroskopie ist das Konzept der Oberflächenladungen aber sehr hilfreich.

2.1.2 Energien eines Ferromagneten

Der Einfachheit halber soll hier angenommen werden, dass der Betrag der Magnetisierung innerhalb des Ferromagneten konstant ist. Diese Situation ist in den allermeisten Fällen in guter Näherung gegeben. Ihre Richtung aber ist in einem ausgedehnten Festkörper normalerweise räumlich nicht konstant, sondern es entstehen verschiedene homogen magnetisierte Bereiche (Domänen), die durch Domänenwände voneinander getrennt sind. Die Ausbildung einer bestimmten Domänenkonfiguration ergibt sich aus dem Zusammenwirken verschiedener Energiebeiträge, die ihren Ursprung in der Form (Streufeldenergie), der Kristallstruktur (Anisotropie, Magnetostriktion), der interatomaren Wechselwirkung (Austauschenergie) oder dem äußeren Feld (Zeeman-Energie) haben. Eine Komplikation bei der Berücksichtigung aller dieser Beiträge ist ihre Unterscheidung in lokale und nicht-lokale Anteile. Lokale Beiträge ergeben eine Energiedichte als Funktion der Magnetisierung an genau diesem Ort. Nicht-lokale Terme, insbesondere die Streufeldenergie ergeben sich für einen Ort als Integration über eine Funktion der Magnetisierung an allen anderen Orten. Im Folgenden sollen die wichtigsten dieser Beiträge erörtert werden.

Austauschenergie

Die Austauschenergie ist Ausdruck der Neigung eines Ferromagneten, eine konstante, parallele Magnetisierung einzunehmen. Abweichungen davon kosten Energie [6]:

$$E_{\text{aus}} = A \int (\nabla \vec{m})^2 dV = A \int \sum_{i,k,l} \frac{\partial m_i}{\partial x_k} \frac{\partial m_i}{\partial x_l} dV, \quad (2.5)$$

wobei A die Austauschkonstante, $\vec{m} = \vec{J}/J_s$ die Richtung der Magnetisierung und J_s die Sättigungsmagnetisierung bezeichnen. Mikroskopisch wird die Austauschkopplung z. B. im Heisenberg-Modell beschrieben durch die Wechselwirkungsenergie U zweier Spins $\vec{S}_i$ und $\vec{S}_j$:

$$U = -2J\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j. \quad (2.6)$$

J steht für das Austauschintegral und hängt mit der Überlappung der Wellenfunktionen zusammen. Das Vorzeichen von J bestimmt, ob ferromagnetische oder antiferromagnetische Kopplung vorliegt. Die Summation über die Kopplung zwischen allen Atomen der Umgebung ergibt einen Wert für die Austauschkonstante.

Anisotropieenergie

Da in einer geordneten Kristallstruktur bestimmte Richtungen aufgrund ihrer Symmetrie ausgezeichnet sind und die Magnetisierung in den elektronischen Eigenschaften des Festkörpers begründet liegt, ist zu erwarten, dass auch die möglichen Richtungen der Magnetisierung nicht gleichwertig sind, also Anisotropie besitzen. Ursache können die Kristallstruktur selbst, aber auch von außen induzierte Verspannungen des Gitters sein. Im einfachsten Fall einer einzigen bevorzugten Richtung (uniaxiale Anisotropie) kann sie beschrieben werden durch

$$E_a = \int K_{u1} \sin^2 \theta + K_{u2} \sin^4 \theta + \dots dV, \quad (2.7)$$

wobei θ den Winkel zwischen dieser Achse und der Magnetisierung bezeichnet. Die Konstanten K_u haben die Dimension einer Energiedichte. Ihre relativen Größen und Vorzeichen bestimmen, ob die leichte Richtung der Magnetisierung in der Ebene liegt (*easy plane*), senkrecht zu ihr steht (*easy axis*) oder einen Winkel bildet (*easy cone*).

Zeeman-Energie

Die Zeeman-Energie bezeichnet die Energie einer als fest angesehenen Magnetisierung $\vec{J}$ in einem äußeren Feld $\vec{H}$.

$$E_H = - \int \vec{H} \cdot \vec{J} dV \quad (2.8)$$

Sie lässt sich ableiten aus der Summation über die Energien der einzelnen atomaren Dipole im Feld.

Streufeldenergie

Das Streufeld ist dasjenige Feld $\vec{H}_d$, das durch die Magnetisierung des Körpers selbst hervorgerufen wird. Die damit zusammenhängende Energie E_d kann in verschiedener Weise betrachtet werden:

$$E_d = \int \rho_{\text{mag}} \Phi dV = \frac{1}{2} \mu_0 \int H_d^2 dV = -\frac{1}{2} \int \vec{H}_d \cdot \vec{J} dV. \quad (2.9)$$

Alle diese Ausdrücke sind äquivalent, verdeutlichen aber unterschiedliche Aspekte. Der erste Term beschreibt die Streufeldenergie über die Dichte magnetischer Ladungen. Eine Konfiguration, die ihr Auftreten vermeidet, z. B. durch eine Parallelstellung der Magnetisierung zur Oberfläche, ist energetisch bevorzugt. Der zweite Term verdeutlicht, dass für eine günstige Konfiguration das Auftreten von Streufeldern möglichst vermieden werden muss (geschlossener magnetischer Fluss innerhalb der Probe). Der dritte Teil zeigt, dass die Magnetisierung im Idealfall parallel zum Feld innerhalb des Körpers steht.

Diese Gesichtspunkte sind die Ursache für die Ausbildung magnetischer Domänen. Ohne die Anwesenheit der Streufeldenergie würde sich die Magnetisierung homogen entlang einer der durch die Anisotropie bevorzugten Achsen einstellen. Diese Ausrichtung produziert aber ein maximales Streufeld, so dass es sich lohnt, auf Kosten der Austausch- und Anisotropieenergie das Streufeld zu minimieren, was im Allgemeinen ein komplizierter Prozess ist.

Einfach sind die Verhältnisse bei einem ausgedehnten, im Winkel θ zu seiner Normalen magnetisierten Film. In diesem Fall ist die Energiedichte, bezogen auf das Filmvolumen, gegeben durch [6]:

$$\epsilon_d = K_d \cos^2 \theta = \frac{J_s^2}{2\mu_0} \cos^2 \theta, \quad (2.10)$$

hat also die Form einer uniaxialen Anisotropie. Hier kann die dimensionslose reduzierte Anisotropie $Q = K_u/K_d$ eingeführt werden. Anisotropien, die auf die Form des magnetisierten Körpers zurückzuführen sind, werden auch Formanisotropie genannt.

2.2 Magnetische Mikroskopie

Gegenwärtig gibt es eine Vielzahl an magnetisch sensitiven Messmethoden. Sie knüpfen an sehr unterschiedliche Effekte an, die ein magnetisiertes Material hervorruft. Eine ausführliche Übersicht über verschiedene magnetische Techniken der Mikroskopie geben u. a. Hubert und Schäfer [6].

Die älteste leistungsfähige Technik wurde erstmals 1932 von Bitter beschrieben [7]. Sie beruht auf der Agglomeration magnetischer Kolloide im Streufeld an der Probenoberfläche. Kontrastgebend ist hier die Teilchenkonzentration, die durch die Stärke des Streufeld-Gradienten bestimmt wird. Die Ortsauflösung wird einerseits begrenzt durch den Durchmesser der Teilchen in der Kolloid-Lösung, der auf bis zu 10 nm verringert werden kann, und andererseits durch die Auflösung des Mikroskops, mit dem die Verteilung der Teilchen beobachtet wird. Neben der optischen Mikroskopie wird hier auch die Rasterelektronenmikroskopie verwendet. Da hohe Streufeld-Gradienten auch durch Unebenheiten der Probe erzeugt werden können, ist es i. A. nötig, die Probe zu polieren. Ein Nachteil neben der unvermeidlichen Verdeckung der Probe ist, dass die Kolloide nur auf Streufelder reagieren können, solange sie sich in Lösung befinden. Das macht die feldabhängige Beobachtung von Domänenveränderungen unmöglich. Auch eine Beeinflussung durch das Feld der magnetischen Teilchen kann nicht ausgeschlossen werden.

Ein rein optisches Verfahren ist die Kerr-Mikroskopie [8, 9], bei der die Rotation der Polarisationssebene von Licht beim Durchgang durch magnetisiertes Material ausgenutzt wird. Durch den polaren und longitudinalen Kerr-Effekt kann die Richtung der Magnetisierung in einer oberflächennahen Schicht von einigen 10 nm rekonstruiert werden. Die Beobachtung erfolgt mit Hilfe eines optischen Mikroskops mit Polarisationsfiltern. Dadurch ist die Auflösung wiederum auf die Größenordnung der verwendeten Lichtwellenlänge begrenzt. Der ständig vorhandene Topographiekontrast kann durch digitale Bildverarbeitung und die Verwendung von Differenzbildern wirksam ausgeblendet werden. Die Probe ist einfach zugänglich und kann magnetischen Feldern ausgesetzt werden, während sie durch den Abbildungsprozess selbst nicht beeinflusst wird. Eine hohe Bildaufnahmezeit ermöglicht auch die Beobachtung dynamischer Vorgänge.

Sehr hohe Auflösung im nm-Bereich lässt sich mit der Lorentz-Mikroskopie erzielen [10]. Voraussetzung ist ein Transmissions-Elektronenmikroskop. Die auf die Probe beschleunigten Elektronen werden durch das Magnetfeld der polarisierten Materie gemäß der Lorentzkraft unterschiedlich abgelenkt. Jedoch erzeugen nur bestimmte Domänenkonfigurationen magnetischen Kontrast, abhängig vom Winkel zwischen Einfallrichtung und Magnetisierung. Auch die Topographie und in ungünstigen Fällen das Streufeld der Probe bewirken einen Kontrast, der aber durch geeignete Wahl des Fokus, durch differentielle, Raster- und Holographie-Techniken getrennt werden kann. Mit diesen weiter entwickelten Methoden kann je nach Schwerpunktsetzung hohe Ortsauflösung oder eine quantitative, dreidimensionale Analyse der Magnetisierung erreicht werden.

Ebenfalls eine elektronenmikroskopische Technik ist die Rasterelektro-

nenmikroskopie mit Polarisationsanalyse (SEMPA) [11]. Dabei wird ausgenutzt, dass die durch den Primärelektronenstrahl herausgelösten niederenergetischen Sekundärelektronen spinpolarisiert sind und damit Informationen über die Magnetisierungsrichtung am Ort ihres Austrittes aus der Probe tragen. Die Auflösung ist abhängig von dem Durchmesser des Primärstrahls und dem Austrittsvolumen und kann einige nm betragen [12]. Zur Auswertung der magnetischen Information müssen die Sekundärelektronen nachbeschleunigt und durch Streuung an einem Analysatorkristall (z. B. Gold oder Wolfram) in entgegengesetzt spinpolarisierte Strahlen aufgeteilt werden. Ihre relativen Intensitäten sind ein Maß für die Polarisation der Elektronen innerhalb des Austrittsvolumens. Variiert man die Richtung der Spinanalyse, kann die Magnetisierung dreidimensional rekonstruiert werden. Durch diese differentielle Technik werden Effekte nichtmagnetischen Ursprungs wirksam ausgeblendet, jedoch verringert sich dabei das Signal um mehrere Größenordnungen. Um Streuprozesse der Elektronen zu vermeiden, die die Spinpolarisation zerstören könnten, muss zudem im Ultrahochvakuum gearbeitet werden. Wie bei allen elektronenmikroskopischen Methoden ist eine Messung in variablen Magnetfeldern nicht möglich.

Die mit Abstand höchste Ortsauflösung ist mit der spinpolarisierten Rastertunnelmikroskopie zu erzielen. Sie basiert auf dem quantenmechanischen Tunnelstrom, der zwischen einer metallischen Spitze und einer leitenden Probe nach Anlegen einer geringen Spannung fließt. Entstammen die beteiligten Elektronen einem spinpolarisierten Zustand der Probe bzw. der Spitze, ist die differentielle Leitfähigkeit, d. h. die Veränderung der Leitfähigkeit des Tunnelkontaktes mit der elektrischen Spannung, abhängig von der relativen Orientierung der beiden Magnetisierungsrichtungen der Spitze und der Probe. Die extreme Abstandsabhängigkeit des Tunnelstromes bewirkt, dass dieser fast ausschließlich von einem Atom getragen wird. Damit wurde es möglich, erstmals antiferromagnetische Ordnung mit atomarer Auflösung zu beobachten [13]. Gleichzeitig kann durch Variation der Spannung die elektronische Zustandsdichte spektroskopiert werden. Diese Methode ist extrem oberflächensensitiv und benötigt daher Ultrahochvakuum-Bedingungen und leitfähige, ebene Oberflächen. Eine Beeinflussung der Probe durch die Spitze kann durch die Verwendung antiferromagnetischer Spitzen verhindert werden. Messungen in externen Magnetfeldern sind möglich, allerdings können nur relative Magnetisierungsrichtungen gemessen werden.

Die Methode, die in dieser Arbeit zur Anwendung kommen soll, ist die Magnetkraftmikroskopie (MFM: *magnetic force microscopy*), basierend auf dem Prinzip der Rasterkraftmikroskopie [14] und erstmals angewandt durch Martin und Wickramasinghe sowie Saenz *et al.* [15, 16]. Dabei wird eine magnetisch beschichtete Spitze an einem mikrofabrizierten Federbalken (Canti-

lever) über die Probe gerastert. Das Streufeld der Probe bewirkt eine anziehende bzw. abstoßende Wechselwirkung zwischen Probe und Spitze, je nach Magnetisierungszustand der Probe. Eine genauere Betrachtung der Kontrastmechanismen findet sich im folgenden Abschnitt. Durch die Abbildung des Streufeldes ist diese Technik sehr verwandt mit der Bitter-Technik und liefert auch einen ähnlichen Kontrast wie der polare Kerr-Effekt. Verwandtschaft besteht auch mit dem Leseprozess in der magnetischen Datenspeicherung. Für die Qualitätskontrolle geschriebener Informationen auf Festplatten ist sie deshalb die Methode der Wahl. Sie bietet eine hohe Auflösung im Bereich von 10 nm und ist sowohl unter Umgebungsbedingungen als auch im Vakuum, bei tiefen Temperaturen, in externen Magnetfeldern und auf Isolatoren einsetzbar. Zudem ist sie kombinierbar mit anderen Rastersondentechniken.

2.3 Rasterkraftmikroskopie

2.3.1 Prinzip

Das Prinzip der Rasterkraftmikroskopie ist in Abb. 2.1 dargestellt. Diese Technik entstammt dem Gebiet der Rastersondormethoden, das seit der erstmaligen Realisierung des Rastertunnelmikroskops [17] seine Anwendungsmöglichkeiten beständig ausgebaut hat. Eine ausführliche Darstellung findet sich in Ref. [18]. Allen Rastersondormethoden ist gemeinsam, dass eine Messsonde, i. Allg. eine metallische oder halbleitende Spitze, zeilenweise über das zu untersuchende Probengebiet bewegt wird. Dabei wird lokal die Wechselwirkung gemessen und über dem Ort aufgetragen. Es ergibt sich in serieller Weise ein Wechselwirkungsbild der abgerasterten Oberfläche. Diese Wechselwirkung kann verschiedener Natur sein und gibt den verschiedenen Methoden jeweils ihren Namen: Tunnelstrom (STM: *scanning tunneling microscopy*), Van-der-Waals- und chemische Wechselwirkung (AFM: *atomic force microscopy*), Elektrostatik (KPFM: *Kelvin probe force microscopy*), Magnetostatik (MFM: *magnetic force microscopy*), Kapazität (SCM: *scanning capacitance microscopy*), Leitfähigkeit (c-AFM), Reibung (*friction force microscopy*) und andere mehr.

Die Rasterbewegung wird durch piezoelektrische Stellelemente (*Scanner*) ausgeführt, die beim Anlegen einer Spannung von einigen hundert Volt Bewegungen von mehreren 10 μm ausführen, aber auch im Gesamtaufbau eine Positionsstabilität im pm-Bereich erreichen können. In der Rasterkraftmikroskopie wird die Messsonde durch eine Siliziumspitze gebildet, die am Ende eines Federbalkens (*Cantilever*) integriert ist. Spitze und Cantilever werden durch Ätztechniken aus einem einkristallinen Siliziumwafer industriell herge-

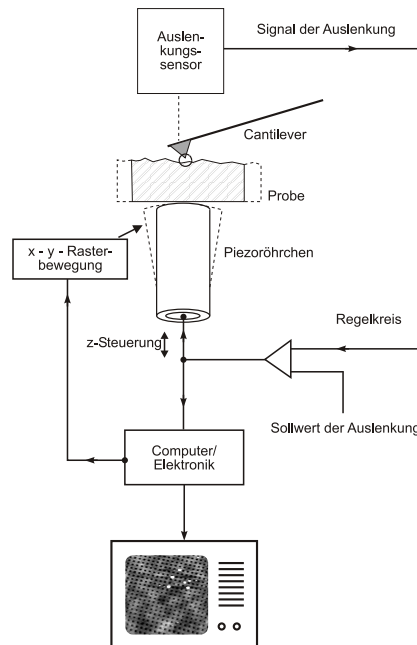


Abbildung 2.1: Funktionsweise eines Rasterkraftmikroskops. Ein Regelkreis sorgt durch Veränderung des Cantilever-Probe-Abstandes während der Rasterbewegung für ein konstantes Auslenkungssignal. Auslenkung und Stellwert werden elektronisch ausgelesen.

stellt. Die Auslenkung des Cantilevers aus seiner Ruhelage ist ein Maß für die auf ihn wirkende Kraft. Sie kann über die Ablenkung eines Laserstrahls, piezoresistiv, piezoelektrisch oder durch Interferometrie bestimmt werden. Das Auslenkungssignal, oder allgemeiner das Wechselwirkungssignal, kann über einen Regelkreis (*Feedback*) so auf die piezoelektrische Abstandsregelung rückgekoppelt werden, dass eine konstante Auslenkung, die als Sollwert vorgegeben ist, eingehalten wird.

2.3.2 Frequenzmodulationstechnik

Neben der Auslenkung des Cantilevers kann auch seine Schwingungsfrequenz als Maß für die Wechselwirkung genutzt werden. Unter Umgebungsbedingungen wird der Cantilever dazu wenig neben seiner Eigenfrequenz auf der Flanke seiner Resonanzkurve angeregt. Die sich einstellende Schwingungsamplitude ist abhängig von der Verstimmung zwischen Anregungs- und Eigenfrequenz (Amplitudenmodulation). Die Sensitivität wird bestimmt durch die Steilheit der Resonanzkurve, also durch die Güte Q des schwingenden Systems. Sie beträgt an Luft etwa 100 und steigt unter Vakuumbedingungen bis auf 10^5 an.

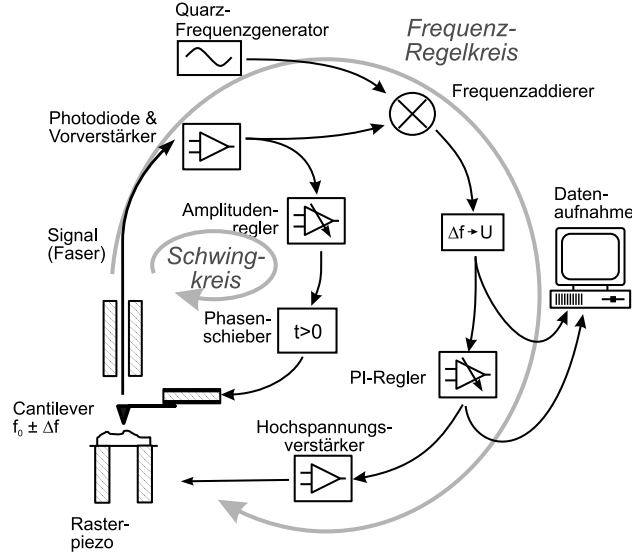


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Frequenzmodulationstechnik. Der unabhängige Schwingkreis bewirkt, dass der Cantilever immer mit seiner momentanen Resonanzfrequenz angeregt wird und mit konstanter Amplitude schwingt.

Hier bietet sich die Frequenzmodulationstechnik an. Diese Methode wurde zuerst von Albrecht *et al.* [19] vorgeschlagen. Mit einem separaten Regelkreis wird der Cantilever zu Schwingungen mit konstanter Amplitude A und mit seiner aktuellen Resonanzfrequenz f angeregt, die sich aus der Eigenfrequenz f_0 und der Verstimmung Δf im momentan herrschenden Kraftfeld der Probe ergibt. Die Frequenz wird mit Hilfe eines PLL (*phase locked loop*) in eine Spannung umgewandelt und dann in den Abstands-Regelkreis eingekoppelt (Abb.2.2).

Die Genauigkeit der Frequenzbestimmung ist begrenzt durch die thermische Bewegung des Cantilevers, die als weißes Rauschen im Frequenzspektrum auftritt. So ergibt sich die minimal detektierbare Frequenzverschiebung δf aus:

$$\langle (\delta f)^2 \rangle = \frac{f_0 k_B T B}{\pi c_z Q A^2}, \quad (2.11)$$

wobei T die Temperatur, B die Bandbreite, c_z die Kraftkonstante und A die Oszillationsamplitude des Cantilevers bezeichnen [19]. Im Gegensatz zur Amplitudenmodulation kann hier die Bandbreite reduziert werden, ohne den Dynamikbereich zu verringern, da die Frequenz selbst detektiert wird, was zu einer erheblichen Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses führt.

2.4 Magnetkraftmikroskopie

Im Gegensatz zu einigen der in Abschnitt 2.2 genannten magnetisch sensitiven Techniken wie Kerr-Mikroskopie oder SEMPA tragen die in der Magnetkraftmikroskopie (MFM) gewonnenen Bilder nur indirekt Informationen über die Richtung und Stärke der Magnetisierung, da der Sensor sich in einiger Entfernung über der Probenoberfläche befindet. Daher sollen in diesem Abschnitt einige Betrachtungen zum Zustandekommen des magnetischen Kontrastes angestellt werden.

2.4.1 Wechselwirkungen

Alle Kräfte, die in der Rasterkraftmikroskopie eine Rolle spielen, lassen sich auf elektromagnetische Effekte, ggf. in Verbindung mit der Quantenmechanik, zurückführen. Da die für Magnetkraftmikroskopie typischen Spitze-Probe-Abstände in der Größenordnung einiger 10 nm liegen, können kurzreichweitige Anteile wie die Ausbildung chemischer Bindungen, die Pauli-Abstoßung der Elektronenhüllen und die Austauschwechselwirkung, die auf interatomarer Längenskala von Bedeutung sind, in diesem Zusammenhang vernachlässigt werden. Es soll hier allerdings erwähnt werden, dass die Austauschwechselwirkung im Prinzip dazu geeignet sein sollte, magnetischen Kontrast zu erzeugen, da sie von der relativen Spinausrichtung der an der Abbildung beteiligten elektronischen Wellenfunktionen abhängt. An dieser Stelle werden nur die langreichweitigen Wechselwirkungen betrachtet, die zum MFM-Kontrast beitragen oder mit ihm konkurrieren.

Van-der-Waals-Kräfte

Die van-der-Waals-Kräfte haben einen rein quantenmechanischen Ursprung in Nullpunktfuktuationen des elektrischen Dipolmoments von Atomen oder Molekülen, selbst wenn diese kein permanentes Dipolmoment besitzen. Ein spontan auftretendes Dipolmoment p_1 erzeugt ein elektrisches Feld $E_1 \propto p_1/z^3$ in der Entfernung z und induziert in einem dort befindlichen Atom mit der Polarisierbarkeit α ebenfalls ein Dipolmoment $p_2 \propto \alpha E_1$. Für das Potenzial ergibt sich daraus eine Abstandsabhängigkeit von z^{-6} , welche den anziehenden Teil des Lennard-Jones-Potenzials darstellt. Der abstoßende Teil wird i. a. mit z^{-12} angesetzt, um die Pauli-Abstoßung zu simulieren, und spielt für MFM keine Rolle. Für eine Beurteilung der Kräfte zwischen Spitze und Probe kann als Modell eine Kugel vom Radius R (Spitze) gegenüber einer unendlich ausgedehnten Ebene (Probe) im Abstand d angenommen werden.

Die Integration über die beteiligten Flächen ergibt

$$F = -\frac{HR}{6d^2} \quad (2.12)$$

wobei die Hamakerkonstante H die Materialeigenschaften wie Polarisierbarkeit und Kristallstruktur beschreibt. Je nach Form der Spitze kann man auch eine Abhängigkeit mit d^{-1} für eine pyramidale Spitze oder mit d^{-3} für eine stabförmige Spitze erhalten [20].

Elektrostatik

Für elektrostatische Kräfte kommen zwei mögliche Ursachen in Betracht. Zum einen können sich isolierte Ladungen auf der Spitze oder der Probe befinden. Bei leitender Spitze oder Probe, wie sie in dieser Arbeit verwendet wurden, entsteht eine Bildladung entgegengesetzt gleicher Größe auf der jeweils anderen Seite, so dass sich gemäß dem Coulomb-Potenzial eine attraktive Kraft mit einer Abstandsabhängigkeit $\propto z^{-2}$ ergibt. Dazu kommt noch eine spannungsabhängige, anziehende Kraft aufgrund der Kapazität C zwischen Spitze und Probe:

$$F = -\frac{U^2}{2} \frac{\partial C}{\partial z} \quad (2.13)$$

Das Verhalten von $\partial C/\partial z$ hängt von der Spitzengeometrie ab. Für zwei planparallele Platten würde sich wiederum ein Abfall mit z^{-2} ergeben, während eine konusförmige Spitze einen $\ln(1/z)$ -artigen Verlauf bewirkte. Aus der Abstands- und Spannungsabhängigkeit der Kraft bzw. des Kraftgradienten, wie er durch die Frequenzverschiebung des Cantilevers abgebildet wird (Abschnitt 2.4.2), lassen sich Aussagen über die Form und den Radius der Spitze treffen [21].

Nun kann nicht nur eine von außen angelegte Spannung eine solche Kraft hervorrufen. Unterschiedliche Materialien in Spitze und Probe haben i. Allg. verschiedene Austrittsarbeiten, also unterschiedliche Energiedifferenzen zwischen Fermi-Kante und Vakuumniveau (Abb. 2.3c). Bringt man beide auf dasselbe elektrische Potenzial, gleichen sich die Fermi-Niveaus an, und es entsteht eine Potenzialdifferenz der Vakuumniveaus, die Kontaktpotenzialdifferenz $\Delta\Phi$. Sie hat den gleichen Effekt und die gleiche Abstandsabhängigkeit wie eine von außen angelegte Spannung und muss durch die Wahl einer geeigneten Vorspannung $U_{\text{bias}} = \Delta\Phi$ kompensiert werden. Der Einfluss einer veränderlichen Spannung ist in Abb. 2.3 dargestellt. Bild (a) zeigt eine topographische Aufnahme im geregelten dynamischen Modus bei konstanter Frequenzverschiebung und kompensierter Kontaktpotenzialdifferenz. Bild (b)

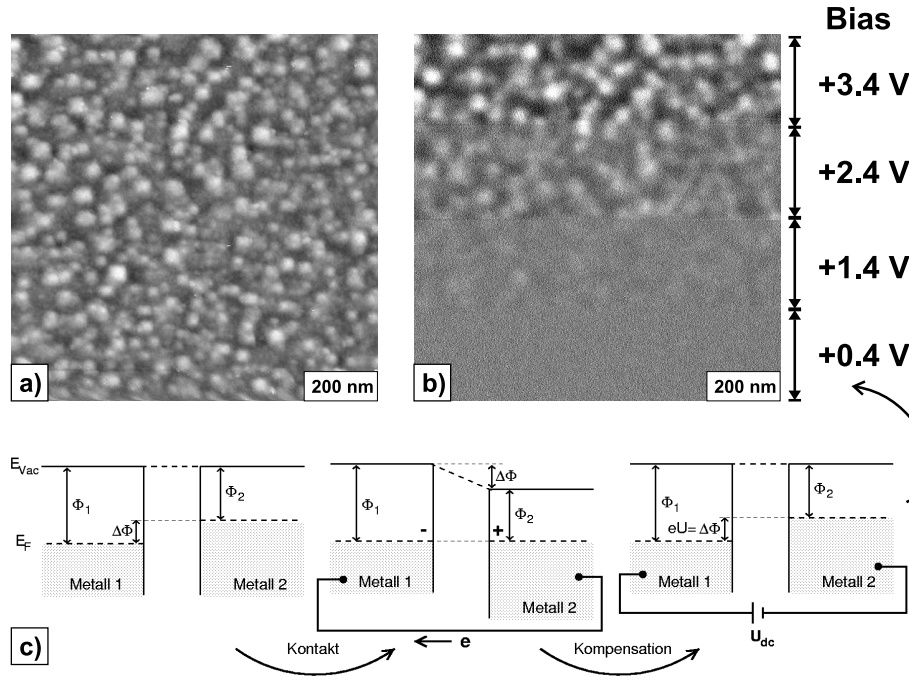


Abbildung 2.3: Einfluss der elektrostatischen Wechselwirkung auf den Bildkontrast am Beispiel eines LCMO-Films. (a) Topographische Aufnahme bei $\Delta f = 0.8$ Hz. (b) Frequenzverschiebung bei konstanter Höhe $h = 10$ nm mit unterschiedlicher Spitze-Probe-Spannung. (c) Effekt der Kontaktpotenzialdifferenz auf die elektrostatische Potenzialverteilung (aus [22]). Die rechte Situation entspricht ausgeglichener Kontaktpotenzialdifferenz $\Delta\Phi$ bei $U_{bias} = 0.4$ V in (b).

ist eine Abbildung der Frequenzverschiebung über demselben Gebiet, unregelmäßig in einer Höhe von 10 nm aufgenommen. Dabei wurde die Spannung von zunächst kompensierter Kontaktpotenzialdifferenz stufenweise erhöht. Bei großen Spannungsdifferenzen verursacht die Unebenheit der Probe wegen der Abstandsabhängigkeit der elektrostatischen Wechselwirkung veränderliche Kräfte und erzeugt auf diese Weise einen für MFM unerwünschten Topographiekontrast. Aus diesem Grunde wurden alle weiteren hier gezeigten MFM-Daten mit kompensierter Kontaktpotenzialdifferenz aufgenommen.

Magnetostatik

Der wesentliche Unterschied der Magnetostatik zur Elektrostatik liegt in der Abwesenheit freier magnetischer Ladungsträger, weshalb die Oberflächen magnetisierter Körper nicht als Äquipotenzialflächen beschrieben werden können. Allerdings ist es bei Abwesenheit von Strömen möglich, das Mag-

netfeld als Gradient eines skalaren Potentials zu schreiben: $\vec{H} = -\nabla\Phi$. Ferner kann man zur Vereinfachung der Betrachtung den Begriff magnetischer Oberflächenladungen $\sigma = \vec{J} \cdot \vec{n}$ einführen, wobei $\vec{J}$ die Magnetisierung und $\vec{n}$ den Normalenvektor zur Oberfläche bezeichnet. Als Komplikation kommt hinzu, dass man nicht von einem punktförmigen oder atomaren Sensor ausgehen kann, der die Probe abtastet, da MFM-Spitzen in der Regel ausgedehnte dünne Filme sind. Natürlich lassen sich Vereinfachungen finden und sind in vielen Fällen auch zulässig, jedoch müssen je nach Spitze-Probe-System die Verhältnisse neu analysiert werden, um eine geeignete Näherung zu finden.

Ganz allgemein muss für die Berechnung der Kraft zwischen Spitze und Probe die Wechselwirkungsenergie E_{ww} nach der interessierenden Raumrichtung, i. Allg. der Probennormalen z , abgeleitet werden. Zwei verschiedene Ansätze sind möglich: Zum einen kann die Magnetisierung der Spitze $\vec{J}_S$ im Streufeld der Probe $\vec{H}_P$ oder die Magnetisierung der Probe $\vec{J}_P$ im Streufeld der Spitze $\vec{H}_S$ betrachtet werden. Die Wechselwirkungsenergie ergibt sich dann aus dem Integral über das magnetisierte Volumen:

$$E_{\text{ww}} = - \int_{\text{Probe}} \vec{J}_P \cdot \vec{H}_S dV = - \int_{\text{Spitze}} \vec{J}_S \cdot \vec{H}_P dV. \quad (2.14)$$

Beide Ansätze sind äquivalent und letztlich auf das Newtonsche Axiom zurückzuführen, dass die Kräfte, die auf Spitze und Probe wirken, betragsmäßig gleich, aber entgegengesetzt sind. Obwohl beide Sichtweisen zu denselben Resultaten führen, können die sich daraus ergebenden Modelle für die Kontrastentstehung sehr unterschiedlich sein und betonen jeweils unterschiedliche Aspekte der Wechselwirkung. Genauere Betrachtungen über mögliche Vereinfachungen werden im folgenden Abschnitt angestellt. Die Größe und Reichweite der daraus resultierenden Kraft hängen stark von der magnetischen Konfiguration der Spitze und der Probe ab und können allgemein aus diesem Ausdruck nicht angegeben werden.

2.4.2 Kontrastmechanismen

Um aus Gl. 2.14 konkretere Angaben über den zu erwartenden Kontrast zu gewinnen, müssen einige weitere Annahmen gemacht werden. Zunächst soll davon ausgegangen werden, dass Spitze und Probe sich nicht gegenseitig beeinflussen. Diese Annahme ist nicht von vornherein berechtigt. Geeignete Kombinationen aus Filmdicke der beschichteten Spitze und Messabstand müssen für jedes System neu ermittelt werden (s. Abschnitt 2.7).

Kräfte

Eine mögliche Vereinfachung wäre die Annahme, das Streufeld der Probe sei über das Volumen der Spitzenmagnetisierung konstant. Voraussetzung hierfür wären ein kleines magnetisches Volumen der Spitze, große Domänen und große Abstände. Dann ließe sich das Integral im zweiten Ausdruck von Gl. 2.14 zusammenfassen zu:

$$E_{\text{ww}} = -\vec{m} \cdot \vec{H}_{\text{P}} \quad (2.15)$$

mit dem Dipolmoment der Spitze

$$\vec{m} = \int_{\text{Spitze}} \vec{J}_{\text{S}} dV. \quad (2.16)$$

Die Kraft in z -Richtung auf die Spitze ist gegeben durch:

$$F_z = -\frac{\partial E_{\text{ww}}}{\partial z} = m_z \frac{\partial H_{\text{P},z}}{\partial z}. \quad (2.17)$$

In diesem Falle, der auch als Dipolnäherung bezeichnet wird, wäre also der Gradient des Streufeldes der Probe für die Kraft verantwortlich [23]. Die Abstandsabhängigkeit dieser Größe wiederum wird in hohem Maße durch die Domänenverteilung bestimmt und kann nicht allgemein angegeben werden.

Berücksichtigt man, dass die typischen Spitze-Probe-Abstände nur wenige 10 nm betragen, während das magnetische Material der Spitze selbst viele μm über die Probe reicht (s. Abschnitt 2.7.1), so kann man annehmen, dass nur der spitzennahe Teil zum Kontrast beiträgt. In diesem Fall müsste man als Modell einen Dipol $\vec{m} = q(\vec{r}_1 - \vec{r}_2)$ verwenden, dessen Pole q am Spitzenende und am Cantilever in der Entfernung $L = |\vec{r}_1 - \vec{r}_2|$ voneinander sitzen. Die Kraft wäre dann:

$$F_z = qH_z, \quad (2.18)$$

also proportional zum Streufeld in der Höhe des unteren Spitzenendes. Diese sogenannte Monopolnäherung ist eher anzuwenden als Gl. 2.17, wenn die Domänenbreiten klein gegen die Ausdehnung des magnetischen Films sind [24].

Eine Sichtweise, die sehr nützlich zur Veranschaulichung der Kontrastentstehung ist, erhält man durch partielle Integration von Gl. 2.14 [6]:

$$E_{\text{ww}} = - \int_{\text{Volumen}} \rho_{\text{mag}} \Phi_{\text{S}} dV - \int_{\text{Oberfl.}} \sigma_{\text{P}} \Phi_{\text{S}} dA. \quad (2.19)$$

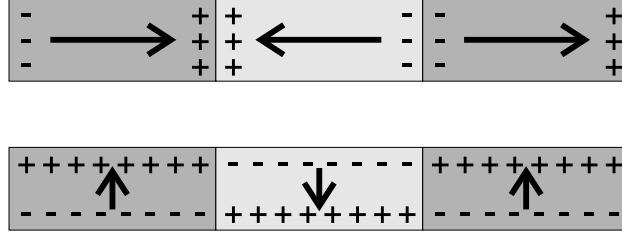


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der magnetischen Ladungen bei verschiedenen Domänenkonfigurationen eines dünnen Films. Bei einer Magnetisierung in der Ebene wird ein Kontrast an Domänenwänden erwartet, während bei senkrechter Magnetisierung die gesamte Domäne zum Kontrast beiträgt.

wobei $\rho_{\text{mag}} = -\nabla \cdot \vec{J}_{\text{P}}$ die magnetische Volumenladungsdichte, σ_{P} die magnetische Oberflächenladungsdichte der Probe und Φ_{S} das Skalarpotential des Streufeldes der Spitze bezeichnen. Volumenladungen können im Probeninneren z. B. durch Domänenwände entstehen, in denen die Magnetisierung senkrecht zur Wandebene dreht (Néel-Wände). Interessiert man sich für die Kraft $\vec{F}$, so tritt hier das Streufeld $\vec{H}_{\text{S}}$ der Spitze auf:

$$\vec{F} = -\nabla E_{\text{ww}} = \int_{\text{Volumen}} \rho_{\text{mag}} \vec{H}_{\text{S}} dV + \int_{\text{Oberfl.}} \sigma_{\text{P}} \vec{H}_{\text{S}} dA. \quad (2.20)$$

Aus dieser Darstellung wird deutlich, dass die magnetische Ladungsverteilung der Probe mit dem Streufeld der Spitze abgetastet wird. Diese Sichtweise wurde zuerst von Wright und Hill [25] zur Berechnung einer Transferfunktion der Abbildung mittels Fourieranalyse verwendet und soll auch später in dieser Arbeit eingesetzt werden. Damit kommt der Form des Streufeldes entscheidende Bedeutung zu. Je besser es gelingt, das Streufeld zu konzentrieren, sei es durch geringen Spitze-Probe-Abstand oder durch geeignete Form des magnetischen Materials, desto höher ist die erzielbare Auflösung. Die Verteilung der magnetischen Ladungen bei unterschiedlichen Domänenkonfigurationen eines dünnen Films ist in Abb. 2.4 dargestellt. Bei einer Magnetisierung in der Ebene ist das Auftreten von magnetischen Ladungen deutlich reduziert gegenüber dem Fall einer senkrechten Ausrichtung. Der Kontrast ist maximal, wenn die Oberflächenladungsdichte maximal ist, also die Magnetisierung senkrecht zur Oberfläche steht. Dann trägt die gesamte Domäne zum Kontrast bei, während von in der Ebene magnetisierten Filmen nur ein Kontrast an Domänenwänden zu erwarten ist.

Messgrößen

In Abschnitt 2.3.2 wurde die Frequenzmodulationstechnik beschrieben, bei der der Cantilever eine selbstangeregte Schwingung ausführt. Fernab der Probe schwingt er mit seiner Eigenfrequenz f_0 , die sich ergibt aus der Federkonstante c_z des Cantilevers, die vorwiegend durch seine Geometrie bestimmt wird, und einer effektiven Masse m_{eff} :

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} \sqrt{\frac{c_z}{m_{\text{eff}}}}. \quad (2.21)$$

Eine konstante Kraft bewirkt zwar eine konstante Verbiegung des Cantilevers, ändert jedoch nicht dessen Schwingungsfrequenz. Dies geschieht erst durch eine über die Schwingungsamplitude veränderliche Kraft $\vec{F}(z)$. Ist die Veränderung klein und die Reichweite der Kraft groß gegen die Schwingungsamplitude, lässt sich die Wirkung durch eine neue effektive Federkonstante

$$c_{\text{eff}} = c_z - \frac{\partial F_z}{\partial z} \quad (2.22)$$

beschreiben, die eine Modifikation der Schwingungsfrequenz bewirkt:

$$f = \sqrt{\frac{c_z}{m_{\text{eff}}}} \left(1 - \frac{1}{c_z} \frac{\partial F_z}{\partial z} \right) \approx f_0 \left(1 - \frac{1}{2c_z} \frac{\partial F_z}{\partial z} \right). \quad (2.23)$$

In erster Näherung ist die detektierte Frequenzverschiebung

$$\Delta f = f - f_0 \approx -\frac{f_0}{2c_z} \frac{\partial F_z}{\partial z} \quad (2.24)$$

also proportional zum Kraftgradienten, gemittelt über eine Schwingungsperiode. Eine genauere Analyse der Beziehung zwischen veränderlichen Kräften und der Frequenzverschiebung findet sich in Ref. [20, 26]. Für die in der Magnetkraftmikroskopie herrschenden Verhältnisse ist diese Annahme jedoch eine hinreichende Näherung. Damit wird aus Gl. 2.20:

$$\Delta f \frac{2c_z}{f_0} \approx - \int_{\text{Volumen}} \rho_{\text{mag}} \frac{\partial H_{\text{S},z}}{\partial z} dV - \int_{\text{Oberfl.}} \sigma_{\text{P}} \frac{\partial H_{\text{S},z}}{\partial z} dA. \quad (2.25)$$

Diese Relation beschreibt den MFM-Kontrast, aufgenommen mit Frequenzmodulationstechnik bei kleinen Schwingungsamplituden, geringen Frequenzverschiebungen und vernachlässigbarer Beeinflussung der Probe.

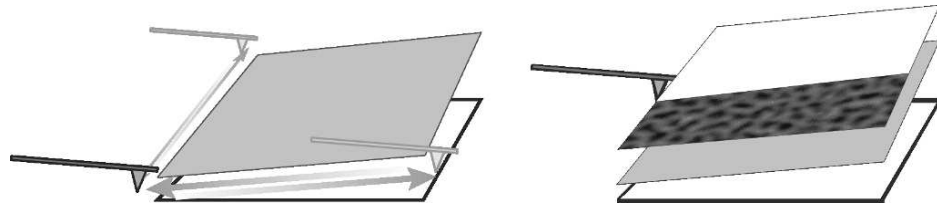


Abbildung 2.5: Plane-subtraction-mode. Nach dem Ausgleich der Probenschräge erfolgt die Bildaufnahme ungeregelt in konstantem Abstand zur Probe.

2.4.3 MFM-Modus

Wie deutlich in einem Bild magnetischer Kontrast zu erkennen ist, hängt in hohem Maße von der Wahl des Abstands ab. Bei zu geringem Abstand treten zunehmend Überlagerungen durch eine unebene Topographie auf, möglicherweise verstärkt durch eine nicht ausgeglichene Kontaktpotenzialdifferenz. Bei zu großem Abstand sinkt der magnetische Kontrast und auch die räumliche Auflösung, bedingt durch die Streufeldgeometrie der Spitze. Die Einhaltung eines konstanten Abstandes ist also unbedingt notwendig. Aufgrund des unterschiedlichen Vorzeichens der magnetischen Kräfte, je nach relativer magnetischer Konfiguration zwischen Spitze und Probe, ist ein geregelter Betrieb bei dominierender magnetischer Wechselwirkung nicht möglich. Um dennoch den gewählten Abstand möglichst genau einzuhalten, wurde in allen gezeigten MFM-Aufnahmen der *Plane-subtraction-mode* verwendet (Abb. 2.5).

Zunächst wird in geringem Abstand und im geregelten Modus die Topographie abgebildet. Einen sicheren Abstand von der Probe, der eine Beschädigung der beschichteten Spitze vermeidet, kann man stabilisieren, indem man eine Bias-Spannung von wenigen Volt anlegt und damit eine zusätzliche attraktive elektrostatische Wechselwirkung einführt. Damit lässt sich bei gleicher Frequenzverschiebung ein größerer Abstand realisieren, während gleichzeitig der Einfluss der Topographie gegenüber dem magnetischen Signal verstärkt wird. Die so ermittelte Probenschräge wird in eine Spannung umgewandelt und als (x, y) -abhängiger Offset auf die z -Elektrode des Scanners gegeben. Dann wird eine Höhe h von typischerweise 20-30 nm eingestellt, in der ungeregelt gerastert und dabei die Frequenzverschiebung aufgezeichnet wird. Diese Frequenzverschiebung ist, wie oben beschrieben, näherungsweise gegeben durch den Kraftgradienten, der in dieser Höhe auf die Spitze wirkt. Dieses Verfahren ist jedoch nur geeignet für Proben, deren Rauigkeit im Bereich weniger nm liegt, also gering gegenüber dem eingestellten Abstand ist. Mit diesem ungeregelten Betrieb lassen sich schnellere Bildaufnahmezeiten erzielen als mit aktiver Regelung, die bei hoher Verstärkung und Probenunebenheiten zu Instabilitäten neigt.

2.5 Tieftemperatur-Rasterkraftmikroskope

Schon bald nach ihrem ersten Betrieb gab es erfolgreiche Versuche, Rasterkraftmikroskope bei tiefen Temperaturen zu betreiben, wie sie durch Kühlung mit flüssigem Stickstoff oder Helium zu erreichen sind. Eine Möglichkeit ist die Ankopplung der Probe an eine Kältequelle mit Hilfe eines Kühlfingers. Solche Systeme wurden im Hochvakuum [27, 28] und im Ultrahochvakuum (UHV) betrieben [29, 30]. Dieser Aufbau ermöglicht relativ freien Zugang zum Mikroskop, um die Probe oder die Spitze zu wechseln und die Signaldetektion zu justieren.

Ein erheblicher Nachteil der Kühlfinger-Ankopplung ist die stark inhomogene Temperaturverteilung innerhalb des Mikroskops. Um aber die verringerte thermische Energie des Federbalkens und die erhöhte Stabilität bei tiefen Temperaturen ausnutzen zu können, muss das gesamte Mikroskop in eine kalte Umgebung gebracht, also ein Badkryostat verwendet werden [31–45]. Verwendet man flüssiges Helium als Kühlmittel (Siedepunkt 4,2 K bei Normaldruck), kann auch ein supraleitender Magnet für die Erzeugung hoher Magnetfelder integriert werden [38, 41–44]. Einige dieser Instrumente sind bereits als Magnetkraftmikroskope verwendet worden [33–35, 41, 43, 44].

Um ein Rasterkraftmikroskop in einer UHV-Umgebung bei tiefen Temperaturen zu betreiben, müssen erhebliche Voraussetzungen erfüllt werden. Das System muss ausheizbar sein, die verwendeten Materialien müssen einen ausreichend niedrigen Dampfdruck besitzen, und ihre thermischen Ausdehnungskoeffizienten müssen aufeinander abgestimmt sein. Die Materialauswahl wird durch diese Anforderungen auf wenige Möglichkeiten reduziert. Bisher konnten solche Systeme nur von wenigen Gruppen realisiert werden [32, 37, 41, 45]. Dieses Design unter Verwendung eines Badkryostaten schafft extrem stabile und rauscharme Abbildungsbedingungen, die die Voraussetzung für verschiedene Untersuchungen mit wirklicher atomarer Auflösung waren, wie sie auf Indiumarsenid [46], Graphit [47], Xenon [48], Nickeloxid [49] und Silizium [50, 51] erzielt werden konnte.

Das bislang einzige Gerät, das über eine Kombination aus UHV, tiefen Temperaturen, *in-situ*-Präparation und einen supraleitenden Magneten verfügt, wird an der Universität Basel betrieben [41]. Es besitzt einen Badkryostat, der unter der Ebene des Probentransfers liegt. Um die Probe oder die Spitze auszuwechseln, muss das gesamte Mikroskop von seiner thermischen Ankopplung gelöst und in die Transferebene hinauf gezogen werden. Entsprechend lange dauert das Abkühlen auf Messtemperatur.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein für Magnetkraftmikroskopie optimiertes Mikroskop in ein UHV-Badkryostat-System integriert. Es zeichnet sich durch einen großen Scanbereich, einen modularen Aufbau, einen *xy*-

Verschiebetisch und interferometrische Detektion der Cantilever-Auslenkung aus. Das Instrument befindet sich in einem über der Transferebene des UHV-Systems montierten Badkryostaten mit supraleitendem Split-Coil-Magneten. Dieser Aufbau ermöglicht eine Positionierung des Mikroskops in der Transferebene und einfachen seitlichen Zugang mit Hilfe einer mechanischen Hand für *in-situ*-Proben- und Spitzenwechsel. Dabei bleibt das Mikroskop mit seiner thermischen Ankopplung verbunden. Nach dem Transfer kann der Zugang durch zwei Blenden verschlossen werden. Das thermische Gleichgewicht wird innerhalb einer Stunde wieder erreicht und ermöglicht so einen schnellen und sicheren Betrieb.

2.6 Instrumenteller Aufbau

2.6.1 Vakuumsystem

Um saubere Oberflächen mit wohldefinierten Spitzen zu untersuchen, ist es erforderlich, die Möglichkeit zur *in-situ*-Präparation wie Sputtern, Heizen, Bedampfen und Spalten zu besitzen. Deshalb ist das Mikroskop Teil eines UHV-Systems, bestehend aus drei Kammern. Die Kryostatkammer mit dem supraleitenden Magneten und dem Mikroskop wird in den folgenden Abschnitten beschrieben. Die Präparation der Spitzen und Proben erfolgt in der Präparationskammer [52], die ausgestattet ist mit einer Elektronenstoßheizung, einer Sputtergun mit differentielltem Pumpanschluss, einem Eisenverdampfer und einer Widerstandsheizung. In der Analysekammer [52] befindet sich eine Einheit zur niederenergetischen Elektronenbeugung (LEED) und zur Auger-Elektronen-Spektroskopie. Zum Einbringen von Spitzen und Proben dient eine Schleuse, die mit der Präparationskammer verbunden werden kann. Die Übergabe zwischen den verschiedenen Kammern wird durch magnetische Dreh-Schiebe-Manipulatoren mit senkrechter Übergabe erreicht. Die Probenhalter können in der Präparations- und Analysekammer mit *xyz*-Manipulatoren positioniert werden. Insbesondere kann die Orientierung der eingeschleusten Spitzen relativ zur Sputtergun und zum Verdampfer präzise eingestellt werden.

Um Drücke von besser als 10^{-8} Pa zu erreichen, wird das UHV-System für drei Tage bei 120°C ausgeheizt, während der Magnet auf einer Temperatur von unter 100°C gehalten werden muss. Zum Ausheizen wird die Anlage von drei Turbopumpen [53] evakuiert, je eine für die Kryo-, die Präparationskammer und die Schleuse. Unter UHV-Bedingungen wird jede Kammer mit einer Ionengetterpumpe [54] und einer Titansublimationspumpe [55] betrieben.

Für eine ausreichende Schwingungsisolation des Mikroskops vom Rest des

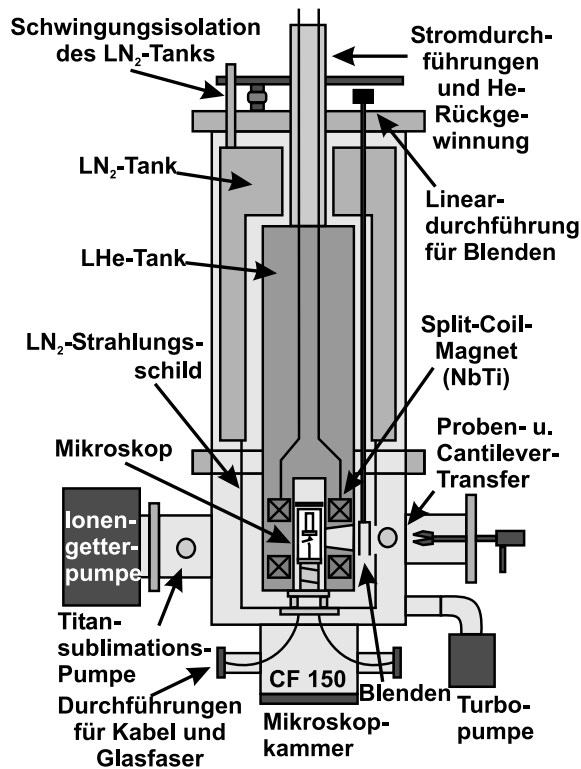


Abbildung 2.6: Querschnitt durch den Magnetkryostaten. Das Mikroskop wird zusammen mit der Mikroskopkammer, die die elektrischen und faseroptischen Durchführungen enthält, von unten eingesetzt.

Gebäudes ist das gesamte UHV-System auf pneumatischen Dämpfungsfüßen montiert, die wiederum auf einem separaten Fundament stehen. Während der Messungen werden alle mechanischen Pumpen abgeschaltet, und der Experimentator verbleibt in einem benachbarten Raum, wo sich auch die Datenaufnahmeelektronik befindet. Aufgrund des kompakten Mikroskop-Designs ist eine weitere interne Dämpfung innerhalb des Kryostaten nicht erforderlich.

2.6.2 Magnetkryostat

Das Design des Magnetkryostaten wird bestimmt durch die Forderung, ein hohes Magnetfeld zu produzieren in Verbindung mit einem schnellen und einfachen Zugang zum Mikroskop. Das ist am ehesten gewährleistet, wenn sich das Mikroskop in der Transferebene des Vakuumsystems befindet. Deshalb wurde ein Helium-Badkryostat mit supraleitendem Split-Coil-Magneten und Stickstoff-Strahlungsschild verwendet, dessen Tanks über der Transferebene

angeordnet sind. Das Mikroskop befindet sich im Zentrum des Magneten.

Ein Querschnitt der Kryostatkammer ist in Abb. 2.6 dargestellt. Der Magnetkryostat [56] wird durch einen DN-COF-450-Flansch mit der darunter liegenden Kryostatkammer [55] verbunden. Eine separate Mikroskopkammer mit allen notwendigen Durchführungen für den Betrieb des Mikroskops hängt darunter an einem DN-CF-250-Flansch. Wenn die Blenden geöffnet sind, kann das Mikroskop durch Fensterflansche unter verschiedenen Winkeln eingesehen werden, um die Grobannäherung sowie den Austausch von Probe und Spitze mit Hilfe einer mechanischen Hand zu ermöglichen.

Der Kryostat besteht aus zwei Tanks für das flüssige Kühlmittel. Der äußere Tank dient als Strahlungsschild und kann mit bis zu 35.5 ℓ flüssigem Stickstoff befüllt werden. Er ist über Auflageflächen aus Viton und Wellenbälgen mechanisch von der Vakuumkammer entkoppelt. Eine Pumpleitung kann angeschlossen werden, um den Stickstoff zu verfestigen und damit Schwingungen durch siedendes Kühlmittel zu verhindern.

Der innere Tank enthält den Magneten und kann mit bis zu 33.5 ℓ flüssigem Helium gefüllt werden. Damit wird eine Standzeit von 48 h erreicht. Da der Magnet für dessen Betrieb vollständig von flüssigem Helium umgeben sein muss, steht ein Magnetfeld nur für etwa 32 h zur Verfügung. Die Stromdurchführungen für den Magneten, die mit bis zu 100 A belastet werden können, verlaufen durch den Abgasstutzen und werden so direkt von dem verdampfenden Helium gekühlt. Wird der Magnet bei konstantem Feld betrieben (*persistent mode*), können sie innerhalb des Tanks unterbrochen und zurückgezogen werden, um den Abdampf zu verringern. Zwei Widerstandsheizungen mit 50 W Leistung und je einem PT-100-Temperatursensor sind auf dem Tankboden montiert. Damit kann nach dem Vorkühlen mit flüssigem Stickstoff und vor dem Befüllen mit Helium restliches Kühlmittel verdampft werden. Zudem kann das Ausheizen unterstützt werden, um den Temperaturanstieg im Magneten zu erhöhen. Auch temperaturabhängige Messungen sind bis zu einem gewissen Grad möglich, da der Magnet über eine große thermische Masse verfügt und damit eine hinreichende Temperaturstabilität gewährleistet ist. Zudem kann durch Öffnen der Blenden, während noch Kühlmittel im Tank ist, die Mikroskoptemperatur stufenlos zwischen 5.2 K und 35 K eingestellt und stabil gehalten werden. Zwei zusätzliche PT-100-Sensoren sind an der Seitenfläche des Magneten angebracht, um die Temperatur während des Ausheizens und Einkühlens zu kontrollieren.

Der Magnet [57] besteht aus zwei übereinander liegenden Spulen mit einer zentralen Bohrung von 60 mm Durchmesser, die das Mikroskop aufnimmt. Die supraleitenden Niob-Titan-Spulen produzieren ein senkrechtes Feld (parallel zur Probennormalen) von bis zu 5 T. Die Homogenität des Feldes ist auf besser als 5×10^{-3} innerhalb eines Durchmessers von 10 mm am Pro-

benort spezifiziert. Mit der momentan verwendeten Kontrolleinheit können langsame Feldveränderungen mit Raten bis hinunter zu 0.01 mT/s programmiert werden, die bis zu einem gewissen Grade automatisierte feldabhängige Messungen ermöglichen.

Um Spitzen und Proben zu wechseln, ohne dabei das Mikroskop zu bewegen, ist ein seitlicher Zugang durch den Stickstoff-Strahlungsschild und den Heliumtank zum Mikroskop in der Mitte des Magneten notwendig, der durch eine Aussparung von 80° und 40 mm Höhe zwischen den Magnetspulen gewährleistet ist. Dieser Zugang kann durch zwei Blenden verschlossen werden, von denen die innere an den Heliumtank und die äußere an den Stickstofftank angekoppelt ist. Beide Blenden sind goldbeschichtet, um die Wärmestrahlung zu verringern, und können gleichzeitig mittels einer Lineardurchführung von der Oberseite des Kryostaten aus bedient werden.

2.6.3 Thermische Ankopplung

Um eine möglichst tiefe Temperatur und kurze Einkühlzeiten zu erzielen, muss die thermische Leitfähigkeit vom Mikroskop zum Kühlmittel maximiert und die thermische Belastung von Raumtemperatur aus minimiert werden. Dabei muss sowohl Wärmestrahlung als auch Wärmeleitung durch die elektrischen Verbindungen und die Presskontakte der Ankopplung des Mikroskops berücksichtigt werden [58].

Abb. 2.7 zeigt ein Foto des Mikroskops und seiner thermischen Ankopplung. Im unteren Teil ist die Mikroskopkammer zu sehen, die die Flansche für die elektrischen und faseroptischen Durchführungen enthält. Die Kupfer-Bauteile werden mit dem Stickstoff-Strahlungsschild bzw. mit dem Heliumtankboden verbunden (s. u.). Bisher sind keine UHV-kompatiblen Durchführungen für Glasfasern erhältlich. Deshalb muss der gesamte Aufbau von unten in die Bohrung des Magneten eingesetzt werden. Während des Einbaus ist die Mikroskopkammer auf einer kardanischen Aufhängung montiert, die es ermöglicht, das Mikroskop sehr genau und ohne mechanische Belastung relativ zur Magnetbohrung auszurichten. Diese Prozedur ist notwendig, da der Mikroskopdurchmesser mit 58 mm nur 2 mm geringer ist als der Freiraum innerhalb des Magneten. Nach dem Einbau werden alle Schrauben und Gewindestangen, die die Kupferteile untereinander verbinden, durch den CF-150-Flansch am Boden der Mikroskopkammer (Abb. 2.6) entfernt.

Das Mikroskop selbst ist an einen Zylinder mit kreisförmiger Grundplatte aus sauerstofffreiem, hochleitfähigem Kupfer (OFHC: *oxygen-free high-conductivity*) geschraubt. Die Grundplatte wiederum wird mit dem Heliumtankboden verschraubt. Eine zweite Kupferplatte wird mit dem Boden des Stickstoff-Strahlungsschildes verbunden. Um die Belastbarkeit der Kupferge-

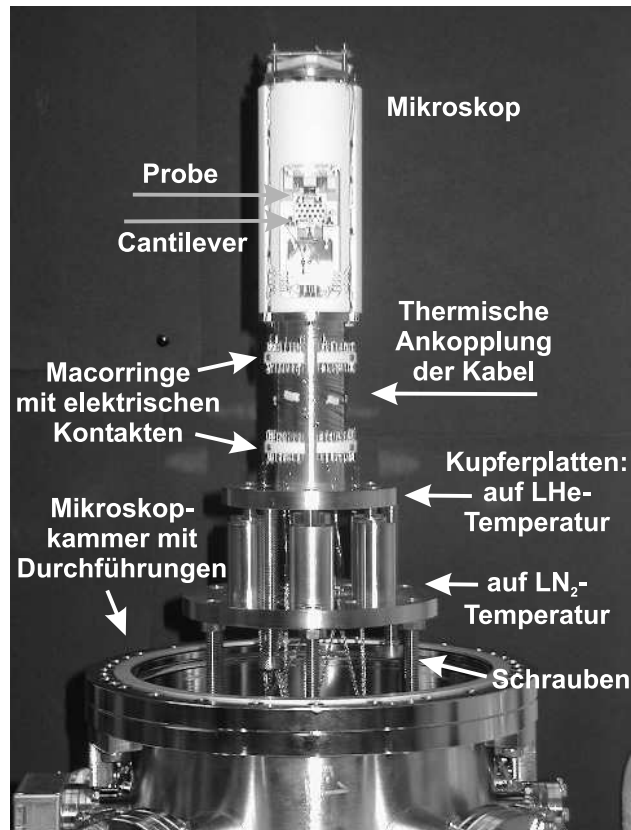


Abbildung 2.7: Thermische Ankopplung des Mikroskops. Während des Ein- und Ausbaus sind beide Kupferplatten mit der Mikroskopkammer über Gewindestangen verbunden, die nach dem Einbau entfernt werden.

winde zu erhöhen, wurden diese mit Edelstahleinsätzen (Helicoils) versehen. Zur Verbesserung der thermischen Leitfähigkeit der Presskontakte wurden alle Kupferteile vergoldet [59, 60]. Darüber hinaus verhindert die Goldbeschichtung eine frühzeitige Oxidation und verringert die Wärmestrahlung.

Der Kupferzylinder dient auch als thermische Ankopplung der elektrischen Zuleitungen [61] mittels 10 mm langer Klebestellen aus einer UHV-tauglichen Epoxidverbindung [62]. Oberhalb und unterhalb befinden sich zwei Macorringe mit Steckverbindungen. So ist es möglich, das Mikroskop von dem Kupferzylinder zu lösen oder die Kabel zu den UHV-Durchführungen auszuwechseln, ohne die thermische Ankopplung der Drähte zu zerstören. Eine weitere Ankopplung an Stickstoff-Temperatur ist nicht sinnvoll wegen des geringen Abstandes zum Heliumtankboden. Maßgeblich hierfür sind die Wärmeleitungsintegrale k zwischen Raumtemperatur, 77 K und 4.2 K [58]

und die Kabellängen l zwischen diesen Punkten.³ Die Wärmeleitung W ergibt sich dann aus $W = kA/l$ mit dem gesamten Kabelquerschnitt A zu maximal 10 mW.

Alle elektrischen Verbindungen von Raumtemperatur zu Teilen auf Heliumtemperatur bestehen aus Manganin (Durchmesser 0.1 mm), das wegen seiner geringen Wärmeleitfähigkeit geeigneter ist als Kupfer. Zusammengehörige Kabel wie für die Spannung zwischen Spitze und Probe sind verdreht. Zum Schutz und zur elektrischen Schirmung verlaufen alle Kabel zwischen den Kupferplatten und den UHV-Durchführungen in Kupferberyllium-Netzen. Die Glasfaser zur Detektion der Cantilever-Auslenkung wird durch die Mitte des Mikroskops und des Kupferzylinders geführt. Sie endet außerhalb der Kammer, nachdem sie eine kleine Flanschbohrung passiert hat, in die sie mit UHV-tauglichem Epoxidharz [62] eingeklebt wurde.

Mit Helium-Kühlung und geschlossenen Blenden wird eine Endtemperatur von 5.2 K erreicht. Die Hauptwärmequellen sind die nahezu 50 Kabel, die für den Betrieb des Mikroskops notwendig sind, und Wärmestrahlung von den Blenden, die zwar über Kupferlitzen an den jeweiligen Tank angekoppelt sind, aber nicht die gleiche Temperatur haben wie das Kühlmittel. Mit offenen Blenden während des Proben- oder Spitzenwechsels bleibt die Mikroskoptemperatur normalerweise unter 25 K und kehrt nach etwa einer Stunde ins thermische Gleichgewicht zurück. Das Einkühlen von Raumtemperatur auf 78 K braucht 12 Stunden, von 78 K auf 5.2 K 4 Stunden wegen der großen thermischen Masse des Magneten.

2.6.4 Mikroskop

Der Einsatz eines Mikroskops im UHV, bei tiefen Temperaturen und in hohen Magnetfeldern erfordert eine sorgfältige Auswahl der Materialien. Für die UHV-Tauglichkeit ist ein niedriger Dampfdruck und Ausheizbarkeit bis 150°C notwendig. Für tiefe Temperaturen ist eine möglichst gute Übereinstimmung der thermischen Ausdehnungskoeffizienten entscheidend, um mechanische Belastungen und Dejustagen beim Abkühlen zu vermeiden. Schließlich dürfen bei dem Einsatz in hohen Magnetfeldern und in einem Magnetkraftmikroskop nur nichtmagnetische Komponenten verwendet werden. Diese Eigenschaften werden bestmöglich von der verwendeten Kombination Blei-Zirkon-Titanat (PZT) für die piezoelektrischen Stallelemente, Macor [63] für den Mikroskopkörper und Titan für die Metallteile erfüllt [64].

Ein schematischer Querschnitt durch das Mikroskop ist in Abb. 2.8 ge-

³Wärmeleitungsintegrale für Konstantan (ähnlich Manganin) und Kabellängen: 4460 W/m, 25 cm (300-77 K), 1022 W/m, 5 cm (77-4.2 K), 5328 W/m, 30 cm (300-4.2 K).

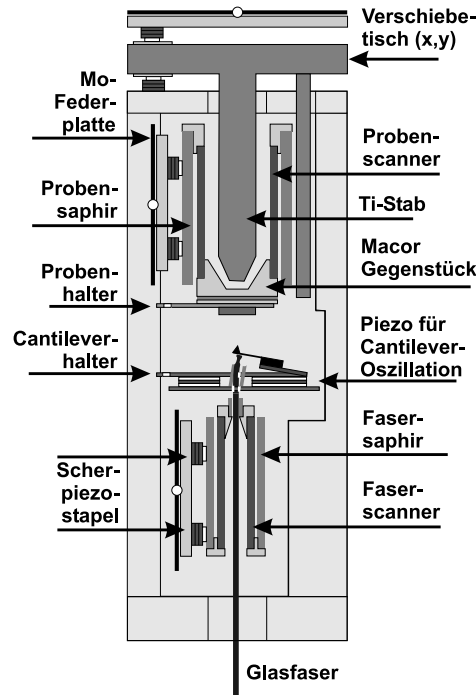


Abbildung 2.8: Querschnitt durch das Mikroskop. Im oberen Teil ist der Verschiebetisch mit der Grobannäherung der Probe zu sehen. Der Cantilever im Mittelteil ist auf einem Piezoplättchen zur externen Anregung montiert. Der untere Teil beherbergt die Glasfaser zur Detektion der Cantilever-Auslenkung.

zeigt. Diese Bauweise wurde in mittlerweile drei Geräten erfolgreich verwendet. Detaillierte Beschreibungen des Mikroskopaufbaus finden sich in verschiedenen in dieser Arbeitsgruppe angefertigten Arbeiten [65–67] und Veröffentlichungen [37]. Konkret mit dem hier verwendeten Instrument beschäftigen sich die Referenzen [68, 69]. Deshalb soll hier nur kurz auf die Besonderheiten dieses Mikroskops eingegangen werden. Es verfügt über einen $7.5 \times 7.5 \mu\text{m}^2$ großen Scanbereich bei 5.2 K und ± 130 V Elektroden-spannung, einen Proben- und Spitzenwechsel und einen xy -Verschiebetisch mit $4 \times 4 \text{ mm}^2$ Stellweg. Die Temperatur kann mit Hilfe eines Cernox-Widerstandssensors am Macor-Körper auf Höhe des Cantilevers gemessen werden. Der Fehler durch ein angelegtes Magnetfeld beträgt weniger als 0.2%. Drei Schrittmotoren auf der Basis des Walker-Prinzips [70, 71] sorgen für die Annäherung der Glasfaser und der Probe an den Cantilever und für die xy -Verschiebung.

Der untere Teil des Mikroskops beherbergt den Mechanismus zur Detektion der Cantilever-Auslenkung. Die hier verwendete interferometrische Detektion [72] erlaubt ein kompaktes, stabiles Design und ist gleichzeitig eine

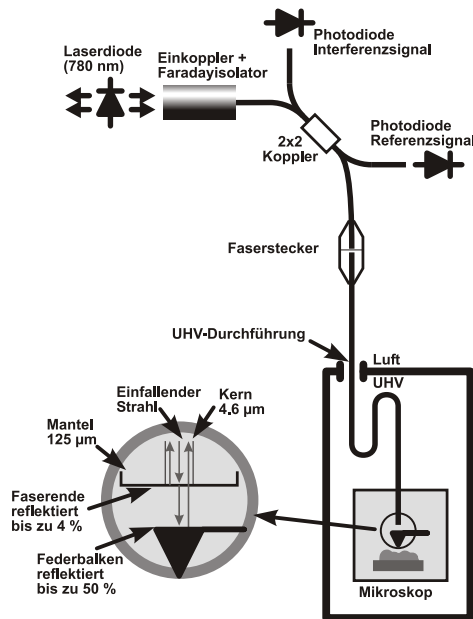


Abbildung 2.9: Signalweg eines Rasterkraftmikroskops mit interferometrischer Detektion. Der Faraday-Isolator verhindert Rückreflexionen, die zu störenden Intensitätsschwankungen der Laserdiode führen können.

sehr sensitive Methode. Der Signalweg der interferometrischen Detektion ist in Abb. 2.9 dargestellt. Von einer Laserdiode erzeugtes Licht der Wellenlänge $\lambda = 781 \text{ nm}$ wird in eine Glasfaser eingekoppelt, die bis ins Mikroskop vor die Rückseite des Cantilevers geführt wird. Das Ende der Faser, das eine ebene Spaltfläche besitzt, reflektiert einen Teil des auftreffenden Lichtes zurück, ein weiterer Teil wird am Cantilever reflektiert und interferiert mit dem ersten Anteil. Der optische Wegunterschied zwischen konstruktiver und destruktiver Interferenz beträgt $\lambda/2$, die reale Entfernungsänderung $\lambda/4$. Daraus lässt sich unmittelbar die Sensitivität des Interferometers und daraus die Schwingungsamplitude des Cantilevers errechnen.

2.7 Magnetische Dünnfilmspitzen

Die Herstellung geeigneter Sensoren für die Magnetkraftmikroskopie wird bestimmt durch den Kompromiss zwischen möglichst großem Signal, hoher Ortsauflösung und möglichst geringer Beeinflussung der Probe durch das Streufeld der Spitze. Der bei der erstmaligen Anwendung verfolgte Ansatz, eine Spitze aus ferromagnetischem Volumenmaterial (Eisen) zu verwenden [15], erwies sich als ungünstig. Wadas und Hug [73] berechneten die

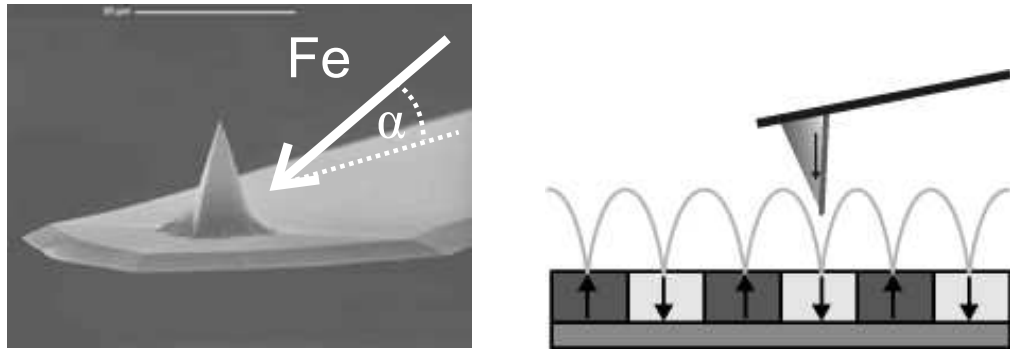


Abbildung 2.10: Elektronenmikroskopische Aufnahme eines Cantilevers und geometrische Verhältnisse bei der Abbildung. Nach dem Sputtern erfolgte die Bedampfung so, dass nur eine Seitenfläche der Pyramide beschichtet wurde. Der abbildende Film steht nahezu senkrecht auf der Probenoberfläche.

Streufelder verschiedener Spitzenkonfigurationen analytisch und fanden, dass gegenüber einer konusförmigen ferromagnetischen Spitze ein dünner ferromagnetischer Film auf einer gleich geformten unmagnetischen Spitze vorteilhaft wäre. Die Dünnsfilmspitzen produzierten im selben Abstand ein deutlich geringeres Streufeld, das lateral auch schneller abfällt, was gleichzusetzen ist mit einer erhöhten Ortsauflösung. In diesem Abschnitt sollen die Präparation und die Abbildungseigenschaften magnetischer Dünnsfilmspitzen dargestellt sowie Möglichkeiten der Auswertung der so gewonnenen Domänenbilder besprochen werden.

2.7.1 Präparation

In dieser Arbeit wurden ausschließlich kommerziell erhältliche Cantilever aus dotiertem Silizium mit Resonanzfrequenzen von 183-203 kHz und Kraftkonstanten von 40-57 N/m verwendet. Am Ende des Cantilevers befindet sich eine pyramidenförmige Spitze mit einer Höhe von 10-15 μm und einem Öffnungswinkel von 40-50°, in Cantileverachse gesehen, und 50-60° quer dazu. Der Spitzenradius ist kleiner als 15 nm, und der Öffnungswinkel auf den letzten 200 nm ist kleiner als 20° [74]. Nach dem Einschleusen ins UHV-System wurden die Cantilever 40 min unter verschiedenen Winkeln mit Argon gesputtert, um die natürliche Oxidschicht von allen Seitenflächen der Pyramide zu entfernen. Anschließend wurden sie *in situ* mit Eisen bedampft, so dass nur die dem Cantilever zugewandte Seite der Pyramide beschichtet wurde (Abb. 2.10). Der magnetische Film sollte also in etwa die Form eines gleichschenkligen Dreiecks mit 40-50° Öffnungswinkel zur Probe hin haben. Da der Cantilever mit 15° Neigung in das Mikroskop eingesetzt wird, steht der

aufgedampfte Film nahezu senkrecht auf der Probenebene. Der Winkel α zwischen Cantileverachse und Bedampfungsrichtung wurde systematisch variiert und führte zu unterschiedlichen Eigenschaften in der Abbildung und dem Schaltverhalten der Spitze. Die Filme wurden nach dem Bedampfen mit einem in der Kammer aufgeklebten Permanentmagneten magnetisiert. Bei einem stabilen Film reicht jedoch die Formanisotropie zur Ausrichtung aus.

2.7.2 Abbildungseigenschaften

Das Ziel eines optimierten Beschichtungsverfahrens der Spitze ist es, ein stabiles, reproduzierbares MFM-Signal bei hoher Auflösung und niedrigem Streufeld zu erhalten, ohne die Probe dabei zu verändern. Der Sinn der einseitigen Bedampfung war, die Richtung der Magnetisierung am Spitzenende möglichst definiert und stabil zu halten. Die Formanisotropie des dreieckigen Films sollte so groß sein, dass eine Magnetisierung in Spitzenachse gewährleistet ist. Allerdings besteht die Möglichkeit, dass durch das abgerundete oder durch den Sputter-Prozess irregulär geformte Ende der Spitze der Film dort deformiert oder unterbrochen ist. Dann kann das äußere Ende, das einen großen Beitrag zur Abbildung leistet, in der Magnetisierungsrichtung mehr oder weniger frei beweglich sein oder mit der Spitzenachse einen Winkel bilden.

Als ein erster Anhaltspunkt für die Qualität des Abbildungsverhaltens kann das Schalten der Spitze in einem äußeren Feld dienen, das entgegengesetzt zur ursprünglichen Spitzenmagnetisierung angelegt wurde. Man erwartet, dass die Spitze im Idealfall in einem einzigen Schaltvorgang ihre Magnetisierung um 180° in den Zustand dreht, den ihre Formanisotropie vorgibt. Der Bildkontrast sollte sich dabei invertieren. Abb. 2.11 zeigt zwei Bilder eines Manganperowskit-Films (LSMO), aufgenommen mit Spitzen, die unter verschiedenen Winkeln mit Eisen bedampft wurden: Spitze (a) mit 3 nm unter 75° und anschließend 5 nm unter 35° zur Cantileverachse, Spitze (b) mit 5 nm unter 20° . Aufgetragen ist in der x -Richtung ein Linienscan immer derselben Linie, die wiederholt aufgenommen wurde, während das Magnetfeld kontinuierlich von Null auf 50 mT erhöht wurde. Wie in Kapitel 3 gezeigt wird, verändert sich die Domänenstruktur der Probe in diesem Feldbereich nur unwesentlich. In jedem Fall sind Kontrastveränderungen, die die gesamte Zeile betreffen, auf die Spitze zurückzuführen.

Spitze (a) zeigt mindestens drei Schaltvorgänge gleich zu Beginn der Feldrampe bis hin zu 30 mT. Schon geringe Feldveränderungen können die Magnetisierungsrichtung verändern. Zusätzlich sind Sprünge im Domänenkontrast in x -Richtung zu erkennen, ein Zeichen von gegenseitiger Beeinflussung von Spitze und Probe. An diesen Stellen wird die Magnetisierung in

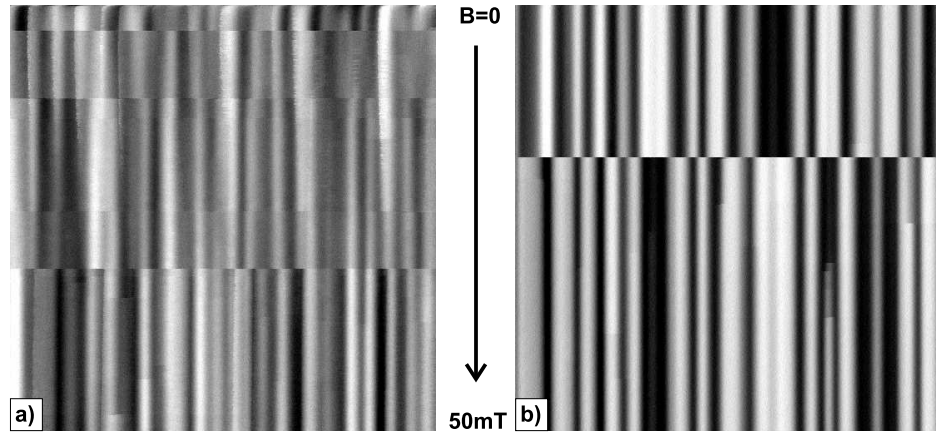


Abbildung 2.11: Schaltverhalten verschiedener Spitzen. Dargestellt sind Linienscans in x -Richtung über einem dünnen Film (LSMO) mit senkrechter Anisotropie, aufgetragen gegen das äußere Magnetfeld. Bedampfungsparameter: (a) 3 nm Fe 75° + 5 nm Fe 35° , (b) 5 nm Fe 20° . In (a) sind zahlreiche Schaltvorgänge zu erkennen, in (b) nur einer. Ein magnetfeldabhängiger Offset der Frequenzverschiebung wurde in beiden Fällen korrigiert (*line fit*).

Richtung des momentanen Streufeldes gedreht und schnappt anschließend wieder zurück, wenn die Spitze den Ort verlässt. Würde die Magnetisierung der Spitze einfach um 180° drehen, so müsste sich der Kontrast invertieren. Das ist aber an keiner Stelle der Fall. Abbildung 2.12(a) verdeutlicht die geometrischen Verhältnisse dieser Spitze. Der Grund für ihr Verhalten ist vermutlich das magnetische Material, das sich direkt am Spitzenende befindet und, der Krümmung der Spitze folgend, nicht senkrecht zur Probenoberfläche ausgerichtet ist. Dieser Teil liefert einen zusätzlichen Kontrast, der vom angelegten Feld abhängt. Die Abbildung lässt sich zwar etwas stabilisieren,

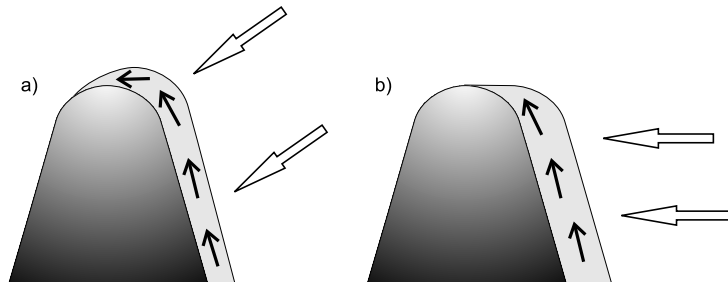


Abbildung 2.12: Filmgeometrie der Spitzen (a) und (b) nach der Bedampfung. Durch den flachen Bedampfungswinkel bei Spitze (b) werden eine Krümmung des Films und damit zusätzliche Inhomogenitäten der Magnetisierung vermieden.

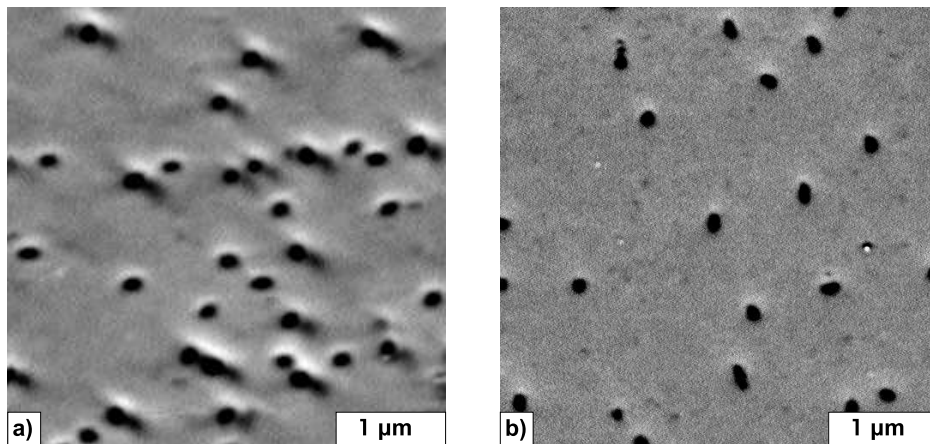


Abbildung 2.13: MFM-Bild eines Manganperowskit-Films (LSMO) bei 295 mT, aufgenommen mit den Spitzen (a) und (b) aus Abb. 2.11. Der helle Rand in (a) rührt von einer in-plane-Komponente der Spitzenmagnetisierung her.

indem ein Feld parallel zur Spitzenmagnetisierung angelegt wird, das die Magnetisierung instabiler Bereiche ausrichtet, diese Spitze ist jedoch für eine zuverlässige, reproduzierbare Abbildung ungeeignet.

Sehr viel klarer stellen sich die Verhältnisse bei Spitze (b) dar, die unter einem flacheren Winkel bedampft wurde. Obwohl ein Feld angelegt wurde, das der Spitzenmagnetisierung entgegengerichtet ist, verändert sich der Bildkontrast zunächst nicht. Erst bei einem Feld von 15 mT schaltet die Spitze, und der Kontrast invertiert. Anschließend ist die Abbildung wiederum stabil. Die Veränderungen im unteren Teil des Bildes sind auf Ummagnetisierungen in der Probe zurückzuführen. Aufgrund des sehr schrägen Bedampfungswinkels ist vermutlich das vordere Spitzenende frei von Eisen, so dass der Film insgesamt eher eine einheitliche Magnetisierung begünstigt (Abb. 2.12 b). So präparierte Spitzen zeigen diese Abbildungseigenschaften schon, wenn sie nach dem Bedampfen keinem externen Feld ausgesetzt wurden. Die Formanisotropie eines so geformten Films reicht für die Ausrichtung aus. Es wurde kein zusätzlich stabilisierender Effekt durch ein paralleles Feld gefunden.

Die Unterschiede zwischen beiden Spitzen werden auch in ihrem Abbildungsverhalten deutlich. Abb. 2.13 zeigt zwei Aufnahmen derselben Probe (LSMO) bei 295 mT nach Sättigung, einer Feldstärke, bei der sich runde, frisch nukleierte Domänen ausbilden, wie aus Bild (b) zu erkennen ist. Die zusätzlichen Strukturen in Bild (a) sind eine Folge der nicht fest und nicht senkrecht zur Oberfläche ausgerichteten Magnetisierung der Spitze. So besitzt jeder dunkle Kontrast eine helle Überhöhung am oberen Rand im Verhältnis 1:3. Die Stärke dieser Effekte hängt sehr von der Domänenstruktur und

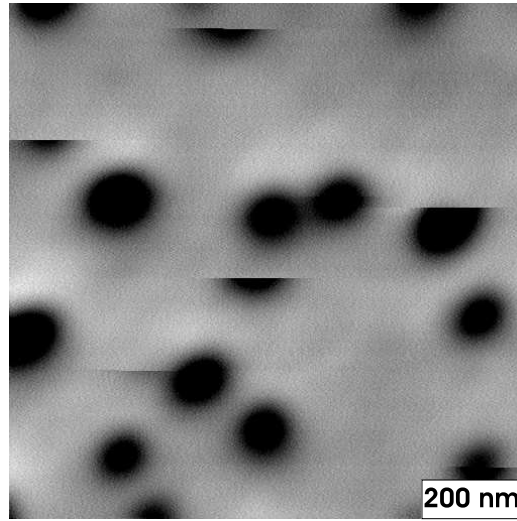


Abbildung 2.14: Spitzeninduzierte Ummagnetisierungen auf LSMO, aufgenommen bei 445 mT und steigendem Feld. Ein Großteil der Schaltprozesse findet in Gegenwart der Spitze statt. Dabei ändert sich der Kontrast von einer Bildzeile zur nächsten. Parameter: $f_0 = 200444$ Hz, $A = \pm 10$ nm, $h = 30$ nm, Scanbereich: $1\ \mu\text{m}$, Eisen-Beschichtung: > 5 nm.

dem äußeren Feld ab und kann die Deutung des Bildkontrastes erheblich erschweren. In Bild (b) ist diese Überhöhung noch sichtbar, aber auf 1:10 reduziert. Mit der beschriebenen flachen Bedampfung des Cantilevers ist es möglich, Abbildungseigenschaften wie in (b) zuverlässig zu reproduzieren.

2.7.3 Streufeld

Wie in Abschnitt 2.4.2 gezeigt wurde, kommt der Form und Stärke des Streufeldes der magnetisch beschichteten Spitze große Bedeutung zu. Die Form entscheidet über die erzielbare räumliche Auflösung, und die Stärke bestimmt den erreichbaren Kontrast, aber auch die Beeinflussung der Probe durch die Spitze und damit den minimal realisierbaren Abstand.

Gegenseitige Beeinflussung

Ein eindeutiger Hinweis auf Beeinflussungen der Probe durch ein zu großes Streufeld sind spitzeninduzierte Ummagnetisierungen. Abb. 2.14 zeigt eine solche Situation auf einem LSMO-Film, während das Feld parallel zur Spitzenmagnetisierung kontinuierlich erhöht wurde. Die abgebildeten Schaltvorgänge laufen zum großen Teil in Gegenwart der Spitze ab. Dieser Prozess ist ein Zusammenwirken des externen Feldes mit dem Streufeld der Spitze und

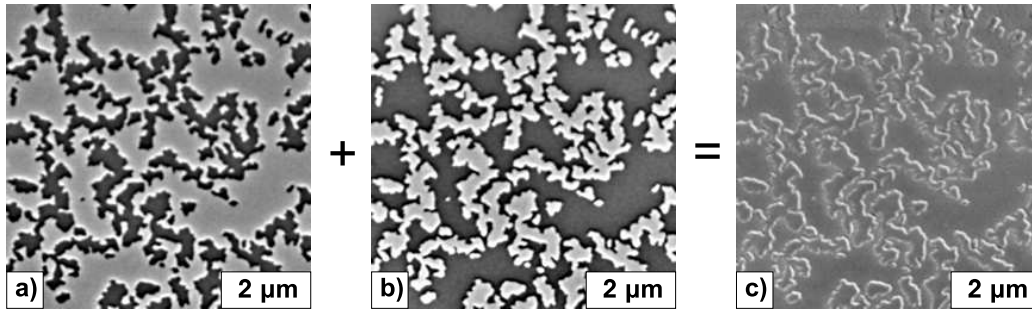


Abbildung 2.15: Suszeptibilitätskontrast: CoPt-Multilagenfilm, abgebildet im Nullfeld (a) vor und (b) nach Anlegen eines Feldes von 50 mT entgegengesetzt zur ursprünglichen Spitzenmagnetisierung. Zwischen beiden Bildern ergibt sich, abgesehen von der Invertierung, eine weitere Kontrastveränderung an den Domänenwänden.

sorgt dafür, dass die Energiebarriere zwischen beiden Magnetisierungsrichtungen durch das Streufeld zusätzlich abgesenkt und der Prozess damit bei geringerem angelegten Feld möglich wird. Dieser Effekt kann auch auftreten, wenn bei konstant gehaltenem Feld keine Beeinflussungen zu erkennen sind.

Aufschlussreich ist auch der Vergleich von identischen Domänenstrukturen, abgebildet mit derselben Spitze, aber mit beiden möglichen Magnetisierungsrichtungen. Geeignet hierzu ist ein CoPt-Multilagenfilm mit ausgeprägter senkrechter Anisotropie, nahezu rechteckiger Hysteresekurve und einem Koerzitivfeld von 129 mT [75]. Durch Anlegen eines Feldes von 50 mT wird die Domänenstruktur nicht geändert, jedoch die Magnetisierung der Spitze dreht um 180° . In Abb. 2.15 ist je ein MFM-Bild im Nullfeld vor (a) und nach (b) der Ummagnetisierung dargestellt. Wie zu erwarten war, ist der Kontrast invertiert. Addiert man beide Bilder, so müsste bei einer exakten Invertierung der Kontrast verschwinden. Tatsächlich ergibt sich aber ein Bild, in dem die Domänenwände hervorgehoben werden (c). Dies ist darauf zurückzuführen, dass die Magnetisierung der Spitze in Richtung des Streufeldes eindreht und deshalb zusätzlichen attraktiven Kontrast erzeugt, unabhängig von der relativen magnetischen Konfiguration zwischen Spitze und Probe. Dieser Effekt des Eindrehens ist an Domänenwänden verstärkt, da dort das Streufeld der Probe und die Magnetisierung der Spitze senkrecht stehen. Dieser Effekt wird auch als Suszeptibilitätskontrast bezeichnet [6].

Geometrie des Streufeldes

Um eine Abschätzung der magnetischen Konfiguration und des Streufeldes am Ende der hier verwendeten Spitzen zu gewinnen, wurde eine mikromag-

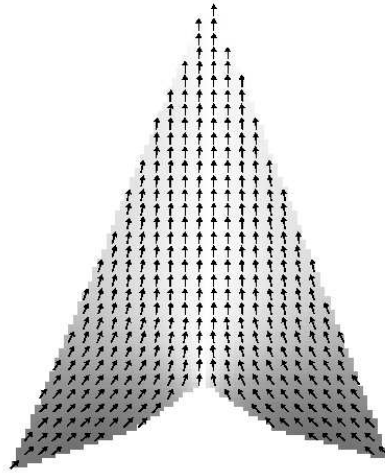


Abbildung 2.16: Berechnete Magnetisierung einer Eisenspitze. Die Form am unteren Ende entspricht der der bedampften Pyramidenfläche (s. Abb. 2.10). Wie erwartet stellt sich eine homogene Magnetisierung am Spitzenende ein.

netische Simulation durchgeführt [76]. Als Modell wurde ein 5 nm dicker, dreieckiger Eisenfilm mit einer Sättigungsmagnetisierung $J_s = 2.136$ T und einer Austauschkonstanten $A = 21 \times 10^{-12}$ J/m angenommen. Da der Film mit großer Wahrscheinlichkeit aufgrund der Oberflächenrauigkeit der Spitze nicht kristallin ist, wurde die Kristallanisotropie gleich Null gesetzt. Aufgrund der benötigten Zellengröße von 1 nm konnten nur die letzten 100 nm der Spitze berücksichtigt werden. Die Form wurde den wahren Verhältnissen an der Seitenfläche einer kommerziell hergestellten Siliziumspitze nachempfunden (s. Abb. 2.10).

Abbildung 2.16 zeigt die berechnete Magnetisierung der Spitze. Sie ist wie erwartet homogen am Spitzenende, bestimmt durch die zulaufende Form des Films. Auch während des Schaltvorgangs, der ebenfalls simuliert wurde, dreht die Magnetisierung dort als Ganzes und produziert so den in Abb. 2.11 beobachteten scharfen Übergang des Kontrastes. Aus dieser Konfiguration konnte auch das abstandsabhängige Streufeld bestimmt werden (Abb. 2.17). Es zeigt Maximalwerte von einigen hundert mT in wenigen nm Entfernung, die aber in üblicher Scanentfernung von 20-30 nm auf weniger als 30 mT abfallen. Für einen typischen Abstand von 25 nm ist in Abb. 2.18 der laterale Verlauf der senkrechten Streufeldkomponente dargestellt. Sie erreicht ihren Maximalwert von 17 mT direkt unter der Spitze. Der Bereich, in dem das Feld bis auf die Hälfte abgefallen ist (FWHM), hat nach dieser Berechnung einen Durchmesser von 63 nm.

Da aber, wie in Abschnitt 2.4.2 dargelegt, nicht das Streufeld selbst, son-

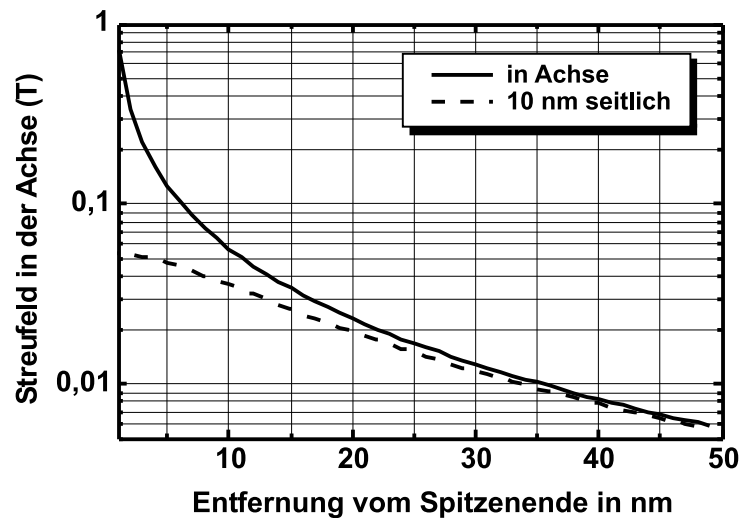


Abbildung 2.17: Berechnetes Streufeld einer mit 5 nm Eisen beschichteten Spitze. Dargestellt ist die Komponente in Richtung der Spitzenachse als Funktion des vertikalen Abstandes in dieser Achse und 10 nm seitlich. Für die typischen Abstände von 20-30 nm liegt das maximale Streufeld unterhalb von 30 mT.

dern der Gradient des Streufeldes für den Kontrast verantwortlich ist, müssen noch weitere Betrachtungen angestellt werden. Typischerweise wurde bei einem mittleren Abstand von 25 nm eine Schwingungsamplitude des Cantilevers von $A = \pm 5$ nm eingestellt. Über diesen Bereich wird daher die Darstellung, wie sie sich aus Bildern der Frequenzverschiebung ergibt, gemittelt. Als Näherung kann die Differenz der Streufelder in 20 und 30 nm Entfernung dienen. Sie ist ebenfalls in Abb. 2.18 gezeigt und ist stärker um das Zentrum konzentriert (FWHM=37 nm). Sie lässt sich gut durch eine Gaußfunktion entsprechender Breite annähern. Würde also eine rein hypothetische, punktförmige isolierte Domäne mit dieser Spitze abgebildet, so würde daraus im Frequenzverschiebungssignal ein Extremum von eben dieser ausgedehnten Form. Diese Verhältnisse lassen sich nur verbessern, indem man zu geringeren Abständen übergeht, was natürlich auch begrenzt ist durch die Rauigkeit der Probe und kurzreichweitige Wechselwirkungen. Gleichzeitig müsste dazu das Streufeld des abbildenden Films reduziert werden, da es bei geringen Abständen stark ansteigt.

2.7.4 Auswertung von Domänengrößen und Kontrasten

Neben der nicht genau bekannten Geometrie des Films auf der Spitze begrenzt die oben geschilderte Streufeldform die Möglichkeiten einer quantita-

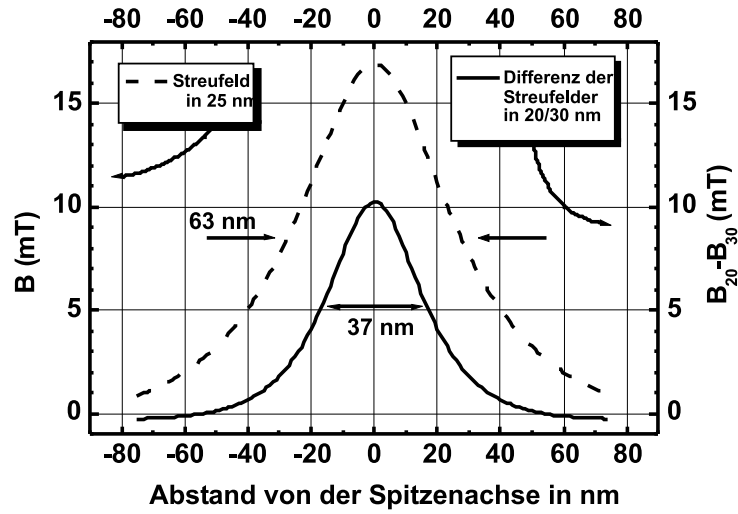


Abbildung 2.18: Lateraler Verlauf des Streufeldes senkrecht zur Probenoberfläche bei einem Abstand von 25 nm (gestrichelte Linie, linke Skala). Die durchgezogene Linie (rechte Skala) stellt die Felddifferenz zwischen den Abständen 20 und 30 nm dar, eine Näherung für den Feldgradienten.

tiven Auswertung. Dennoch können bei einfachen Strukturen einige Aussagen getroffen werden. Grundlage der folgenden Betrachtungen soll die Abbildung eines dünnen magnetischen Films und eine Kontrastentstehung nach Gl. 2.25 sein, jedoch unter Vernachlässigung des Volumenintegrals. Diese Annahme ist berechtigt, wenn der Film eine senkrechte Anisotropie besitzt und sich der größte Anteil der magnetischen Ladungen an den Filmgrenzflächen befindet (Abb. 2.4).

Periodische Strukturen

Legt man beispielsweise einen streifenförmigen Verlauf der Oberflächenladung σ der Form

$$\sigma(x) = \sigma_0 \sin\left(\pi \frac{x}{w}\right) \quad (2.26)$$

zugrunde, so kann durch Lösen der Laplace-Gleichung gezeigt werden, dass das zugehörige Skalarpotenzial sich wie

$$\Phi = \frac{\sigma_0 w}{2\pi\mu_0} \sin\left(\pi \frac{x}{w}\right) e^{-\pi \frac{z}{w}} \quad (2.27)$$

verhält [4]. Verwendet man die Monopol-Näherung für den Kontrast $F_z = qH_z$ (Gl. 2.18), so gilt für die resultierende Frequenzverschiebung mit Gl. 2.24:

$$\Delta f = \frac{\pi f_0 \sigma_0 q}{4\mu_0 w c_z} \sin\left(\pi \frac{x}{w}\right) e^{-\pi \frac{z}{w}} \propto \frac{1}{w} \sigma(x) e^{-\pi \frac{z}{w}}. \quad (2.28)$$

Die Periodizität der Struktur wird also richtig wiedergegeben, während der Kontrast mit dem Abstand und der Domänenbreite skaliert werden muss. Diese Skalierung ist jedoch nur dann anwendbar, wenn die Domänenbreite klein gegen die Spitzenhöhe, also die Länge des aufgedampften Films ist. Zudem ist es fraglich, ob die Annahme eines Monopols gerechtfertigt ist, da die Verteilung der magnetischen Oberflächenladungen auf der Spitze durchaus ausgedehnt ist auf der Skala der Domänenbreite. Je nach Domänengröße tragen also unterschiedliche Teile der Spitze zum Kontrast bei, was die Größe q des Monopols in Gl. 2.28 verändern würde.

Die Situation kann ebenso in der Sichtweise betrachtet werden, dass eine sinusförmige Oberflächenladung der Probe mit einem ausgedehnten Verlauf des Spitzenstreufeldes abgebildet wird. Der Bildkontrast ergibt sich dann durch eine Faltung von $\sigma(x)$ mit einer Gaußfunktion der Breite d :

$$g(x) = \frac{1}{d\sqrt{\pi}} e^{-\left(\frac{x}{d}\right)^2}. \quad (2.29)$$

Es kann gezeigt werden (s. Anhang), dass die Frequenzverschiebung dann mit

$$\Delta f \propto e^{-\left(\frac{\pi d}{2w}\right)^2} \sigma(x) \quad (2.30)$$

skaliert. Das Verhältnis von Domänenbreite zur Ausdehnung des abbildenden Streufeldgradienten geht also entscheidend in den Kontrast ein. Die unterschiedlichen Exponenten, die in beiden Betrachtungsweisen auftreten, zeigen nochmals die Problematik einer quantitativen Auswertung. Für die Breite der Gaußfunktion kann bei der simulierten Eisenspitze $d \approx 0.9(h + A)$ angenommen werden, wobei h die Scanhöhe im Bereich einiger 10 nm und A die Oszillationsamplitude angeben.

Da die Periodizität einer Domänenstruktur richtig wiedergegeben wird, lässt sie sich aus MFM-Daten zuverlässig bestimmen. Für irreguläre Verteilungen kann der Begriff der Domänenbreite verallgemeinert werden als das Verhältnis aus Gesamtfläche zu Domänenwandlänge. Dieses Verhältnis kann durch ein stereologisches Modell bestimmt werden [6]. Dazu werden beliebig orientierte Linien der Gesamtlänge L durch ein Bild gelegt und die Zahl n der Schnittpunkte mit den Domänenwänden bestimmt. Die verallgemeinerte Domänenbreite w berechnet sich dann aus:

$$w = \frac{2L}{\pi n}. \quad (2.31)$$

Diese Definition ist für parallele Streifen identisch mit der halben Periode der Struktur. Später in dieser Arbeit angegebene Werte für Domänenbreiten sind auf diese Weise bestimmt worden.

Isolierte Domänen

Im folgenden Kapitel wird die Auswertung von Kontrasten und Durchmessern isolierter, annähernd kreisförmiger Domänen in ansonsten homogen magnetisierter Umgebung von Bedeutung sein. Dazu kann man im einfachsten Fall den Durchmesser auf einem bestimmten Kontrastniveau bestimmen. Durch das ausgedehnte Streufeld der Spitze ist dieser Wert jedoch fehlerhaft. Bildet man beispielsweise eine gaußförmige Struktur (Durchmesser D) der Probe mit einer gaußförmigen Abbildungsfunktion (Durchmesser d) ab, so ergibt sich im Bild ein vergrößerter Durchmesser $D_{\text{img}} = \sqrt{D^2 + d^2}$ mit einem um $D/\sqrt{D^2 + d^2}$ reduzierten Kontrast (s. Anhang).

Wie sich zeigen lässt, kann man aus der zusätzlichen Berücksichtigung des Kontrastes eine bessere Abschätzung des wahren Durchmessers gewinnen. Legt man Gl. 2.25 zugrunde und beschränkt sich auf die Oberflächenladungen, so ergibt sich ein ortsabhängiger Kontrast:

$$K(x, y) = \int \sigma(x - x', y - y') g(x', y') dx' dy', \quad (2.32)$$

wobei $g(x', y')$ die Abbildungsfunktion der Spitze beschreibt. Integriert man den Kontrast nun über die interessierende isolierte Domäne

$$\begin{aligned} \int K(x, y) dx dy &= \int \int \sigma(x - x', y - y') g(x', y') dx' dy' dx dy \\ &= \int \sigma(x, y) dx dy \int g(x', y') dx' dy', \end{aligned} \quad (2.33)$$

so erhält man daraus ein Maß für die gesamte abgebildete Oberflächenladung. Dieser Wert ist unabhängig von der genauen Ausdehnung der Abbildungsfunktion, solange die Domänen im Bild nur deutlich voneinander getrennt sind. Da jedoch der absolute Wert der Abbildungsfunktion unbekannt ist, liefert die Methode nur relative Angaben und keine quantitative Auswertung der magnetischen Ladungen.

Kapitel 3

Manganperowskite

3.1 Einleitung

Die Materialklasse der Manganperowskite erregte seit den 50er Jahren mehrfach Aufmerksamkeit. Die erste Phase der Beschäftigung mit diesen gemischt valenten Systemen begann 1950 mit der Entdeckung des Ferromagnetismus in $\text{La}(\text{Ca}, \text{Sr}, \text{Ba})\text{MnO}_3$ durch Jonker und van Santen [77]. Transporteigenschaften wie der Magnetowiderstand (MR: *magnetoresistance*), der einen maximalen Effekt nahe der Curie-Temperatur aufweist, wurden 1954 von Volger an $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ untersucht [78]. In Abhängigkeit von der Zusammensetzung x und der Temperatur werden eine Vielzahl von Phasenübergängen (zwischen ferromagnetisch, antiferromagnetisch, paramagnetisch, metallisch und isolierend) beobachtet, die häufig auch simultan auftreten. Seitens der Theorie wurde zur Erklärung des Zusammenhangs zwischen magnetischen und Transporteigenschaften von Zener das Doppelaustausch-Modell (*Double-Exchange*) entwickelt [79], bei dem die magnetischen Momente des Mangan durch den Austausch von Leitungselektronen über benachbarte Sauerstoffatome miteinander koppeln.

Durch die Entdeckung eines großen Magnetowiderstandseffektes in den frühen 90er Jahren an Einkristallen durch Kusters *et al.* ($\text{Nd}_{0.5}\text{Pb}_{0.5}\text{MnO}_3$) [80] und an dünnen Filmen aus Manganperowskiten durch Helmolt *et al.* ($\text{La}_{2/3}\text{Ba}_{1/3}\text{MnO}_3$) [81] und Chahara *et al.* ($\text{La}_{0.75}\text{Ca}_{0.25}\text{MnO}_3$) [82], der den bis dahin bekannten GMR-Effekt an Multilagensystemen (*giant magnetoresistance*) um Größenordnungen übertraf, belebte sich das Interesse erneut, nun auch unter dem Gesichtspunkt einer möglichen Anwendung als magnetischer Sensor. Jin *et al.* fanden 1994 in $\text{La}_{2/3}\text{Ca}_{1/3}\text{MnO}_3$ -Filmen Magnetowiderstände von $\Delta R/R_H > 10^6 \%$ und prägten den Begriff *colossal magnetoresistance* (CMR) [83]. Es zeigte sich jedoch, dass Verbesserungen in

der Größe des Magnetowiderstandes durch geeignete Materialwahl und Präparation zumeist mit einer Verringerung der Curie-Temperatur verbunden sind. Damit sinkt auch die Temperatur des maximalen CMR-Effektes und reduziert so die Aussichten für eine technologische Anwendung auf wenige Kompositionen. Zudem liegen die Magnetfelder, die zum Erreichen eines zum GMR vergleichbaren CMR-Effektes nötig sind, um den Faktor 100 höher in der Größenordnung 1 T. Dennoch ist es mittlerweile gelungen, einen bei Raumtemperatur arbeitenden magnetoresistiven Sensor auf der Basis von granularem $\text{La}_{2/3}\text{Sr}_{1/3}\text{MnO}_3$ herzustellen [84]. Interessant in Bezug auf eine mögliche Anwendung in der Datenspeicherung ist die Tatsache, dass durch geeignete Wahl des Substrates eine zur Filmoberfläche senkrechte Anisotropie vieler Manganperowskit-Filme induziert werden kann. Viel versprechend im Hinblick auf eine wünschenswerte Erhöhung der Curie-Temperatur sind auch Entwicklungen auf dem Gebiet der Doppelperowskite $\text{Sr}_2\text{FeMoO}_6$ [85]. Umfangreiche Darstellungen der verschiedenen CMR-Materialien sind zu finden bei Ramirez (1997) [86], Coey *et al.* (1999) [87] und Tokura und Tomioka (1999) [88] mit experimentellem Schwerpunkt, sowie bei van Tendeloo *et al.* (2000) [89] über die Kristallstruktur und bei Dagotto *et al.* (2001) [90] mit vorwiegend theoretischem Hintergrund.

In diesem Teil der Arbeit sollen die magnetischen Eigenschaften einiger dünner Manganperowskit-Filme vorgestellt werden. An einem $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ -Film mit substratinduzierter senkrechter Anisotropie sollen die feldabhängige Domänenstruktur und insbesondere der Nukleations- und Wachstumsmechanismus dargestellt werden. Verschiedene $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ -Filme werden im Hinblick auf die Abhängigkeit vom Sauerstoffgehalt und der Schichtdicke untersucht.

3.1.1 Struktur

Allgemein kann die chemische Struktur der Manganperowskite durch den Ausdruck $\text{SE}_{1-x}\text{AM}_x\text{MnO}_3$ beschrieben werden, wobei SE ein dreiwertiges Seltenerd-Übergangsmetall (La, Pr, Nd, Gd,...) oder Bi^{3+} und AM ein zweiwertiges Alkalimetall (Sr, Ca, Ba) oder Pb^{2+} bezeichnen. Der Parameter $0 \leq x \leq 1$ bezeichnet ihren relativen Anteil und bestimmt entscheidend die magnetischen, elektronischen und strukturellen Eigenschaften der Verbindung. SE und AM besetzen den Gitterplatz A, Mn den Platz B der Perowskitstruktur ABO_3 (s. Abb. 3.1). Diese Struktur kann betrachtet werden als kubisch dichte Packung (fcc) der relativ großen A- und O^{2-} -Anionen mit den kleineren B-Kationen auf den Zwischengitterplätzen, umgeben von 6 Sauerstoffatomen. Da die A-Komponente aus zwei verschiedenen, gemäß ihrem Anteil x statistisch verteilten Atomsorten besteht, weicht die reale Struktur

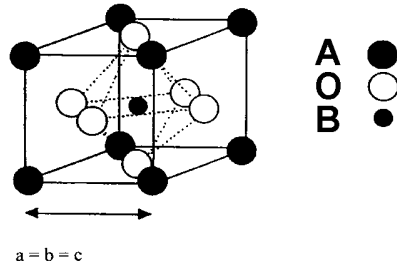


Abbildung 3.1: Perowskit-Struktur ABO_3 . Die Kristallsymmetrie ist einfach kubisch mit A-Atomen (SE, AM) an den Eckpositionen, Sauerstoff in den Seitenflächen und B-Atomen (Mn) im Zentrum.

von der ideal kubischen ab. Zusätzlich bewirkt der Jahn-Teller-Effekt eine Verzerrung der kubischen Struktur. In Abb. 3.2 sind die $3d$ -Orbitale des Mangans dargestellt. In sphärischer Umgebung sind sie fünffach entartet, spalten aber im kubischen Kristallfeld in drei lokalisierte (t_{2g}) und zwei mobile (e_g) Niveaus auf. Der Jahn-Teller-Effekt führt durch eine Gitterverzerrung zu einer weiteren Aufspaltung und Energieabsenkung der besetzten Niveaus. Die lokalisierten Elektronen bilden zusammen einen an den Mangan-Gitterplatz gekoppelten Spin $S = 3/2$. Die Zahl der besetzten e_g -Zustände hängt vom Dotierungsgrad x ab. Für $x = 0$ liegen durchweg Mn^{3+} -Atome vor, und je ein e_g -Niveau mit $S = 1/2$ ist besetzt. In diesem Fall bildet sich ein so genannter Mott-Isolator, der mit steigendem Dotierungsgrad einen Metall-Isolator-Übergang vollzieht. Die e_g -Niveaus sind stark mit den umliegenden O $2p$ -Orbitalen hybridisiert und können, wenn die SE- MnO_3 -Verbindung mit Akzeptoren (AM-Komponente) dotiert wird, die Rolle von Leitungselektronen übernehmen. Dann treten Löcher als Ladungsträger auf, und gleichzeitig werden dabei Mn^{4+} -Ionen erzeugt. Ihre Zahl pro Einheitszelle entspricht dem Dotierungsgrad x . Man spricht dann von einem gemischt valenten System.

3.1.2 Doppelaustausch-Modell

Betrachtet man die Elektronen eines Manganatoms, so bewirkt die Hundsche Regel eine starke ferromagnetische Kopplung zwischen dem lokalisierten t_{2g} -Spin $S = 3/2$ und dem mobilen e_g -Spin $S = 1/2$. Da die Mn-Atome im Kristallgitter aber nur geringen Überlapp ihrer Wellenfunktionen zeigen, ist der Elektronentransport nur über die Sauerstoffatome möglich. Zener [79] beschreibt den Ladungstransfer als zwei simultane Prozesse: den Übergang eines Elektrons von Mn^{3+} zu O^{2-} und von O^{2-} zu Mn^{4+} , in schematischer Schreibweise: $\text{Mn}_{1\uparrow}^{3+}\text{O}_{2\uparrow,3\downarrow}^{2-}\text{Mn}^{4+} \rightarrow \text{Mn}^{4+}\text{O}_{1\uparrow,3\downarrow}^{2-}\text{Mn}_{2\uparrow}^{3+}$ (Abb. 3.3). Dieser Me-

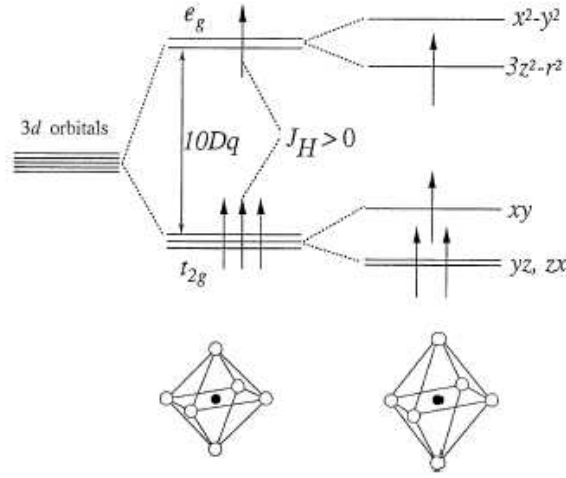


Abbildung 3.2: 3d-Energieniveaus der Manganatome. Dargestellt ist ein Manganatom (schwarz) und die 6 umgebenden Sauerstoffatome. Die in sphärischer Umgebung fünffach entarteten Orbitale spalten im kubischen Kristallfeld in zwei e_g und drei t_{2g} Niveaus auf. Der Jahn-Teller-Effekt bewirkt eine tetragonale Verzerrung des Gitters und führt zu einer weiteren Aufspaltung.

chanismus ist nur möglich, wenn die Mn-Spins parallel stehen und ein Elektronenaustausch über die Sauerstoffatome erfolgen kann. Zener führte dafür den Begriff *double exchange* ein.

Anderson und Hasegawa [91] beschreiben diesen Austausch über einen Zwischenzustand $\text{Mn}_{1\uparrow}^{3+}\text{O}_{3\downarrow}^-\text{Mn}_{2\uparrow}^{3+}$ und einen störungstheoretischen Prozess zweiter Ordnung. In einer halbklassischen Näherung ist die Wahrscheinlichkeit des Übergangs dann proportional zu $\cos\theta/2$, wobei θ den Winkel zwischen den lokalisierten Spins der benachbarten Mn-Atome bezeichnet. Für eine homogen magnetisierte Probe würde man also maximale Leitfähigkeit erwarten. Obwohl die Hybridisierung der Mn- e_g -Zustände mit den O- $2p$ -Orbitalen Voraussetzung für die Realisierung des Austauschprozesses ist, kann die daraus resultierende ferromagnetische Kopplung rein rechnerisch auch auf andere Weise erhalten werden. Sie liegt begründet in der Optimierung der kinetischen Energie der Leitungselektronen, die erleichtert wird, wenn die Bewegung auf einem ferromagnetischen Kristallgitter erfolgt [90].

Auf der Grundlage des Doppelaustausch-Modells lässt sich die Kopplung von Magnetismus und Transporteigenschaften qualitativ verstehen, insbesondere die Tatsache, dass der Magnetowiderstandseffekt typischerweise maximal ist in der Nähe der Curie-Temperatur. Geht man von einer ferromagnetischen Probe unterhalb T_C aus, so findet man innerhalb der Domänen auf-

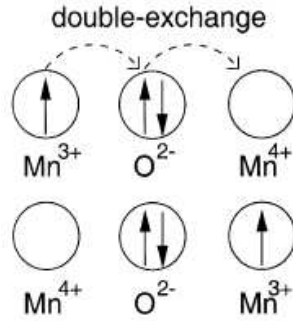


Abbildung 3.3: Schematische Darstellung des Doppelaustausch-Modells nach Zener. Der Austausch eines Leitungselektrons setzt eine parallele Spinausrichtung beider Mn-Atome voraus.

grund der parallelen Spinausrichtung an den Manganplätzen eine hohe Leitfähigkeit. Erhöht man die Temperatur bis in die Nähe der Curie-Temperatur, vergrößert sich die magnetische Unordnung in dem System und verringert so die Wahrscheinlichkeit des oben beschriebenen Doppelaustausches, und die Leitfähigkeit sinkt. In dieser Situation kann das Anlegen eines Magnetfeldes die Ordnung signifikant erhöhen, da sich die magnetischen Momente noch relativ leicht ausrichten lassen. Somit steigt also der Magnetowiderstandseffekt mit dem Ausrichten des Feldes bei Annäherung an die Curie-Temperatur. Für ein tiefergehendes quantitatives Verständnis des Magnetowiderstandes müssen jedoch weitere Effekte berücksichtigt werden. Eine wichtige Rolle spielen hier lokale statische und dynamische Verzerrungen durch den Jahn-Teller-Effekt, die eine Kopplung mit Phononen und Polaronen bewirken. Eine genauere Betrachtung liegt aber außerhalb des Rahmens dieser Arbeit.

3.2 LSMO / LAO

Die Vielzahl an Phasenübergängen bei Variation der Zusammensetzung x und der Temperatur lässt sich zum Teil auf eine lokale Veränderung der Gitterabstände zurückführen, wie sie durch den Austausch von Ionen unterschiedlicher Größe erzwungen wird [92, 93]. Diese beeinflusst die Mn-O-Mn Bindungsabstände und -Winkel und dadurch die magnetische Kopplung. Diese geometrische Veränderung kann aber nicht nur durch die Zusammensetzung sondern auch durch äußeren Druck herbeigeführt werden [94]. Eine interessante Möglichkeit besteht nun darin, das Vorzeichen des externen Druckes zu verändern, indem man dünne Filme auf ein fehlangepasstes Substratgitter aufbringt. Kwon *et al.* [95] gelang es, durch dieses Verfahren die

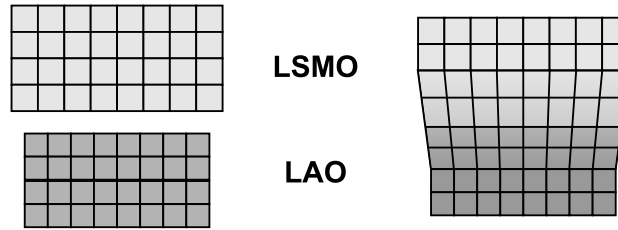


Abbildung 3.4: Geometrische Verhältnisse vor und nach dem Aufwachsen von LSMO auf einem LAO-Substrat. Der Film wird in der Ebene gestaucht, während das Substrat gedehnt wird. Zur Erhaltung des Volumens der Elementarzelle wird die senkrechte Achse des Films gedehnt.

leichte Achse der Magnetisierung eines $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ -Films (LSMO) gezielt parallel bzw. senkrecht zur Oberfläche zu legen, indem der Film auf SrTiO_3 (STO) bzw. LaAlO_3 (LAO) aufgebracht wurde. Im Folgenden soll ein 80 nm dicker $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ -Film auf einem LaAlO_3 (001)-Substrat in Bezug auf seine Domänenstruktur in verschiedenen äußeren Feldern untersucht werden. Dieser Film wurde mittels PLD (*pulsed laser deposition*) von einem stöchiometrischen Target bei einer Substrattemperatur von 750 °C unter einem Sauerstoff-Partialdruck von 10 mTorr gewachsen und anschließend für 30 min bei 600 °C unter 500 mTorr Sauerstoffatmosphäre ausgeheilt [96].

3.2.1 Wachstum und Struktur

Das Wachstum von LSMO auf LAO ist von verschiedenen Gruppen untersucht worden. LaAlO_3 hat wie LSMO eine kubische Struktur, jedoch sind die Gitterkonstanten beider Kristalle um 2.4 % verschieden (LSMO: 389 pm, LAO: 380 pm) [95]. Abbildung 3.4 zeigt die geometrischen Verhältnisse vor und nach dem Aufwachsen. Wächst man LSMO epitaktisch auf LAO auf, so wird das Kristallgitter von LSMO deshalb in der Ebene der Grenzfläche gestaucht [89, 97–102], während die des Substrates an der Grenzfläche gedehnt wird [89]. Daraus resultiert eine Streckung der c -Achse des LSMO senkrecht zur Filmebene um einige nm [99, 102]. Die Literaturwerte schwanken hier von 392–400 pm.

Diese elastische Deformation gilt natürlich nicht für beliebig große Filmdicken und ausgedehnte Grenzflächen. Die entstehenden Spannungen müssen auf einer bestimmten Längenskala inelastisch abgebaut werden. Dies geschieht durch den Einbau von Versetzungslinien in einer quadratischen Anordnung mit einem mittleren Abstand von 20–26 nm, wie van Tendeloo *et al.* [89] an einem $\text{La}_{0.67}\text{Sr}_{0.33}\text{MnO}_3$ -Film auf LAO zeigte. Eine vollständige Relaxation würde einen Abstand von ≈ 16 nm erfordern. Es bleibt also eine

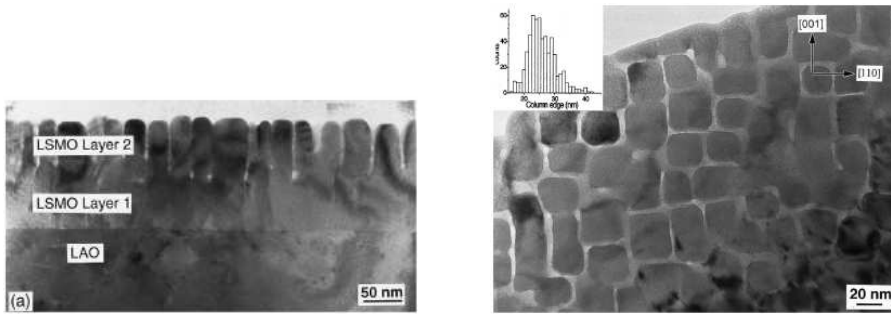


Abbildung 3.5: TEM-Untersuchung eines $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ -Films auf LaAlO_3 (001). Der Film ist in zwei Ebenen geteilt. Die obere bildet eine kolumnare Struktur (aus [104]).

restliche Verspannung, die elastisch oder auf andere Weise abgebaut werden muss. Denkbar ist hier eine Variation des lokalen Sauerstoffgehaltes oder die Verlagerung der kleineren Ionen in die Kristallit-Mitte zwischen den Versetzungen. Dies könnte eine Anreicherung von Sr^{2+} in dieser Region bedeuten.

Eine sehr interessante Studie eines 140 nm dicken $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{MnO}_3$ -Films auf LaAlO_3 (001) wurde von Jiang *et al.* veröffentlicht [104]. Der mit Transmissions-Elektronenmikroskopie untersuchte Film (Abb. 3.5) ließ sich in zwei Ebenen aufteilen. Die untere, dem Substrat zugewandte Ebene ließ keine Inhomogenität erkennen, wie für einen epitaktischen Film zu erwarten. Die darauf liegende Schicht bildet ab etwa 70 nm oberhalb des Substrats eine kolumnare Struktur aus. Die Draufsicht in Abb. 3.5 zeigt eine rechteckige Struktur der Kristallite, die von amorphen Bereichen getrennt sind. Die Kanten dieser Kristallite laufen in (100)- bzw. (010)-Richtung des Substrates. Die amorphen Korngrenzen haben eine typische Breite von 2-4 nm und einen Abstand von 20-33 nm. Aufgrund dieser Befunde ist während des Aufdampfens von einem Stranski-Krastanov-Wachstum auszugehen, also einem lagenweisen Wachstum der ersten Schichten, gefolgt von der Bildung dreidimensionaler Inseln. Diese kritische Filmdicke von ≈ 70 nm wird auch von anderen Veröffentlichungen gestützt [89,99].

Um mögliche Korrelationen zwischen magnetischen und topographischen Eigenschaften prüfen zu können, wurde die Topographie der hier verwendeten Probe untersucht (Abb. 3.6). Die Aufnahme entstand mit einer magnetisch beschichteten Spitze (5 nm Fe, 20° zur Cantilever-Achse) bei einem senkrechten Magnetfeld von 800 mT. Der Film befindet sich bei diesem Feld in Sättigung, weshalb ausschließlich topographischer Kontrast zu erkennen ist. Der Film zeigt eine granulare Morphologie mit einer mittleren Rauigkeit von 0.4 nm (rms) und einer mittleren Korngröße von (32 ± 2) nm. Dieser Wert

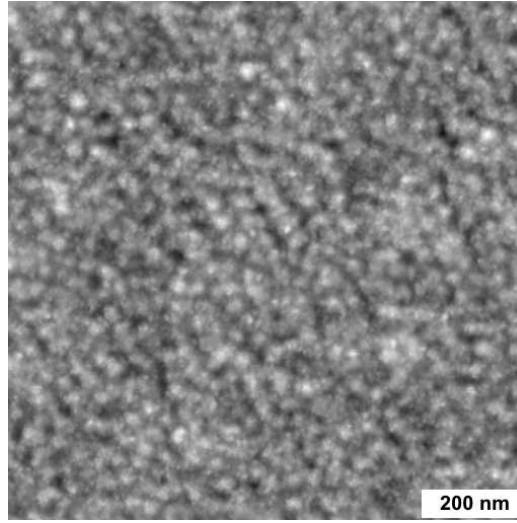


Abbildung 3.6: Topographie des LSMO-Films, aufgenommen im geregelten dynamischen Rasterkraftmikroskopie-Modus. Parameter: Scanbereich $1 \times 1 \mu\text{m}^2$, $\Delta f = -3 \text{ Hz}$, $f_0 = 200444 \text{ Hz}$, $c_z = 50 \text{ N/m}$, $A_0 = \pm 5 \text{ nm}$, Scangeschwindigkeit $1 \mu\text{m/s}$, $U_{\text{bias}} = -150 \text{ mV}$, $B = 800 \text{ mT}$, $T = 5.2 \text{ K}$, Kontrast 2 nm .

wurde mit der in Abschnitt 2.7.4 beschriebenen Methode bestimmt und steht in guter Übereinstimmung mit der von Jiang *et al.* [104] angegebenen Kristallitgröße. Desfeux *et al.* berichtet für 50-100 nm dicke Filme der gleichen Zusammensetzung von einer Korngröße zwischen 40 und 50 nm [102], Hawley *et al.* von 35 nm für einen 60 nm dicken, bei 750°C ausgeheilten Film. Derartige Messungen sind jedoch nur sehr begrenzt vergleichbar, da sie hochgradig von der individuellen Spitzenform abhängen, die über eine Faltung in das Topographiebild mit eingeht. Zudem muss erwähnt werden, dass die Oberflächenform nicht notwendigerweise die interne Struktur des Films widerspiegelt. Durch den Präparationsprozess kann eine Anreicherung von Strontium an der Oberfläche und den ersten 10 Atomlagen stattfinden [103], die die Struktur der Oberfläche verändert. Für das MFM-Signal ist dieser Vorgang weniger bedeutend, da wegen der großen Reichweite der magnetischen Wechselwirkung auch unter der Oberfläche liegende magnetische Ladungen zum Kontrast beitragen und abgebildet werden können.

3.2.2 Magnetische Eigenschaften

Wie für die Klasse der Manganperowskite typisch, zeichnet sich auch LSMO durch ein reichhaltiges Phasendiagramm mit zahlreichen elektronischen und magnetischen Übergängen aus. Abb. 3.7 zeigt ein solches Phasendiagramm

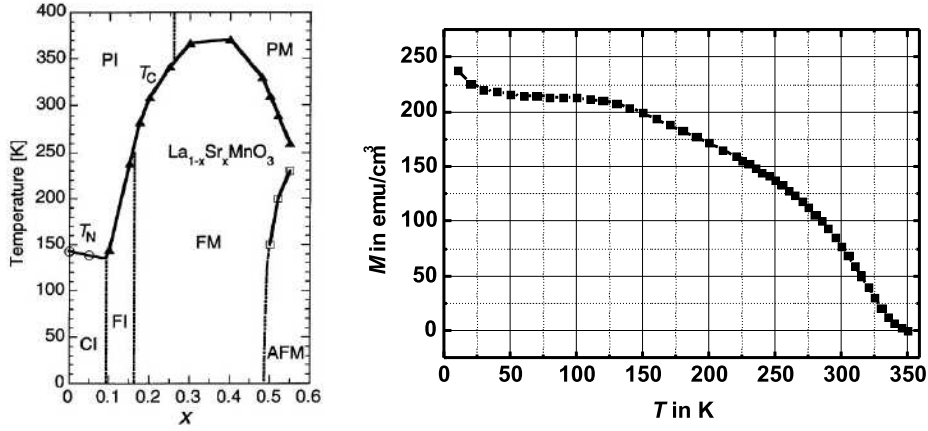


Abbildung 3.7: Phasendiagramm für $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ -Volumenmaterial. Die hier untersuchte Probe ($x = 0.3$) ist metallisch und wird unter T_C ferromagnetisch. Die Curie-Temperatur des abgebildeten Films kann aus dem Wendepunkt der temperaturabhängigen Magnetisierungskurve zu ≈ 325 K bestimmt werden.

für das untersuchte System. Ebenso ist der temperaturabhängige Verlauf der Magnetisierung dargestellt.¹ Die Sättigungsmagnetisierung bei 10 K beträgt $J_s = 300$ mT. Bei der hier verwendeten Dotierung von $x = 0.3$ ist ein Übergang von paramagnetisch zu ferromagnetisch unterhalb von 360 K zu erwarten. Die aus SQUID-Magnetometerdaten ermittelte Curie-Temperatur von $T_C = 325$ K ist damit verträglich unter dem Gesichtspunkt, dass bei dünnen Filmen T_C aufgrund der zunehmenden Verspannung unter den Volumenwert absinkt [105].

Der Effekt der Verspannung des Films auf seine magnetischen Eigenschaften wird auch anhand der Anisotropie deutlich. Wie bereits erwähnt, gelang Kwon *et al.* [95] die Herstellung eines Films gleicher Zusammensetzung mit senkrechter Anisotropie auf LaAlO_3 und mit in der Ebene liegender Anisotropie auf SrTiO_3 (STO). Der Film auf LAO zeigte einen Domänenkontrast im MFM, während der Film auf STO einen in-plane-Kontrast erkennen ließ. Der Grund für diesen Effekt liegt in der unterschiedlichen Fehlanpassung der Kristallgitter (LAO: -2.4%, STO: +0.6%) und damit in einer Stauchung bzw. Dehnung in der Filmebene. Die senkrechte Anisotropie für LSMO/LAO wurde von verschiedenen Gruppen experimentell bestätigt [99–102, 106, 107]. Wu *et al.* [98] bestimmten sie für 28–450 nm dicke Filme zu $K_u \approx 20000$ J/m³.

Dem gegenüber steht eine Formanisotropie $K_d = J_s^2 / 2\mu_0 \approx 36000$ J/m³. Dieser Energieterm ergibt sich aus der magnetostatischen Energie (Gl. 2.10)

¹Die Messungen der Magnetisierung wurden an der Seoul National University durchgeführt.

eines senkrecht zur Ebene magnetisierten Films und begünstigt eine Ausrichtung der Magnetisierung in der Ebene. K_u und K_d lassen sich zu einer reduzierten Anisotropie $Q = K_u/K_d$ zusammenfassen, die im hier diskutierten Fall $Q \approx 0.56$ beträgt. Beide Größen sind also für die Ausrichtung der Magnetisierung von Bedeutung und konkurrieren miteinander.

Für die Beurteilung der energetischen Verhältnisse, insbesondere der Domänenwände spielt die Austauschenergie eine wichtige Rolle. Sie beschreibt das Bestreben eines Ferromagneten, abgesehen von den oben beschriebenen Anisotropien, eine homogene Magnetisierung $\vec{J}$ einzunehmen. Abweichungen davon resultieren in einer Energieerhöhung (Gl. 2.5). Die Austauschkonstante A kann mit Hilfe der Molekularfeldtheorie abgeschätzt werden aus dem Austauschintegral

$$J_{\text{ex}} = \frac{3k_B T_C}{2zS(S+1)} \quad (3.1)$$

und

$$A = \frac{nJ_{\text{ex}}S^2}{a}. \quad (3.2)$$

Dabei bedeuten z die Koordinationszahl (6 für einfach kubisches Gitter), S der Spin (3/2 für Mn), n die Zahl der Gitterpunkte pro Elementarzelle (1 für einfach kubisches Gitter) und a die Gitterkonstante (389 pm für LSMO) [4,5]. Mit den Werten für LSMO erhält man $A = 1.73 \times 10^{-12}$ J/m. Setzt man diese Größe in Beziehung zur Anisotropie, so gelangt man zu einer Abschätzung der Energie, die der Einbau einer Domänenwand in ein ansonsten in leichter Richtung magnetisiertes Volumen erfordert. Für eine 180°-Wand ist sie gegeben durch $\gamma_w = 4\sqrt{AK_u}$ [6]. Diese Energie sorgt dafür, dass nicht beliebig viele und kleine Domänen gebildet werden können, um das Streufeld und dadurch die magnetostatische Energie zu reduzieren.

3.2.3 Domänenstruktur im Nullfeld

Die Domänenstruktur wurde in Abwesenheit eines von außen angelegten Feldes in drei verschiedenen Fällen untersucht: nach thermischer Demagnetisierung, nach Anlegen eines Sättigungsfeldes in der Filmebene und nach Sättigung in einem senkrechten Magnetfeld. Abb. 3.8 zeigt die entsprechenden MFM-Daten im Vergleich, aufgenommen bei 5.2 K.

Um die Probe thermisch zu demagnetisieren, wurde sie etwa eine Stunde bei $T \approx 370$ K $> T_C$ geheizt, dann langsam auf Raumtemperatur abgekühlt und ins Mikroskop eingesetzt. Im MFM-Bild zeigte sich eine mäanderförmige Domänenstruktur (Abb. 3.8 a) mit einer mittleren Breite von 54 ± 3 nm, die nach der in Abschnitt 2.7.4 beschriebenen stereologischen Methode bestimmt

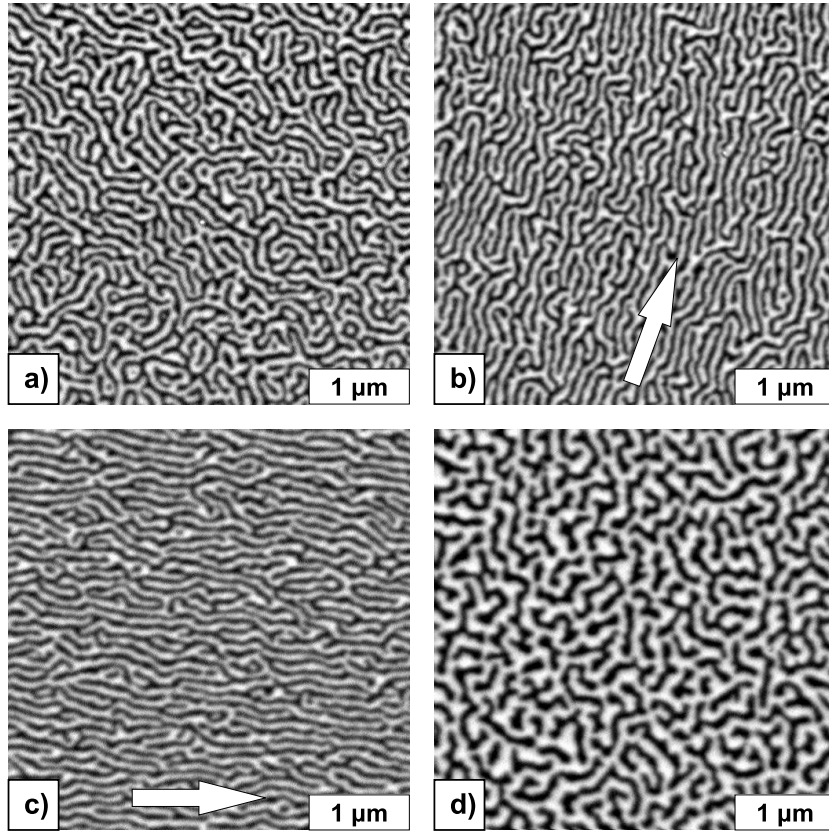


Abbildung 3.8: MFM-Bilder im Nullfeld (a) nach thermischer Demagnetisierung, (b), (c) nach Sättigung in einem Feld in der Ebene und (d) nach Sättigung in senkrechtem Magnetfeld. Die Pfeile in (b) und (c) kennzeichnen die Richtung des vorher angelegten Feldes. Alle Aufnahmen wurden mit demselben Cantilever gewonnen. Parameter: $f_0 = 195$ kHz, $A_0 = \pm 5$ nm, Spitze Fe 5 nm $\alpha = 20^\circ$, Abstand/ U_{bias} : (a) 18 nm/-400 mV, (b) 24 nm/-80 mV, (c) 30 nm/+140 mV, (d) 24 nm/-100 mV.

wurde. Das Verhältnis zwischen hellen Domänen (attraktive Spitze-Probe-Wechselwirkung) und dunklen (repulsive Wechselwirkung) beträgt 52,6 zu 47,4. Daraus kann eine leichte Beeinflussung der Probe durch die Spitze abgeleitet werden, die Teile der Probe parallel zur Spitzenmagnetisierung ausrichtet. Für eine demagnetisierte Probe würde man idealerweise eine exakte Gleichverteilung des hell-dunkel-Kontrastes erwarten. Dieser Spitzeneinfluss wie auch die genaue Analyse des Kontrastes wird später noch diskutiert werden.

Zur Sättigung der Probe durch ein Feld in der Ebene wurde die Probe bei Raumtemperatur im Streufeld des supraleitenden Magneten ausgerichtet. Das Feld am Ort der Probe wurde vorher mit einer Hall-Sonde zu 140 mT

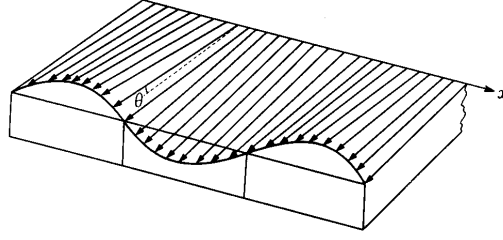


Abbildung 3.9: Schematische Darstellung der Magnetisierung von Streifendomänen in einem Schnitt quer zur Streifenausrichtung (aus [4]).

bestimmt und reicht aus, um den Film bei dieser Temperatur in Sättigung zu bringen [107]. Anschließend wurde das Feld abgeschaltet und die Probe ins Mikroskop eingesetzt. Es ergab sich eine Domänenstruktur mit ähnlichem Kontrast und einer Breite von $w = 52 \pm 2$ nm. Während jedoch im thermisch demagnetisierten Fall keine Vorzugsrichtung im Domänenverlauf zu erkennen war, trat nun vorwiegend eine Ausrichtung parallel zum angelegten Feld auf. Die Feldrichtung ist jeweils in den Bildern 3.8 (b) und (c) angedeutet.

Diese Situation kann erklärt werden im Bild der schwachen Streifendomänen [6]. Ist $Q < 1$, so überwiegt die Formanisotropie gegenüber der Kristallanisotropie und würde eine Ausrichtung der Magnetisierung parallel zur Filmebene bevorzugen. Die Anisotropieenergie lässt sich jedoch reduzieren, indem die Magnetisierung periodisch von der streng parallelen Ausrichtung abweicht und dabei ein geringes Streufeld produziert, das aber den Gewinn an Kristallanisotropieenergie nicht aufwiegt. Eine schematische Darstellung der Magnetisierung in einem Schnitt quer zur Domänenausrichtung zeigt Abb. 3.9. Diese Oszillation erfordert eine kritische Mindestdicke des magnetischen Films, die sich aus den Randbedingungen für Magnetisierung und Streufeld ergibt. Diese Dicke geht gegen $t_{\text{cr}} = 2\pi\sqrt{A_{\text{ex}}/K_{\text{u}}}$ für sehr geringe Anisotropien ($Q \ll 1$) und wird Null für $Q = 1$. Für $Q = 0.56$ liegt sie bei $t_{\text{cr}} \approx 25$ nm, also deutlich unter der Filmdicke (80 nm). Die sich einstellende Domänenbreite sollte in der Größenordnung der Filmdicke liegen, was auch beobachtet wird.

Um eine Abschätzung über den Winkel zu gewinnen, um den die Magnetisierung aus der Ebene herausdreht, soll in Anlehnung an [4] eine Betrachtung der beteiligten Energien in Abhängigkeit der Streifenbreite w und des Winkels θ vorgenommen werden. An dieser Stelle werden nur die Ergebnisse dargelegt; eine genaue Rechnung findet sich im Anhang. Von Bedeutung sind hier die flächenbezogene magnetostatische Energie ϵ_{m} , die Anisotropieenergie ϵ_{a} und die Austauschenergie ϵ_{aus} . Ausgegangen wird von einer sinusförmigen Modulation der Magnetisierung mit dem Winkel $\theta(x)$. Ansonsten sei die Mag-

netisierung in y - und z -Richtung homogen.

$$\theta = \theta_0 \sin \frac{\pi x}{w} \quad (3.3)$$

Die magnetische Ladungsdichte an der Filmoberfläche lässt sich dann beschreiben durch:

$$\sigma(x) = J_s \sin \left(\theta_0 \sin \frac{\pi x}{w} \right) \approx J_s \left(\theta_0 \sin \left(\frac{\pi x}{w} \right) - \frac{1}{6} \theta_0^3 \sin^3 \left(\frac{\pi x}{w} \right) \right) \quad (3.4)$$

Eine Berücksichtigung von Termen bis zur Ordnung θ_0^2 und Minimierung der Gesamtenergie bezüglich der Oszillationsperiode führt auf eine Domänenbreite von

$$w_{\text{th}} = 2\pi \sqrt[3]{\frac{\mu_0 A t}{2J_s^2}} \approx 62 \text{ nm}, \quad (3.5)$$

ein Wert, der in guter Übereinstimmung mit den beobachteten Domänenbreiten steht. Die Ordnung θ_0^4 liefert eine Abschätzung des maximalen Winkels θ_0 , den die Magnetisierung aus der Ebene herausdreht zu $\theta_0 \approx 63^\circ$.

Ein in der Ebene angelegtes äußeres Feld richtet die magnetischen Momente in Feldrichtung aus. Wird das Feld reduziert, beginnt die Magnetisierung alternierend aus der Ebene herauszudrehen, behält aber ihre Richtung in der Ebene bei. Der beobachtete Kontrast wird von der senkrechten Komponente erzeugt. Die Streifen richten sich parallel zum Feld aus, da auf diese Weise Néel-artige Anteile in der Wand vermieden werden und dieser Zustand für die Domänenwand somit geringfügig günstiger ist [6]. Man kann aus dieser Beobachtung auch schließen, dass es keine offensichtliche Anisotropie in der Ebene gibt. Diese Interpretation wird auch gestützt durch feldabhängige MFM-Messungen auf LSMO/LAO in Feldern parallel zur Filmebene [100]. Aus diesen Untersuchungen wurde geschlossen, dass die ausgerichteten Streifen eine gemeinsame Komponente der Magnetisierung in der Ebene haben. Dieses ausrichtende Feld fehlt bei der thermischen Demagnetisierung, und so bilden sich zufällig orientierte Streifendomänen mit derselben Periode.

Die Situation stellt sich anders dar nach Sättigung in einem senkrechten Magnetfeld von 600 mT (Abb. 3.8 d). Wiederum wurde eine mäanderförmige Domänenstruktur beobachtet, jedoch hat sich die mittlere Domänenbreite auf (79 ± 3) nm vergrößert. Der Anteil hellen Kontrastes betrug nun 58.3 %, was auf eine remanente senkrechte Magnetisierung schließen lässt. Ebenso hat sich der gemessene Kontrast in der Frequenzverschiebung um 33 % verstärkt. Bei gleicher Spitze und gleichem Abstand wurde nach Sättigung im senkrechten Feld ein Kontrast von 400 mHz gemessen (Abb. 3.8d, Domänenbreite $w = 80$ nm), während er nach Sättigung in der Ebene nur

300 mHz betrug (Abb. 3.8b, $w = 52$ nm). Um vom Kontrast auf die zugrunde liegende magnetische Ladungsdichte schließen zu können, muss der Einfluss der Domänenbreite auf die Frequenzverschiebung berücksichtigt werden. Beide Domänenmuster werden hier als periodische Strukturen behandelt. Nach Gl. 2.27 fällt das magnetostatische Potenzial einer solchen Struktur exponentiell mit dem Abstand ab, wobei die Abfalllänge durch die Domänenbreite gegeben ist. Nach Gl. 2.28 ist die Frequenzverschiebung proportional zu

$$G = \frac{1}{w} e^{-\pi \frac{z}{w}}. \quad (3.6)$$

G soll hier als Geometrie-Faktor bezeichnet werden. Durch eine veränderte Domänenbreite verändert sich also die Abfalllänge der Wechselwirkung. Weiterhin berechnete Giessibl [108] die Frequenzverschiebung eines mit der Amplitude A_0 schwingenden Cantilevers unter dem Einfluss einer exponentiell abfallenden Kraft $F(z) = F_0 e^{-z/\lambda}$ zu

$$\Delta f = \frac{f_0}{2c_z \lambda \left(1 + \sqrt{\frac{\pi}{2}} \left(\frac{A_0}{\lambda}\right)^{3/2}\right)} F_0 e^{-z/\lambda}. \quad (3.7)$$

Der Geometrie-Faktor ist hier schon enthalten, und die Abfalllänge beträgt in diesem Fall $\lambda = w/\pi$. Für Aussagen bezüglich der magnetischen Ladungsdichte muss also für gleichen Abstand und gleichen Cantilever der Kontrast mit dem Faktor

$$k_{\text{norm}} = \frac{1}{w \left(1 + \sqrt{\frac{\pi}{2}} \left(\frac{\pi A_0}{w}\right)^{3/2}\right)} e^{-\pi \frac{h}{w}} \quad (3.8)$$

skaliert werden. Dieser Parameter sorgt bei einer Vergrößerung der Domänenbreite von 52 nm auf 80 nm für eine Zunahme des Kontrastes um 18 %. Der verbleibende Effekt von 13 % kann vollständig durch eine reale Erhöhung der magnetischen Oberflächenladungsdichte erklärt werden, wenn man annimmt, dass die Magnetisierung nun im Zentrum der Domänen senkrecht zur Filmebene steht. Der mit $1/k_{\text{norm}}$ normierte Kontrast K sollte proportional zu $\sin \theta_0$ sein, wobei $\theta_0 = 63^\circ$ die berechnete Abweichung der Magnetisierung aus der Ebene bezeichnet für den Fall nach Sättigung in parallelem Feld. Daraus ergibt sich ein Verhältnis $K_{\parallel}/K_{\perp} = \sin \theta_0 / \sin 90^\circ = 0.89$, was auch beobachtet wird. Im Folgenden werden deshalb bei der Diskussion von in senkrechtem Feld aufgenommenen MFM-Daten helle und dunkle Bereiche als senkrechte Domänen entgegengesetzter Magnetisierung behandelt.

3.2.4 Feldabhängige Untersuchungen

Um die Nukleation und das Wachstum solcher senkrechten Domänen zu studieren, wurden MFM-Bilder desselben Gebietes feldabhängig aufgenommen

in einem Bereich von 0-600 mT. Die Stabilität des Mikroskops erlaubt es, den in Abschnitt 2.4.3 beschriebenen MFM-Modus über mehr als 20 h hinweg zu betreiben, ohne dabei einen der Aufnahmeparameter nachstellen zu müssen. Insbesondere gilt dies für den Abstand zwischen Probe und Spitze, der sich während der nachfolgend beschriebenen Langzeitmessung um weniger als 1 nm änderte, und für die laterale Drift des Rasterbereichs, die geringer als 10 nm, also klein gegen die beobachtete Korngröße und Domänenbreite war. Aufgrund der Verwendung nichtmagnetischer Materialien im Mikroskop gelten diese Werte auch dann, wenn währenddessen ein veränderliches Magnetfeld angelegt wird.

Ein $4 \times 4 \mu\text{m}^2$ großer Bereich wurde fortlaufend abgebildet, während das Magnetfeld innerhalb von 22 h kontinuierlich von 0 mT auf 600 mT erhöht und anschließend wieder auf 0 mT reduziert wurde. Bei einer Bildaufnahme rate von 512 s/Bild ergibt sich, abhängig von der Stellgeschwindigkeit der Magnetfeldstärke, eine Feldvariation pro Bild zwischen 5 und 10 mT. Insgesamt wurden 158 Bilder mit 512×512 Datenpunkten aufgenommen. Auf die Spitze wurde ein 5 nm dicker Eisenfilm unter einem Winkel von 20° aufgedampft. Der Abstand zwischen Spitze und Probe betrug 24 nm, die Oszillationsamplitude $A_0 = \pm 5$ nm.

Abbildung 3.10 zeigt sechs Bilder aus dieser filmartigen Sequenz. Die Startkonfiguration war ein remanenter Zustand nach Sättigung in einem senkrechten Feld, das der Richtung in der vorliegenden Messung entgegengesetzt war. Bei etwa 75 mT (a) wird die Koerzitivfeldstärke passiert. Sie lässt sich mit einigen 10 mT Unsicherheit aus den MFM-Bildern extrahieren. Genauere Betrachtungen über die Rekonstruktion einer Hysteresekurve aus MFM-Daten finden sich weiter unten in diesem Abschnitt. Bei weiter zunehmendem Feld schrumpfen die antiparallel ausgerichteten (schwarzen) Domänen, bis kurz vor Erreichen der Sättigung nur noch Domänen mit kreisförmigem Kontrast übrig bleiben (b). Bei Erreichen der Sättigung (c) verschwindet der magnetische Kontrast völlig, und nur einige wenige helle Bereiche topographischen Ursprungs sind sichtbar. Sie sind den gesamten Film hindurch zu verfolgen und eignen sich gut, die laterale Drift des Rasterbereichs abzuschätzen (s. o.). Wird das Feld wieder reduziert, so bilden sich unterhalb von 340 mT zunächst isolierte Domänen mit kreisförmigem Kontrast, die bei einer weiteren Feldverringerng unter 280 mT zu Streifen auseinander laufen (d, e) und in Remanenz die schon geschilderte mäanderförmige Domänenstruktur bilden (f).

Neben dem Vergleich von Bildern, die bei verschiedenen Feldstärken gewonnen wurden, ist für die Untersuchung der Nukleations- und Wachstumsprozesse auch das Verfahren der Differenzbilder geeignet. Die Stabilität des Instrumentes erlaubt es, zwei aufeinander folgende Bilder einer Sequenz von-

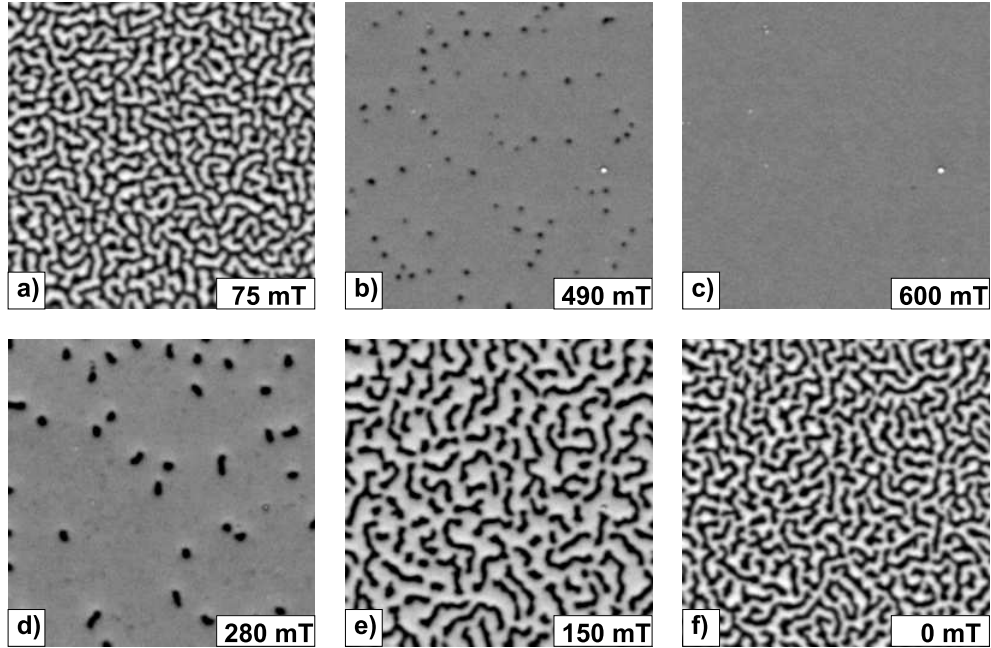


Abbildung 3.10: Feldabhängige Domänenstruktur von LSMO/LAO. Abgebildet ist jeweils dasselbe $4 \times 4 \mu\text{m}^2$ große Gebiet. Heller Kontrast bedeutet parallele Magnetisierung von Spitze und Probe. Die Bilder (a) und (b) sind bei steigendem, (d) und (e) bei fallendem Magnetfeld aufgenommen. Parameter: Rasterhöhe $h = 24 \text{ nm}$, $f_0 = 195 \text{ kHz}$, $A_0 = \pm 5 \text{ nm}$, $U_{\text{bias}} = -100 \text{ mV}$, Fe-bedampfte Spitze: 5 nm , 20° .

einander abzuziehen, ohne weitere Korrekturen vornehmen zu müssen. Diese so produzierten Differenzbilder zeigen als Kontrast nur die Veränderungen im Domänenmuster. Unveränderte Domänen und topographische Einflüsse werden durch diese Methode wirksam ausgeblendet. Es können sogar zwei beliebige Bilder aus der Sequenz ohne Korrekturen subtrahiert werden, da die laterale Drift während der gesamten Aufnahme nur in der Größenordnung eines Bildpunktes lag. Auf diese Weise kann beispielsweise das Bild, das in Sättigung aufgenommen wurde, von allen anderen abgezogen werden, um restliche Topographieeinflüsse vom MFM-Kontrast zu trennen. Abb. 3.11 zeigt zwei Beispiele solcher Differenzbilder für zunehmendes (a-c) und abnehmendes Feld (d-f). In beiden Fällen sind die Magnetisierung der Spitze und die Richtung des angelegten Feldes parallel. Erhöht sich das Feld, nimmt der Anteil der parallel zur Spitze ausgerichteten Domänen zu (heller Kontrast). Differenzbilder in steigendem Feld zeigen deshalb hellen Kontrast, während solche in fallendem Feld dunklen Kontrast erzeugen. Wählt man die Feldveränderung klein genug, können einzelne Ummagnetisierungsprozesse aufgelöst

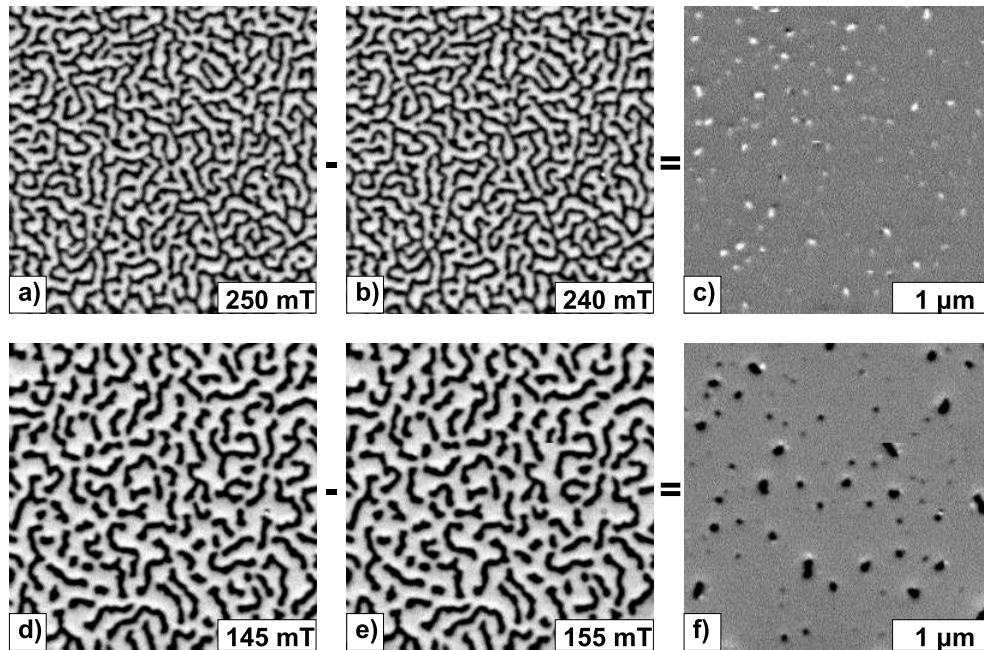


Abbildung 3.11: Original- und Differenzbilder für zunehmendes (erste Zeile) und abnehmendes Feld (zweite Zeile). Während aller Bilder stand die Spitzenmagnetisierung parallel zum angelegten Feld. Je nach Vorzeichen der Feldänderung nimmt die Fläche heller oder dunkler Domänen zu. Parameter wie Abb. 3.10.

werden, die dann in Hinblick auf ihre Position und Stärke relativ zum existierenden Domänenmuster analysiert werden können. Im Folgenden sollen einige Aspekte der feldabhängigen Domänenstruktur und -Entwicklung näher behandelt werden.

3.2.5 Hysterese

Betrachtet man die Kontrastverteilung bei verschiedenen Feldstärken, so ergibt sich ein charakteristisches Verhalten. Abb. 3.12 (a) zeigt das Histogramm von Bild 3.10 (f). Es sind zwei deutlich unterscheidbare Maxima zu sehen, die durch einen Untergrund verbunden werden. Das rechte Maximum steht für das Probengebiet mit paralleler Magnetisierung relativ zur Spitze, das linke für antiparallele Magnetisierung. Diese Form des Histogramms ist Ausdruck der Tatsache, dass nicht nur zwei Kontrastniveaus vorliegen, sondern ein erheblicher Teil des Films Oberflächenladungsdichten aufweist, die zwischen den beiden Extremwerten liegen. Eine solche Verteilung lässt sich beschrei-

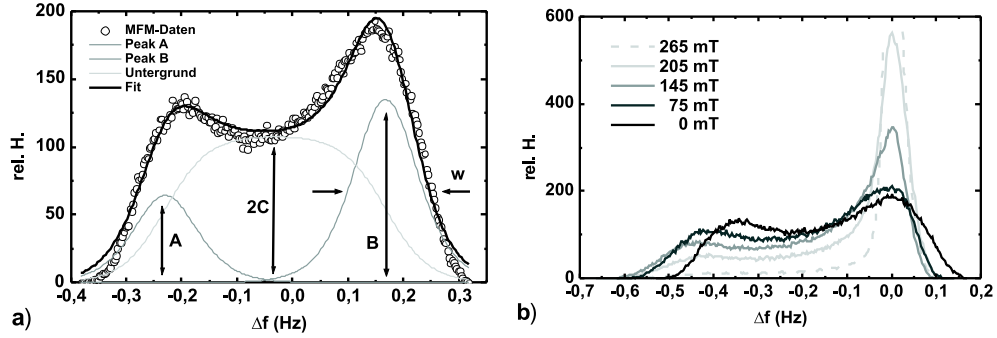


Abbildung 3.12: Histogramme des Bildkontrastes bei verschiedenen Feldstärken. (a) In Remanenz (Bild 3.10 f). Die Verteilung kann beschrieben werden durch zwei Maxima mit einem dazwischen liegenden Untergrund. (b) Histogramme bei abnehmendem Feld. Die relativen Positionen der Maxima bleiben in etwa erhalten, das Gewicht des rechten Maximums verstärkt sich bei höherem Feld.

ben durch eine Funktion der Form:

$$H(x) = \frac{A}{\cosh^2\left(\frac{x-u}{w}\right)} + \frac{B}{\cosh^2\left(\frac{x-v}{w}\right)} + C \left(\tanh\left(\frac{x-u}{w}\right) - \left(\frac{x-v}{w}\right) \right), \quad (3.9)$$

wobei A und B die Maxima der Breite w an den Positionen u und v beschreiben und C für die Höhe des Untergrunds zwischen u und v steht. Ein Fit und die drei Komponenten dieser Funktion sind in Abb 3.12 ebenfalls dargestellt. Das Integral, also die Summe aller Bildpunkte, ergibt sich dann zu:

$$\int H(x) dx = 2w(A + B) + 2C(v - u). \quad (3.10)$$

Mit dieser Normierung lässt sich ein Ausdruck für die Magnetisierung M des abgebildeten Gebietes finden:

$$\frac{M}{M_{\text{sat}}} \approx 1 - 2 \frac{2wA + C(v - u)}{2w(A + B) + 2C(v - u)}, \quad (3.11)$$

indem man alle Bildpunkte, die heller sind als $\frac{1}{2}(u + v)$ einer Magnetisierung $+M_{\text{sat}}$ zuordnet und alle anderen $-M_{\text{sat}}$ zuschlägt. Diese Methode basiert also nur auf der Auswertung der relativen Flächenanteile. Die Histogramme, die bei verschiedenen Feldstärken und damit bei verschiedenen Magnetisierungen gewonnen wurden (Abb. 3.12 b), behalten diese grundsätzliche Struktur bei, jedoch verlagert sich wie erwartet bei zunehmender Magnetisierung das Gewicht zum rechten Maximum, das für eine parallele Ausrichtung der Magnetisierung steht.

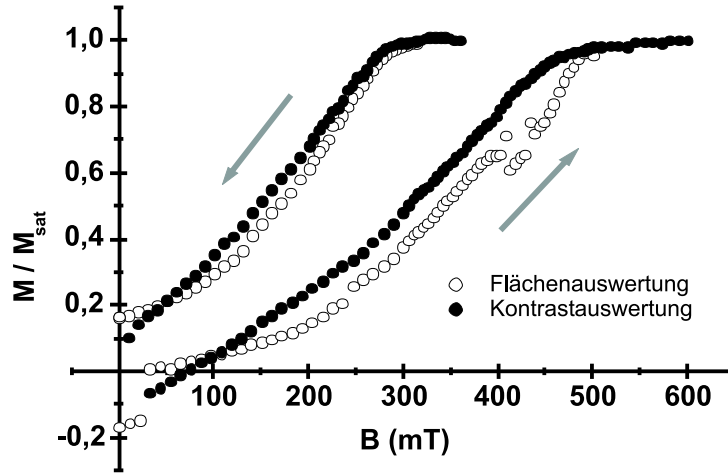


Abbildung 3.13: Hysteresis nach Auswertung der Flächenanteile (leere Symbole). Der Sprung bei 30 mT wird durch die Ummagnetisierung der Spitze hervorgerufen. Die Schwankungen oberhalb 400 mT sind auf Unsicherheiten in der Fitprozedur bei stark unterschiedlichen Peakhöhen zurückzuführen. Gefüllte Symbole: Hysteresis nach Berücksichtigung der Kontraste der Differenzbilder (s. Text).

Aus einem Histogrammfit für alle Bilder dieser Sequenz kann man nun eine Auftragung des relativen Kontrastes über dem angelegten Feld anfertigen, indem man für jedes Bild nach Gl. 3.11 die Magnetisierung berechnet. Das Ergebnis einer solchen Behandlung ist in Abb. 3.13 dargestellt. Die Kurve beginnt bei einer Remanenz von $-0.166M_{\text{sat}}$ und springt dann bei 30 mT von $-0.145M_{\text{sat}}$ auf $+0.009M_{\text{sat}}$. Dieser Sprung tritt gleichzeitig mit der Ummagnetisierung der Spitze auf und ist auf den in Abschnitt 2.7.3 erläuterten Suszeptibilitätskontrast zurückzuführen. Der Effekt ist an den Domänenwänden maximal, wo die Magnetisierungen von Spitze und Probe senkrecht stehen, da dort das wirkende Drehmoment am größten ist. Es wird für die weiteren Betrachtungen angenommen, dass die Magnetisierung an dieser Stelle auf der Hälfte des Sprunges liegt ($M(30 \text{ mT}) = -0.068M_{\text{sat}}$). Die Schwankungen im Bereich oberhalb von 400 mT sind auf Unsicherheiten in der Fitprozedur zurückzuführen, die entstehen, wenn ein starkes Ungleichgewicht zwischen den Peakhöhen besteht. Wie bereits in Abschnitt 2.7.4 erwähnt, werden durch die endliche Ausdehnung des Spitzenstreufeldes kleine Objekte vergrößert dargestellt. Für die Berechnung der Magnetisierung folgt daraus eine Überschätzung der dunklen Kontrastgebiete im Feldbereich nahe der Sättigung, also eine Unterschätzung der Magnetisierung. Ebenso geht aus Gl. 2.30 hervor, dass räumlich schnell variierende Kontrastkomponenten stärker gedämpft werden als gröbere Strukturen. Im Extremfall würde ein

periodisches Muster also immer als sinusförmiges Signal wiedergegeben, was zu einer berechneten Magnetisierung von $M = 0$ führen würde. Auch hier wird die Magnetisierung unterschätzt.

Um eine realistischere Abschätzung der feldabhängigen Magnetisierung zu erhalten, kann man sich der Methode der Differenzbilder bedienen. Nach Gl. 2.33 erhält man bei einem Muster isolierter Domänen durch Integration des Kontrastes über die Fläche ein Maß für die abgebildete magnetische Oberflächenladung. Nun haben die oben beschriebenen Differenzbilder durchgehend eine solche Struktur, unabhängig davon, in welchem Feldbereich sie aufgenommen wurden. Das Integral über den Kontrast (mit dem mittleren Untergrundniveau als Referenzniveau) ist dann proportional zur Veränderung der magnetischen Oberflächenladung. Eine Addition aller dieser Veränderungen lässt sich zu einer Hysteresekurve zusammensetzen, deren Kalibrierung durch die Magnetisierung beim Feld der Spitzenummagnetisierung und in Sättigung gegeben ist. Die gefüllten Symbole in Abb. 3.13 zeigen den auf diese Weise gewonnenen Verlauf. Für das Koerzitivfeld $H_c = 75$ mT, das erreichen der Sättigung ($M/M_{\text{sat}} = 0.99$ bei 500 mT) und die Remanenz ($M/M_{\text{sat}} = 0.1$) findet man eine gute Übereinstimmung mit den von Suzuki *et al.* veröffentlichten Werten [107].

3.2.6 Nukleation und Wachstum

Zur Analyse des Nukleations- und Wachstumsverhaltens wurden wiederum die Differenzbilder herangezogen. Jede der so dokumentierten Ummagnetisierungen wurde hinsichtlich ihres scheinbaren Durchmessers und Kontrastes ausgewertet, und es wurde überprüft, welche dieser Prozesse einer Domänen-nukleation oder einem Domänenwachstum zuzuordnen sind. Ein Beispiel ist in Abb. 3.14 dargestellt. Es zeigt zwei Originalbilder des Films, nacheinander aufgenommen bei fallendem Magnetfeld, und das zugehörige Differenzbild. In Bild (a) sind zusätzlich die Umrisse der Veränderungen aus dem Differenzbild eingetragen. Auf diese Weise lassen sich Nukleationsprozesse eindeutig identifizieren, ebenso die Position der Wachstumsprozesse. Es ergibt sich, dass die Endbereiche schon existierender Domänen stark für die Anlagerung bevorzugt sind, was zu der beobachteten Bildung streifenförmiger Domänen führt.

Für abnehmendes Feld zeigt Abb. 3.15 die Zahl der Ummagnetisierungsprozesse, unterteilt nach Nukleation und Wachstum. Insgesamt wurden über 2200 Prozesse beobachtet, nur 100 davon sind Nukleationen zuzuschreiben. Dabei setzen die Wachstumsprozesse nahezu gleichzeitig mit den Nukleationen ein und dominieren unterhalb von 270 mT die Domänenentwicklung. Unter 140 mT wurden keine Nukleationen mehr beobachtet.

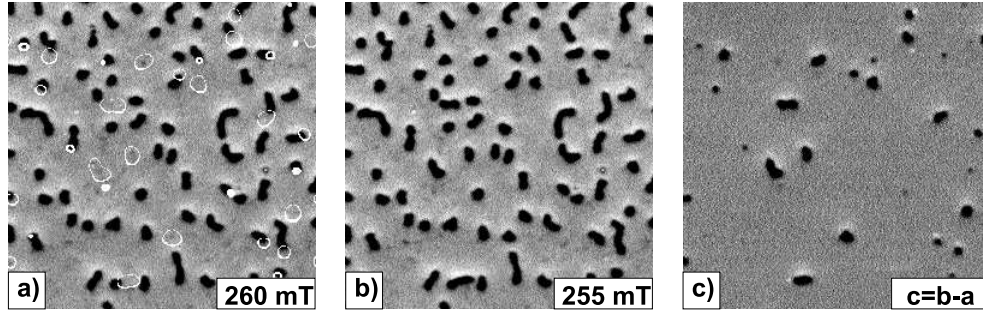


Abbildung 3.14: Identifikation von Wachstums- und Nukleationsprozessen. (a) und (b) zeigen Originalbilder, (c) das Differenzbild. In Bild (a) wurden zusätzlich die Positionen der Veränderungen aus dem Differenzbild gekennzeichnet.

Für die Untersuchung der Größenverteilung der Ummagnetisierungsprozesse wurden wiederum Differenzbilder wie in Abb. 3.14 (c) verwendet. Durch die Faltung des Spitzenstreufeldes mit der magnetischen Struktur der Probe sind die aus diesen Bildern ermittelten Flächen jedoch nicht realistisch. Eine Summation aller schwarzen Kontrastbereiche in den Differenzbildern ergibt bei abnehmenden Feld eine gesamte ummagnetisierte Fläche vom 2.3-fachen der Bildfläche. Eine Remanenz von $M/M_{\text{sat}} = 0.1$ bedeutet aber, dass nur eine Fläche von 45 % ummagnetisiert worden sein kann. Demnach müsste ein Korrekturfaktor von 5.1 eingeführt werden, bei zunehmendem Feld sogar von 6.3, um diesen Fehler zu korrigieren. Diese lineare Korrektur führt aber nicht zu befriedigenden Ergebnissen, da das Verhältnis zwischen abgebildeter und realer Strukturgröße sich wie Gl. A.13, also nichtlinear verhält. Insbesondere wird dadurch das Vorhandensein einer minimalen Strukturgröße vorgetäuscht, die von der Streufeldgeometrie abhängt.

Dieser Effekt kann umgangen werden, indem man den Kontrast, den die einzelnen Ummagnetisierungen verursachen, mit berücksichtigt. Gl. 2.33 zeigt, dass so auf die Veränderung der magnetischen Oberflächenladungsdichte geschlossen werden kann, wenn die einzelnen Prozesse weit genug auseinander liegen. Das ist bis auf wenige Ausnahmen, die vor der Analyse aussortiert wurden, der Fall. In jedem Differenzbild wurden die einzelnen Ummagnetisierungen identifiziert und hinsichtlich ihrer Fläche und ihres Kontrastes einzeln analysiert [109]. Aus dem Integral des Kontrastes über die Fläche (Einheit $\text{Hz} \cdot \text{nm}^2$) und der Summation über alle Prozesse kann nun wieder ein Eichfaktor k_n berechnet werden (Einheit Hz^{-1}). Die korrigierte Fläche A_n wird dann in der Praxis berechnet aus dem Integral über ein Gebiet, dessen Kontrast sich von dem Rauschniveau der Umgebung um einen bestimmten

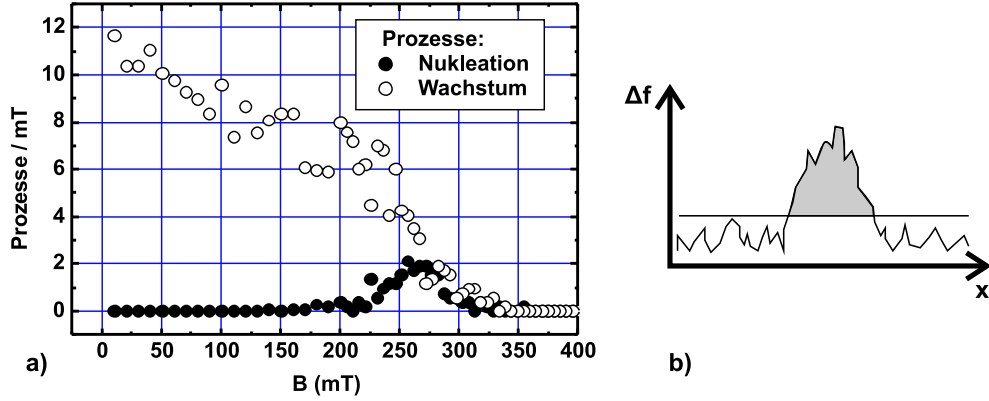


Abbildung 3.15: (a) Anzahl der Ummagnetisierungsprozesse bei abnehmendem Feld, aufgeschlüsselt nach Wachstum und Nukleation. Die Wachstumsprozesse setzen nahezu gleichzeitig mit den Nukleationen ein und dominieren insgesamt die Ummagnetisierung. (b) Zur Berechnung des Kontrastintegrals. Durch das endliche Rauschniveau ergibt sich ein systematischer Fehler.

Mindestbetrag unterscheidet (Abb. 3.15b):

$$A_n = k_n \int \Delta f dA. \quad (3.12)$$

Dieser notwendige Abstand vom Rauschniveau verursacht einen systematischen Fehler, der umso größer ist, je geringer das Signal/Rausch-Verhältnis ausfällt. Bei abnehmendem Feld wurden auf diese Weise 94 % der gesamten Kontraständerung erfasst, bei steigendem jedoch nur 63 %. Der Grund hierfür liegt in der unterschiedlichen Größenverteilung in den beiden Fällen. Deshalb wurden für steigendes und fallendes Feld jeweils gesonderte Eichfaktoren berechnet und im folgenden verwendet.

Die Größenverteilungen von Nukleations- und Wachstumsprozessen unterscheiden sich deutlich voneinander. Abb. 3.16 zeigt alle beobachteten Prozesse bei abnehmendem Feld von Sättigung bis Remanenz, unterteilt in Nukleation und Wachstum. Die Verteilung der Nukleationen kann durch eine Gaußfunktion beschrieben werden. Der mittlere Durchmesser liegt bei 136 nm. Damit zählen die Nukleationsprozesse zu den größten beobachteten. Dieses Verhalten ist Ausdruck der Tatsache, dass es einer Aktivierungsenergie für die Neubildung einer Domäne in einer ansonsten homogen magnetisierten Umgebung bedarf. Diese Energiebarriere, die durch die Kristallanisotropie und die Austauschenergie bestimmt wird, muss überwunden werden, um den Prozess in Gang zu setzen. Dies geschieht durch die Ummagnetisierung eines Anfangsvolumens, des sogenannten Aktivierungsvolumens. Anschließend

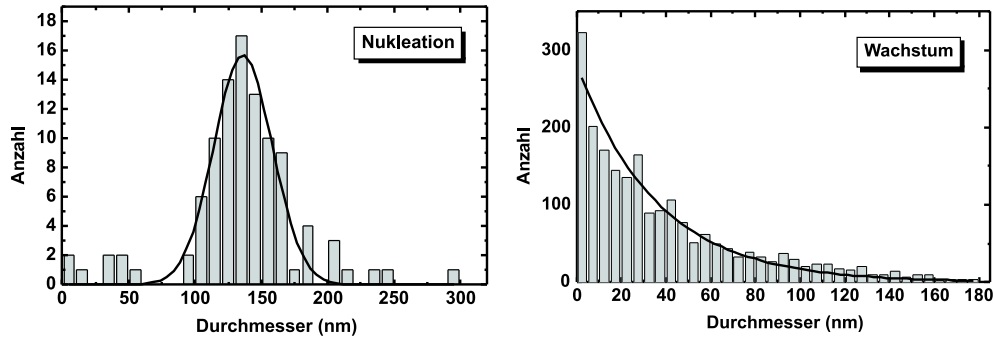


Abbildung 3.16: Größenverteilung der Nukleationen und Wachstumsprozesse bei abnehmendem Feld. Angegeben sind die aus dem integrierten Kontrast berechneten und kalibrierten Durchmesser. Während sich die Größenverteilung bei Nukleation durch eine Gaußverteilung annähern lässt, entspricht die der Wachstumsprozesse eher einem exponentiellen Verlauf.

vergrößert sich das so entstandene Volumen durch Domänenwandverschiebung bis zu einer Größe, die einem neuen metastabilen Zustand entspricht. Energetisch gesehen lohnt sich dieser Vorgang jedoch erst, wenn der Verlust an Energie für den Aufbau einer Domänenwand aufgewogen wird durch den Gewinn an Streufeldenergie, die die treibende Kraft für die Domänenbildung darstellt. So wird qualitativ die Existenz einer Mindestgröße der Nukleation verständlich. Eine einfache Energiebetrachtung soll diesen Effekt verdeutlichen. Für einen Film mit uniaxialer Anisotropie kann eine spezifische Energie γ der Domänenwand aus der Austauschkonstanten A und der Anisotropie K_u berechnet werden [4]:

$$\gamma = 4\sqrt{AK_u} \approx 7.44 \times 10^{-4} \text{ J/m}^2. \quad (3.13)$$

Entsteht nun eine kreisrunde Domäne mit dem Radius R , die durch den gesamten Film der Dicke t geht, so ist damit in grober Näherung eine Domänenwandenergie E_w verbunden:

$$E_w = 2\pi\gamma Rt. \quad (3.14)$$

Dabei ist nicht berücksichtigt, dass auch die Krümmung einer existierenden Wand Energie kostet. Andererseits spürt ein kleines Volumen der Magnetisierung J_s innerhalb des Films ein internes Feld $B_{\text{int}} = B - J_s$. Daraus lässt sich ein Zeeman-artiger magnetostatischer Energiegewinn durch die Drehung der Magnetisierung abschätzen:

$$E_m = 2\frac{\pi}{\mu_0}R^2t\vec{J}_s \cdot (\vec{J}_s - \vec{B}). \quad (3.15)$$

Aus der Bedingung $E_m > E_w$ ergibt sich dann ein minimaler Radius $R_{\min}$ der nukleierten Domäne:

$$R_{\min} = \frac{\mu_0 \gamma}{J_s (J_s - B)}. \quad (3.16)$$

Für eine typische Feldstärke von 270 mT, bei der Nukleation stattfindet, berechnet man einen Minstdurchmesser von ≈ 200 nm, der jedenfalls in der richtigen Größenordnung liegt. Nach diesem Modell würde man in einem Feld, das größer ist, als es der Sättigungsmagnetisierung entspricht (hier 300 mT), keine Nukleation erwarten, was in etwa auch der Fall ist. Zudem schließt eine solche Betrachtung nicht aus, dass die Domänen durch Wandverschiebung weiter wachsen, was deutlich weniger Energie kostet als die Neubildung einer Domänenwand. Ebenso muss berücksichtigt werden, dass es sich bei der Nukleation um einen Nichtgleichgewichtsprozess handelt. Ein Zustand, dessen Energie niedriger liegt als der Ausgangszustand, kann nur dann angenommen werden, wenn die Energielandschaft in Abhängigkeit der magnetischen Konfiguration einen Weg dorthin auch zulässt. Im Allgemeinen liefert die theoretische Behandlung der Nukleation, insbesondere die Berechnung von Nukleationsfeldern keine gute Übereinstimmung mit dem Experiment [110]. Der Grund hierfür sind Defekte wie Fremdatome, Versetzungen, Ränder und Unebenheiten, die in realen Proben immer vorhanden sind. Diese Defekte können die Nukleation lokal extrem erleichtern und auf diese Weise das Verhalten dominieren. In der Tat wurde bei dem hier untersuchten Film gefunden, dass einige Bereiche in mehrfach durchlaufenen Hysteresekurven bevorzugte Orte von Nukleationen sind (Abschn. 3.2.9).

Für die Wachstumsprozesse von Sättigung bis Remanenz zeigt sich im rechten Teil der Abb. 3.16 eine deutlich andere Verteilung. Die durchgezogene Linie kennzeichnet einen exponentiellen Verlauf mit einer Abfalllänge von 36 nm. Die Größe der Wachstumsprozesse kann gleichgesetzt werden mit der Weglänge, die eine existierende Domänenwand dabei zurückgelegt hat. Durch mögliche Inhomogenitäten im Film, beispielsweise durch die in Strukturuntersuchungen gefundenen Bereiche erhöhter Versetzungsdichte, können solche Positionen für die Domänenwand bevorzugt sein. Zwischen ihnen liegt demzufolge eine Energiebarriere, die während der Wandbewegung mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit überwunden wird. Die Anzahl der zu überwindenden Barrieren ist dann im Mittel proportional zur zurückgelegten Weglänge, und die Wahrscheinlichkeit hierfür sinkt exponentiell mit der Weglänge. Solange die Dichte solcher Zentren allerdings nicht bekannt ist, kann auch die Höhe einer solchen Barriere aus dem Kurvenverlauf nicht bestimmt werden.

3.2.7 Barkhausen-Effekt

Wie aus den Differenzbildern zu erkennen ist, besteht die feldabhängige Magnetisierung aus der diskreten Ummagnetisierung voneinander getrennter Gebiete, die entsprechend ihrer Größe eine Veränderung des magnetischen Flusses durch die Probe verursachen. Diese Eigenschaft ist den meisten Ferromagneten gemein und wird Barkhausen-Effekt genannt [111]. Er wird konventionell über Induktion bestimmt: Ein Ferromagnet wird mit einer Spule umwickelt und einem veränderlichen Magnetfeld ausgesetzt. Durch die diskrete magnetische Flussänderung wird in der Spule eine Folge von Spannungspulsen induziert, die in einem Lautsprecher als Knacken hörbar gemacht wird. Die Größe dieser Spannungspulse ist proportional zur Flussänderung und damit zum ummagnetisierten Volumen, dem Barkhausen-Volumen. Geht man bei der hier untersuchten Probe von einer senkrecht zur Filmebene homogenen Magnetisierung aus, so entspricht die Änderung im MFM-Kontrast direkt dem Barkhausen-Volumen und damit der Größe des Spannungspulses im klassischen Induktionsexperiment.

Durch ein veränderliches Magnetfeld wird lokal die Energiebarriere vermindert, bis es in einem Bereich, dem Barkhausen-Volumen, zu einer plötzlichen Ummagnetisierung kommt. Dadurch wird das gesamte System ständig an der Grenze zur Instabilität gehalten. Bak *et al.* [112,113] prägten hierfür den Begriff *self-organized criticality* (SOC). Er besagt, dass ein System durch die langsame Veränderung eines äußeren Parameters sich immer wieder selbst in einen kritischen Zustand bringt, aus dem es durch wiederholte lawinenartige Prozesse für eine gewisse Zeit entkommt. Die Größenverteilung dieser Prozesse ist für den magnetischen Barkhausen-Effekt vielfach untersucht worden [114–118]. Eine ausführliche Diskussion dieser verbreiteten Theorie ist außerhalb des Rahmens dieser Arbeit. Es sei aber bemerkt, dass dieses Phänomen in den verschiedensten Zusammenhängen beobachtet wird, beispielsweise Erdbeben, Wanderdünen, Gleitreibung und der Wanderung von Domänenwänden.

Ein wesentliches Kennzeichen eines solchen SOC-Systems ist eine Größenverteilung $P(F)$ der Einzelprozesse, die über mehrere Größenordnungen einem inversen Potenzgesetz folgt und dann exponentiell abfällt, wobei F die Größe des Prozesses ist, in diesem Fall die Fläche des ummagnetisierten Bereiches:

$$P(F) = P_0 F^{-c} e^{-F/A}. \quad (3.17)$$

Der exponentielle Abfall wird oft mit der endlichen Größe des beobachteten Systems erklärt (*finite size effect*). Abbildung 3.17 zeigt die gemessene Wahrscheinlichkeitsverteilung für die aus den integrierten Kontrasten berechnete Fläche in einer doppelt logarithmischen Auftragung. Sie lässt sich sehr gut

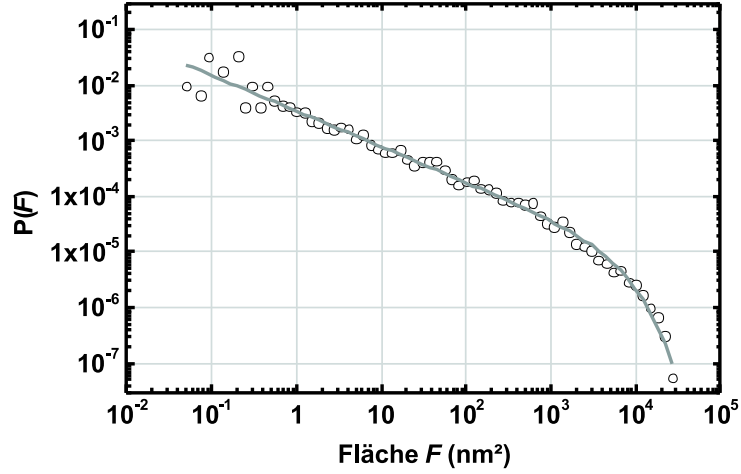


Abbildung 3.17: Gemessene Wahrscheinlichkeitsverteilung der als Domänenwachstum identifizierten Ummagnetisierungsvorgänge bei abnehmendem Feld. Die durchgezogene Linie stellt eine Anpassung an die Daten nach Gl. 3.17 dar. Die Steigung im geraden Bereich ist in der doppelt logarithmischen Auftragung durch den Exponenten $-c$ gegeben. Die große Streuung bei kleinen Flächen ist auf die geringe Zählrate in diesem Bereich zurückzuführen.

durch eine solche Funktion beschreiben. Verwendet wurden wieder die als Domänenwachstum identifizierten Prozesse bei abnehmendem Feld. Da die Fläche sechs Größenordnungen überstreicht, wurden zur Berechnung der Wahrscheinlichkeitsfunktion die gemessenen Flächen logarithmiert ($a \equiv \ln F$) und anschließend ihre relative Häufigkeit $P(a)$ bestimmt. Durch dieses Verfahren verzerrt sich die Skalierung und die Größe der einzelnen Intervalle und damit auch das statistische Gewicht. Um die Anzahl der Prozesse in einem Intervall dF zu bestimmen, muss die Größe $P(F) dF$ berechnet werden. Diese Zahl ist aber unabhängig von der Wahl der Skalierung. Daher muss gelten:

$$P(F) dF = P(a) da. \quad (3.18)$$

Mit

$$dF = \frac{dF}{da} da = e^a da \quad (3.19)$$

folgt daraus

$$P(F) = e^{-a} P(a). \quad (3.20)$$

Mit diesem Faktor muss also die nach dem Logarithmieren erhaltene Verteilungsfunktion multipliziert werden. Diese Darstellung ermöglicht eine gleichmäßigere Besetzung der einzelnen Größenintervalle und damit eine aussagekräftigere Anpassung der Modellfunktion.

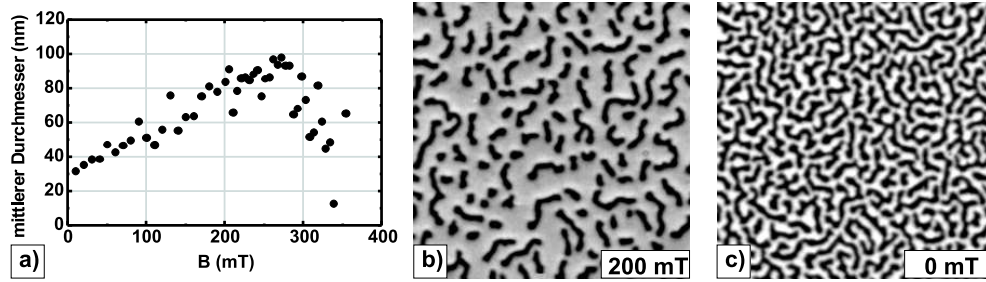


Abbildung 3.18: Mittlerer Durchmesser der Wachstums- und Nukleationsprozesse in abnehmendem Feld, abhängig vom äußeren Magnetfeld. Die Phase unterhalb von 250 mT, in der Domänenwachstum dominiert, ist gekennzeichnet durch eine kontinuierliche Verringerung der Größe. Die Veränderungen von (b) nach (c) erfolgen fast vollständig durch Wachstum.

Die Potenz des Abfalls ergibt sich aus der Steigung des in der logarithmischen Auftragung linearen Teils zu $c = 0.64$ und die Fläche im Exponentialteil zu $A = 6780 \text{ nm}^2$, was einem Durchmesser von 93 nm entspricht. Kleinere Durchmesser sind durch den F^{-c} -Term extrem häufig; die Wachstumsprozesse sind also im Mittel deutlich kleiner. Alessandro [114] modellierte diese Verteilung, indem er die Geschwindigkeit einer sich bewegenden Domänenwand mit einer zufälligen Fluktuation belegte. In diesem Bild ist c umso kleiner und A umso größer, je geringer diese Fluktuationen sind. Für eine kontinuierliche Domänenwandverschiebung wäre $c < 0$, kleine Veränderungen wären dann extrem selten. Ein $c > 0$ bedeutet, dass die Bewegung der Domänenwand immer wieder durch die Fluktuationen unterbrochen wird (*pinning*). Durch den Exponentialterm fällt die Verteilung jenseits von A sehr schnell ab. A bezeichnet deshalb eine typische Fläche und damit auch einen mittleren Durchmesser $D = 2\sqrt{A/\pi}$ der größten vorkommenden Wachstumsprozesse, der in diesem Fall nahe der Domänenbreite in Remanenz (79 nm) liegt, aber noch deutlich kleiner ist als der mittlere Durchmesser nukleierter Domänen.

Für die Bildung der remanenten Domänenkonfiguration ergibt sich folgendes Bild: Nach Sättigung setzt zunächst die Nukleation von Domänen mit einem mittleren Durchmesser von 136 nm ein, begleitet von einer etwa gleichen Anzahl an Wachstumsprozessen. Unterhalb von etwa 270 mT nimmt die Zahl der Nukleationen wieder ab, während die der Wachstumsprozesse weiterhin deutlich zunimmt. In dieser Phase beträgt der mittlere Durchmesser aller Prozesse 80-100 nm, wie aus Abb. 3.18(a) zu sehen ist. Bei etwa 200 mT ist der weitaus größte Teil der Nukleationsprozesse abgeschlossen (Abb. 3.18 b). Die weitere Ummagnetisierung findet durch Wachstumsprozesse statt, deren mittlere Größe sich kontinuierlich verringert und die den

Raum zwischen den existierenden Domänen auffüllen, bis der remanente Zustand erreicht ist.

3.2.8 Zylindrische Domänen

Der Domänenzustand nahe der Sättigung ist charakterisiert durch eine unregelmäßige Verteilung von Domänen mit kreisförmigem Kontrast. Ihr mittlerer scheinbarer Durchmesser und Kontrast unterscheidet sich jedoch deutlich für zunehmendes bzw. abnehmendes Feld. Der Grund hierfür liegt in der unterschiedlichen Vorgeschichte. Bei zunehmendem Feld sind diese Domänen das Ergebnis der Schrumpfung existierender, langgezogener Domänen. In der Folge werden diese durch das zunehmende Feld nach und nach vernichtet. Bei abnehmendem Feld geht diesem Zustand eine Nukleation mit einem typischen Durchmesser voraus, der dann durch Wachstumsprozesse in die beschriebene Streifenbildung mündet.

Da die Domänen in diesem Stadium ausreichend voneinander getrennt sind, lässt sich ihr Durchmesser nach derselben Methode wie in den Differenzbildern unter Berücksichtigung des Kontrastes auswerten. So wurde mit den in Abschn. 3.2.6 erläuterten Eichfaktoren für beide Zweige der Hysterese-Kurve der mittlere Durchmesser bestimmt. Kurz vor Erreichen der Sättigung (Abb. 3.10 b) betrug dieser Durchmesser 48 nm, und nach Einsetzen der Nukleation vor dem Beginn des Längenwachstums (Abb. 3.10 d) 110 nm. Dieser Wert scheint im Widerspruch mit dem oben angegebenen typischen Durchmesser für Nukleation von 136 nm zu stehen. Wenn man jedoch nur die Nukleationen berücksichtigt, die vor Aufnahme des genannten Bildes auch tatsächlich schon stattgefunden haben, liegt der Mittelwert bei 103 nm. Die frisch nukleierten Domänen gehen also bald nach ihrer Entstehung in ein Längenwachstum über.

Die Stabilität solcher runden Domänen wurde u. a. von Thiele [119] untersucht. Er legte seinen Berechnungen einen dünnen Film mit senkrechter Anisotropie und einer spezifischen Domänenwandenergie zu Grunde. Aus einer form- und feldabhängigen Energiebetrachtung leitete er Bedingungen für die Stabilität einer zylinderförmigen Domäne gegen elliptische Deformationen ab. Daraus errechnet sich ein minimaler Durchmesser, bevor die Domäne kollabiert, und ein maximaler Durchmesser, oberhalb dessen sich die Domäne in die Länge zieht. Als Parameter gehen hier das Verhältnis von Domänenwandenergie zur Formanisotropie und die Filmdicke ein. Für die hier behandelte Probe ergibt sich, dass zylinderförmige Domänen mit einem Durchmesser zwischen 45 und 121 nm stabil sein sollten. Diese Werte stehen in guter Übereinstimmung mit den oben gefundenen Abmessungen.

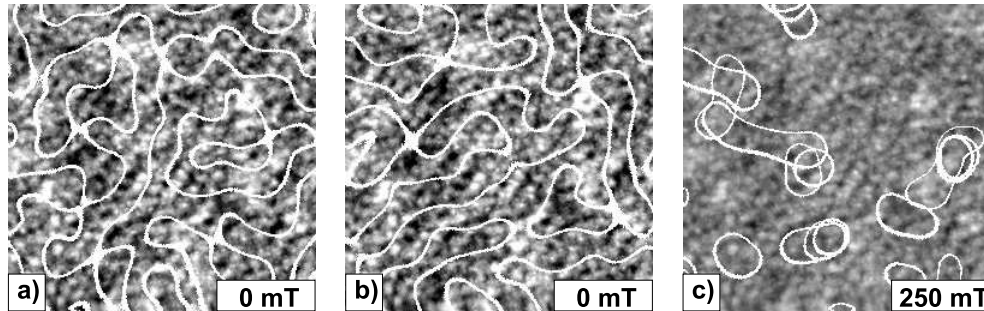


Abbildung 3.19: Konturen verschiedener MFM-Bilder über der zu Grunde liegenden Topographie. (a, b) in Remanenz, (c) Überlagerung aus drei verschiedenen Zyklen bei 250 mT und abnehmendem Feld. Vier Gebiete gehören zu den bevorzugten Orten für Nukleation. Der Bildausschnitt beträgt jeweils $1\ \mu\text{m}$.

3.2.9 Korrelation mit der Topographie

Die in Abschnitt 3.2.1 diskutierte Beobachtung, dass in dünnen LSMO-Filmen eine kolumnare Struktur auftritt und in der topographischen Aufnahme eine Korngröße in derselben Größenordnung gemessen wurde, wirft die Frage auf, ob sich eine Korrelation zwischen der Topographie und der Domänenanordnung feststellen lässt. Um diese Frage zu klären, wurde ein Gebiet ausgewählt, das keine außergewöhnlichen topographischen Besonderheiten aufwies und deshalb repräsentativ für den größten Teil des Films ist. Über diesem Gebiet wurden mehrere Topographiebilder in Sättigung im dynamischen Nichtkontaktmodus aufgenommen und dazwischen mehrere Hystereseschleifen durchfahren. Obwohl diese Zyklen insgesamt mehrere Tage dauerten, war die laterale Drift mit weniger als 10 nm klein sowohl gegen die Korn- als auch die Domänengröße.

Abb. 3.19 zeigt die Konturen verschiedener MFM-Bilder über der Topographie desselben Gebietes. Die MFM-Bilder für (a) und (b) wurden in Remanenz erzeugt. In beiden Fällen ist optisch keine Korrelation zu erkennen. Auch eine Kreuzkorrelation liefert keine Anzeichen für eine direkte Verbindung von Topographie und der Position der Domänenwände. Das gilt auch, wenn man die Konturen von mehreren Remanenzbildern überlagert und mit der Topographie vergleicht. Wie schon im Abschnitt 3.2.1 beschrieben, ist es jedoch nicht zwingend, dass die interne Struktur des Films, die für bevorzugte Domänenwandpositionen verantwortlich wäre, durch die Morphologie der Oberfläche wiedergegeben wird. In Bild (c) sind die Konturen von verschiedenen frisch nukleierten Domänen eingetragen, aufgenommen in MFM-Bildern aus drei Zyklen bei 250 mT. Wiederum zeigt sich keine Korrelation mit der Topographie, aber in vier Gebieten haben in allen drei Fällen Nukleationen

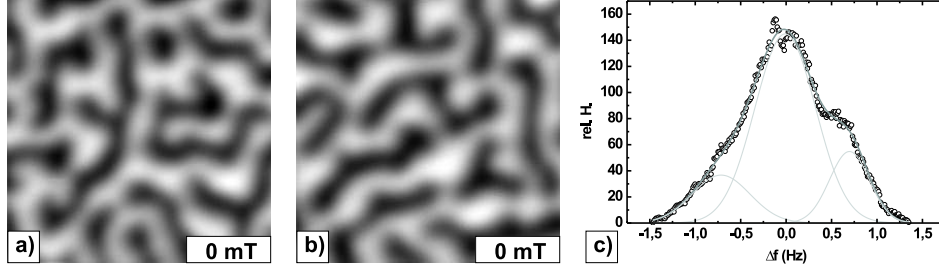


Abbildung 3.20: Originalbilder (a) und (b) desselben Gebietes, aufgenommen in Remanenz vor und nach Sättigung, und (c) Histogramm des Differenzbildes (b-a). Die durchgezogenen Linien sind angepasste Gauß-Verteilungen und entsprechen den drei Niveaus möglicher Veränderungen des Bildkontrastes (s. Text).

stattgefunden. Es gibt also offensichtlich interne Eigenschaften des Films, die eine Nukleation an bestimmten Punkten erleichtern, aber in der Topographie nicht eindeutig zu erkennen sind.

Einen weiteren Anhaltspunkt für die Beeinflussung der Domänenposition durch die Probenstruktur erhält man, wenn man zwei remanente Konfigurationen desselben Gebietes miteinander vergleicht. Erstellt man ein Bild aus der Differenz beider Zustände, so sollten sich drei Niveaus im selben Abstand ergeben: ein mittleres (grau), das alle Bereiche erfasst, die in beiden Bildern den gleichen Kontrast zeigen, ein hohes Niveau (weiß) für Gebiete, die ihre Magnetisierungsrichtung in die parallele Stellung gedreht haben, und ein niedriges (schwarz), das die Veränderungen in den antiparallelen Zustand enthält. Das Histogramm eines solchen Differenzbildes ist in Abb. 3.20 (c) dargestellt. Es ergibt sich aus den beiden Originalbildern (a) und (b). Seien die Anteile der schwarzen bzw. weißen Gebiete $P_s(A)$ bzw. $P_w(A) = 1 - P_s(A)$ in Bild A und analog für Bild B , so sollte der Anteil der Niveaus im Differenzbild sich aus dem Produkt der entsprechenden Wahrscheinlichkeiten ergeben, wenn die Domänenposition zufällig ist:

$$P_+ = P_s(A)P_w(B) \quad (3.21)$$

$$P_0 = P_w(A)P_w(B) + P_s(A)P_s(B) \quad (3.22)$$

$$P_- = P_w(A)P_s(B) \quad (3.23)$$

Diese Werte können auch aus den Flächenanteilen der jeweiligen Gaußverteilungen entnommen werden, die zur Anpassung an die gemessene Verteilung verwendet wurden. Aus den gemessenen Kontrastverteilungen der Originalbilder wäre eine Wahrscheinlichkeit für das mittlere Niveau von $P_0 = 0.50$

zu erwarten. Aus (c) ergibt sich jedoch $P_0 = 0.67$. Der Anteil der Probe, der seine Magnetisierung nach Durchfahren einer halben Hystereseschleife nicht geändert hat, ist deutlich höher, als man nach einer rein zufälligen Verteilung erwarten würde. Auch hier äußert sich der Einfluss der internen Filmstruktur.

3.3 LCMO / LAO

Neben der substratinduzierten Verspannung des Kristallgitters spielt für die magnetischen Eigenschaften der Manganperowskite auch der Austausch über die Sauerstoffatome und damit die magnetische Kopplung zwischen den Manganatomen eine wichtige Rolle. Durch eine gezielte Variation des Sauerstoffanteils während der Herstellung dünner Filme kann dieser Effekt untersucht werden. Im folgenden sollen vier $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_{3-\delta}$ -Filme (LCMO) auf einem LaAlO_3 (001)-Substrat untersucht werden ($\delta \ll 1$ deutet einen variierten Sauerstoffanteil an). Je zwei Filme der Dicken 50 und 100 nm wurden mittels gepulster Laserdeposition bei 750 °C Substrattemperatur und einem Sauerstoff-Partialdruck von 10 mTorr aufgewachsen. Zwei Proben verschiedener Filmdicke wurden anschließend für 30 min bei 600 °C und 500 Torr Sauerstoffatmosphäre ausgeheilt und zwei Proben bei 1 Torr. Auf diese Weise wurden Filme mit optimalem und reduzierten Sauerstoffgehalt produziert [96].

3.3.1 Struktur

Wie bei dem im vorigen Abschnitt behandelten System LSMO/LAO besteht auch zwischen LCMO und LAO eine Gitterfehlanpassung. Gommert *et al.* [120] geben für LCMO/LAO einen Wert von 1 % an ($a_{\text{LAO}} = 382$ pm, $a_{\text{LCMO}} = 386$ pm). Der aufgewachsene Film wird also in der Ebene gestaucht, und der Gitterparameter c senkrecht zur Filmebene dehnt sich auf 392 pm. Andere Veröffentlichungen berichten von $c_{\text{LAO}} = 379$ pm und $c_{\text{LCMO}} = 385 - 388$ pm [105, 121–124], was einer Fehlanpassung von 1.58–2.37 % entspräche. Auch über die Beschaffenheit der Filme gibt es widersprüchliche Angaben. Anders als LSMO, das oberhalb einer Filmdicke von etwa 70 nm zur Bildung einer kolumnaren Struktur neigt, wächst LCMO nach Gommert *et al.* mit guter Epitaxie bis zu einer Dicke von 750 nm in einem kohärent verspannten Film auf [120]. Rao *et al.* [105] dagegen beobachteten, dass der Gitterparameter bereits bei einer Filmdicke von 100 nm den Volumenwert von LCMO angenommen hat. Das spricht dafür, dass sich die Verspannung bei dieser Filmdicke bereits vollständig abgebaut hat. Als

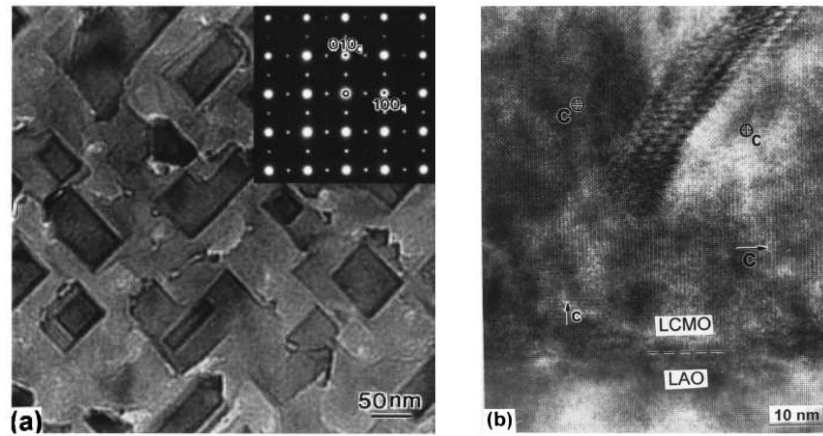


Abbildung 3.21: TEM-Untersuchung eines 170 nm dicken LCMO-Filmes auf LAO (aus [125]). (a) Schnitt parallel zur Filmebene. Die Grenzen zwischen verschiedenen orientierten Domänen laufen parallel zur den (110)-Richtungen des Substrats. (b) Querschnitt durch den Film. Unter 45° zur Senkrechten verläuft eine Wand zwischen zwei c -Achsen-Domänen.

Grund hierfür wird die Bildung von c -Achsen-Domänen angegeben, also kristallinen Bereichen unterschiedlicher Ausrichtung, die entsprechend durch Korngrenzen voneinander getrennt sind. Auch Ziese *et al.* [124] berichten von einem vollständigen Spannungsabbau bei einer Filmdicke von mehr als 28 nm.

Eine umfangreiche Untersuchung der Mikrostruktur eines 170 nm dicken $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ -Films auf LAO wurde von Lu *et al.* [125] veröffentlicht. Röntgenbeugungsexperimente ergaben eine mittlere Zunahme der Gitterkonstante senkrecht zur Filmebene um 3.5 pm und eine Abnahme in der Filmebene um 1.7 pm. Genauere Untersuchungen mit hochauflösender Elektronenmikroskopie (Abb. 3.21) zeigten eine atomar scharfe Grenzfläche zwischen Film und Substrat mit Versetzungen im mittleren Abstand von 28 nm, der größer ist, als ein vollständiger Abbau der Spannungen aufgrund der Gitterfehlanpassung erfordern würde (22 nm). Es besteht daher eine verbleibende Spannung in den höheren Schichten des Films. Ab etwa 25 nm Filmdicke bricht das Material in strukturelle Domänen auf, die eine mittlere Größe von ≈ 100 nm haben. Sie unterscheiden sich in der Ausrichtung der c -Achse des pseudokubischen Gitters. Mit der Ausrichtung dieser Achse kann die Richtung der Streckung der Elementarzelle beschrieben werden. Diese strukturellen Domänen sind getrennt durch etwa 10 nm breite Bereiche veränderter Stöchiometrie ($\text{La}_{0.8}\text{Ca}_{0.2}\text{MnO}_{3.07}$) mit reduziertem Ca- und leicht erhöhtem Sauerstoff-Gehalt. Abb. 3.21(b) zeigt eine solche Domänengrenze im Quer-

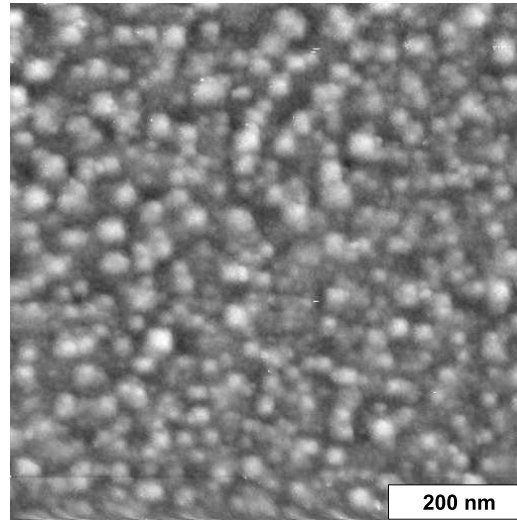


Abbildung 3.22: Topographische Aufnahme des 50 nm dicken Films mit optimalem Sauerstoffgehalt. Parameter: $f_0 = 195$ kHz, $\Delta f = -0.8$ Hz, $A = \pm 5$ nm, $U_{\text{bias}} = +0.4$ V.

schnitt. Ein Schnitt parallel zur Filmebene (a) zeigt eine bevorzugte Ausrichtung in den (110)-Richtungen des Substrates. Aus diesen Beobachtungen lässt sich schließen, dass der Film im Stranski-Krastanov-Modus aufwächst, also anfänglich im Lagenwachstum, das ab 25 nm Dicke durch Inselwachstum abgelöst wird. Innerhalb der sich bildenden Inseln ist ein kleinerer Gitterparameter, der dem Substrat ähnlicher ist, günstig. Das kann durch einen erhöhten Anteil der kleineren Ca-Ionen anstelle der La-Ionen geschehen, die dann zwischen den Inselkeimen eingelagert werden. Auch eine Reduktion des Sauerstoffgehaltes innerhalb der Inseln hat einen solchen Effekt. Die typische Oberflächenmorphologie der hier untersuchten Filme ist in Abb. 3.22 anhand des 50 nm dicken Films mit optimalem Sauerstoffgehalt (50opt) dargestellt. Es wurde eine rms-Rauigkeit von 1.1 nm bei einer mittleren Korngröße von (52 ± 5) nm gemessen. Auch hier ist wie bei LSMO ein Zusammenhang mit der internen Struktur der Probe nicht zwingend.

3.3.2 Magnetische Eigenschaften

Das Phasendiagramm für die Volumeneigenschaften von $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ ist in Abb. 3.23 dargestellt [126]. Es enthält zahlreiche Phasenübergänge von paramagnetisch zu ferromagnetisch oder antiferromagnetisch und von metallisch zu isolierend. Für die hier untersuchte Ca-Konzentration von $x = 0.3$ erwartet man einen Phasenübergang von paramagnetisch zu ferromagnetisch

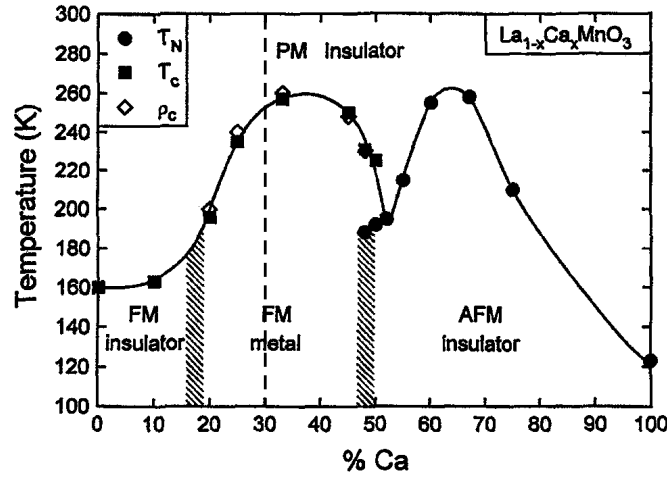


Abbildung 3.23: Phasendiagramm von $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$ Volumenmaterial, entnommen aus [126]. Die Ca-Konzentration der hier untersuchten dünnen Filme beträgt $x = 0.3$. Bei etwa 255 K erwartet man einen Übergang von ferromagnetisch (FM) zu paramagnetisch (PM). Bei höheren Konzentrationen existiert auch eine antiferromagnetische Phase (AFM).

bei einer Curie-Temperatur von $T_c = 255$ K. Die durchgeführten MFM-Messungen fanden bei 5.2 K statt, also im ferromagnetischen, metallischen Bereich.

Wächst man LCMO auf ein Substrat wie LAO mit kleinerer Gitterkonstante auf, so wird durch die Stauchung der Elementarzelle in der Filmebene und eine Dehnung senkrecht zu ihr eine Anisotropie senkrecht zur Filmebene induziert. Für 25-50 nm dicke Filme schwanken die Angaben von $K_u = 1.2 - 2 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ [127,128]. Mit Magnetkraftmikroskopie ist zuerst der Fall einer Fehlanpassung mit umgekehrtem Vorzeichen auf STO untersucht worden [129]. Der Film wird in diesem Fall in der Ebene gedehnt, wodurch sowohl Form- als auch substratinduzierte Anisotropie in der Filmebene liegen. Aufgrund des MFM-Kontrastmechanismus (s. Abschn. 2.4.2) ist die Interpretation der Bilddaten in dieser Konfiguration deutlich schwieriger, da magnetische Ladungen nur an den Domänenwänden auftreten. Entsprechende Versuche auf LAO führten zu Ergebnissen, die nicht in Übereinstimmung mit den hier vorgestellten Daten stehen [130].

Zum Einfluss des Sauerstoffgehaltes und eines Ausheilens der frisch präparierten Proben in einer Sauerstoffatmosphäre wird berichtet, dass ausgeheilte Filme gegenüber nicht nachbehandelten eine höhere Curie-Temperatur aufweisen [131,132]. Diese Beobachtung wird bei den hier untersuchten Proben bestätigt. Abb. 3.24 zeigt den elektrischen Widerstand sowie die Magnetisie-

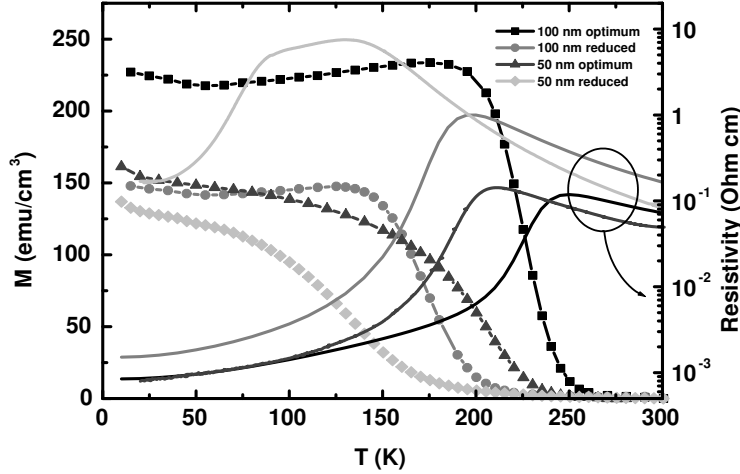


Abbildung 3.24: Temperaturabhängiger Widerstand und Magnetisierung in einem äußeren Feld von 100 mT. Die Curie-Temperatur und die des Metall-Isolator-Übergangs sind korreliert und steigen mit zunehmender Schichtdicke und Sauerstoffgehalt. Wegen des geringen äußeren Feldes wird die Sättigungsmagnetisierung nicht erreicht.

nung in einem äußeren Feld von 100 mT als Funktion der Temperatur.² Wegen des geringen Feldes erreicht die Magnetisierung nicht ihren Sättigungswert. Dieser liegt auch für dünne Filme bei $J_s \approx 650$ mT [124, 126]. Wie aus dem Phasendiagramm zu erwarten, sind auch bei den vorliegenden dünnen Filmen die Temperaturen des elektrischen und des magnetischen Übergangs gekoppelt. Beide steigen mit zunehmender Schichtdicke und zunehmendem Sauerstoffgehalt. Allerdings sind alle Übergangstemperaturen gegenüber dem Volumenwert deutlich abgesenkt. Dieses Verhalten kann erklärt werden, wenn man sich vor Augen hält, dass bei abnehmender Filmdicke der Effekt der Verspannung immer bedeutsamer wird. Diese Verspannung wirkt über den Jahn-Teller-Effekt auch auf die elektronischen Zustände, die für den Doppelaustausch zwischen den Manganatomen als Träger der magnetischen Momente verantwortlich sind, und führt zu einer stärkeren Lokalisierung dieser Elektronen [125]. Ein reduzierter Austausch senkt aber die Curie-Temperatur ab. Ein ähnlicher Effekt gilt auch für die Rolle des Sauerstoffs: Da der Doppelaustausch über die Mn-O-Mn-Bindungorbitale verläuft, führt ein reduzierter

²Diese Messungen wurden an der Seoul National University durchgeführt [96]. Die Leitfähigkeit wurde mit einer Vierpunktmessung bestimmt, für die Messung der Magnetisierung wurde ein SQUID-Magnetometer verwendet.

Messgröße	100opt	100def	50opt	50def
T_C in K	240	195	225	155
$K(h)$ in mHz (nm)	191 (31)	135 (26)	270/95 (14)	84 (20)
w_{th} in nm	85	73	50/45	63
w_c in nm	109	94	72/65	87
$\mu_0 H_c$ in mT	205	180	170	130
B_{sat} in mT	600	600	580/500	580
B_{nuc} in mT	600	600	400/330	400

Tabelle 3.1: Charakteristische Daten der vier untersuchten LCMO-Filme. T_C Curie-Temperatur, w_{th} Domänenbreite und K Kontrast (Frequenzverschiebung) nach thermischer Demagnetisierung, h Scanhöhe, w_c Domänenbreite im Koerzitivfeld H_c , B_{sat} Sättigungsfeld, B_{nuc} Nukleationsfeld. Probe 100opt wurde mit einem anderen Cantilever abgebildet als die übrigen. Die beiden Werte für 50opt geben die Parameter für die unterschiedlichen Kontrastgebiete wieder.

Sauerstoffanteil zwangsläufig zu einem erschwerten Austausch und wiederum zu einer Absenkung der Curie-Temperatur.

3.3.3 Domänenstruktur im Nullfeld

Die vier Filme einer Dicke von 50 und 100 nm mit optimalem und defizitärem Sauerstoffanteil sollen nachfolgend als 100opt, 100def, 50opt und 50def bezeichnet werden. Die Domänenstruktur wurde bei 5.2 K im thermisch demagnetisierten Zustand und nach Anlegen eines Sättigungsfeldes senkrecht zur Filmebene untersucht. Die Curie-Temperaturen, abgeleitet aus dem Punkt größter Steigung der $M(T)$ -Kurve, sind zusammen mit charakteristischen Domänenbreiten in Tab. 3.1 zusammengefasst. Da T_C in allen Fällen deutlich unterhalb der Raumtemperatur liegt, sind die Filme nach dem Einsetzen ins Mikroskop thermisch demagnetisiert.

Die Domänenstruktur in diesem Zustand ist in Abb. 3.25 jeweils für ein $2 \times 2 \mu\text{m}^2$ großes Gebiet dargestellt. Ähnlich wie bei LSMO ist ein eindeutiger Domänenkontrast zu sehen, wie er bei senkrechter Anisotropie zu erwarten ist. Für alle vier Proben wird qualitativ dasselbe Verhalten beobachtet. Der 50 nm-Film mit optimalem Sauerstoffgehalt zerfällt jedoch in zwei Bereiche mit deutlich verschiedenem Kontrast. Die Grenze zwischen diesen Bereichen ist in Bild (c) durch die weiße Linie gekennzeichnet. Die Ursache für diese Zweiteilung ist unklar, dürfte aber in Inhomogenitäten während des Wachstumsprozesses liegen. Bei dieser Probe wurden Domänenbreiten und Kontraste für beide Gebiete getrennt bestimmt. Wie bei LSMO/LAO wird bei

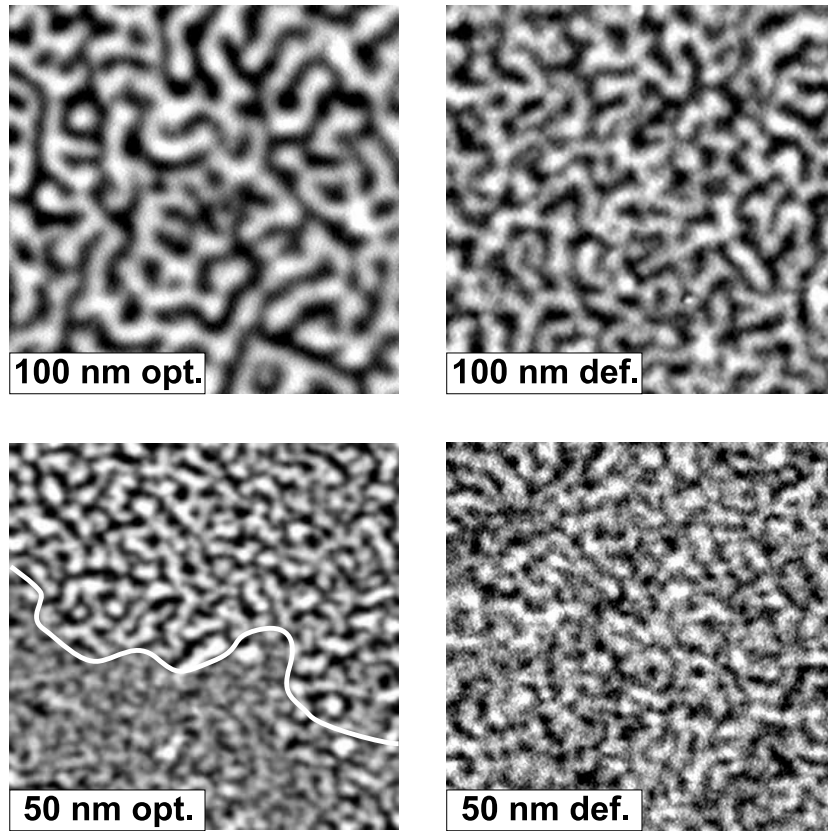


Abbildung 3.25: Domänenstruktur aller vier LCMO-Filme im thermisch demagnetisierten Zustand. Die Probe 50opt ist in Regionen mit zwei verschiedenen Kontrasten und leicht verschiedenen Domänenbreiten unterteilt (weiße Linie). Wegen unterschiedlicher Cantilever und Scanhöhen ist der Kontrast nicht direkt vergleichbar. Bildgröße $2 \times 2 \mu\text{m}^2$.

allen Filmen eine mäanderförmige Domänenstruktur beobachtet, die in der Ebene keine Vorzugsrichtung zeigt. Zur Bestimmung der Domänenbreiten wurde die in Abschnitt 2.7.4 vorgestellte stereologische Methode verwendet. Die Ergebnisse finden sich in Tab. 3.1. Der Fehler in der Angabe der Domänenbreite liegt bei 6-10 nm. Es wird jedoch deutlich, dass die Domänenbreite mit abnehmender Filmdicke ebenfalls geringer wird.

Diese Abhängigkeit von der Filmdicke kann erklärt werden, wenn man berücksichtigt, dass sich das Domänenmuster nach thermischer Demagnetisierung aus einer Minimierung der Gesamtenergie ergibt. Bei gleicher Filmbeschaffenheit und gleicher Domänenverteilung ist die Energie eines dickeren Films wegen der insgesamt größeren Fläche der Domänenwände höher. Daher ist es für einen solchen Film energetisch günstiger, größere Domänen zu

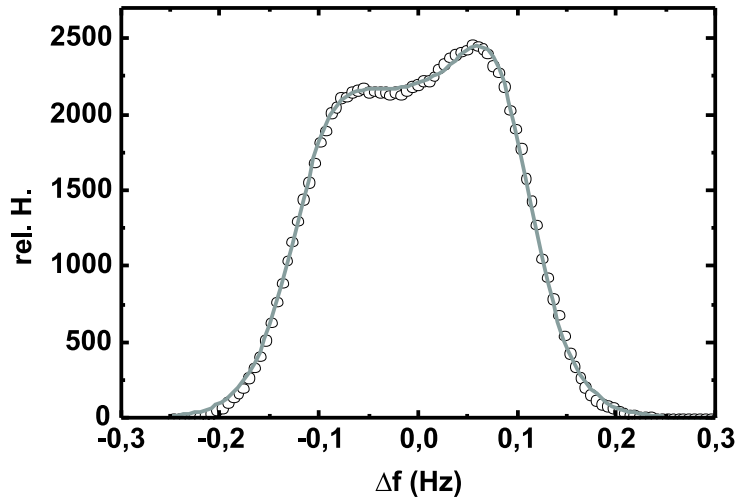


Abbildung 3.26: Histogramm zur Kontrastauswertung, gemessen auf Probe 100opt nach thermischer Demagnetisierung. Die Asymmetrie deutet auf eine leichte Beeinflussung durch die Spitze hin. In den Histogrammen der anderen Proben sind die beiden Maxima nicht zu trennen.

bilden.

Die Abhängigkeit vom Sauerstoffgehalt ist nicht eindeutig. Während bei den 100 nm dicken Filmen die Domänenbreite mit dem Sauerstoffanteil steigt, sind die Verhältnisse bei den 50 nm-Filmen umgekehrt. Die schon erwähnte Inhomogenität der 50opt-Probe äußert sich möglicherweise auch in einem lokal veränderlichen Sauerstoffanteil. Theoretisch sollte man erwarten, dass ein reduzierter Sauerstoffanteil die Austauschwechselwirkung über die Mn-O-Mn Bindungorbitale behindert und damit die Austauschenergie reduziert. Damit würde sich die spezifische Domänenwandenergie verringern und längere Domänenwände, d. h. kleinere mittlere Domänenbreiten, begünstigen.

Die Beurteilung des Kontrastes gestaltet sich deutlich schwieriger als bei LSMO. Neben einer größeren Rauigkeit der Oberflächen ist der Domänenkontrast im Mittel geringer. Abb. 3.26 zeigt das Histogramm für den 100opt-Film im thermisch demagnetisierten Zustand. Die leichte Asymmetrie der beiden Maxima deutet auf einen geringen Einfluss der Spitze hin, der aber anders als bei LSMO aus Differenzbildern vor und nach dem Spitzenumklapp nicht zu erkennen ist. Die Histogramme der übrigen Filme zeigen diese deutlich voneinander getrennten Maxima nicht. Da die vier Proben mit verschiedenen Cantilevern und wegen der Oberflächenrauigkeit auch in unterschiedlichen Abständen abgebildet wurden, sind die gemessenen Kontraste nur bedingt vergleichbar. Dennoch kann festgestellt werden, dass die Filme mit optima-

lem Sauerstoffgehalt einen höheren Kontrast zeigen (Tab. 3.1), auch unter Berücksichtigung des Abstands und der Periodizität (Abschnitt 2.7.4). Da aber die Dichte der magnetischen Momente nicht von der Sauerstoffkonzentration abhängig sein sollte, kann man schließen, dass die Ausrichtung der Magnetisierung senkrecht zur Filmebene bei reduziertem Sauerstoff weniger ausgeprägt ist. Dies wäre denkbar, wenn man annimmt, dass durch die Sauerstoff-Fehlstellen der Gitterparameter verringert wird und die interne Verspannung des Films abnimmt, was wiederum die Anisotropie reduzieren würde. Ebenso würde ein verringerter Sauerstoffanteil die magnetische Kopplung behindern und damit auch die einheitliche Ausrichtung der einzelnen Momente stören. Weitere Belege für diese Vermutung können jedoch nicht angeführt werden.

3.3.4 Feldabhängige Untersuchungen

Für alle vier Proben wurden feldabhängige Messungen durchgeführt, indem das Magnetfeld kontinuierlich innerhalb von etwa 22 h von 0 bis 800 mT (600 mT für die 50 nm-Filme) und wieder zurück auf 0 mT gefahren wurde. Dabei wurden fortlaufend MFM-Bilder desselben Gebietes aufgenommen. Die Geschwindigkeit der Feldveränderung wurde so eingestellt, dass jedes Bild einen Bereich von 5-15 mT abdeckt. Auf diese Weise entstanden vier filmartige Sequenzen aus ca. 150 Bildern, die je eine Hälfte der Hystereseschleife abbilden.

Der geringere Kontrast und die rauere Topographie auf LCMO verhindert eine ähnlich detaillierte Analyse wie im vorigen Abschnitt im Hinblick auf eine flächenmäßige Auswertung der Bilder. Da sich die Proben qualitativ gleich verhielten, werden im folgenden exemplarisch Bilder des 100opt-Filmes gezeigt, der den stärksten Kontrast produzierte. Das während der Sättigung aufgenommene Bild wurde von den übrigen Bildern der Sequenz subtrahiert, um den magnetischen Kontrast gegenüber dem topographischen Anteil zu verstärken. Abb. 3.27 zeigt einige Bilder dieser Sequenz. Zu erkennen ist bei steigendem Feld ein Schrumpfungsprozess der mäanderförmigen Domänen zu einer Verteilung von kreisförmigen Domänen die bis zum Erreichen der Sättigung einzeln vernichtet werden. Nach Sättigung bei abnehmendem Feld beginnt die Nukleation von Domänen mit kreisförmigem Kontrast. Sie setzt bei den 100 nm-Filmen bei etwa 600 mT und bei den 50 nm-Filmen bei etwa 400 mT ein. Anlagerungen an schon vorhandene Domänen treten vorwiegend an deren Enden auf, insgesamt sind sie aber seltener als bei LSMO, so dass das Domänenmuster in Remanenz weniger zusammenhängend erscheint.

Aus der Auswertung der Histogramme des 100opt-Films konnte nach Subtraktion des Sättigungsbildes und Anpassung einer Funktion nach Gl. 3.9 aus

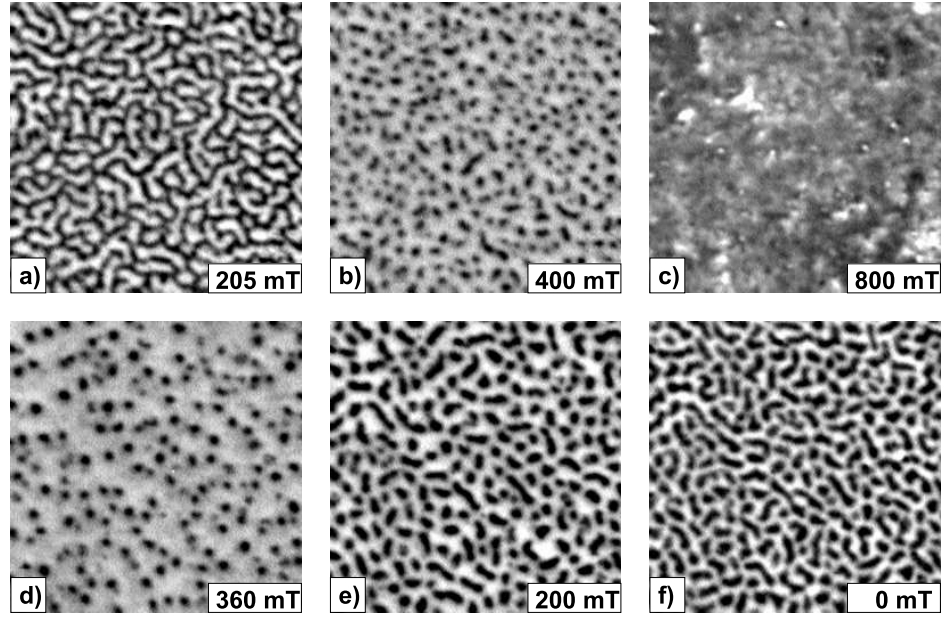


Abbildung 3.27: Feldabhängige Domänenstruktur von 100 nm LCMO / LAO desselben Gebietes. Das Sättigungsbild (c) wurde von den übrigen subtrahiert, um den magnetischen Kontrast gegenüber dem topographischen zu betonen. (a) und (b) wurden bei steigendem Magnetfeld aufgenommen, (d-f) bei fallendem. Parameter: Bildbereich $4 \times 4 \mu\text{m}^2$, Aufnahmehöhe $h = 30 \text{ nm}$, $f_0 = 193 \text{ kHz}$, $A_0 = \pm 5 \text{ nm}$, $U_{\text{bias}} = +1.21 \text{ V}$, Fe $5 \text{ nm } 20^\circ$.

den Fitparametern die Magnetisierung in Einheiten der Sättigungsmagnetisierung zu einer Hysteresekurve zusammengesetzt werden (Abb. 3.28). Aus ihrem Verlauf kann man das Koerzitivfeld zu etwa 200 mT abschätzen. Für die anderen Filme sind die entsprechenden Werte in Tab. 3.1 zusammengestellt. Aufgrund des insgesamt geringen Kontrastes beträgt der Fehler jedoch einige 10 mT. Die Aufnahmen bei diesen Feldstärken wurden zur Bestimmung der Domänenbreite verwendet, um den Vergleich mit dem thermisch demagnetisierten Zustand ziehen zu können (Tab. 3.1). In allen Fällen ist die Domänenbreite im Koerzitivfeld um 30-40 % angestiegen, wobei die relativen Verhältnisse untereinander gleich blieben. Mögliche Begründungen für die Vergrößerung der Domänenbreite wurden schon im Zusammenhang mit LSMO diskutiert (Abschn. 3.2.3).

Zur Untersuchung der Domänenbildung wurde auch hier die Methode der Differenzbilder angewandt. Die Ergebnisse werden im folgenden anhand des 100opt-Filmes dargelegt. Im Vergleich mit LSMO fällt schon bei der Betrachtung der Bilder in Remanenz eine weniger zusammenhängende Domänenverteilung auf. In beiden Fällen werden nukleierte und gewachsene

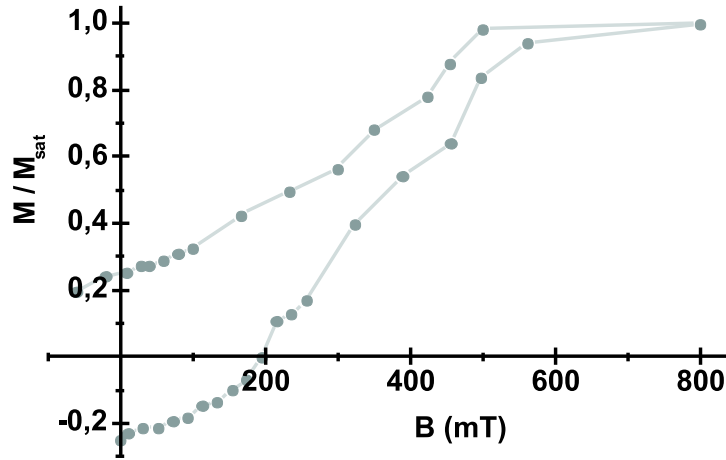


Abbildung 3.28: Hysteresekurve des 100 nm-Films mit optimalem Sauerstoffgehalt. Die Werte für die Magnetisierung wurden aus den Histogrammen der Einzelbilder nach Anpassung einer Fitfunktion (Gl. 3.9) gewonnen.

(dunkle) Bereiche von durchgehenden hellen umschlossen, so dass es auf hellem Niveau mehrere Pfade über den gesamten Bildbereich gibt, auf dunklem Niveau jedoch nicht. Der Grad der Untergliederung kann beurteilt werden, indem man die Zahl der zusammenhängenden dunklen Gebiete auf einer Fläche auswertet, die als Kantenlänge beispielsweise die 10fache Domänenbreite hat. Dieses Maß beurteilt nur die Form des Domänenmusters und nicht die absolute Domänengröße. Der so erhaltene Wert beträgt für LSMO 5 und für LCMO 14. Domänenwachstum spielt also bei LCMO eine sehr viel geringere Rolle. Hier dominiert vielmehr die eher zufällige Ummagnetisierung isolierter Bereiche.

Analysiert man die Größe der ummagnetisierten Bereiche in den Differenzbildern, so erhält man unabhängig vom betrachteten Feldbereich einen mittleren Durchmesser von (108 ± 11) nm. Berücksichtigt man die vergrößerte Abbildung isolierter Gebiete nach Gl. A.13 mit einem Spitzenstreufeld von 37 nm Durchmesser (Abb. 2.18), so ergibt sich immer noch ein Durchmesser von 101 nm. Eine genauere Auswertung unter Verwendung der Kontraste analog zum Vorgehen bei LSMO war aufgrund des schlechteren Signal/Rausch-Verhältnisses nicht möglich. Die Domänenbreite in Remanenz entspricht mit 109 nm sehr gut diesem Wert. Ebenfalls ist dieser typische Durchmesser sehr gut verträglich mit der mittleren Größe der *c*-Achsen-Domänen, die von Lu *et al.* [125] beobachtet wurden. Da die Zusammensetzung des Materials vom Zentrum einer solchen Domäne zum Rand hin variiert, kann man auch davon ausgehen, dass die Stärke der Austauschwechselwirkung mit derselben Periode moduliert wird.

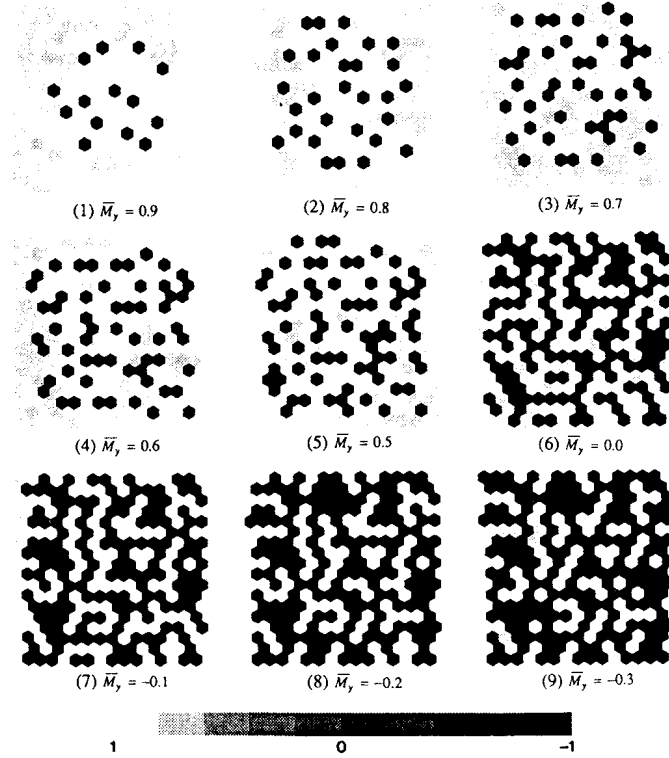


Abbildung 3.29: Verschiedene Gleichgewichtsstadien der Magnetisierung eines kolumnaren Films in einem äußeren Feld. Zwischen den einzelnen Kolumnen wurde keine Austauschkopplung angenommen (aus [133]).

Simulationen zum Verhalten eines solchen Materials haben Zhu *et al.* [133] veröffentlicht. Sie betrachteten einen dünnen Film aus kolumnarem Material, der aus einer regelmäßigen Anordnung von senkrecht zur Filmebene durchgehenden Segmenten konstanter uniaxialer Anisotropie besteht. Die Richtung dieser Anisotropie wurde zwischen den einzelnen Kolumnen um wenige Grad zufällig verkippt. Zwischen den Segmenten wurde zunächst eine verschwindende Austauschkopplung angenommen. Die Segmente selbst sollten eine homogene Magnetisierung besitzen. Abb. 3.29 zeigt die so erhaltene Domänenformation bei verschiedenen makroskopischen Magnetisierungen. Charakteristisch ist das zufällige, vollständige Umklappen einzelner Bereiche, die mehr oder weniger gleichmäßig über den Film verteilt sind. Oberhalb einer bestimmten Domänenendichte ergeben sich auch Prozesse, die wie ein Domänenwachstum aussehen, aber tatsächlich nur zufällig in der Nachbarschaft einer schon existierenden Domäne auftreten. Bevorzugt sind

hier eher Gebiete in einiger Entfernung von solchen Domänen oder zumindest die Bildung länglicher Strukturen. Auf diese Weise kann das Streufeld bei einer gegebenen makroskopischen Magnetisierung am effektivsten reduziert werden. Hier handelt es sich nicht um ein Domänenwachstum im eigentlichen Sinne, da keine Domänenwand durch den Film hindurch geschoben wird, sondern isolierte Kolumnen kohärent rotieren. Wird nun eine geringe Austauschkopplung hinzu genommen, sind in das Umklappen eines einzelnen Segments mehrere benachbarte involviert, und die Wahrscheinlichkeit steigt, dass bei einem solchen Vorgang auch umliegende Gebiete mitgerissen werden. In diesem Fall bilden mehrere zusammenhängende Kolumnen eine Domäne, und die mittlere Größe der ummagnetisierten Bereiche nimmt zu. Wachstumsprozesse werden wegen der Domänenwandenergie wahrscheinlicher, jedoch dominiert dennoch die Nukleation über die Domänenbildung. Durch dieses Modell kann das Verhalten qualitativ gut beschrieben werden und erhärtet die These, dass die Körnigkeit solcher Materialien einen wichtigen Beitrag zu den magnetischen Eigenschaften liefert.

Kapitel 4

Supraleiter

4.1 Einleitung

Das Phänomen der Supraleitung wurde 1911 durch Heike Kamerlingh Onnes an hochreinem Quecksilber entdeckt [134], drei Jahre nach der ersten erfolgreichen Verflüssigung von Helium. Erwartet wurde, dass der elektrische Widerstand eines Metalls bei tiefen Temperaturen von wenigen Kelvin gegen einen Restwiderstand streben sollte, dessen Wert vom Reinheitsgrad des Metalls abhängen sollte. Onnes fand jedoch bei 4.2 K einen abrupten Abfall des Widerstands unter die Messgrenze innerhalb weniger hundertstel Kelvin. Einmal in einem Supraleiter hervorgerufene Ströme wurden über Jahre hinweg beobachtet, ohne dass eine messbare Änderung des von ihnen produzierten Feldes nachgewiesen werden konnte. Dieser Effekt ist die Voraussetzung für die Herstellung von Hochfeldmagneten wie er auch in der in dieser Arbeit verwendeten Apparatur betrieben wird.

Der zweite bedeutende Effekt der Supraleitung ist der perfekte Diamagnetismus, der 1933 durch Meissner und Ochsenfeld [135] gefunden wurde. Er besagt, dass es bei sogenannten Typ-I-Supraleitern nicht nur unmöglich ist, ein Magnetfeld von außen eindringen zu lassen. Das wäre wegen der Induktion auch von einem perfekten Leiter zu erwarten. Kühlt man einen solchen Supraleiter im Magnetfeld unter die Sprungtemperatur T_C , bei der er seinen elektrischen Widerstand verliert, so wird das Feld durch die Bildung von Abschirmströmen in einer dünnen Oberflächenschicht aus dem Supraleiter herausgedrängt (*Meissner-Effekt*). Oberhalb eines kritischen Feldes H_C wird der supraleitende Zustand zerstört. Zum Typ-I gehören alle Elementsupraleiter mit Ausnahme von Niob. Ihre Sprungtemperaturen liegen durchweg unter 10 K.

Bei einer zweiten Art von Supraleitern, Typ-II genannt, ist das Eindrin-

gen des Magnetfeldes in Form sogenannter Flussschläuche (*Vortices*) möglich, ohne dass die Supraleitung zusammenbricht (*Shubnikov-Phase*). Diese Folgerung aus der Lösung phänomenologischer Gleichungen, der Ginzburg-Landau-Theorie [136], wurde 1957 von Abrikosov [137] berechnet und 1967 von Eßmann und Träuble [138] mittels Bitter-Technik erstmals beobachtet. Zum Typ-II zählen Niob, Legierungen und die 1986 entdeckten sogenannten Hochtemperatur-Supraleiter [139], teilweise sehr komplexe, zumeist keramische Verbindungen mit Sprungtemperaturen bis 138 K [140].

In diesem Kapitel soll die temperatur- und feldabhängige Abbildung eines Vortex-Gitters auf einem $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ (BSCCO) Einkristall dargelegt werden. Dazu wird zunächst auf die für das Verständnis notwendigen Eigenschaften von Supraleitern eingegangen. Für eine grundlegende Darstellung sei auf die Literatur verwiesen [141, 142].

4.1.1 Grundlegende Eigenschaften

Allen Supraleitern ist gemeinsam, dass ihr elektrischer Widerstand bei Unterschreiten einer kritischen Temperatur T_C verschwindet, während er oberhalb davon einen endlichen Wert besitzt.¹ Mit diesem Übergang ist die Entstehung einer Energielücke E_g verbunden, die mit abnehmender Temperatur gegen einen Wert von $2\Delta \approx 3.5k_B T_C$ strebt. Die Existenz dieser Energielücke wie auch ihr temperaturabhängiger Verlauf werden sehr gut durch die BCS-Theorie von Bardeen, Cooper und Schrieffer [143] beschrieben. Grundlage dieser Theorie ist die Annahme einer schwachen attraktiven Kopplung der Elektronen durch Wechselwirkung mit dem sie umgebenden Kristallgitter. Diese Kopplung führt zu der Bildung von Paaren aus Elektronen mit entgegengesetztem Impuls und Spin (*Cooper-Paare*). Zum Aufbrechen dieser Bindung ist eine Energie der Größe 2Δ notwendig. Die gebildeten Cooper-Paare sind Bosonen und können daher denselben quantenmechanischen Grundzustand makroskopisch besetzen. Ihre Zahl ist ebenfalls temperaturabhängig und geht mit Erreichen der kritischen Temperatur auf Null zurück.

Ein weiterer Parameter, der die Supraleitung begrenzt, ist ein von außen angelegtes Magnetfeld H_C . Ursache hierfür ist der perfekte Diamagnetismus eines Typ-I-Supraleiters, der ein Magnetfeld durch oberflächennahe Abschirmströme vom Probeninneren fernhält. Aus dieser Magnetisierung resultiert eine Differenz der freien Energien des supraleitenden und normalleitenden Zustands um $\mu_0 H_C^2$, die bei zunehmendem Feld den normalleitenden

¹Die kritische Temperatur, auch Sprungtemperatur genannt, soll in diesem Kapitel entsprechend der Konvention mit T_C bezeichnet werden, nicht zu verwechseln mit der Curie-Temperatur in den vorigen Kapiteln.

den Zustand energetisch bevorzugt. Die Temperaturabhängigkeit dieses kritischen Feldes wird für die meisten Supraleiter sehr gut beschrieben durch

$$H_C(T) \approx H_C(0) \left(1 - \left(\frac{T}{T_C} \right)^2 \right). \quad (4.1)$$

Da ein fließender Strom auch ein Magnetfeld produziert, ist mit einem kritischen Feld ein kritischer Strom $I_C \propto H_C$ verbunden, der gleich dem Abschirmstrom beim kritischen Feld ist (*Silsbee-Hypothese*).

Eine phänomenologische Theorie der Supraleitung, die eine gute quantitative Beschreibung der elektromagnetischen Eigenschaften liefert, wurde 1935 von F. und H. London [144] entworfen. Die Tatsache, dass ein Supraleiter einen Leiter mit dem Widerstand Null darstellt, bewirkt eine gleichförmige Beschleunigung der Ladungsträger durch ein elektrisches Feld $\vec{E}$:

$$n_s m \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = n_s e \vec{E}, \quad (4.2)$$

wobei n_s die Zahl der an der Supraleitung beteiligten Ladungsträger, m ihre Masse und e ihre Ladung bezeichnen. Ausgedrückt durch die Stromdichte $\vec{j} = n_s e \vec{v}$, wird daraus die erste Londonsche Gleichung:

$$\frac{\partial \vec{j}}{\partial t} = \frac{n_s e^2}{m} \vec{E}. \quad (4.3)$$

Die zweite Londonsche Gleichung beschreibt den Meissner-Effekt:

$$\nabla \times \vec{j} = -\frac{n_s e^2}{m} \vec{B}, \quad (4.4)$$

denn wegen der ersten Maxwell-Gleichung $\nabla \times \vec{B} = \mu_0 \vec{j}$ im stationären Fall folgt daraus:

$$\nabla^2 \vec{B} = \frac{\mu_0 n_s e^2}{m} \vec{B}. \quad (4.5)$$

Aus dieser Relation ist ersichtlich, dass ein Magnetfeld in die Oberfläche eines Supraleiters eindringt und nach innen exponentiell abfällt. Die Abfalllänge

$$\lambda = \sqrt{\frac{m}{\mu_0 n_s e^2}} \quad (4.6)$$

bezeichnet man als Londonsche Eindringtiefe. Sie ist temperaturabhängig und divergiert bei Annäherung an T_C . Empirisch wird diese Abhängigkeit häufig beschrieben durch

$$\lambda(T) = \frac{\lambda(0)}{\sqrt{1 - (T/T_C)^4}}. \quad (4.7)$$

Für die meisten Element-Supraleiter liegt $\lambda(0)$ bei einigen 10 nm, für viele Hochtemperatur-Supraleiter um eine Größenordnung höher.

Die Londonsche Theorie geht davon aus, dass die Dichte der supraleitenden Ladungsträger über den betrachteten Bereich konstant ist. Zwischenzustände in der Nähe des kritischen Feldes, in denen Grenzflächen zwischen supra- und normalleitenden Bereichen auftreten, werden von ihr nicht erfasst. Für die theoretische Behandlung solcher Effekte muss eine Grenzflächenenergie berücksichtigt werden. Des weiteren legt die Existenz des Meissner-Effektes die Betrachtung der Supraleitung als eine thermodynamische Phase nahe. Unabhängig von der Vorgeschichte, beispielsweise von der Reihenfolge, in der ein Feld angelegt und die Probe unter T_C gekühlt wird, stellt sich derselbe supraleitende Zustand ein. Charakteristisch für eine solche Betrachtung ist ein Ordnungsparameter, dessen Veränderung den Phasenübergang von normal- nach supraleitend beschreibt. Die Ginzburg-Landau-Theorie [136] führt als Ordnungsparameter eine komplexe Pseudowellenfunktion ψ ein, deren Betragsquadrat durch die Dichte der supraleitenden Ladungsträger gegeben ist. Der Übergang zur Supraleitung ohne Magnetfeld äußert sich dann in einem Phasenübergang 2. Ordnung, indem sich der Ordnungsparameter stetig verändert.

Für die Skala der räumlichen Variation von ψ liefert die Theorie eine charakteristische Größe, die temperaturabhängige Kohärenzlänge $\xi(T)$. Die Dichte der supraleitenden Ladungsträger kann sich nicht schneller verändern als auf dieser Skala. Weit entfernt vom Phasenübergang ist ξ identisch mit der mittleren Ausdehnung der Cooper-Paare und nimmt Werte von einigen hundert nm für Elementsupraleiter und von einigen nm für Hochtemperatur-Supraleiter an. Nahe der kritischen Temperatur divergiert ξ wie $1/\sqrt{1 - T/T_C}$. Die Ginzburg-Landau-Theorie liefert dieselbe Abhängigkeit nahe T_C auch für die Kohärenzlänge λ . Eine besondere Bedeutung besitzt der nahezu temperaturunabhängige, dimensionslose Ginzburg-Landau-Parameter

$$\kappa = \lambda/\xi. \quad (4.8)$$

Abrikosov [137] zeigte, dass der Wert $\kappa_c = 1/\sqrt{2}$ zwei sehr verschiedene Typen von Supraleitern unterscheidet. Typ-I-Supraleiter mit $\kappa < \kappa_c$, verdrängen unterhalb des kritischen Feldes ein äußeres Magnetfeld in eine dünne Oberflächenschicht. Beim Überschreiten des kritischen Feldes tritt ein Phasenübergang 1. Ordnung mit einem plötzlichen Zusammenbruch der Supraleitung auf. Für Typ-II-Supraleiter mit $\kappa > \kappa_c$ existieren zwei kritische Felder, H_{c1} und H_{c2} . Ein Phasendiagramm ist in Abb. 4.1 dargestellt. Unterhalb H_{c1} entspricht ihr Verhalten dem des Typs I. Zwischen H_{c1} und H_{c2} dagegen kann das Magnetfeld zum Teil in das Volumen des Supraleiters eindringen

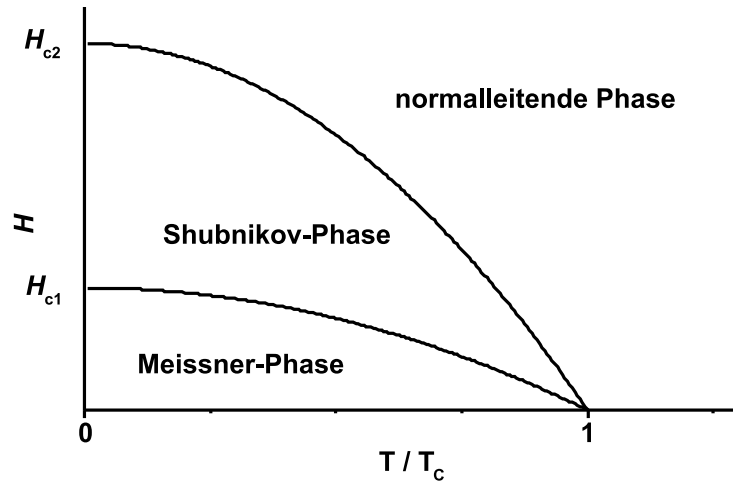


Abbildung 4.1: Schematisches Phasendiagramm eines Typ-II-Supraleiters. In der Shubnikov-Phase kann ein Magnetfeld teilweise in den Supraleiter eindringen. In der Meissner-Phase wird es durch Oberflächenströme abgeschirmt.

(*Shubnikov-Phase*), bis oberhalb von H_{c2} die Supraleitung zusammenbricht.

4.1.2 Typ-II-Supraleiter

Ursache für dieses unterschiedliche Verhalten ist das Vorzeichen der Grenzflächenenergie zwischen supraleitendem und normalleitendem Gebiet. Bei Typ-I-Supraleitern ist dieser Term positiv. Der Aufbau von Grenzflächen ist also energetisch ungünstig. Daher wird ihre Fläche möglichst minimiert und auf eine dünne Oberflächenschicht beschränkt. Bei Typ-II-Supraleitern mit $\kappa > \kappa_c$ dagegen ist das Vorzeichen der Grenzflächenenergie negativ. Durch den Aufbau einer Grenzfläche lässt sich Energie gewinnen, und es tritt eine Zersplitterung in normal- und supraleitende Domänen auf, deren Feinheit nur durch die Kohärenzlänge beschränkt wird, also durch die Tatsache, dass die Konzentration der Cooper-Paare nicht auf kleinerem Raum abnehmen kann, als es ihrer eigenen Ausdehnung entspricht. Dabei kann magnetischer Fluss in den normalleitenden Domänen durch den Supraleiter hindurchtreten. Abrikosov berechnete, dass dies in Form sogenannter Flussschläuche oder Vortices geschieht, die jeder einen magnetischen Fluss von

$$\Phi_0 = \frac{h}{2e} = 2.068 \times 10^{-15} \text{ T} \quad (4.9)$$

tragen und die sich in hinreichend reinen Proben in einem regelmäßigen hexagonalen Gitter, dem Abrikosov-Vortex-Gitter, anordnen. Die Existenz des

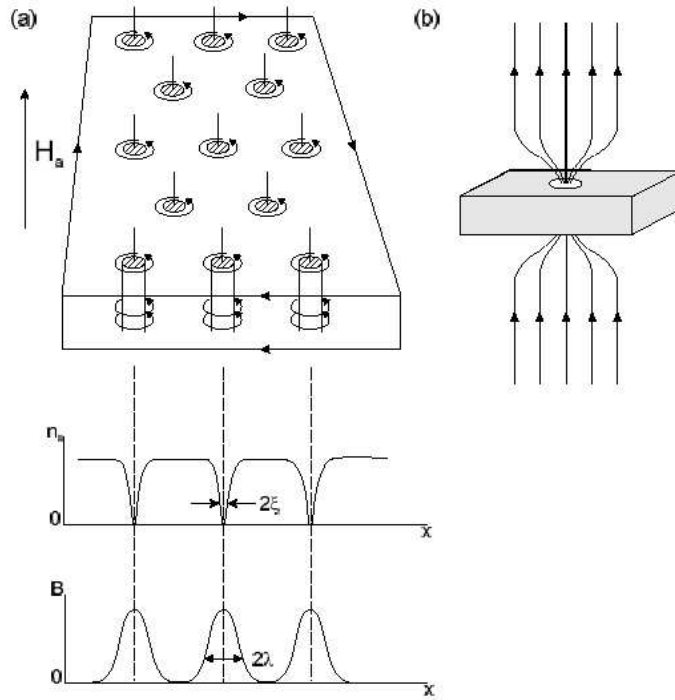


Abbildung 4.2: Shubnikov-Phase eines Typ-II-Supraleiters (aus [146]). (a) Die Kohärenzlänge ξ bestimmt die Ausdehnung der normalleitenden Bereiche, während die Londonsche Eindringtiefe λ die Ausdehnung der Abschirmströme beschreibt. Das Magnetfeld dringt in Form von Vortices in die Probe ein, und die Flusslinien werden auf diese Bereiche eingeschnürt (b).

Abrikosov-Gitters wurde 1967 mittels Bitter-Technik [138] und mittlerweile auch durch Magnetkraftmikroskopie bestätigt [145]. In Abb. 4.2 sind die geometrischen Verhältnisse in einem solchen Gitter dargestellt. Jeder Vortex besteht aus einem normalleitenden Kern, dessen Radius durch die Kohärenzlänge ξ gegeben ist. Um diesen Kern herum fließen Abschirmströme, die den magnetischen Fluss auf den Vortex konzentrieren und die nach außen exponentiell mit der Londonschen Eindringtiefe λ abfallen. Werden Vortices mit Rastertunnelmikroskopie abgebildet, so ist für ihre scheinbare Ausdehnung und den Kontrast die elektronische Struktur, also die Kohärenzlänge und die Energielücke maßgeblich. Für die Magnetkraftmikroskopie ist der Verlauf der magnetischen Flusslinien, insbesondere ihre Einschnürung auf den Radius der Londonschen Eindringtiefe, entscheidend. Dementsprechend ist in Magnetkraftmikroskopie-Bildern ein Vortexdurchmesser von der Größenordnung der Eindringtiefe zu erwarten, bei Rastertunnelmikroskopie nur in der Größe der Kohärenzlänge. Der Abstand a_Δ zwischen benachbarten Vortices

errechnet sich für ein hexagonales Gitter dann direkt aus der Flussdichte B , die durch die Probe hindurchtritt:

$$a_{\Delta} = 1.075 \sqrt{\frac{\Phi_0}{B}}. \quad (4.10)$$

Die kritischen Felder H_{c1} und H_{c2} , zwischen denen die Bildung von Vortices auftritt, können nach der Ginzburg-Landau-Theorie berechnet werden:

$$B_{c1} = \mu_0 H_{c1} = \frac{\Phi_0}{4\pi\lambda^2} (\ln \kappa + 0.5) \quad (4.11)$$

$$B_{c2} = \mu_0 H_{c2} = \frac{\Phi_0}{2\pi\xi^2} \quad (4.12)$$

Sie gelten jedoch nur für lange Proben in einem parallelen Magnetfeld. Für alle anderen Geometrien müssen entsprechende Entmagnetisierungsfaktoren N berücksichtigt werden, die das Feld schon bei einer Stärke $(1 - N)B_{c1}$ eindringen lassen [147]. Für die häufige Geometrie eines dünnen Films in einem senkrechten Magnetfeld ($N \approx 1$) ist deshalb schon bei sehr kleinen Feldern mit dem Auftreten von Vortices zu rechnen.

4.2 Hochtemperatur-Supraleiter

Mit der ersten Beobachtung der Supraleitung bei einer nichtmetallischen Verbindung, La-Ba-Cu-O [139], und einer gegenüber zuvor untersuchten Materialien deutlich erhöhten Sprungtemperatur von 30 K nahm eine rasche Entwicklung ihren Anfang und begründete die neue Materialklasse der Hochtemperatur-Supraleiter (HTSL). Auf der Basis der Kuprate (Kupferoxide) wurde eine Vielzahl von supraleitenden Verbindungen gefunden, darunter auch der derzeitige Rekordhalter $\text{Hg}_{0.8}\text{Tl}_{0.2}\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{8.33}$ mit einer Sprungtemperatur von 138 K, die allesamt dem Typ II angehören. Die außerordentlich hohen Sprungtemperaturen im Vergleich zu konventionellen Supraleitern mögen Zweifel darüber aufkommen lassen, ob grundlegende Theorien wie die von Bardeen, Cooper und Schrieffer über den Mechanismus der Elektronenkoppelung auch hier gültig sind. Es zeigt sich aber, dass viele der für konventionelle Supraleiter entworfenen Modelle auch hier in abgewandelter Form anwendbar sind.

Eine Reihe von Unterschieden sind für HTSL von Bedeutung. So verursacht die komplizierte Kristallstruktur vielfach stark anisotrope Eigenschaften der effektiven Elektronenmassen, der Eindringtiefen, Kohärenzlängen und kritischen Felder. Verantwortlich hierfür sind CuO-Ebenen, die durch schlecht

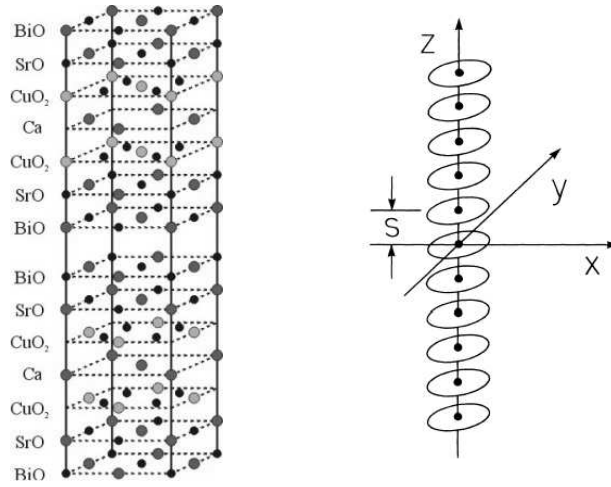


Abbildung 4.3: Kristallstruktur von BSCCO (links). Die Supraleitung wird von den CuO-Doppellagen getragen. Ein Vortex besteht aus einer Kopplung von Ringströmen (*pancakes*) der einzelnen Lagen (rechts).

leitende Oxide der anderen Metalle voneinander getrennt sind. Charakteristisch sind auch sehr geringe Kohärenzlängen von wenigen nm und große Eindringtiefen von mehreren hundert nm, die zu einem Ginzburg-Landau-Parameter $\kappa \gg 1$ führen. Die Anwesenheit von Vortices führt durch Randeffekte und unvermeidbare Defekte selbst in einkristallinen Proben zu komplizierten Abhängigkeiten der Magnetisierung und zu Hysterese. Die Beweglichkeit von Vortices kann bei einem fließenden eingepprägten Strom zu Dissipation führen und damit einen endlichen Widerstand verursachen, obwohl das Material selbst supraleitend ist. Über die Anordnung und Bewegung von Vortices einschließlich sogenannter fester, flüssiger und gasförmiger Phasen wurden umfangreiche Untersuchungen durchgeführt. Eine ausführliche Darstellung der Hochtemperatur-Supraleitung findet sich bei Burns [148]. Das Verhalten von Vortices wird von Brandt [147] in einem Übersichtsartikel diskutiert.

4.2.1 BSCCO

Die supraleitenden Eigenschaften der Verbindung Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ (BSCCO-2212) wurden 1988 von mehreren Gruppen gefunden [149, 150]. Die Sprungtemperatur dieser Substanz wurde durch den Einsatz des Meissner-Effektes bestimmt und liegt bei Werten um 90 K [151]. Die Einheitszelle ist in Abb. 4.3 dargestellt. Die orthorhombische Struktur besteht aus zwei Doppellagen CuO pro Einheitszelle, die die Supraleitung tragen und durch verschiedene

Lagen aus BiO, SrO bzw. Ca getrennt sind. Die Einheitszelle hat eine Höhe (z) von 3.09 nm und eine Ausdehnung in der Kristallebene von 540 pm [151]. Diese lagenartige Struktur führt in Verbindung mit dem im Verhältnis zur Kohärenzlänge großen Abstand zwischen den Doppellagen zu stark anisotropen Eigenschaften des Supraleiters. So unterscheiden sich beispielsweise die Londonschen Eindringtiefen in der Ebene und senkrecht dazu um den Faktor 55 [152]. Für die Eindringtiefe in der Ebene werden Werte um 200 nm angegeben [152–154]. Aus dieser Anisotropie resultiert das Modell der *Pancake-Vortices*, das 1991 von Clem entworfen wurde [155]. Durchtritt ein Vortex den Kristall senkrecht zu den CuO-Ebenen, so bilden sich in jeder Lage Ringströme, die den magnetischen Fluss räumlich auf die Größe der Eindringtiefe begrenzen (Abb. 4.3). Die einzelnen Ringströme der verschiedenen Lagen sind durch eine attraktive Wechselwirkung (Josephson- und elektromagnetische Kopplung) miteinander verbunden, während sich benachbarte Vortices in derselben Lage gegenseitig abstoßen. Neigt man den Vortex durch Anlegen eines zusätzlichen Feldes in der Ebene, fließen die Ringströme nach wie vor in der Kristallebene, nur ihre Zentren verschieben sich gegeneinander. Eine Temperaturerhöhung kann die Kopplung stören oder aufheben, so dass jede Lage aus einer Ansammlung unabhängiger Vortices besteht.

4.2.2 Vortex-Phasendiagramm

Betrachtet man die Effekte des Abrikosov-Gitters und der Anisotropie gemeinsam, so sind in Abhängigkeit von der Temperatur und dem äußeren Magnetfeld, also der Vortexdichte, eine ganze Reihe möglicher Konfigurationen denkbar und auch beobachtet worden. Ein schematischer Überblick soll anhand eines Phasendiagramms gegeben werden (Abb. 4.4). Für geringe Temperaturen $T \ll T_C$ und geringe Felder beobachtet man ein hexagonales Abrikosov-Vortextgitter. Bei Erhöhung der Temperatur sollte dieses Vortextgitter schmelzen und in einen ungeordneten, flüssigen Zustand übergehen.² Diese Auflösung des Gitters ist nahe der Sprungtemperatur mittels *Scanning Hall Probe Microscopy* nachgewiesen worden [157]. Ein eindeutiges Zeichen, dass es sich hierbei um einen Phasenübergang 1. Ordnung handelt, ist die Beobachtung einer latenten Wärme, die sich als scharfes Maximum in der spezifischen Wärme äußert. Dieser Beweis konnte bisher nur für einen verwandten Supraleiter, YBCO ($\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$), erbracht werden, der jedoch einen geringeren Abstand der CuO-Ebenen aufweist, damit eine geringere Anisotropie und keinen Pancake-Charakter der Vortices [158].

²Die Begriffe „fest“, „flüssig“ und „schmelzen“ von Vortextzuständen werden hier als Analogie verwendet. Vortices oder Pancakes wären in dieser Vorstellung Teilchen, die durch ein Magnetfeld unter Druck gesetzt werden könnten.

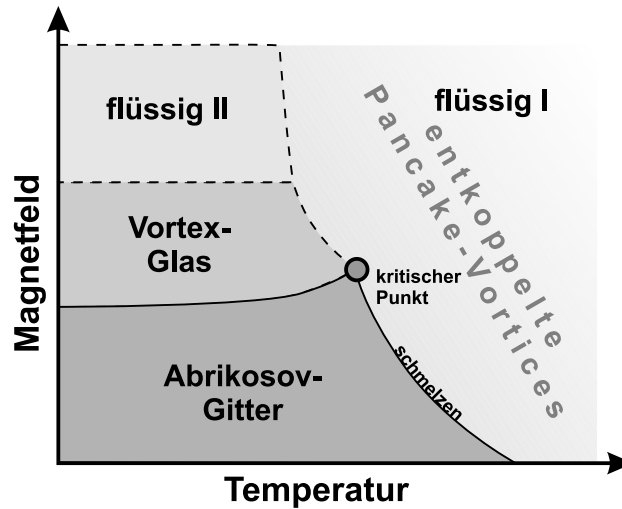


Abbildung 4.4: Schematisches Phasendiagramm eines Vortexgitters für BSCCO. Die Natur der Phasenübergänge aus dem geordneten Abrikosov-Gitter nach Vortex-Glas und flüssig I kann als gesichert gelten. Der genaue Verlauf der übrigen Phasengrenzen ist noch unbekannt [156].

Für BSCCO konnte bei Anlegen eines äußeren Magnetfeldes ein temperaturabhängiger Sprung in der Magnetisierung nachgewiesen werden, aus dessen Höhe man die damit verbundene Entropieänderung und somit auch die latente Wärme berechnen kann [159]. Allerdings ist die Größe dieser Änderung und ihr genauer Ursprung umstritten [160]. Da derartige Messungen zum überwiegenden Teil an millimetergroßen, flachen Proben durchgeführt werden, spielen Demagnetisierungsfaktoren eine wichtige Rolle und bewirken eine inhomogene Verteilung des Magnetfeldes über die Probe. Diese Inhomogenität hätte ihre Analogie in einem variablen statischen Druck beim Schmelzen eines Festkörpers und würde einen Phasenübergang beispielsweise in der Mitte der Probe beginnen und dann nach außen fortschreiten lassen. Ein zweites Problem, das bei feldabhängigen Messungen auftritt, ist die sogenannte geometrische Barriere, die Vortices am Überschreiten des Probenrandes hindert und dadurch eine magnetische Hysterese erzeugt [147, 161].

Aus den Messungen der latenten Wärme und des Magnetisierungssprunges geht ferner die Existenz eines kritischen Punktes hervor, der für BSCCO bei einem lokalen Feld von 38 mT und einer Temperatur von 38 K liegt [159]. Für größere Felder verschwinden die latente Wärme und der Sprung der Magnetisierung. Für geringere Temperaturen (im Phasendiagramm der Übergang zum Vortex-Glas) wurde in Magnetisierungsmessungen ebenfalls ein Phasenübergang erster Ordnung beobachtet [162, 163], der eine Auflösung des

Vortex-Gitters in einen ungeordneten, glasartigen Zustand beschreibt. Der Verlust der gitterartigen Ordnung wurde auch mittels Neutronenbeugung bestätigt [164]. Bei noch höherem Feld schließlich findet vermutlich ein weiterer Phasenübergang in den flüssigen Vortexzustand (flüssig II) statt, gefolgt von einer Dissoziation der Vortices in einzelne Pancakes durch Überwindung der Kopplung zwischen den CuO-Lagen (flüssig I). Derartige Messungen wurden bislang jedoch nur für YBCO durchgeführt [158], und so ist das Phasendiagramm für BSCCO in diesem Bereich entsprechend unsicher.

4.3 Magnetkraftmikroskopie auf BSCCO

Ein Großteil der im vorigen Abschnitt erwähnten Veröffentlichungen beziehen sich auf einkristalline Proben, die aus herstellungstechnischen Gründen als nur wenige hundert μm dünne, einige mm^2 große Plättchen vorliegen. Diese Geometrie erschwert wegen des Entmagnetisierungsfeldes die Interpretation global gemessener Daten. Die Sensitivität und hohe Ortsauflösung, die die Magnetkraftmikroskopie bietet, ermöglichen einen tieferen Einblick in die feld- und temperaturabhängige Anordnung einzelner Vortices.

Der hier untersuchte $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ -Einkristall wurde im Zonenschmelzverfahren hergestellt [96] und hatte eine Größe von $\approx 1 \times 5 \text{ mm}^2$ lateral und eine Dicke von unter $300 \mu\text{m}$. Seine Übergangstemperatur betrug 85 K . Die CuO-Ebenen liegen parallel zur Oberfläche. Unmittelbar vor dem Einschleusen in das Vakuumsystem wurde die oberste Lage mit einem Klebestreifen entfernt. Für die MFM-Messungen wurde ein Si-Cantilever verwendet mit einer Resonanzfrequenz von 200 kHz und einer einseitigen Eisenbeschichtung von nominell $5\text{-}10 \text{ nm}$ (Bedampfungswinkel $\alpha = 20^\circ$). Die folgenden Abbildungen wurden aufgenommen in einem Abstand von 30 nm und einer Oszillation des Cantilevers von $\pm 30 \text{ nm}$.

4.3.1 Schmelzen des Vortextgitters

Abbildung 4.5(a) zeigt die Situation nach dem Einsetzen der Probe ins Mikroskop. Da der Magnet des Kryostatsystems ebenfalls aus einem Typ-II-Supraleiter (NbTi) besteht, weist er im heliumgekühlten Zustand eine Remanenz von wenigen mT auf. Das Einsetzen der Probe in das kalte Mikroskop kommt also einem Feldkühlexperiment in senkrechtem Feld gleich. Da jeder Vortex genau ein Flussquant Φ_0 umschließt, kann aus der Dichte des Vortextgitters die magnetische Flussdichte im abgebildeten Bereich berechnet werden. Für den verwendeten Rasterbereich von $5.5 \mu\text{m}$ ergeben sich 3.3 mT . Das Gitter zeigt wie erwartet eine hexagonale Struktur mit einem Abstand

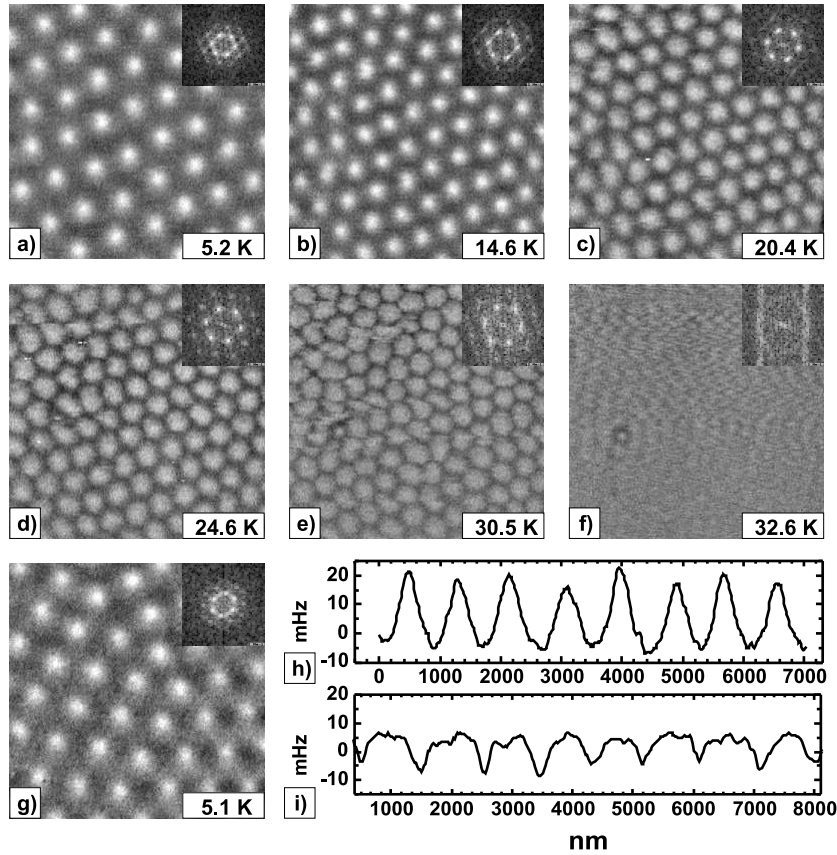


Abbildung 4.5: Temperaturabhängigkeit des Vortex-Gitters. Angegeben ist jeweils die Temperatur, die am Mikroskopkörper gemessen wurde. Ebenfalls dargestellt sind oben rechts die Fourierspektren der Bilder. Scanbereich $5.5 \mu\text{m}$ bei 5.1 K, gleiche Elektrodenspannung in allen Bildern, Grauskala 20 mHz. (h) und (i) Schnittlinien aus (a) und (e).

nächster Nachbarn von 853 nm. Da dieser Abstand deutlich größer ist als der typische Streufelddurchmesser der Spitze, kann aus dem Profil des MFM-Signals (Abb. 4.5h) die Londonsche Eindringtiefe λ abgeschätzt werden. Der mittlere Durchmesser der Vortices auf halber Höhe beträgt 490 nm, was gut mit den Literaturwerten von $\lambda \approx 200 \text{ nm}$ verträglich ist.

Das Streufeld der Spitze kann nach Abschnitt 2.7.3 bei einer Entfernung von 30 nm zu etwa 10-20 mT abgeschätzt werden. Deshalb kann eine Beeinflussung des Gitters durch die oszillierende Spitze nicht ausgeschlossen werden. Sie ist aber in diesem Fall offenbar gering genug, um das Gitter in seiner Periodizität nicht zu beeinträchtigen. Jedoch kann die Spitze zu einer künstlichen Verbreiterung der Maxima beitragen. Ein heller Bildkontrast bedeutet, dass zwischen Vortex und Spitze eine attraktive Wechselwirkung

herrscht. Damit besteht auch die Neigung der Spitze, einen Vortex in Rasterrichtung mitzuziehen und so den Kontrast auszuschmieren. Aufgrund des gleichen Drehsinns der Ringströme stoßen sich aber zwei benachbarte, gleich gepolte Vortices ab. Ein intaktes Abrikosov-Gitter wird also eine Vortexbewegung von mehr als einer halben Gitterkonstante unterbinden. Die Londonsche Eindringtiefe wird durch diesen Mechanismus jedoch eher überschätzt.

Um die Entwicklung des Vortextgitters bei erhöhten Temperaturen zu beobachten, wurde ausgenutzt, dass der optische Zugang zum Mikroskop im Messbetrieb durch zwei Blenden geschlossen wird, die an die beiden Kühlmitteltanks (4.2 K und 77 K) angekoppelt sind. Durch stufenweises Öffnen der Blenden bei gefüllten Kühlmitteltanks kann die Menge der Wärmestrahlung, die das Mikroskop trifft, kontrolliert werden. Auf diese Weise gelang es, Mikroskoptemperaturen bis 32 K auf wenige Zehntel K zu stabilisieren. Diese Temperaturangaben beziehen sich allerdings nur auf den Mikroskopkörper und können am Ort der Probe aufgrund der Länge des thermischen Pfades beträchtlich höher sein. Jedoch sollte sich auch hier eine stabile Temperatur einstellen.

Abbildung 4.5 zeigt das Vortextgitter bei verschiedenen Mikroskoptemperaturen. Bei erhöhter Temperatur bleibt die hexagonale Struktur zunächst erhalten. Wie auch in den Fourierspektren zu erkennen ist, behält das Gitter während der Aufwärmphase seine Orientierung bei. Jedoch verbreitert sich der Kontrast der einzelnen Vortices bis an den Rand der Elementarzelle. Gleichzeitig nimmt der Kontrast ab. Der Vergleich zweier Schnittlinien durch einige Vortices bei 5.2 K (h) und 30.5 K (i) belegt diesen Eindruck. Der Grund dieser Beobachtung könnte zum einen in der Londonschen Eindringtiefe liegen, die sich nach Gl. 4.7 mit zunehmender Temperatur vergrößert. Wahrscheinlicher ist aber eine erhöhte Mobilität der Vortices, die deshalb von der attraktiven Wechselwirkung der Spitze weiter mitgezogen werden können, bis die noch vorhandene Stabilität des Gitters eine weitere Bewegung verhindert.

Bei 32.6 K (Bild f) schließlich hat sich die Gitterstruktur aufgelöst. Im Fourierspektrum sind jedoch auch in diesem Bild noch typische Periodizitäten in x -Richtung zu erkennen, die der schnellen Scanrichtung entspricht. Während einer Scanzeile, die in diesem Fall 0.8 s dauerte, besteht also noch eine Korrelation, die aber auf der Zeitskala von einigen Sekunden (Scanzeilen) verschwindet. Kühlt man die Probe wieder ein, so erscheint erneut ein Abrikosov-Gitter, nun aber um etwa 30° verdreht. Dieses Verhalten spricht dafür, dass sich die Ordnung tatsächlich großräumig aufgelöst hat und nicht nur in der engsten Umgebung der Spitze. Anderenfalls würde man die Wiederherstellung des ursprünglichen Gitters erwarten.

Die vorliegenden Messungen wurden bei konstanter Amplitude der Ra-

sterspannung durchgeführt. Da sich bei zunehmender Temperatur die piezoelektrischen Konstanten ändern, nimmt der Scanbereich bis zu Bild (f) um den Faktor 1.7 zu, wodurch sich die Anzahl der Vortices im Bildbereich erhöht. Der Magnet, auf dessen Remanenz das anliegende Feld zurückgeht, befand sich während des gesamten Experiments in flüssigem Helium, daher sollte sich das äußere Feld und auch die mittlere Vortextdichte in dieser Zeit nicht wesentlich geändert haben. Wenn man weiterhin annimmt, dass die piezoelektrischen Konstanten unterhalb von 77 K linear zunehmen, gelangt man auf diese Weise zu einer Abschätzung des Scanbereiches bei höheren (Scanner-)Temperaturen, mit der auch Abb. 4.6 skaliert wurde. Genaue Eichmessungen liegen erst wieder für 77 K vor. Die Probertemperatur kann wegen des hohen Wärmeeintrags durch Strahlung bei geöffneten Blenden nur sehr grob abgeschätzt werden. Sie ergibt sich in erster Näherung aus dem Gleichgewicht zwischen der Temperaturstrahlung der auf Raumtemperatur befindlichen Vakuumkammer und der Wärmeabfuhr hauptsächlich über die Verkabelung des Scanners und der Probe. Setzt man diese Werte ins Verhältnis, so erscheint bei geöffneten Blenden eine Temperaturdifferenz von mehr als 10 K zum Temperatursensor durchaus realistisch. Insofern gestalten sich Vergleiche mit Literaturwerten zum Phasenübergang bei erhöhten Temperaturen schwierig. Des weiteren wird durch das Streufeld der Spitze eine lokale Felderhöhung um 10-20 mT verursacht, die dazu variabel ist, da die Spitze während des Abbildungsvorganges ihren Abstand zwischen 30 und 90 nm oszilliert. Dieser Vorgang kann zusätzliche Unordnung induzieren und die scheinbare Temperatur des Phasenübergangs weiter herabsetzen.

In Bild (f) ist ferner links der Bildmitte ein einzelner heller Kontrastbereich zu sehen, der in Abb. 4.6 herausvergrößert ist. Er scheint deutlich schärfer als einzelne Vortices selbst bei 5.2 K. Die Vermutung liegt nahe, dass es sich hierbei um einen Vortex handelt, der an einen innerhalb der Probe liegenden Defekt gepinnt ist.³ Durch dieses Festhalten des Vortex wird er an seiner thermischen und spitzeninduzierten Bewegung gehindert und erscheint dementsprechend schärfer. Ihn umgibt ein dunklerer Kontrastbereich in einer Entfernung von etwa 200 nm. Diese Verhältnisse werden an einer besonderen Auftragung deutlich, die den Bildkontrast in Abhängigkeit von der Entfernung zu diesem gepinnten Vortex darstellt, gemittelt über einen Kreis um diesen Ort (Abb. 4.6). Hier ist der dunkle Kontrastbereich als Minimum zu erkennen. Die Begründung für diesen Bereich besteht darin, dass sich Vortices gleicher Polarität wegen ihrer gleichsinnigen Ringströme und

³Als *Pinning* bezeichnet man das Festhalten eines Vortex an einer Defektstruktur, die normalleitend ist und deshalb ein energetisch günstiger Ort für einen Vortex darstellt, der ebenfalls einen normalleitenden Kern besitzt.

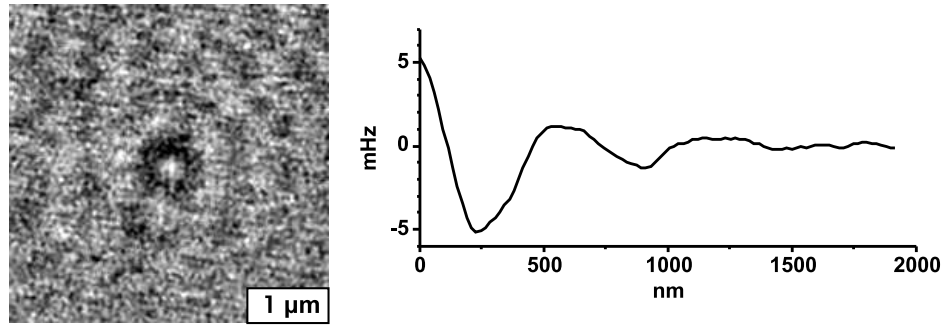


Abbildung 4.6: Bildausschnitt aus Abb. 4.5(f). Der helle Bereich kennzeichnet vermutlich einen an einem Defekt gepinnten Vortex. Der umgebende dunklere Bereich zeugt von einer geringeren Aufenthaltswahrscheinlichkeit anderer Vortices in seiner Nachbarschaft. In dem Schnitt ist der Kontrast aufgetragen, gemittelt über einen Kreis um den Defekt in der entsprechenden Entfernung (circular section).

des magnetischen Streufeldes gegenseitig abstoßen. Bei aller schon vorhandenen Unordnung in dem System wird darum dennoch ein Mindestabstand zu diesem Zentrum eingehalten. Die Größe dieses Abstandes dürfte auch von der Stärke des Spitzenstreufeldes abhängig sein, das eine anziehende Wechselwirkung vermittelt und benachbarte Vortices deshalb tendenziell eher an den gepinnten heranführt. Da aber wegen des anliegenden Magnetfeldes eine bestimmte Vortexdichte realisiert werden muss, nimmt der Kontrast dann wieder zu, durchläuft ein Maximum bei 600 nm und ein weiteres Minimum bei 900 nm. Es findet also offenbar eine gewisse Streuung an dem Defekt statt.

4.3.2 Feldabhängiges Verhalten

Das Phasendiagramm in Abb. 4.4 deutet auch für ein erhöhtes Magnetfeld bei konstanter Temperatur (links des kritischen Punktes) einen Phasenübergang an. Der Verlust der kristallinen Ordnung wurde für BSCCO bereits mittels Neutronenstreuung bestätigt [164]. Wie sich dieser Übergang im Realraum darstellt, ist bisher nicht untersucht worden. Zu diesem Zweck wurde die Probe wiederum in Remanenz des Magneten feldgeköhlt. Die Vortexdichte entsprach einer Flussdichte von 4.4 mT, und wiederum entstand ein hexagonales Abrikosov-Gitter, wie in Abb. 4.7(a) dargestellt. Die hellen Kontraste der Vortices zeigen, dass Spitzenmagnetisierung und Flussrichtung durch die Probe parallel sind. Anschließend wurde ein senkrechtes Feld parallel zur Spitzenmagnetisierung angelegt. Es zeigt sich eine zunehmende Unordnung im Gitter. Schon bei einem äußeren Feld von 80 mT (b) ist die regelmäßige

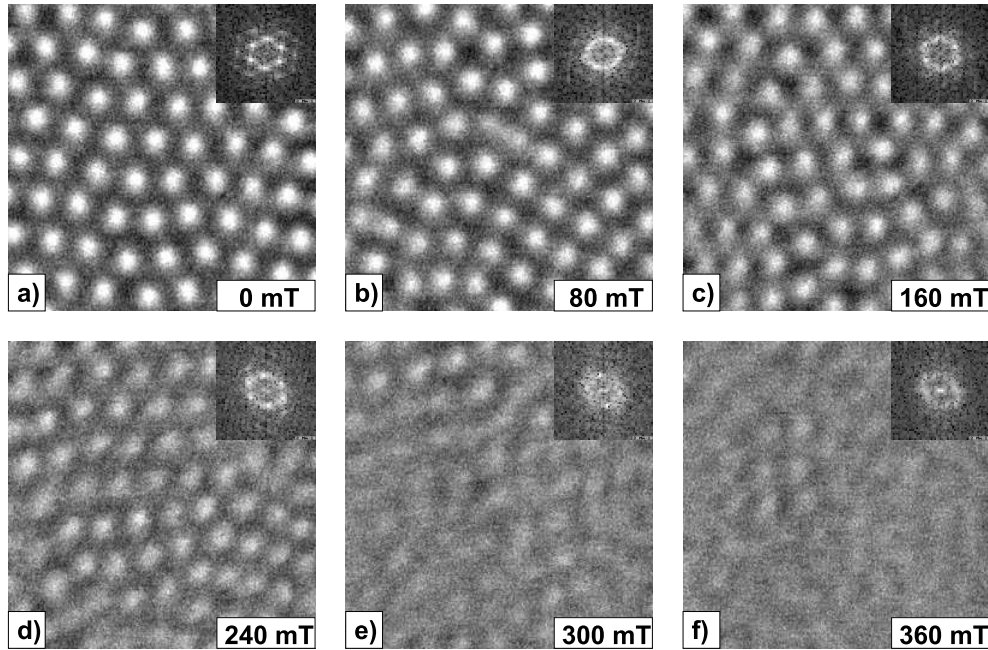


Abbildung 4.7: Entwicklung des Abrikosov-Gitters in einem senkrechten Magnetfeld. Angegeben ist jeweils das von außen angelegte Feld. Aufgrund der Remanenz des Magneten tritt schon in (a) eine Flussdichte von 4.4 mT durch die Probe. Bei zunehmendem Feld zeigt sich eine zunehmende Unordnung. Scanbereich $5.5 \mu\text{m}$.

hexagonale Struktur gänzlich aufgelöst, wie an dem eingesetzten Fourier-spektrum zu erkennen ist. Zusätzlich ist der Kontrast von einigen Vortices, die sich an wenig koordinierten Stellen befinden, gegenüber dem hexagonalen Gitter verbreitert, was auf eine vergrößerte Beweglichkeit schließen lässt. Die Struktur wechselt innerhalb weniger μm zwischen hexagonal und quadratisch. Gleichzeitig nimmt die Vortexdichte im Bildbereich kontinuierlich zu. Dieser Anstieg entspricht einer Zunahme der Flussdichte am Ort der Aufnahme auf 5.6 mT bei einem äußeren Feld von 240 mT. Der Grund für den im Vergleich zum angelegten Feld nur langsamen Anstieg der Vortexdichte liegt in der schon erwähnten geometrischen Barriere [161], die das vollständige Eindringen von Vortices vom Rand her in die Probe behindert. Der genaue Feldverlauf über die Probenfläche hinweg hängt damit stark von der Geometrie ab. Oberhalb von 360 mT schließlich ist der Kontrast einzelner Vortices nahezu vollständig verschwunden.

Verringert man aus dieser Situation das Feld wieder, so erhält man die in Abb. 4.8 dargestellten Verhältnisse. Alle in diesem Abschnitt gezeigten Bilder wurden über demselben Probengebiet aufgenommen, und so lassen sich aufeinander folgende Bilder direkt miteinander vergleichen. Bild (a) zeigt bei

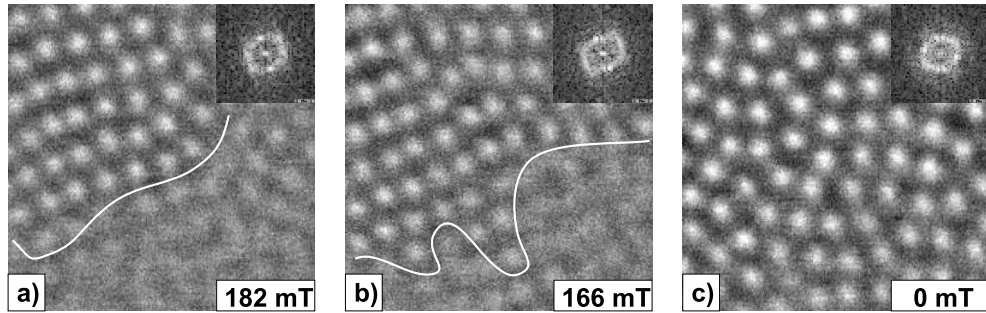


Abbildung 4.8: Entwicklung des Vortextgitters bei abnehmendem äußeren Feld. Bei der Rekondensation in die feste Phase bildet sich eine Phasengrenze (weiße Linie), die Zonen unterschiedlicher Beweglichkeit der Vortices trennt. In Remanenz bildet sich das ursprüngliche hexagonale Gitter nicht wieder zurück. Scanbereich $5.5 \mu\text{m}$.

182 mT einzelne Vortices im oberen Bildteil, in dem schon eine über mehrere μm reichende Ordnung zu erkennen ist. Im unteren Teil ist der Kontrast noch nicht ausgeprägt. Dort ist die Beweglichkeit der einzelnen Vortices so groß, dass eine regelmäßige Anordnung nicht erreicht wird. Die Phasengrenze zwischen diesen beiden Gebieten „fest“ und „flüssig“ ist durch die weiße Linie angedeutet. Auf dem folgenden Bild (b), aufgenommen bei 166 mT, findet sich im oberen Bereich vorwiegend die selbe Ordnung wie in (a), jedoch an wenigen Stellen modifiziert durch die Verschiebung eines oder mehrerer Vortices. Die feste Phase hat sich weiter in den vormals flüssigen Teil ausgebreitet. Bei einer weiteren Reduzierung des Feldes bis auf Null ist wiederum eine stabile Abbildung einzelner Vortices über den gesamten Bildbereich möglich. Jedoch stellt sich, im Gegensatz zum vorigen Abschnitt, dem thermischen Schmelzen und Einfrieren des Gitters, eine hexagonale Ordnung nicht wieder ein. Auch die Vortexdichte hat sich geändert und entspricht nun einer Flussdichte von 5.3 mT. Dieses hysteretische Verhalten ist wiederum auf Pinningeffekte durch die geometrische Barriere zurückzuführen, die in diesem Fall das Verlassen der Probe durch einmal eingedrungene Vortices verhindert.

Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Abbildung magnetischer Strukturen auf Manganperowskiten und Hochtemperatur-Supraleitern mittels Magnetkraftmikroskopie (MFM). Dazu wurde ein bereits existierendes Rasterkraftmikroskop in eine Ultrahochvakuum-Anlage mit Helium-Badkryostat und supraleitendem Split-Coil-Magneten integriert.

Im ersten Teil werden einige Grundlagen des Magnetismus und der magnetischen Mikroskopie dargelegt. Insbesondere wird auf die Kontrastentstehung in der Magnetkraftmikroskopie eingegangen sowie auf instrumentelle Voraussetzungen hinsichtlich der Präparation magnetisch sensitiver Spitzen. Dabei erwies sich die Herstellung von Dünnschichtspitzen durch seitliche Bedampfung eines Silizium-Cantilevers als vorteilhaft. Ferner werden ausführlich die Möglichkeiten der Kontrastinterpretation und -auswertung von MFM-Bildern diskutiert.

Die magnetische Abbildung wurde zunächst auf die Domänenstruktur dünner Manganperowskit-Filme angewandt, Materialien, die einen kolossalen Magnetowiderstand zeigen und deren gekoppelte magnetische und elektronische Eigenschaften Gegenstand intensiver Forschung sind. Die untersuchten Filme weisen eine substratinduzierte senkrechte Anisotropie auf und eine mäanderförmige Domänenstruktur nach thermischer Demagnetisierung und in Remanenz. Die Entwicklung dieser Struktur aus der Sättigung heraus konnte mittels feldabhängiger Magnetkraftmikroskopie in filmartigen Sequenzen sichtbar gemacht werden. Die Methode der Differenzbilder erwies sich dabei als geeignet, um die Art der Veränderungen in der Domänenstruktur zu verfolgen und Nukleations- und Wachstumsprozesse zu trennen und zu analysieren. Verbindungen zur Hysterese, zum Barkhausen-Effekt und zur Stabilität zylindrischer Domänen nahe der Sättigung konnten hergestellt werden.

Weiterhin wurde das Flussliniengitter eines einkristallinen Hochtemperatur-Supraleiters in Abhängigkeit der Temperatur und des äußeren Magnetfeldes untersucht. Dabei konnte das Schmelzen und Einfrieren eines hexagonalen Abrikosov-Gitters beobachtet werden. In einem äußeren Magnetfeld löste sich das hexagonale Gitter ebenfalls auf, nahm aber bei Reduzierung

des Feldes einen ungeordneten, glasartigen Zustand ein.

Zukünftige Messungen auf den Manganperowskiten könnten die ortsauflösende Untersuchung der Korrelation zwischen magnetischen und elektronischen Eigenschaften zum Ziel haben. So könnte zusätzlich mit elektrostatischer Kraftmikroskopie versucht werden, den Potentialverlauf und die Austrittsarbeit zu bestimmen und die Situation bei Anlegen eines Magnetfeldes und Einprägen eines elektrischen Stromes zu untersuchen.

Auf Supraleitern bietet sich die eingehendere Untersuchung des Pinnings von Vortices an Defektstrukturen in Abhängigkeit des äußeren Feldes an. Solche Pinningzentren sind für die Anwendung von Supraleitern von großer Bedeutung, da sie die Bewegung von Vortices und somit unerwünschte Dissipation verhindern können.

Literaturverzeichnis

- [1] W. Gilbert of Colchester, *De Magnete*, Chiswick Press, London (1600).
- [2] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach und W. Zinn, Phys. Rev. B **39**, 4282 (1989).
- [3] R. Becker, W. Döring, *Ferromagnetismus*, Springer Verlag, Berlin (1939).
- [4] S. Chikazumi, *Physics of Ferromagnetism*, Clarendon Press, Oxford (1997).
- [5] Ch. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik*, Oldenbourg Verlag, München (1993).
- [6] A. Hubert und R. Schäfer, *Magnetic Domains: The Analysis of Magnetic Microstructures*, Springer Verlag, Berlin (1998).
- [7] F. Bitter, Phys. Rev. **41**, 507 (1932).
- [8] H. J. Williams, F. G. Foster und E. A. Wood, Phys. Rev. **82**, 119 (1951).
- [9] C. A. Fowler Jr. und E. M. Fryer, Phys. Rev. **86**, 426 (1952).
- [10] M. E. Hale, H. W. Fuller und H. Rubinstein, J. Appl. Phys. **30**, 789 (1959).
- [11] K. Koike und K Hayakawa, Appl. Phys. Lett. **45**, 585 (1984).
- [12] H. P. Oepen, G. Steierl und J. Kirschner, J. Vac. Sci. Technol. B **20**, 2535 (2002).
- [13] S. Heinze, M. Bode, A. Kubetzka, O. Pietzsch, X. Nie, S. Blügel und R. Wiesendanger, Science **288**, 1805 (2000).
- [14] G. Binnig, C. F. Quate und Ch. Gerber, Phys. Rev. Lett. **56**, 9 (1986).

- [15] Y. Martin und H. K. Wickramasinghe, Appl. Phys. Lett. **50**, 1455 (1987).
- [16] J. J. Sáenz, N. García, P. Grütter, E. Meyer, H. Heinzelmann, R. Wiesendanger, L. Rosenthaler, H. R. Hidber, and H.-J. Güntherodt, J. Appl. Phys. **62**, 4293 (1987).
- [17] G. Binnig und H. Rohrer, Helv. Phys. Acta **55**, 726 (1982).
- [18] R. Wiesendanger, *Scanning Probe Microscopy and Spectroscopy*, Cambridge Univ. Press, Großbritannien (1994).
- [19] T. R. Albrecht, P. Grütter, D. Horne und D. Rugar, J. Appl. Phys. **69**, 668 (1991).
- [20] F. J. Giessibl, Phys. Rev. B **56**, 16010 (1997).
- [21] L. Olsson, N. Lin, V. Yakimov und R. Erlandsson, J. Appl. Phys. **84**, 4060 (1998).
- [22] C. Sommerhalter, *Kelvinsondenkraftmikroskopie im Ultrahochvakuum zur Charakterisierung von Halbleiter-Heterodioden auf der Basis von Chalkopyriten*, Dissertation, Freie Universität Berlin, 2000.
- [23] U. Hartmann, Annu. Rev. Mater. Sci. **29**, 53 (1999).
- [24] C. Schönenberger und S. F. Alvarado, Z. Phys. **80**, 373 (1990).
- [25] C. D. Wright und E. W. Hill, Appl. Phys. Lett. **68**, 1726 (1996).
- [26] H. Hölscher, U. D. Schwarz und R. Wiesendanger, Appl. Surf. Sci. **140**, 344 (1999).
- [27] C. B. Prater, M. R. Wilson, J. Garnaes, J. Massie, V. B. Elings und P. K. Hansma, J. Vac. Sci. Technol. B **9**, 989 (1991).
- [28] K. Nakamoto, C. B. Mooney und M. Iwatsuki, Rev. Sci. Instrum. **72**, 1445 (2001).
- [29] Q. Dai, R. Vollmer, R. W. Carpick, D. F. Ogletree und M. Salmeron, Rev. Sci. Instrum. **66**, 5266 (1995).
- [30] K. Suzuki, M. Iwatsuki, S. Kitamura und C. B. Mooney, Jpn. J. Appl. Phys. **39**, 3750 (2000).

- [31] M. D. Kirk, T. R. Albrecht und C. F. Quate, *Rev. Sci. Instrum.* **59**, 833 (1988).
- [32] F. J. Giessibl, C. Gerber und G. Binnig, *J. Vac. Sci. Technol. B* **9**, 984 (1991).
- [33] T. R. Albrecht, P. Grütter, D. Rugar und D. P. E. Smith, *Ultramicroscopy* **42-44**, 1638 (1992).
- [34] H. J. Hug, A. Moser, T. Jung, O. Fritz, A. Wadas, I. Parashikov und H.-J. Güntherodt, *Rev. Sci. Instrum.* **64**, 2920 (1993).
- [35] C. W. Yuan, E. Batalla, M. Zacher, A. L. de Lozanne, M. D. Kirk und M. Tortonese, *Appl. Phys. Lett.* **65**, 1308 (1994).
- [36] R. Euler, U. Memmert und U. Hartmann, *Rev. Sci. Instrum.* **68**, 1776 (1997).
- [37] W. Allers, A. Schwarz, U. D. Schwarz und R. Wiesendanger, *Rev. Sci. Instrum.* **69**, 221 (1998).
- [38] D. V. Pelekhov, J. B. Becker und G. Nunes, Jr., *Rev. Sci. Instrum.* **70**, 114 (1999).
- [39] R. E. Thomson, *Rev. Sci. Instrum.* **70**, 3369 (1999).
- [40] J. Rychen, T. Ihn, P. Studerus, A. Herrmann und K. Ensslin, *Rev. Sci. Instrum.* **70**, 2765 (1999).
- [41] H. J. Hug, B. Stiefel, P. J. A. van Schendel, A. Moser, S. Martin und H.-J. Güntherodt, *Rev. Sci. Instrum.* **70**, 3625 (1999).
- [42] P. Weitz, E. Ahlswede, J. Weis, K. v. Klitzing und K. Eberl, *Appl. Surf. Sci.* **157**, 349 (2000).
- [43] A. Volodin, K. Temst, C. van Haesendonck und Y. Bruynseraede, *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 4468 (2000).
- [44] M. Roseman und P. Grütter, *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 3782 (2000).
- [45] N. Suehira, Y. Tomiyoshi, Y. Sugawara und S. Morita, *Rev. Sci. Instrum.* **72**, 2971 (2001).
- [46] A. Schwarz, W. Allers, U. D. Schwarz und R. Wiesendanger, *Appl. Surf. Sci.* **140**, 293 (1999).

- [47] W. Allers, A. Schwarz, U. D. Schwarz und R. Wiesendanger, Appl. Surf. Sci. **140**, 247 (1999).
- [48] W. Allers, A. Schwarz, U. D. Schwarz und R. Wiesendanger, Europhys. Lett. **48**, 276 (1999).
- [49] W. Allers, S. M. Langkat und R. Wiesendanger, Appl. Phys. A **72**, S27 (2001).
- [50] M. A. Lantz, H. J. Hug, P. J. A. van Schendel, R. Hoffmann, S. Martin, A. Abdurixit, H.-J. Güntherodt und C. Gerber, Phys. Rev. Lett. **84**, 2642 (2000).
- [51] N. Suehira, Y. Sugawara und S. Morita, Jpn. J. Appl. Phys. **40**, L292 (2001).
- [52] Omicron Vacuumphysics, Taunusstein, Germany.
- [53] Pfeiffer Vacuum Technologies AG, Asslar, Germany.
- [54] Varian Vacuum Technologies, Lexington, MA, USA.
- [55] Vacuum Generators, Hastings, UK.
- [56] CryoVac, Troisdorf, Germany.
- [57] American Magnetics, Inc., Oak Ridge, TN, USA.
- [58] G. K. White, *Experimental techniques in low-temperature physics*, Oxford University Press (1979).
- [59] R. Berman, J. Appl. Phys. **27**, 318 (1956).
- [60] R. Berman und C. F. Mate, Nature **182**, 1661 (1958).
- [61] J. G. Hust, Rev. Sci. Instrum. **41**, 622 (1970).
- [62] Torr Seal, Varian Vacuum Technologies, Lexington, MA, USA.
- [63] MACOR ist ein eingetragenes Warenzeichen der Firma Corning Glass Works und bezeichnet eine Glaskeramik, geeignet für die Bearbeitung mit herkömmlichen Werkzeugen für die Metallverarbeitung.
- [64] G. Nunes, Jr. und D. Williams, J. Vac. Sci. Technol. B **13**, 1063 (1995).

- [65] A. Schwarz, *Aufbau eines Ultrahochvakuum-Tieftemperatur-Rasterkraftmikroskops und Untersuchung des Abbildungsmechanismus auf LiF (001) und InAs (110)*, Dissertation, Universität Hamburg, 1998.
- [66] W. Allers, *Tieftemperatur-Rasterkraftmikroskopie im Ultrahochvakuum auf van-der-Waals-Oberflächen*, Dissertation, Universität Hamburg, 1998.
- [67] S. M. Langkat, *Untersuchungen zur Elastizitätsmessung mittels Rasterkraftmikroskopie und Aufbau eines Tieftemperatur-Ultrahochvakuum-Rasterkraftmikroskops mit einem Probenverschiebetisch*, Diplomarbeit, Universität Hamburg, 1998.
- [68] M. Liebmann, *Aufbau und Charakterisierung eines Rasterkraftmikroskops für den Einsatz im Ultrahochvakuum, bei tiefen Temperaturen und im Magnetfeld*, Diplomarbeit, Universität Hamburg, 2000.
- [69] M. Liebmann, A. Schwarz, S. M. Langkat und R. Wiesendanger, Rev. Sci. Instrum. **73**, 3508 (2002).
- [70] S. H. Pan, S. Behler, M. Bernasconi, und H.-J. Güntherodt, Bull. Am. Phys. Soc. **37**, 167 (1992).
- [71] Chr. Wittneven, R. Dombrowski, S. H. Pan, und R. Wiesendanger, Rev. Sci. Instrum. **68**, 3806 (1997).
- [72] D. Rugar, H. J. Mamin und P. Güthner, Appl. Phys. Lett. **55**, 2588 (1989).
- [73] A. Wadas und H. Hug, J. Appl. Phys. **72**, 203 (1992).
- [74] Technische Spezifikation für NCL-Cantilever, Nanosensors, Neuchatel, Schweiz (www.nanosensors.com).
- [75] M. Löhndorf, *Untersuchung mikromagnetischer Eigenschaften dünner Schichten mit dem Magnetkraftmikroskop*, Dissertation, Universität Hamburg, 1997.
- [76] M. Donahue und D. Porter, Object Orientated MicroMagnetic Framework (OOMMF), <http://math.nist.gov/oommf/>.
- [77] G. H. Jonker und J. H. van Santen, Physica **16**, 337 (1950).
- [78] J. Volger, Physica **20**, 49 (1954).

- [79] C. Zener, Phys. Rev. **82**, 403 (1951).
- [80] R. M. Kusters, J. Singleton, D. A. Keen, R. McGreevy und W. Hayes, Physica B **155**, 362 (1989).
- [81] R. von Helmolt, J. Wecker, B. Holzapfel, L. Schultz und K. Samwer, Phys. Rev. Lett. **71**, 2331 (1993).
- [82] K. Chahara, T. Ohno, M. Kasai und Y. Kozono, Appl. Phys. Lett. **63**, 1990 (1993).
- [83] S. Jin, T. H. Tiefel, M. McCormack, R. A. Fastnacht, R. Ramesh und L. H. Chen, Science **264**, 413 (1994).
- [84] Ll. Balcells, A. E. Carillo, B. Martinez, F. Sandiumenge und J. Fontcuberta, J. Magn. Magn. Mater. **221**, 224 (2000).
- [85] J. Fontcuberta, L. Balcells, M. Bibes, J. Navarro, C. Fromtera, J. Santiso, J. Fraxedas, B. Martínez, S. Nadolski, M. Wojcik, E. Jedryka und M. J. Casanove, J. Magn. Magn. Mater. **242-245**, 98 (2002).
- [86] A. P. Ramirez, J. Phys. C **9**, 8171 (1997).
- [87] J. M. D. Coey, M. Viret und S. von Molnár, Adv. Ph. **48**, 167 (1999).
- [88] Y. Tokura and Y. Tomioka, J. Magn. Magn. Mater. **200**, 1 (1999).
- [89] G. van Tendeloo, O. I. Lebedev und S. Amelinckx, J. Magn. Magn. Mater. **211**, 73 (2000).
- [90] E. Dagotto, T. Hotta und A. Moreo, Phys. Rep. **344**, 1 (2001).
- [91] P. W. Anderson und H. Hasegawa, Phys. Rev. **100**, 675 (1955).
- [92] H. Y. Hwang, S.-W. Cheong, P. G. Radaelli, M. Marezio und B. Batlogg, Phys. Rev. Lett. **75**, 914 (1995).
- [93] J. Fontcuberta, B. Martinez, A. Seffar, S. Pinol, J. L. Garcia-Munoz und X. Obradors, Phys. Rev. Lett. **76**, 1122 (1996).
- [94] Y. Moritomo, A. Asamitsu und Y. Tokura, Phys. Rev. B, **51**, 16491 (1995).
- [95] C. Kwon, M. C. Robson, J. Y. Gu, S. E. Lofland, S. M. Bhagat, Z. Trajanovic, M. Rajeswari, T. Venkatesan, A. R. Kratz, R. D. Gomez und R. Ramesh, J. Magn. Magn. Mater. **172**, 229 (1997).

- [96] U. H. Pi, persönliche Mitteilung, Herstellung der Proben an der Seoul National University, Südkorea.
- [97] J. Z. Sun, D. W. Abraham, R. A. Rao und C. B. Eom, Appl. Phys. Lett. **74**, 3017 (1999).
- [98] Y. Wu, Y. Suzuki, U. Rüdiger, J. Yu, A. D. Kent, T. K. Nath und C. B. Eom, Appl. Phys. Lett. **75**, 2295 (1999).
- [99] A. M. Haghiri-Gosnet, J. Wolfman, B. Mercey, C. Simon, P. Lecoeur, M. Korzenski, M. Hervieu, R. Desfeux und G. Baldinozzi, J. Appl. Phys. **88**, 4257 (2000).
- [100] M. E. Hawley, G. W. Brown, P. C. Yashar und C. Kwon, J. Cryst. Gr. **211**, 86 (2000).
- [101] F. Tsui, M. C. Smoak, T. K. Nath und C. B. Eom, Appl. Phys. Lett. **76**, 2421 (2000).
- [102] R. Desfeux, A. Da Costa und W. Prellier, Surf. Sci. **497**, 81 (2002).
- [103] H. Dulli, P. A. Dowben, S.-H. Liou und E. W. Plummer, Phys. Rev. B **62**, R14629 (2000).
- [104] J. C. Jiang, E. I. Meletis und K. I. Gnanasekar, Appl. Phys. Lett. **80**, 4831 (2002).
- [105] R. A. Rao, D. Lavric, T. K. Nath, C. B. Eom, L. Wu und F. Tsui, J. Appl. Phys. **85**, 4794 (1999).
- [106] R. Desfeux, S. Bailleul, A. Da Costa, W. Prellier und A. M. Haghiri-Gosnet, Appl. Phys. Lett. **78**, 3681 (2001).
- [107] Y. Suzuki, Y. Wu, J. Yu, U. Rüdiger, A. D. Kent, T. K. Nath und C. B. Eom, J. Appl. Phys. **87**, 6746 (2000).
- [108] F. J. Giessibl, H. Bielefeld, S. Hembacher und J. Mannhart, Appl. Surf. Sci. **140**, 352 (1999).
- [109] D. Wilcox, B. Dove, D. McDavid und D. Greer, *UTHCSA ImageTool*, University of Texas Health Science Center, San Antonio, Texas, USA (frei erhältlich unter <ftp://maxrad6.uthscsa.edu>).
- [110] A. Aharoni, *Introduction to the Theory of Ferromagnetism*, Clarendon Press, Oxford, GB (1996).

- [111] H. Barkhausen, Phys. Z. **20**, 401 (1919).
- [112] P. Bak, C. Tang und K. Wiesenfeld, Phys. Rev. Lett. **59**, 381 (1987).
- [113] P. Bak, C. Tang und K. Wiesenfeld, Phys. Rev. A **38**, 364 (1988).
- [114] B. Alessandro, C. Beatrice, G. Bertotti und A. Montorsi, J. Appl. Phys. **68**, 2901 (1990).
- [115] B. Alessandro, C. Beatrice, G. Bertotti und A. Montorsi, J. Appl. Phys. **68**, 2908 (1990).
- [116] L. V. Meisel und P. J. Cote, Phys. Rev. B **46**, 10822 (1992).
- [117] G. Durin und S. Zapperi, J. Appl. Phys. **85**, 5196 (1999).
- [118] B. Tadic und U. Nowak, Phys. Rev. E **61**, 4610 (2000).
- [119] A. A. Thiele, J. Appl. Phys. **41**, 1139 (1970).
- [120] E. Gommert, H. Cerva, J. Wecker und K. Samwer, J. Appl. Phys. **85**, 5417 (1999).
- [121] P. G. Radaelli, D. E. Cox, M. Marezio, S.-W. Cheong, P. E. Schiffer und A. P. Ramirez, Phys. Rev. Lett. **75**, 4488, (1995).
- [122] P. Dai, J. H. Zhang, A. Mook, S.-H. Liu, P. A. Dowben und E. W. Plummer, Phys. Rev. B **54**, 3694 (1996).
- [123] G.-O. Gong, C. Canedy, G. Xiao, J. Z. Sun, A. Gupta und W. J. Gallagher, Appl. Phys. Lett. **67**, 1783 (1995).
- [124] M. Ziese, H. C. Semmelhack, K. H. Han, S. P. Sena und H. J. Blythe, J. Appl. Phys. **91**, 9930 (2002).
- [125] C. J. Lu, Z. L. Wang, C. Kwon und Q. X. Jia, J. Appl. Phys. **88**, 4032 (2000).
- [126] P. Schiffer, A. P. Ramirez, W. Bao und S.-W. Cheong, Phys. Rev. Lett. **75**, 3336 (1995).
- [127] T. K. Nath, R. A. Rao, D. Lavric, C. B. Eom, L. Wu und F. Tsui, Appl. Phys. Lett. **74**, 1615 (1999).
- [128] M. C. Smoak, P. A. Ryan, F. Tsui, T. K. Nath, R. A. Rao, D. Lavric und C. B. Eom, J. Appl. Phys. **87**, 6764 (2000).

- [129] Q. Lu, C.-C. Chen und A. de Lozanne, *Science* **276**, 2006 (1997).
- [130] A. Biswas, M. Rajeswari, R. C. Srivastava, T. Venkatesan, R. L. Greene, Q. Lu, A. L. de Lozanne und A. J. Millis, *Phys. Rev. B* **63**, 184424 (2001).
- [131] Y. S. Leung und K. H. Wong, *Appl. Surf. Sci.* **127**, 491 (1998).
- [132] B. C. Nam, W. S. Lim, H. S. Choi, J. C. Kim, N. H. Hur, I. S. Kim und Y. K. Park, *J. Phys. D* **34**, 54 (2001).
- [133] J. G. Zhu und H. N. Bertram, *J. Appl. Phys.* **66**, 1291 (1989).
- [134] H. K. Onnes, *Comm. Leiden* 120b (1911).
- [135] W. Meissner und R. Ochsenfeld, *Naturwissenschaften* **21**, 787 (1933).
- [136] V. L. Ginzburg und L. D. Landau, *Sov. Phys. JETP* **20**, 1064 (1950).
- [137] A. A. Abrikosov, *Sov. Phys. JETP* **5**, 1174 (1957).
- [138] U. Eßmann und H. Träuble, *Phys. Lett. A* **24**, 526 (1967).
- [139] J. G. Bednorz und K. A. Müller, *Z. Phys. B* **64**, 189 (1986).
- [140] <http://www.superconductors.org>.
- [141] W. Buckel, *Supraleitung: Grundlagen und Anwendungen*, Physik-Verlag, Weinheim (1977).
- [142] M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity*, Robert E. Krieger Publishing, FL, USA (1975).
- [143] J. Bardeen, L. N. Cooper und J. R. Schrieffer, *Phys. Rev.* **108**, 1175 (1957).
- [144] F. und H. London, *Z. Phys.* **96**, 359 (1935).
- [145] A. Moser, H. J. Hug, I. Parashikov, B. Stiefel, O. Fritz, H. Thomas, A. Baratoff, H.-J. Güntherodt und P. Chaudhari, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 1847 (1995).
- [146] M. Roseman, *Low Temperature Magnetic Force Microscopy Studies of Superconducting Niobium Films*, Dissertation, McGill University, Montréal, Canada (2001).
- [147] E. H. Brandt, *Rep. Prog. Phys.* **58**, 1465 (1995).

- [148] G. Burns, *High-Temperature Superconductivity*, Academic Press, San Diego, CA, USA (1992).
- [149] H. Maeda, Y. Tanka, M. Fukatoni und T. Asano, Jpn. J. Appl. Phys. **27**, L209 (1988).
- [150] C. W. Chu, J. Bechtold, L. Gao, P. Hor, Z. J. Huang, R. L. Meng, Y. Y. Sun, Y. Q. Wang und Y. Y. Xue, Phys. Rev. Lett. **60**, 941 (1988).
- [151] J. J. Lin, E. L. Benitez, S. J. Poon, M. A. Subramanian, J. Gopalakrishnan und A. W. Sleight, Phys. Rev. B **38**, 5095 (1988).
- [152] D.-X. Chen, A. Hernando, F. Conde, J. Ramirez, J. M. Gonzalez-Calbet und M. Vallet, J. Appl. Phys. **75**, 2578 (1994).
- [153] B. D. Biggs, M. N. Kunchur, J. J. Lin, S. J. Poon, T. R. Askew, R. B. Flippen, M. A. Subramanian, J. Gopalakrishnan und A. W. Sleight, Phys. Rev. B **39**, 7309 (1989).
- [154] A. Schilling, R. Jin, J. D. Guo und H. R. Ott, Phys. Rev. Lett. **71**, 1899 (1993).
- [155] J. R. Clem, Phys. Rev. B **43**, 7837 (1991).
- [156] P. Gammel, Nature **411**, 434 (2001).
- [157] A. Oral, J. C. Barnard, S. J. Bending, I. I. Kaya, S. Ooi, T. Tamegai und M. Henini, Phys. Rev. Lett. **80**, 3610 (1998).
- [158] F. Bouquet, C. Marcenat, E. Steep, R. Calemczuk, W. K. Kwok, U. Welp, G. W. Crabtree, R. A. Fisher, N. E. Phillips und A. Schilling, Nature **411**, 448 (2001).
- [159] E. Zeldov, D. Majer, M. Konczykowski, V. B. Gershkenbein, V. M. Vinokur und H. Shtrikman, Nature **375**, 373 (1995).
- [160] D. E. Farrell, E. Johnston-Halperin, L. Klein, P. Fournier, A. Kapitulnik, E. M. Forgan, A. I. M. Rae, T. W. Li, M. L. Trawick, R. Sasik und J. C. Garland, Phys. Rev. B **53**, 11807 (1996).
- [161] E. Zeldov, A. I. Larkin, V. B. Gershkenbein, M. Konczykowski, D. Majer, B. Khaykovich, V. M. Vinokur und H. Shtrikman, Phys. Rev. Lett. **73**, 1428 (1994).
- [162] B. Khaykovich, M. Konczykowski, E. Zeldov, R. A. Doyle, D. Majer, P. H. Kes und T. W. Li, Phys. Rev. B **56**, R517 (1997).

- [163] N. Avraham, B. Khaykovich, Y. Myasoedov, M. Rappaport, H. Shtrikman, D. E. Feldman, T. Tamegai, P. H. Kes, M. Li, M. Konczykowski, K. van der Beek und E. Zeldov, *Nature* **411**, 451 (2001).
- [164] M. Yethiraj, H. A. Mook, E. M. Forgan, R. Cubitt, M. T. Wylie, D. M. Paul, S. L. Lee, J. Ricketts, P. H. Kes, und K. Mortensen, *J. Appl. Phys.* **76**, 6784 (1994).

Anhang A

Kontraste im Abbildungsmechanismus

Der Effekt eines ausgedehnten Streufeldes, das die Verteilung der magnetischen Oberflächenladungen abtastet, kann auf der Basis einer Faltung der realen Struktur $\sigma(x)$ mit einem angenommenen Abbildungsprofil $g(x)$ berechnet werden:

$$K(x) = \int \sigma(x - x') g(x') dx' . \quad (\text{A.1})$$

Für die Fouriertransformierten mit

$$f(k) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int e^{-ikx} f(x) dx \quad (\text{A.2})$$

und

$$f(x) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int e^{ikx} f(k) dk \quad (\text{A.3})$$

gilt:

$$K(k) = \sqrt{2\pi} \sigma(k) g(k) . \quad (\text{A.4})$$

Als Abbildungsfunktion wird ein auf 1 normiertes Gaußprofil der Breite d (FWHM = $2d\sqrt{\ln 2}$) angenommen:

$$g(x) = \frac{1}{d\sqrt{\pi}} e^{-\left(\frac{x}{d}\right)^2} \quad (\text{A.5})$$

mit der Fouriertransformierten

$$g(k) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{d^2 k^2}{4}} . \quad (\text{A.6})$$

Damit wird zunächst eine sinusförmige Struktur der Breite w abgebildet (hier ins Komplexe erweitert):

$$\sigma(x) = \sigma_0 e^{i\pi \frac{x}{w}} . \quad (\text{A.7})$$

Mit der Fouriertransformierten

$$\sigma(k) = \sigma_0 \sqrt{2\pi} \delta\left(k - \frac{\pi}{w}\right) \quad (\text{A.8})$$

und Gl. A.4 folgt

$$\begin{aligned} K(k) &= \sigma_0 \sqrt{2\pi} e^{-\frac{d^2 k^2}{4}} \delta\left(k - \frac{\pi}{w}\right) \\ K(x) &= e^{-\left(\frac{\pi d}{2w}\right)^2} \sigma(x). \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

Die Periode bleibt also erhalten, während der Kontrast um den Faktor $\exp(-(\pi d/2w)^2)$ abgeschwächt wird.

Die Abbildung einer gaußförmigen Struktur der Breite D kann analog berechnet werden:

$$\sigma(x) = \frac{1}{D\sqrt{\pi}} e^{-\left(\frac{x}{D}\right)^2} \quad (\text{A.10})$$

$$\sigma(k) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{D^2 k^2}{4}} \quad (\text{A.11})$$

$$K(k) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(D^2 + d^2)k^2}{4}} \quad (\text{A.12})$$

$$K(x) = \frac{1}{\sqrt{\pi(D^2 + d^2)}} e^{-\frac{x^2}{D^2 + d^2}}. \quad (\text{A.13})$$

Anhang B

Winkelabhängige Energien in Streifendomänen

Grundlage der Berechnung sei ein dünner Film der Dicke t mit einer Sättigungsmagnetisierung J_s , einer senkrechten Anisotropie $K_u < K_d$ und einer Austauschkonstanten A . Angenommen wird eine mittlere Magnetisierung in der Filmebene in y -Richtung und eine periodische Abweichung um den Winkel $\theta(x)$ senkrecht zur Filmebene (Abb. 3.9).

$$\theta = \theta_0 \sin\left(\frac{\pi x}{w}\right) \quad (\text{B.1})$$

Dabei liegt die x -Achse in der Filmebene senkrecht zur Richtung der mittleren Magnetisierung. Die Breite der Streifendomänen ist durch w gegeben. In y - und z -Richtung sei der Film homogen magnetisiert.

Die magnetische Oberflächenladungsdichte $\sigma = \vec{n} \cdot \vec{J}$ mit $\vec{n}$ als Normalenvektor lässt sich dann nach Taylorentwicklung von $\sin x \approx x - \frac{1}{6}x^3$ und wegen $\sin^3 x = \frac{3}{4}\sin x - \frac{1}{4}\sin(3x)$ nähern durch:

$$\sigma(x) = J_s \sin\left(\theta_0 \sin\frac{\pi x}{w}\right) \quad (\text{B.2})$$

$$\approx J_s \left(\theta_0 \sin\left(\frac{\pi x}{w}\right) - \frac{1}{6}\theta_0^3 \sin^3\left(\frac{\pi x}{w}\right) \right) \quad (\text{B.3})$$

$$= J_s \left(\theta_0 - \frac{\theta_0^3}{8} \right) \sin\left(\frac{\pi x}{w}\right) + \frac{J_s \theta_0^3}{24} \sin\left(\frac{3\pi x}{w}\right). \quad (\text{B.4})$$

Mit Gl. 2.27 ergibt sich daraus für das magnetostatische Potenzial an der Oberfläche ($z = 0$):

$$\Phi = J_s \frac{w}{2\pi\mu_0} \left(\theta_0 - \frac{\theta_0^3}{8} \right) \sin\left(\frac{\pi x}{w}\right) + \frac{J_s \theta_0^3}{24} \frac{w}{6\pi\mu_0} \sin\left(\frac{3\pi x}{w}\right). \quad (\text{B.5})$$

Die flächenbezogene magnetostatische Energie kann nun über $\epsilon_m = \langle \sigma \Phi \rangle$ durch Mittelung über eine Periode berechnet werden:

$$\epsilon_m \approx \frac{J_s^2 w}{4\pi\mu_0} \left(\theta_0 - \frac{\theta_0^3}{8} \right)^2 + o(\theta_0^6) . \quad (\text{B.6})$$

Die Anisotropieenergie pro Volumen E_a ergibt sich mit Gl. 2.7 in führender Ordnung zu

$$E_a = -K_u \sin^2 \theta \quad (\text{B.7})$$

$$= -K_u \sin^2 \left(\theta_0 \sin \frac{\pi x}{w} \right) \quad (\text{B.8})$$

$$\approx -K_u \left(\left(\theta_0 - \frac{\theta_0^3}{8} \right) \sin \left(\frac{\pi x}{w} \right) + \frac{\theta_0^3}{24} \sin \left(\frac{3\pi x}{w} \right) \right)^2 . \quad (\text{B.9})$$

Um zu einer flächenbezogenen mittleren Energie zukommen, muss mit der Schichtdicke t multipliziert und über eine Periode gemittelt werden:

$$\epsilon_a = -\frac{1}{2} K_u t \left(\theta_0 - \frac{\theta_0^3}{8} \right)^2 + o(\theta_0^6) . \quad (\text{B.10})$$

Mit Gl. 2.5 kann gezeigt werden, dass in diesem Fall die Austauschenergiedichte aus $E_{\text{ex}} = A \left\langle \left(\frac{\partial \theta}{\partial x} \right)^2 \right\rangle$ berechnet werden kann. Für eine flächenbezogene Energiedichte ist wieder mit der Filmdicke zu multiplizieren:

$$\epsilon_{\text{ex}} = At \left\langle \left(\frac{\partial \theta}{\partial x} \right)^2 \right\rangle \quad (\text{B.11})$$

$$= At \left(\frac{\pi}{w} \right)^2 \left\langle \cos^2 \left(\frac{\pi x}{w} \right) \right\rangle \quad (\text{B.12})$$

$$= \frac{\pi^2 At}{2w^2} \theta_0^2 \quad (\text{B.13})$$

Die Gesamtenergie ist dann die Summe dieser Beiträge:

$$\epsilon = \epsilon_m + \epsilon_a + \epsilon_{\text{ex}} \quad (\text{B.14})$$

$$= \left(\frac{J_s^2 w}{4\pi\mu_0} - \frac{1}{2} K_u t + \frac{\pi^2 At}{2w^2} \right) \theta_0^2 \quad (\text{B.15})$$

$$+ \left(-\frac{J_s^2 w}{16\pi\mu_0} + \frac{1}{8} K_u t \right) \theta_0^4 + o(\theta_0^6) \quad (\text{B.16})$$

$$= -c_1 \theta_0^2 + c_2 \theta_0^4 + o(\theta_0^6) \quad (\text{B.17})$$

Für kleine Winkel θ_0 ist nur der Parameter c_1 von Bedeutung. Daraus kann eine optimale Domänenbreite w_{th} bestimmt werden. Aus

$$\left(\frac{\partial c_1}{\partial w}\right)_{w=w_{\text{th}}} = 0 \quad (\text{B.18})$$

folgt

$$w_{\text{th}} = 2\pi \sqrt[3]{\frac{\mu_0 A t}{2J_s^2}}. \quad (\text{B.19})$$

Mit diesem Wert kann nun $\epsilon(\theta_0^2)$ minimiert werden, und als Bedingung ergibt sich:

$$(\theta_0^2)_{\min} = \frac{c_1}{2c_2}. \quad (\text{B.20})$$

mit

$$c_1 = -\frac{J_s^2 w}{4\pi\mu_0} + \frac{1}{2}K_u t - \frac{\pi^2}{2w} A t \quad (\text{B.21})$$

$$c_2 = -\frac{J_s^2 w}{16\pi\mu_0} + \frac{1}{8}K_u t \quad (\text{B.22})$$

Begünstigt wird ein Herausdrehen von der uniaxialen Kristallanisotropie K_u , multipliziert mit der Schichtdicke t . Dem gegenüber steht die magnetostatische Energie und die Austauschenergie, die tendenziell den Winkel eher verringern.

Anhang C

Publikationen und Konferenzbeiträge

Publikationen

- R. Anton, Th. Wiegner, W. Naumann, M. Liebmann, Chr. Klein und Chr. Bradley: *Design and performance of a versatile, cost-effective microwave electron cyclotron resonance plasma source for surface and thin film processing*. Rev. Sci. Instrum. **71**, 1177-1180 (2000).
- M. Liebmann, A. Schwarz, S. M. Langkat und R. Wiesendanger: *A low-temperature ultrahigh vacuum scanning force microscope with a split-coil magnet*. Rev. Sci. Instrum. **73**, 3508-3524 (2002).
- M. Liebmann, U. Kaiser, A. Schwarz, R. Wiesendanger, U. H. Pi, T. W. Noh, Z. G. Khim und D.-W. Kim: *Domain nucleation and growth of $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ / LaAlO_3 films studied by low temperature MFM*. Proceedings of 47th Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Tampa, FL, USA (11.-15.11.2002), J. Appl. Phys., accepted.
- U. H. Pi, D. H. Kim, Z. G. Khim, U. Kaiser, M. Liebmann, A. Schwarz und R. Wiesendanger: *Vortex dynamics in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ single crystal with low density columnar defects studied by magnetic force microscopy*. Submitted to J. Low Temp. Phys., Proceedings of the 2002 International Conference on the Physics and Chemistry of Molecular and Oxide Superconductors (MOS 2002), Hsinchu, Taiwan (13-18 August 2002).

Vorträge

- A. Schwarz, M. Liebmann, U. H. Pi, Z. G. Khim und R. Wiesendanger: *Temperatur- und dickenabhängige Domänenstruktur dünner Manganperowskitschichten*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Hamburg (26.-30.03.2001).
- A. Schwarz, M. Liebmann, U. H. Pi, D. W. Kim, T. W. Noh, Z. G. Khim und R. Wiesendanger: *Dynamic mode magnetic force microscopy at low temperatures on perovskite manganites*. 4th International Conference on Noncontact Atomic Force Microscopy, Kyoto, Japan (01.-05.09.2001).
- M. Liebmann, A. Schwarz, U. H. Pi, D. W. Kim, T. W. Noh, Z. G. Khim und R. Wiesendanger: *H-dependent domain structure of $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ epitaxial thin films studied by low-temperature MFM*. 46th Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Seattle, WA, USA (12.-16.11.2001).
- M. Liebmann, A. Schwarz, U. H. Pi, Z. G. Khim und R. Wiesendanger, Regensburg, Germany (Frühjahrstagung der DPG): *Magnetische Domänenstruktur von $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MnO}_3$ -Schichten*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Regensburg (11.-15.03.2002).
- A. Schwarz, M. Liebmann, U. Kaiser, U. H. Pi, Z. G. Khim und R. Wiesendanger: *Domänen-nukleation in $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ -Schichten*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Regensburg (11.-15.03.2002).
- A. Schwarz, U. H. Pi, M. Liebmann, U. Kaiser, Z. G. Khim und R. Wiesendanger: *Direct observation of vortex-antivortex annihilation*. 5th International Conference on Noncontact Atomic Force Microscopy, Montréal, Canada (11.-14.08.2002).
- M. Liebmann, A. Schwarz, U. Kaiser, R. Wiesendanger, U. H. Pi und Z. G. Khim: *Domain nucleation and growth of $\text{La}_{0.7}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$ / LaAlO_3 films studied by MFM*. 47th Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Tampa, FL, USA (11.-15.11.2002).
- A. Schwarz, U. H. Pi, M. Liebmann, U. Kaiser, D. H. Kim, Z. G. Khim und R. Wiesendanger: *Real space observation of vortex-antivortex annihilation on a HTC-superconductor by MFM*. 47th Conference on Magnetism and Magnetic Materials, Tampa, FL, USA (11.-15.11.2002).

- U. Kaiser, A. Schwarz, U. H. Pi, M. Liebmann, Z. G. Khim, T. W. Noh, D. W. Kim und R. Wiesendanger: *Visualisierung der Barkhausen-Volumen einer ferromagnetischen Schicht mittels Magnetkraftmikroskopie*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Dresden (24.-28.03.2003).
- A. Schwarz, U. H. Pi, M. Liebmann, U. Kaiser, Z. G. Khim, D. H. Kim und R. Wiesendanger: *Beobachtung der Vortex-Antivortex-Vernichtung auf BSCCO-(2212) im Realraum mittels Magnetkraftmikroskopie*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Dresden (24.-28.03.2003).

Poster

- M. Liebmann, A. Schwarz und R. Wiesendanger: *UHV-Tieftemperatur-Magnetkraftmikroskop mit 5T-Magnet und xy-Verschietisch: Aufbau und Test*. Frühjahrstagung der Deutschen Physikalischen Gesellschaft, Hamburg (26.-30.03.2001).
- M. Liebmann, A. Schwarz, U. Kaiser und R. Wiesendanger: *Low temperature magnetic force microscopy on manganese perovskites*. Hereaeus-Ferienkurs „Komplexe magnetische Phänomene in Festkörpern“, Dresden (03.-14.09.2001).

Diplomarbeit

- M. Liebmann: *Aufbau und Charakterisierung eines Rasterkraftmikroskops für den Einsatz im Ultrahochvakuum, bei tiefen Temperaturen und im Magnetfeld*. Universität Hamburg (03.02.2000).

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die mir während meiner Arbeit mit Rat und Tat zur Seite standen:

Herr Prof. Dr. R. Wiesendanger ermöglichte mir die Durchführung meiner Arbeit unter ausgezeichneten Bedingungen in seiner Arbeitsgruppe „Rastersonormethoden“.

Dr. Alexander Schwarz danke ich für die engagierte Betreuung meiner Aktivitäten, die kritische Durchsicht meiner Schriften und interessante und anregende Diskussionen.

Uwe Kaiser teilte mit mir die Arbeit im Labor. Unter seiner Mitarbeit entstand ein großer Teil der hier vorgestellten Messungen.

Ung Hwan Pi sorgte als Gastwissenschaftler der Seoul National University und Mitglied der dortigen Arbeitsgruppe „Superconductivity and Scanning Probe Microscopy“ bei Prof. Dr. Z. G. Khim für die Bereitstellung der Proben und während zweier Aufenthalte in Hamburg für einen interessanten wissenschaftlichen Austausch.

Den Mitgliedern der Arbeitsgruppe „Rastersonormethoden“ danke ich für eine hervorragende Arbeitsatmosphäre und zahlreiche Tipps und Tricks im Forschungsalltag.