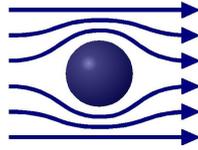


TECHNISCHE
UNIVERSITÄT
MÜNCHEN



WALTHER-MEISSNER-
INSTITUT FÜR TIEF-
TEMPERATURFORSCHUNG



BAYERISCHE
AKADEMIE DER
WISSENSCHAFTEN

Aufbau und Charakterisierung eines FMR-Spektrometers für X- und K-Band

Diplomarbeit

von

Manuel Johannes Schwarz

Betreuer: Prof. Dr. Rudolf Gross

München, Oktober 2008

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen der FMR-Spektroskopie	5
2.1	Elektronenspinresonanz (ESR)	5
2.2	Ferromagnetische Resonanz (FMR)	8
2.3	Energieformulierung der FMR	10
2.3.1	Beiträge zur freien Energiedichte	10
2.3.2	Bewegungsgleichung der FMR	12
3	Aufbau eines FMR-Spektrometers für X- und K-Band	15
3.1	Technische Details des Messaufbaus	15
3.1.1	Übersicht des Aufbaus	15
3.1.2	Gunnplexer	17
3.1.3	Hohlleiter	18
3.1.4	Phasenschieber	21
3.1.5	Modulationsspule	21
3.1.6	Statisches Magnetfeld	24
3.1.7	Automatische Probenrotation	24
3.1.8	LabVIEW-Messprogramm	25
3.2	Signalentstehung und -detektion	25
3.3	Messungen zur Charakterisierung des Aufbaus	29
3.3.1	Kalibration des externen statischen Magnetfeldes	29
3.3.2	Ermittlung der optimalen Probenposition	30
3.3.3	Einfluss des Phasenschiebers	32
3.3.4	Kalibration des Modulationsfeldes	35
3.3.5	Empfindlichkeit des Spektrometers	39
4	Magnetische Anisotropie in dünnen Filmen aus Chromdioxid	43
4.1	Physikalische Eigenschaften der Proben	44
4.2	Bestimmung der magnetischen Anisotropie	45
4.2.1	(100)-orientierte Filme	46
4.2.2	(110)-orientierte Filme	56
4.3	Bestimmung der Magnetisierungsdämpfung	60

5	Ferromagnetische Resonanz in Spinventil- und GMR-Strukturen	65
5.1	GMR, Zwischenschicht-Kopplung und Spinventile	65
5.2	Magnetische Anisotropie eines Spinventils	66
5.2.1	FMR-Messung	66
5.2.2	MOKE-Messung	68
5.2.3	Diskussion	72
5.3	FMR in gekoppelten GMR-Strukturen	73
6	Piezo-modulierte Ferromagnetische Resonanz	77
6.1	Präparation von Proben für PMFMR	78
6.2	Funktionsprinzip der PMFMR	78
6.3	Konventionelle und PM-FMR an der Probe NP10	80
6.3.1	Dehnungsinduzierte magnetische Anisotropie	80
6.3.2	PMFMR-Messungen	82
6.4	Quantitativer Vergleich mit konventioneller FMR	82
6.4.1	Vergleich der Signalintensitäten	83
6.4.2	Untersuchung der Magnetfeld-Modulationsamplitude als Funktion des Ortes	85
6.4.3	Messung der Längenänderung des Piezo-Aktors	86
6.4.4	Quantitativer Vergleich	90
7	Zusammenfassung und Ausblick	93
A	Optimierung der Magnetfeld-Modulationsspulen	97
B	Bedienungsanleitung FMR	99
C	CAD-Skizzen	105
	Literaturverzeichnis	111
	Danksagung	117

Abbildungsverzeichnis

2.1	Lösungen der Bloch-Gleichungen	7
2.2	Verschiebung des Resonanzmagnetfeldes bei FMR	9
2.3	Wahl des Koordinatensystems	10
3.1	Versuchsaufbau	16
3.2	Ersatzschaltbild Gunnoszillator	18
3.3	Gunnplexer schematisch	18
3.4	Darstellung der H_{10} -Mode	19
3.5	Probendurchführung schematisch	20
3.6	Dielektrischer Phasenschieber schematisch	21
3.7	Einfluss der Modulationsamplitude	22
3.8	Modulationsspule	23
3.9	Probenrotation	25
3.10	Modenbild des Hohlleiterresonators	26
3.11	Resonator und Ersatzschaltbild	27
3.12	Signalmischung	27
3.13	Magnetfeldkalibration	29
3.14	Veränderung der Probenposition	31
3.15	Messergebnisse zur Probenposition K-Band	32
3.16	Messergebnisse zur Probenposition X-Band	33
3.17	Einfluss des K-Band-Phasenschiebers auf das FMR-Signal	34
3.18	Einfluss des X-Band-Phasenschiebers auf das FMR-Signal	36
3.19	Variation der Modulationsfrequenz	38
3.20	Kalibration der Modulationsamplitude	39
3.21	Messung zur Empfindlichkeit des Spektrometers	40
4.1	Physikalische Eigenschaften von CrO_2	44
4.2	Schemaskizze der CrO_2 -Dünnschichten	45
4.3	Schichtdicken- und frequenzabhängige FMR-Moden in (100)- CrO_2	46
4.4	FMR-Spektren von (100)- CrO_2 -Proben	48
4.5	Winkelabhängige Resonanzmagnetfelder für (100)- CrO_2	49
4.6	Anisotropiefelder der (100)-orientierten CrO_2 -Filme	51
4.7	Schemaskizze zur Verspannung der (100)- CrO_2 -Filme	52
4.8	Skalenverhalten der Anisotropiefelder	55

4.9	Flächen in der tetragonalen Einheitszelle	56
4.10	FMR-Messungen der (110)-orientierten CrO ₂ -Filme	57
4.11	FMR-Resonanzmagnetfelder der (110)-orientierten CrO ₂ -Filme	58
4.12	Anisotropiefelder der (110)-orientierten CrO ₂ -Filme	59
4.13	Skizze zur Bestimmung der Dämpfungsbeiträge	62
5.1	FMR-Messungen an der Probe G1bc	67
5.2	Lage der leichten Achsen	68
5.3	Schemabild des LMOKE-Aufbaus	69
5.4	MOKE-Messungen und Stoner-Wohlfarth-Simulationen der Probe G1bc	71
5.5	FMR-Signal in GMR-Strukturen	74
6.1	Didaktikbild zu PMFMR	79
6.2	FMR-Resonanzmagnetfelder NP10	81
6.3	PMFMR-Messung NP10 in-plane	82
6.4	PMFMR Signalamplitude	83
6.5	Schema zur Messung der konventionellen Modulationsamplitude	85
6.6	Messung der konventionellen Modulationsamplitude	86
6.7	Messschema zur DC-Längenänderung des Piezo-Aktors	87
6.8	Messung der DC-Längenänderung des Piezo-Aktors	88
6.9	Messschema zur AC-Längenänderung des Piezo-Aktors	88
6.10	Messung der AC-Längenänderung des Piezo-Aktors	89
6.11	FMR-Spektren zum quantitativen Vergleich	91
6.12	Quantitativer Vergleich zwischen konventioneller und PM-FMR	92
C.1	CAD-Skizze der Modulationsspule für das X-Band	106
C.2	CAD-Skizze der Probenhalterung für das X-Band	107
C.3	CAD-Skizze der Vorrichtung zur automatischen Probenrotation	109

Tabellenverzeichnis

3.1	Gunnplexer Kenngrößen	17
3.2	Abmessungen der verwendeten Hohlleiter	18
3.3	Resonanzlinienbreiten ausgewählter Ferromagnete	39

Kapitel 1

Einleitung

Die weiter voranschreitende Entwicklung hin zu höherer Integrationsdichte, Arbeitsgeschwindigkeit, Energieeffizienz und erweiterter Funktionalität bringt die konventionelle Elektronik, die nur auf dem Ladungsfreiheitsgrad des Elektrons beruht, immer näher an ihre physikalischen Grenzen. Das Gebiet der Spintronik hingegen umfasst mehrere Konzepte, die zusätzlich vom Spinfreiheitsgrad des Elektrons Verwendung machen und somit neue technologische Möglichkeiten eröffnen. Da derartige spintronische Effekte sowohl für physikalische Grundlagenforschung als auch für industrielle Anwendungen relevant sind, werden sie im Moment intensiv erforscht. Dabei stellt der Riesenmagnetwiderstand sicherlich das Paradebeispiel für technologisch relevante Spintronik dar und die Verleihung des Physik-Nobelpreises des letzten Jahres an Albert Fert und Peter Grünberg für seine Entdeckung [1, 2] unterstreicht nicht zuletzt die Bedeutung des ganzen Forschungsgebiets der Spintronik.

Ein zentraler Ansatz zur Verwirklichung spintronischer Bauteile ist es, die Magnetisierung in dünnen ferromagnetischen Schichten zu kontrollieren, d.h. insbesondere ihre Orientierung verändern zu können. Die Orientierung der Magnetisierung kann zum einen durch ein äußeres Magnetfeld kontrolliert werden. Dies erfordert jedoch große Magnetfeldstärken, weshalb solche Systeme aufgrund von Streufeldern nur schwer auf kleine Abmessungen skalierbar sind. Daher sind andere Ansätze zur Kontrolle der Magnetisierung attraktiv. Der Einsatz elektrischer Felder ist technologisch auf kleinen Längenskalen leichter zu realisieren und weniger leistungsintensiv. Die Richtung der Magnetisierung mittels elektrischer Felder oder Ströme reversibel ändern zu können ist folglich ein wichtiger Schritt zur Entwicklung neuer spintronischer Bauelemente.

Zur elektrischen Magnetisierungskontrolle werden unterschiedliche Effekte und Materialstrukturen verwendet. So werden in Spinventil- oder TMR(Tunnelmagnetwiderstand)-Strukturen der Spin-Torque-Effekt [3, 4, 5] oder in Multiferroika eine direkte Magnetisierungskontrolle durch das elektrische Feld verwendet [6, 7]. Eine weitere, sehr interessante Möglichkeit der elektrischen Magnetisierungsänderung beruht auf der inversen Magnetostraktion, d.h. einer Änderung der magnetischen Eigenschaften durch elastische Dehnung des Ferromagneten [8, 9, 10, 11, 12]. Die dabei manipulierte Größe ist die magnetische Anisotropie.

Magnetische Anisotropie (MA) ist eine grundlegende Eigenschaft von ferromagneti-

schen Materialien. Sie bedeutet die bevorzugte Ausrichtung der Magnetisierung entlang bestimmter Kristall- bzw. Probenorientierungen, den sogenannten leichten Achsen. Die mikroskopischen Ursachen von MA sind Dipol-Dipol-Wechselwirkung und Spin-Bahn-Kopplung [13]. Phänomenologisch wird die MA durch die freie Energiedichte beschrieben. Die MA setzt sich aus mehreren Beiträgen zusammen: In einkristallinen Ferromagneten tritt die magnetokristalline Anisotropie auf, in dünnen magnetischen Filmen kommt die Formanisotropie hinzu und schließlich erzeugt Dehnung die magnetoelastische Anisotropie. Da ohne ein externes Magnetfeld die Orientierung der Magnetisierung in magnetisch eindomänigen Filmen von der MA dominiert wird, basiert folglich die Kontrolle der Magnetisierung auf einer Kontrolle der magnetischen Anisotropie. Um aber überhaupt Methoden zur Manipulation der MA entwickeln zu können ist der erste grundlegende Schritt, magnetische Anisotropie möglichst genau und gleichzeitig effizient messen zu können.

Zur Messung von magnetischer Anisotropie bieten sich verschiedene Methoden an, die entweder die statische oder dynamische Antwort eines magnetischen Systems detektieren [13]. Statische Methoden sind der Magnetooptische Kerr-Effekt (MOKE), Torque-Magnetometrie, Magnetotransport-Messungen sowie das magnetische Moment messende Techniken wie Vibrating Sample Magnetometrie (VSM) oder Superconducting Quantum Interference Device (SQUID) Magnetometrie. Zu den dynamischen Techniken gehört die ferromagnetische Resonanzspektroskopie (FMR). Diese Technik bietet viele Vorteile. Vor allem ist FMR wohl die empfindlichste Methode zur quantitativen Messung der MA, und sie erlaubt eine Trennung von verschiedenen Anisotropiebeiträgen mit unterschiedlicher Symmetrie. Weiterhin erfolgt die Messung typischerweise in vergleichsweise kurzer Zeit (Minuten-Skala) und erfordert keine aufwändige Vorbereitung der zu untersuchenden Probe wie etwa Mikrostrukturierung.

Dies begründet den Wunsch, einen Messplatz für ferromagnetische Resonanz am Walther-Meissner-Institut einzurichten, was der Hauptbestandteil dieser Diplomarbeit war. Die theoretischen Grundlagen der ferromagnetischen Resonanz werden in Kapitel 2 diskutiert. Dabei wird insbesondere die Freie-Energie-Formulierung der FMR, aus der die magnetische Anisotropie extrahiert werden kann, vorgestellt. Nach diesem kurzen Überblick widmet sich Kapitel 3 dem neuen FMR-Messplatz. Die technischen Details und die Funktionsweise des Aufbaus und seiner Komponenten werden besprochen. Außerdem wird erläutert, wie die Entstehung und Detektion des Messsignals von bestimmten Parametern des Aufbaus abhängt. Der Aufbau wird zudem charakterisiert, relevante Messparameter kalibriert, und die Empfindlichkeit des Aufbaus mit einem kommerziellen System verglichen.

Ein erster Einsatz des jetzt etablierten FMR-Messplatzes erfolgt in Kapitel 4 zur Bestimmung der magnetischen Anisotropie in dünnen Filmen aus Chromdioxid (CrO_2). Die Entwicklung der Spintronik beinhaltet auch die Suche nach neuen Materialsystemen mit erweiterter Funktionalität. CrO_2 ist ein viel versprechender Vertreter der ferromagnetischen Halbmetalle mit einer theoretisch zu erwartenden Spinpolarisation von 100 % [14]. Davon ist CrO_2 mit einem experimentellen Wert von 98 % [15] nicht weit entfernt, was

es für zahlreiche spintronische Bauelemente, beispielsweise magnetische Tunnelkontakte, sehr interessant macht. Vor einer technologischen Anwendung ist jedoch eine genaue Kenntnis der MA und von Faktoren, mit denen sie beeinflusst werden kann, notwendig. Dazu wird die MA in verschieden dicken CrO_2 -Filmen, die damit unterschiedliche epitaktische Verspannung aufweisen sollten, sowie für zwei unterschiedliche Substratorientierungen untersucht. Außerdem wird am Beispiel von CrO_2 gezeigt, wie die Dämpfung der Magnetisierung, die ein Maß für die Qualität eines ferromagnetischen Films ist, in frequenzabhängigen FMR-Messungen bestimmt werden kann.

In Kapitel 5 wird die MA eines sogenannten Spinventils, d.h. eines spintronischen Bauteils mit zwei ferromagnetischen Schichten im FMR-Spektrometer untersucht. Das Spinventil wird außerdem im am Walther-Meissner-Institut in einer weiteren Diplomarbeit aufgebauten MOKE-Magnetometer gemessen und so ein Vergleich zwischen den beiden Messmethoden hergestellt. Weiterhin wird noch die Möglichkeit diskutiert, mittels FMR die Kopplung ferromagnetischer Schichten in GMR-Strukturen zu bestimmen.

Kapitel 6 widmet sich schließlich einer unkonventionellen FMR-Modulationstechnik. Die Piezo-modulierte Ferromagnetische Resonanz (PMFMR) wird vorgestellt und quantitativ analysiert. PMFMR erlaubt insbesondere eine sehr empfindliche Messung von magnetoelastischen Kopplungsparametern.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen der FMR-Spektroskopie

Wie mit Hilfe von Ferromagnetischer Resonanzspektroskopie (FMR-Spektroskopie) die magnetische Anisotropie bestimmt werden kann, wird in diesem Kapitel theoretisch dargestellt. Zunächst soll dazu die Theorie der FMR erläutert werden. Wir beginnen mit den Grundlagen der Elektronenspinresonanz, um diese dann auf ferromagnetische Resonanz zu erweitern. Weiterhin werden die Beiträge zur phänomenologischen freien Energie eines Ferromagneten erläutert und es wird gezeigt, dass diese über die Bewegungsgleichung der FMR experimentell zugänglich sind.

2.1 Elektronenspinresonanz (ESR)

Elektronenspinresonanz (ESR) tritt auf in paramagnetischen Materialien mit voneinander unabhängigen magnetischen Momenten. Betrachtet man zunächst ein einzelnes magnetisches Moment μ_J , so führt ein externes Magnetfeld der magnetischen Induktion¹ $\mu_0 \mathbf{H}_0$ zur sogenannten Zeeman-Aufspaltung der Energieniveaus in durch die Quantenzahl m_J charakterisierte Eigenzustände. Die zugehörigen Energieeigenwerte E_J sind gegeben durch

$$E_J = -\mu_0 \boldsymbol{\mu}_J \cdot \mathbf{H}_0 = g_J \mu_B m_J \mu_0 H_0, \quad (2.1)$$

wobei g_J den g-Faktor und μ_B das Bohrsche Magneton bezeichnen.

Zwischen diesen Energieniveaus können durch die Absorption eines magnetischen Wechselfeldes der Form $\mu_0 \mathbf{h}(\omega t) = \mu_0 \mathbf{h} \sin(\omega t)$ resonante Übergänge induziert werden. Dabei muss neben der Auswahlregel $\Delta m_J = \pm 1$ die energetische Resonanzbedingung

$$\hbar \omega = \Delta E = g_J \mu_B \mu_0 H_0 \quad (2.2)$$

erfüllt sein. In einem paramagnetischen Material führt die ungestörte Überlagerung der einzelnen magnetischen Momente zu einer makroskopischen Magnetisierung \mathbf{M} . In einem externen, statischen Magnetfeld $\mu_0 H_0$ stellt sich eine nicht verschwindende Gleichgewichts-

¹Magnetfelder werden in der gesamten Arbeit durch die magnetische Induktion $B = \mu_0 H$ beschrieben.

Magnetisierung $\mathbf{M}_0 \parallel \mathbf{H}_0$ ein. ESR bezeichnet also die Resonanzabsorption von elektromagnetischer Strahlung durch ein Ensemble nicht wechselwirkender magnetischer Momente. Formal wird die zeitliche Evolution des Magnetisierungsvektors zwischen der Störung durch das Wechselfeld und der Rückkehr zur Gleichgewichtslage $\mathbf{M}_0 \parallel \mathbf{H}_0$ durch die Bloch-Gleichungen [16] beschrieben. Diese lauten für $\mu_0 \mathbf{H}_0 = \mu_0 H_0 \mathbf{e}_z$:

$$\begin{aligned}\frac{dM_x}{dt} &= -\gamma\mu_0 (\mathbf{M} \times \mathbf{H})_x - \frac{M_x}{T_2} \\ \frac{dM_y}{dt} &= -\gamma\mu_0 (\mathbf{M} \times \mathbf{H})_y - \frac{M_y}{T_2} \\ \frac{dM_z}{dt} &= -\gamma\mu_0 (\mathbf{M} \times \mathbf{H})_z - \frac{M_z - M_0}{T_1},\end{aligned}\tag{2.3}$$

wobei

$$\gamma = \frac{gJ\mu_B}{\hbar}\tag{2.4}$$

das gyromagnetische Verhältnis bezeichnet. In (2.3) beschreiben die jeweils ersten Terme auf der rechten Seite die Präzessionsbewegung der Magnetisierung um das äußere Magnetfeld $\mu_0 \mathbf{H} = \mu_0 \mathbf{H}_0 + \mu_0 \mathbf{h}$, das sich aus dem externen statischen Magnetfeld $\mu_0 \mathbf{H}_0$ sowie dem magnetischen Wechselfeld $\mu_0 \mathbf{h}$ zusammensetzt. Die jeweils letzten Terme in (2.3) sind Relaxationsterme mit der Phasenrelaxation T_2 und der Energierelaxation T_1 . Das vorliegende physikalische Problem ist analog zum Fall des getriebenen harmonischen Oszillators. Folglich ergibt sich als Lösung der Bloch-Gleichungen die komplexe magnetische Suszeptibilität

$$\chi = \chi' + i\chi'' = \frac{\partial M}{\partial H}.\tag{2.5}$$

Dabei führt der Realteil χ' durch Verändern der Resonanzposition zur Dispersion in Abb. 2.1(a), während der Imaginärteil χ'' die Absorption von elektromagnetischer Strahlung, also die eigentliche magnetische Resonanz beschreibt (s. Abb. 2.1(b)).

Modulationsspektroskopie

Um die Empfindlichkeit einer ESR-Messung zu erhöhen, wird in der Regel mit Hilfe eines Lock-In-Verstärkers moduliert. Dazu wird eine der physikalisch relevanten, d.h. in der Resonanzbedingung (2.2) auftauchenden Größen mit einem kleinen oszillierenden Anteil überlagert und so moduliert. In den meisten Fällen ist dies das Magnetfeld. Indem der Lock-In-Verstärker alle Signalbestandteile, die eine andere als die Modulationsfrequenz aufweisen, unterdrückt, wird das Rauschen deutlich verringert. Durch die Magnetfeldmodulation ändert sich allerdings der Signalverlauf: Das gemessene Signal entspricht gerade der Ableitung der ursprünglichen Kurve [17], wie dies in Abb. 2.1(c) und (d) zu sehen ist. In den Abbildungen 2.1(b) und (d) sind wichtige Größen eingezeichnet, die im

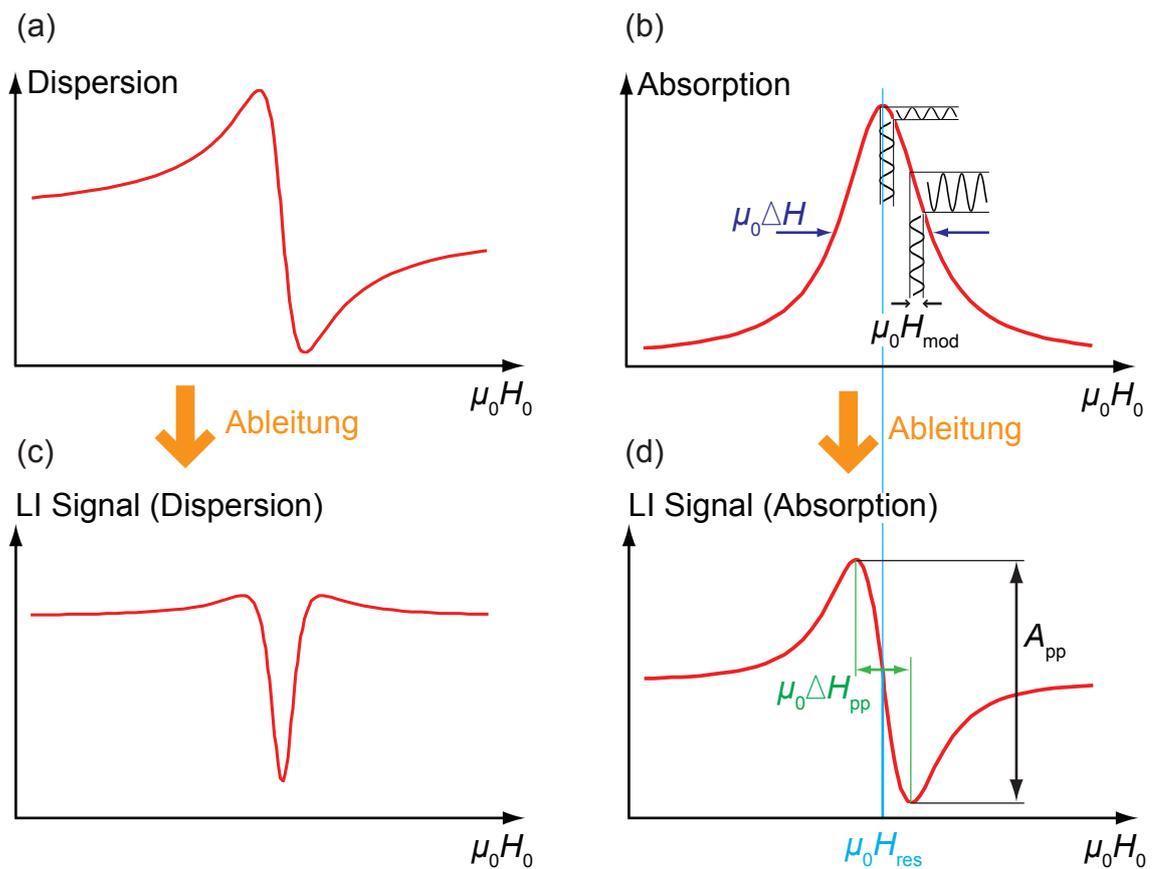


Abbildung 2.1: Magnetische Suszeptibilität als Lösung der Bloch-Gleichungen: (a) Dispersion (Realteil), (b) Absorption (Imaginärteil). (c) Lock-In Signal für Dispersion und (d) Absorption.

Folgenden verwendet werden. Die Absorptionskurve ist gekennzeichnet durch das Resonanzmagnetfeld $\mu_0 H_{\text{res}}$ sowie die full width half maximum Linienbreite $\mu_0 \Delta H$. Die Magnetfeldmodulation dieses Signals erfolgt mit einer peak-to-peak Amplitude $\mu_0 H_{\text{mod}}$. Die daraus resultierende Ableitung des Absorptionssignals wird beschrieben durch das Resonanzmagnetfeld $\mu_0 H_{\text{res}}$, die Signalamplitude A_{pp} sowie die Resonanzlinienbreite $\mu_0 \Delta H_{\text{pp}}$. Letztere stimmt nicht überein mit der FWHM-Linienbreite $\mu_0 \Delta H$. Es gilt vielmehr der Zusammenhang

$$\mu_0 \Delta H = 3^{1/2} \mu_0 \Delta H_{\text{pp}} \approx 1,7321 \mu_0 \Delta H_{\text{pp}} \quad (2.6)$$

für eine Lorentz-förmige Absorptionskurve [18]. Dennoch werden $\mu_0 \Delta H_{\text{pp}}$ wie auch $\mu_0 \Delta H$ in dieser Arbeit als Resonanzlinienbreite bezeichnet. Eine Unterscheidung erfolgt durch die Verwendung der entsprechenden Variablen.

Dass das modulierte Signal gerade die Ableitung des ursprünglichen Verlaufs ist, gilt jedoch nur, solange die Amplitude der Magnetfeldmodulation $\mu_0 H_{\text{mod}}$ klein im Vergleich zur Linienbreite der ESR-Resonanz $\mu_0 \Delta H_{\text{pp}}$ ist. Für $\mu_0 H_{\text{mod}} > \mu_0 \Delta H_{\text{pp}}$ - man spricht von Übermodulation - wird das gemessene ESR Signal verbreitert. Der genaue Einfluss der Modulation auf die Linienform ist in [19] beschrieben. Die unverbreiterte Linie wird im Folgenden natürliche Linienbreite genannt, auch wenn sie nicht mit der eigentlichen physikalischen Definition der „natürlichen Linienbreite“, d.h. der durch die Relaxationszeiten T_1 und T_2 bestimmten Linienbreite übereinstimmt.

Signalintensität

Aus den Graphen in Abb. 2.1 kann außerdem die Signalintensität der Elektronenspinresonanz abgelesen werden: Diese ist gegeben durch die Fläche innerhalb der Lorentzkurve der Absorption in Abb. 2.1(b) [19]. Im modulierten Signal in Abb. 2.1(d) gilt dann [19]

$$I \propto A_{\text{pp}} (\mu_0 \Delta H_{\text{pp}})^2. \quad (2.7)$$

2.2 Ferromagnetische Resonanz (FMR)

Das bisher Gesagte gilt im Wesentlichen auch für magnetische Resonanz in Ferromagneten. Die entscheidenden Unterschiede zur ESR und weitere Konzepte zur theoretischen Beschreibung der FMR werden im Folgenden erläutert.

Bei Ferromagnetischer Resonanz erfolgt die Resonanzabsorption von elektromagnetischer Strahlung in einem System, dessen magnetische Momente durch die magnetische Austauschwechselwirkung gekoppelt sind. Außerdem weist ein Ferromagnet im Allgemeinen magnetische Anisotropie auf. Folglich tritt an die Stelle des externen statischen Magnetfeldes ein effektives statisches Magnetfeld $\mu_0 \mathbf{H}_{\text{eff}}$. Dieses setzt sich zusammen aus dem externen Magnetfeld $\mu_0 \mathbf{H}$ sowie dem durch die Austauschwechselwirkung bedingten inneren Feld $\mu_0 \mathbf{H}_{\text{FM}}$ und dem richtungsabhängigen Anisotropiefeld $\mu_0 \mathbf{H}_{\text{Aniso}}$. Das effek-

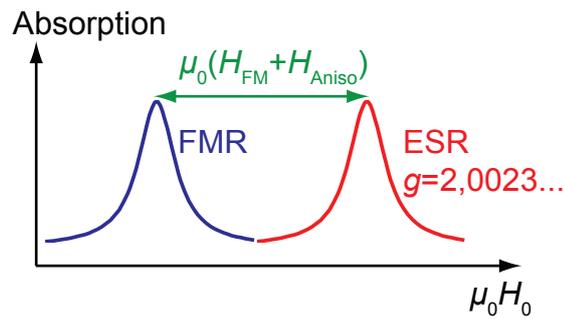


Abbildung 2.2: Verschiebung des Resonanzmagnetfeldes bei FMR (blau) gegenüber ESR (rot).

tive Magnetfeld $\mu_0 \mathbf{H}_{\text{eff}} = \mu_0 \mathbf{H} + \mu_0 \mathbf{H}_{\text{FM}} + \mu_0 \mathbf{H}_{\text{Aniso}}$ weicht im Allgemeinen in Betrag und Richtung vom externen Magnetfeld ab. Folglich nimmt (2.2) die leicht veränderte Form

$$\hbar\omega = g_J \mu_B \mu_0 H_{\text{eff}} \quad (2.8)$$

an und an Stelle der Bloch-Gleichungen tritt die Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung [20]

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma \mu_0 (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{\text{eff}}) + \frac{\alpha}{M_S} \left(\mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt} \right), \quad (2.9)$$

worin M_S die Sättigungsmagnetisierung und α ein dimensionsloser Dämpfungsterm ist. Der nun andere Dämpfungsterm (letzter Term in (2.9)) stellt einen weiteren Unterschied der FMR zur ESR dar. Als Lösung der Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung ergibt sich analog zu (2.5) die magnetische Suszeptibilität mit qualitativ ähnlichem Signalverlauf. Einzig die Position der Resonanz auf der Skala des externen statischen Magnetfeldes wird durch den Übergang zum effektiven Magnetfeld verschoben, wie die Resonanzgleichung (2.8) impliziert. In Abb. 2.2 ist dies schematisch skizziert: Die rote Absorptionskurve entspricht einem ESR-Signal, angedeutet durch den g-Faktor 2,0023... für das freie Elektron. Die blaue Kurve der FMR ist dagegen um die zusätzlichen Terme $\mu_0 H_{\text{FM}} + \mu_0 H_{\text{Aniso}}$ auf der Horizontalen verschoben.

Aufgrund der magnetischen Anisotropie liegt die Magnetisierung im Allgemeinen nicht parallel zum externen Magnetfeld, sondern schließt mit diesem einen endlichen Winkel ein, was die Beschreibung der FMR mit Gleichung (2.9) stark verkompliziert. Als alternative theoretische Formulierung der FMR, die diese Effekte implizit berücksichtigt, wird daher im folgenden Abschnitt eine Ableitung der FMR-Bewegungsgleichung aus der totalen freien Energiedichte dargelegt [21].

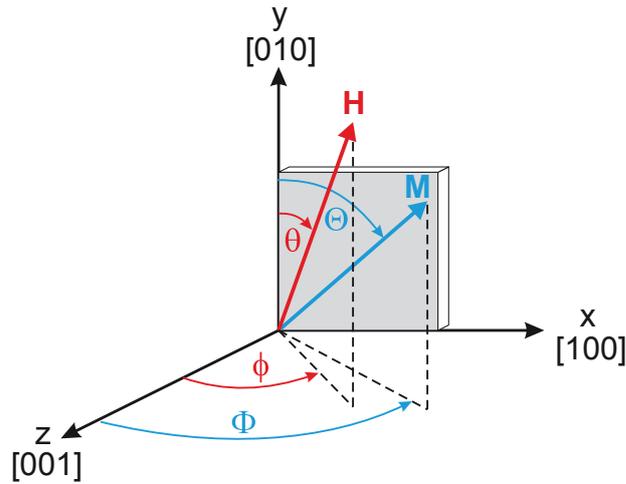


Abbildung 2.3: Wahl des Koordinatensystems in Bezug auf die Probe. Die kartesischen Achsen weisen entlang der kristallographischen $\langle 100 \rangle$ -Richtungen der Probe. In Polarkoordinaten sind Magnetisierung und externes Magnetfeld gegeben durch $\mathbf{M} = (M, \Theta, \Phi)$ bzw. $\mu_0 \mathbf{H} = (\mu_0 H, \theta, \phi)$ [22].

2.3 Energieformulierung der FMR

Die totale freie Energiedichte F_{tot} für einen dünnen ferromagnetischen Film setzt sich aus den Beiträgen von Zeeman-Energie F_{stat} , Entmagnetisierungsenergie F_{Form} , Anisotropieenergie F_{Aniso} und magnetoelastischer Energie F_{magel} zusammen:

$$F_{\text{tot}} = F_{\text{stat}} + F_{\text{Form}} + F_{\text{Aniso}} + F_{\text{magel}}. \quad (2.10)$$

Diese einzelnen Beiträge werden nun in allgemeiner Form und in der speziellen Situation des Koordinatensystems nach Abb. 2.3 beschrieben.

2.3.1 Beiträge zur freien Energiedichte

Zeeman-Energie

Die Zeeman- oder magnetostatische Energiedichte ist gegeben durch die Wechselwirkung der Magnetisierung \mathbf{M} mit dem externen Magnetfeld $\mu_0 \mathbf{H}$:

$$F_{\text{stat}} = -\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H}. \quad (2.11)$$

Im Koordinatensystem nach Abb. 2.3 ergibt sich daraus:

$$F_{\text{stat}} = -\mu_0 M H (\sin \Theta \sin \Phi \sin \theta \sin \phi + \cos \Theta \cos \theta + \sin \Theta \cos \Phi \sin \theta \cos \phi). \quad (2.12)$$

Als einziger Beitrag zur totalen freien Energiedichte hängt der Zeeman-Term vom ex-

ternen Magnetfeld ab. Während dieser Beitrag die Magnetisierung nach dem externen Magnetfeld auszurichten sucht, wird dies durch die beiden folgenden Terme im Allgemeinen verhindert.

Beitrag der Entmagnetisierung

Der Beitrag der Entmagnetisierung, bisweilen auch Formanisotropie genannt, stammt vom Entmagnetisierungsfeld $\mu_0 \mathbf{H}_{\text{Form}}$ an der Oberfläche eines Ferromagneten [23] und hat die Form

$$F_{\text{Form}} = \frac{\mu_0}{2} \mathbf{M} \cdot \mathbf{N} \cdot \mathbf{M} \quad (2.13)$$

mit dem Entmagnetisierungstensor \mathbf{N} . Für den Spezialfall des dünnen magnetischen Films, der für alle in dieser Arbeit untersuchten Proben zutrifft, vereinfacht sich dieser Tensor zu einem Skalar. Beispielsweise verschwinden für einen dünnen (100)-orientierten Film alle Komponenten außer $N_{xx} = 1$ [24] und es folgt

$$F_{\text{Form,(100)}} = \frac{\mu_0}{2} M^2 \sin^2 \Theta \sin^2 \Phi. \quad (2.14)$$

Die Winkelabhängigkeit dieses Ausdrucks entspricht der einer uniaxialen Anisotropie mit harter Achse entlang der Filmnormalen.

Magnetokristalline Anisotropie in einkristallinen Filmen

Der magnetokristalline Anisotropiebeitrag berücksichtigt die lokale kristalline Struktur durch eine phänomenologische Entwicklung in Potenzen der Richtungskosinus der Magnetisierung $\alpha_i = \frac{M_i}{M}$ ($i \in \{x, y, z\}$), wobei Symmetrieüberlegungen, wie das Wegfallen gerader Potenzen aufgrund von Inversionssymmetrie, berücksichtigt werden.

So ergibt sich für kubische Kristallsymmetrie folgende freie Energiedichte mit dem ersten nicht verschwindenden Term:

$$F_c = K_{c1} (\alpha_x^2 \alpha_y^2 + \alpha_y^2 \alpha_z^2 + \alpha_z^2 \alpha_x^2) = \quad (2.15)$$

$$= \frac{1}{4} K_{c1} (\sin^2(2\Theta) + \sin^4 \Theta \sin^2(2\Phi)), \quad (2.16)$$

wobei K_{c1} die kubische Anisotropiekonstante erster Ordnung ist.

Als weiteres Beispiel kann eine tetragonale Kristallsymmetrie durch uniaxiale Anisotropien, z.B. in z -Richtung, der Form

$$F_u = K_{u,z} \alpha_z^2 = K_{u,z} \sin^2 \Theta \cos^2 \Phi \quad (2.17)$$

beschrieben werden, wodurch für positive Anisotropiekonstante $K_{u,z}$ eine harte Achse entlang der z -Richtung liegt.

Magnetoelastische Anisotropie

Der magnetoelastische Effekt beschreibt den Einfluss der Dehnung² eines Ferromagneten auf die Magnetisierung. Sofern nur Dehnungen entlang der orthogonalen kristallographischen Richtungen $[100](x)$, $[010](y)$ und $[001](z)$ in kubischen oder tetragonalen Systemen auftreten, können Scherungen vernachlässigt werden und die Dehnungen sind rein uniaxial. Entsprechend sind die Beiträge der Dehnung zur freien Energiedichte uniaxiale Terme entlang der Richtungen der Dehnung:

$$F_{\text{magnet}} = K_{\text{magnet},x}\alpha_x^2 + K_{\text{magnet},y}\alpha_y^2 + K_{\text{magnet},z}\alpha_z^2 \quad (2.18)$$

Mittels magnetoelastischer Theorie können die magnetoelastischen Anisotropiekonstanten $K_{\text{magnet},i}$ auch direkt als Funktion der Dehnungen ausgedrückt werden:

$$K_{\text{magnet},i} = \frac{3}{2}\bar{\lambda}(c_{12} - c_{11})\varepsilon_i, \quad i \in \{x,y,z\}. \quad (2.19)$$

Hierin bezeichnen $\bar{\lambda}$ die gemittelte magnetostriktive Konstante, c_{11} und c_{12} die elastischen Konstanten des jeweiligen Materials und ε_i die Dehnungen entlang den entsprechenden Richtungen.

Zur Dehnung kann dabei einerseits eine Gitterfehlanelastizität beim Wachstum des Films auf dem Substrat (s. Kapitel 4), aber auch eine gezielte Dehnung, etwa durch einen Piezo-Aktor (s. Kapitel 6), führen.

2.3.2 Bewegungsgleichung der FMR

Im Rahmen der Energie-Formulierung kann aus einer mit Gleichung (2.9) konsistenten Lagrangefunktion folgende Bewegungsgleichung hergeleitet werden [24]:

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \frac{1 + \alpha^2}{M_S^2 \sin^2 \Theta} \left(\left(\frac{\partial^2 F_{\text{tot}}}{\partial \Theta^2}\right) \left(\frac{\partial^2 F_{\text{tot}}}{\partial \Phi^2}\right) - \left(\frac{\partial^2 F_{\text{tot}}}{\partial \Theta \partial \Phi}\right)^2 \right)_{\Theta_0, \Phi_0}, \quad (2.20)$$

wobei die Auswertung der Gleichung in der Gleichgewichtsorientierung der Magnetisierung beschrieben durch $\Theta = \Theta_0$ und $\Phi = \Phi_0$ erfolgt. Daher müssen zusätzlich die Bedingungen für einen stationären Zustand der freien Energiedichte erfüllt sein:

$$\left. \frac{\partial F_{\text{tot}}}{\partial \Theta} \right|_{\Theta=\Theta_0} = \left. \frac{\partial F_{\text{tot}}}{\partial \Phi} \right|_{\Phi=\Phi_0} = 0. \quad (2.21)$$

Durch Einsetzen der totalen freien Energiedichte (2.10) in die Bewegungsgleichung

²Der Begriff „Dehnung“ entspricht dem englischen „strain“ und bezeichnet eine relative Längenänderung, die sowohl positives als auch negatives Vorzeichen annehmen kann und dimensionslos ist. Hervorgehoben wird die Dehnung durch eine „Spannung“ (engl. „stress“), die einer Kraft pro Flächeneinheit entspricht.

(2.20) entsteht eine Gleichung, aus der bei bekannten Anisotropiekonstanten die Resonanzmagnetfelder $\mu_0 H_{\text{res}}$ der FMR extrahiert werden können. Dabei wird der Dämpfungsterm in (2.20) vernachlässigt ($\alpha = 0$), da dieser nur Einfluss auf die Linienbreite, nicht aber auf die Lage der Resonanz hat. Für spezielle Fälle der Orientierung des externen Magnetfeldes (hoch symmetrische Richtungen bzgl. der Kristall- oder Probenstruktur) kann Gleichung (2.20) analytisch ausgewertet werden [22]. Ansonsten erfolgt die Berechnung numerisch.

Umgekehrt können die Anisotropiekonstanten, die in die totale freie Energiedichte eingehen, aus den Gleichungen (2.20) und (2.21) gewonnen werden, sofern die Resonanzmagnetfelder $\mu_0 H_{\text{res}}$ aus der Messung bestimmt wurden. Dies soll an folgendem Beispiel verdeutlicht werden: Im Falle eines (100)-orientierten dünnen Films mit uniaxialen Anisotropien in x- und in y-Richtung (Anisotropiekonstante $K_{u,x}$ bzw. $K_{u,y}$) folgen als analytische Spezialfälle von (2.20) für $\mathbf{H}||[100]$

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \left(\mu_0 H_{\text{res},[100]} - 2\frac{K_{u,x}}{M}\right) \left(\mu_0 H_{\text{res},[100]} - 2\frac{K_{u,x}}{M} + 2\frac{K_{u,y}}{M}\right) \quad (2.22)$$

und für $\mathbf{H}||[001]$

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = \left(\mu_0 H_{\text{res},[001]} + 2\frac{K_{u,x}}{M}\right) \left(\mu_0 H_{\text{res},[001]} + 2\frac{K_{u,y}}{M}\right). \quad (2.23)$$

Es ist offensichtlich, dass aus einer dieser Gleichungen allein nicht die Anisotropiefelder $K_{u,x}/M$ und $K_{u,y}/M$ sowie der zusätzlich meist unbekannt g -Faktor, der in γ enthalten ist, bestimmt werden können. Dazu braucht es ein System aus möglichst vielen Gleichungen, d.h. die Resonanzmagnetfelder müssen durch FMR-Messungen für eine ganze Reihe von Orientierungen des externen Magnetfeldes zur Probe gewonnen werden. Üblicherweise können durch zwei Drehungen des externen Magnetfeldes - einmal in der Filmebene und in einer dazu senkrechten Ebene - die Anisotropiefelder sehr exakt bestimmt werden.

Wie diese Drehung sowie alle weiteren Bestandteile eines FMR-Experiments technisch realisiert wurden, folgt im nächsten Kapitel.

Kapitel 3

Aufbau eines FMR-Spektrometers für X- und K-Band

Dieses Kapitel widmet sich dem im Rahmen dieser Arbeit neu aufgebauten Messplatz für ferromagnetische Resonanz im Mikrowellenfrequenzbereich von X- und K-Band (8-12 GHz bzw. 18-26,5 GHz) bei Raumtemperatur. Zunächst wird der Messplatz mit den einzelnen verwendeten Komponenten beschrieben, darauf folgen Überlegungen zur Signalentstehung und -detektion und zuletzt werden Messungen zur Charakterisierung des Aufbaus gezeigt.

3.1 Technische Details des Messaufbaus

3.1.1 Übersicht des Aufbaus

Die für den Messplatz nötigen Bestandteile sollen zunächst einmal gesammelt und danach genauer erklärt werden: Aus der Theorie zur ESR/FMR (s. Kapitel 2) ergibt sich, dass zur Erzeugung von magnetischer Resonanz prinzipiell ein statisches externes Magnetfeld sowie ein magnetisches Wechselfeld im Mikrowellenbereich¹ nötig sind. Der Einsatz von Mikrowellen erfordert natürlich eine Mikrowellenquelle, weiterhin auch Hohlleiter und einen Zirkulator zur Führung der Mikrowelle und einen Resonator sowie einen Phasenschieber zur Erzeugung eines Mikrowellenstehfeldes. Zur tatsächlichen Messung der Resonanz muss die Mikrowelle außerdem mit einer entsprechenden Diode detektiert werden. Die Funktionen von Mikrowellenquelle, Detektionsdiode sowie Zirkulator erfüllt als ein integriertes Bauteil ein sogenannter Gunnplexer. Zur Erhöhung der Empfindlichkeit der Messung wird Modulationsspektroskopie angewendet (s. Abschnitt 2.1). Als technisch einfachste Methode wurde in diesem Aufbau die Magnetfeldmodulation realisiert. Das System zur Modulation besteht aus Modulationsspule, Lock-In-Verstärker sowie Audio-Verstärker zum Betrieb der Spule. Weiterhin ist zur Bestimmung von magnetischer Anisotropie eine Drehung der Probe bezüglich des externen Magnetfeldes nötig

¹Zur parallelen Ausrichtung der magnetischen Momente eines Paramagneten bzw. zur Sättigung der Magnetisierung eines Ferromagneten ist typischerweise ein externes Magnetfeld der Größenordnung $\mu_0 H \sim 1$ T nötig. Mit $g = 2$ folgt dann nach Gleichung (2.2) eine Mikrowellenfrequenz $\nu \sim 30$ GHz.

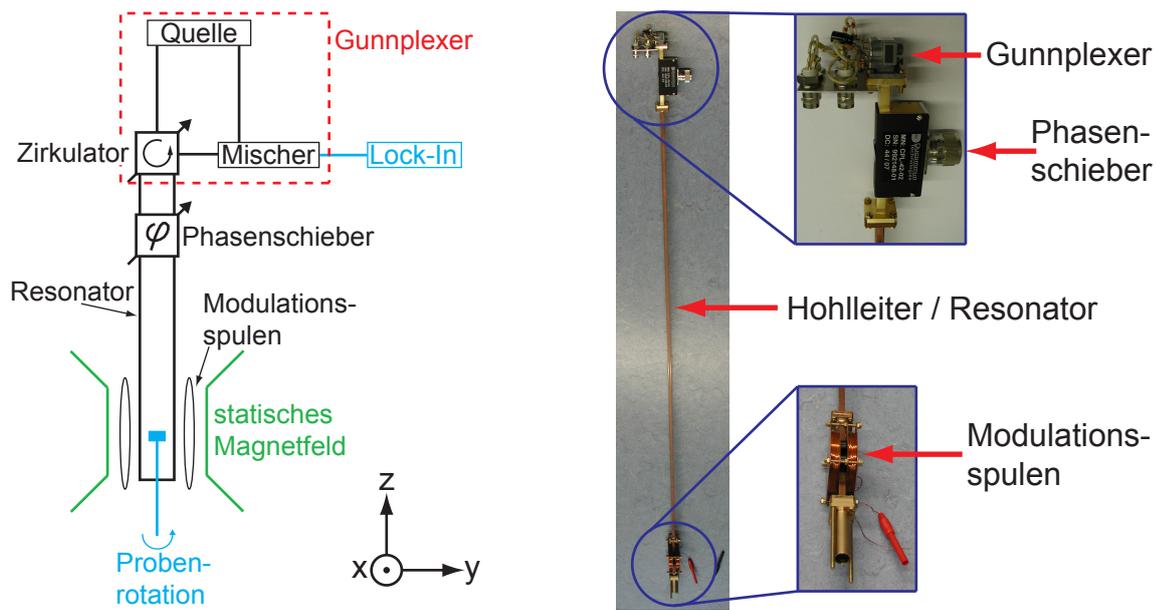


Abbildung 3.1: (a) Versuchsaufbau schematisch. (b) Fotografien des K-Band-Stabes.

(s. Abschnitt 2.3.2). Daher wurde eine Vorrichtung zur automatisierten Probenrotation geschaffen. Schließlich ermöglicht ein Computerprogramm, geschrieben in LabVIEW, die automatische Messung eines einzelnen oder auch einer ganzen Winkelserie von Spektren. Zusammengefasst ergeben sich also die folgenden Bestandteile:

- Gunnplexer (Mikrowellenquelle, Detektionsdiode, Zirkulator)
- Mikrowellenhohlleiter bzw. -resonator
- Phasenschieber
- Magnetfeld-Modulationsspule sowie Verstärker
- statisches externes Magnetfeld
- Vorrichtung zur (automatisierten) Probenrotation
- LabVIEW-Messprogramm

Ein Schema des Aufbaus mit den einzelnen Komponenten ist in Abb. 3.1(a) gezeigt: Die auf ein drehbares Glasröhrchen aufgeklebte Probe befindet sich im Mikrowellenresonator, der im hier realisierten Aufbau einfach dem Hohlleiter entspricht, und im Zentrum des externen statischen sowie des Modulations-Magnetfeldes. Die Mikrowellenquelle emittiert zum einen direkt an die Mischerdiode, zum anderen über Zirkulator und Phasenschieber zur Probe im Resonator. Von dessen Abschluss werden die Mikrowellen reflektiert

	X-Band	K-Band
Typbezeichnung	MO87127-3	MO9072
Frequenz	10,3 GHz	24,125 GHz
tuning range	40 MHz	50 MHz
U_{Gunn}	10 V	5 V
P_{Gunn}	35 mW	5 mW

Tabelle 3.1: Kenngrößen der verwendeten Gunnplexer von MDT [26].

und durch die Funktion des Zirkulators auf die Mischerdiode gelenkt. Das dort entstehende Signal wird dann von der Elektronik des Lock-In-Verstärkers verarbeitet. Alle in Abb. 3.1(a) in schwarzer Farbe gezeichneten Komponenten sind jeweils zweimal, nämlich für X- und K-Band, notwendig. Diese Teile sind zu einem Stab (s. Abb. 3.1(b)) zusammengebaut, der ohne großen Aufwand in das externe Magnetfeld eingebracht und an die Elektronik angeschlossen werden kann. So ist ein einfacher Wechsel zwischen X- und K-Band-Stab sichergestellt.

Es folgt nun die genauere Beschreibung der einzelnen Komponenten.

3.1.2 Gunnplexer

Ein Gunnplexer vereint Mikrowellenquelle, -detektor sowie Zirkulator in einer Einheit und wird gewöhnlich als „Radarfalle“ oder, allgemeiner gesagt, zur Entfernungs- und Geschwindigkeitsmessung mit Mikrowellen eingesetzt. Als Mikrowellenquelle dient ein Gunnoszillator. Dieser besteht aus einem Gunnelement, das an einen Hohlraumresonator gekoppelt ist. Das Gunnelement besteht aus GaAs, welches bei Anlegen einer DC-Spannung oberhalb eines Schwellenwertes aufgrund des negativen differentiellen Widerstandes in GaAs die Bildung und Oszillation von Hochfelddomänen und damit elektromagnetische Abstrahlung im Mikrowellenbereich ermöglicht [25]. Die Kopplung des Gunnelements an einen Resonator, wie im Ersatzschaltbild in Abb. 3.2 dargestellt, bestimmt neben der Länge des Elements die Frequenz der Mikrowelle. Durch Hinzufügen einer zusätzlichen, abstimmbaren Kapazität lässt sich daher die emittierte Frequenz in einem kleinen Bereich variieren (s. tuning range in Tabelle 3.1). Dies erfolgt mit einer Varaktordiode, d.h. einer pn-Diode in Rückwärtsrichtung, deren Kapazität eine Funktion der angelegten Spannung ist. Dieser so abstimmbare Gunnoszillator wird folglich als voltage controlled oscillator (VCO) bezeichnet. Wichtige Kenngrößen der eingesetzten Gunnplexer der Firma MDT sind in Tabelle 3.1 aufgelistet. Zur Stromversorgung der Gunndiode wird das Labornetzteil Agilent E3616A verwendet.

Die Funktionsweise des Gunnplexers geht aus der Schemaskizze in Abb. 3.3 hervor: Die vom Gunnoszillator emittierte Mikrowelle wird abgestrahlt, am Messobjekt reflektiert und vom Zirkulator auf die Mischerdiode gelenkt, wo eine Mischung mit dem Ausgangssignal des Gunnoszillators stattfindet. Anstatt der in Abb. 3.3 gezeigten Hornantenne

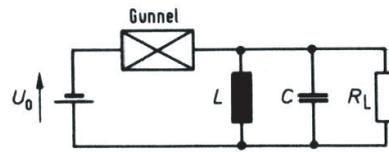


Abbildung 3.2: Ersatzschaltbild Gunnoszillator: Das Gunnelement ist an einen LRC-Kreis gekoppelt.

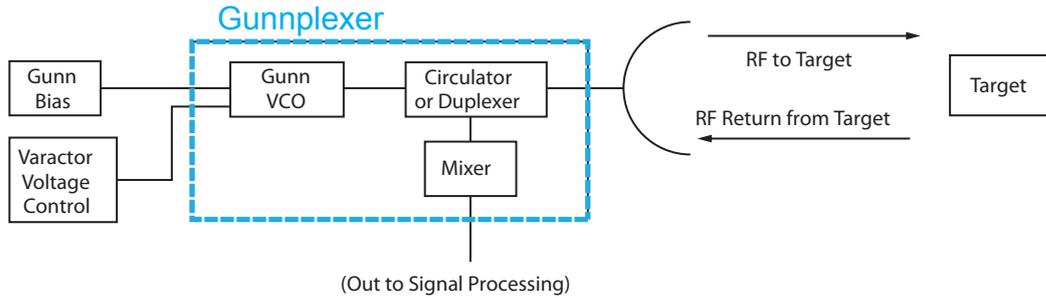


Abbildung 3.3: Schemaskizze des Gunnplexers, bestehend aus Gunn VCO, Zirkulator und Mischdiode [27].

wird für den FMR-Aufbau ein Rechteckhohlleiter an den Gunnplexer angeschlossen.

3.1.3 Hohlleiter

Zur Wellenleitung werden metallische Rechteckhohlleiter mit Seitenlängen a und b (s. Tabelle 3.2) verwendet. Ausgehend von den Maxwell-Gleichungen sowie den Randbedingungen für elektrisches und magnetisches Feld an leitenden Grenzflächen (Verschwinden der Transversalkomponente E_t sowie der Normalkomponente H_n), lässt sich die Wellengleichung mit einem Produktansatz lösen [28]. Exemplarisch sei die Komponente in Ausbreitungsrichtung (z -Richtung, s. Koordinatensystem in Abb. 3.1(a)) des magnetischen Feldes gezeigt [28]:

$$H_z = H_0 \cdot \cos\left(\frac{m\pi x}{a}\right) \cdot \cos\left(\frac{n\pi y}{b}\right) \cdot e^{i(\omega t - k_H z)}. \quad (3.1)$$

Dies entspricht stehenden Wellen mit den Modenzahlen m und n in x - bzw. y -Richtung sowie einer sich mit Wellenvektor k_H in z -Richtung ausbreitenden Welle. Aus der resul-

	a (mm)	b (mm)
X-Band	22,8	10,1
K-Band	10,6	4,3

Tabelle 3.2: Kantenlängen (Innenabmessungen) der verwendeten Hohlleiter.

tierenden Dispersionsrelation

$$k_{\text{H}}^2 = k^2 - k_{\text{c}}^2 \quad (3.2)$$

lässt sich folgern, dass Wellenausbreitung nur für reelles k_{H} und folglich für Mikrowellenlängen $\lambda_0 = \frac{2\pi}{k}$ kleiner als die geometrieabhängige Grenzwellenlänge

$$\lambda_{\text{c}} = \frac{2\pi}{k_{\text{c}}} = \frac{2}{\sqrt{\left(\frac{m}{a}\right)^2 + \left(\frac{n}{b}\right)^2}} \quad (3.3)$$

möglich ist. Damit lässt sich auch die Hohlleiterwellenlänge λ_{H} ausdrücken durch

$$\lambda_{\text{H}} = \frac{2\pi}{k_{\text{H}}} = \frac{\lambda_0}{\sqrt{1 - \left(\frac{\lambda_0}{\lambda_{\text{c}}}\right)^2}}. \quad (3.4)$$

Durch die Abhängigkeit der Grenzwellenlänge von Geometrie und Mode lassen sich Hohlleiter so konstruieren, dass nur die Mode mit kleinster Grenzwellenlänge (H_{10} -Mode, s. Abb. 3.4) im Frequenzbereich des Hohlleiters anschwingen kann [29]. In diesem Fall

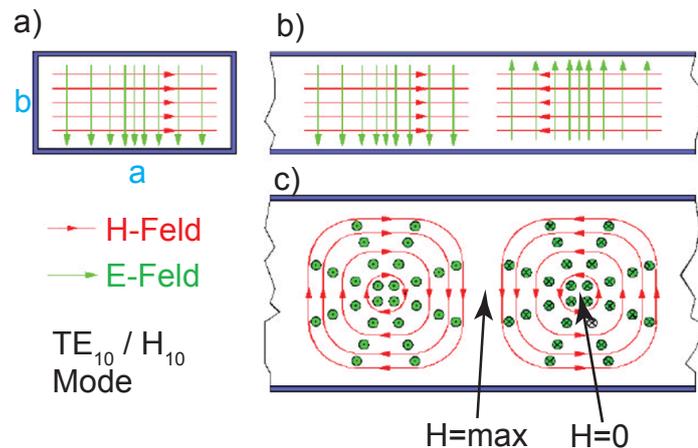


Abbildung 3.4: Darstellung der H_{10} -Mode (a) im Querschnitt, (b) im Längsschnitt parallel zur kurzen bzw. (c) zur langen Seite des Hohlleiters.

($m = 1, n = 0$) wird (3.3) zu $\lambda_{\text{c}} = 2a$. Des Weiteren ist die Grenzwellenlänge zu beachten bei der Konstruktion der Öffnung am Ende des Hohlleiters, durch die das die Probe tragende Glasröhrchen in den Hohlleiter eingeführt wird, wie in Abb. 3.5 skizziert ist. Da es sich bei dieser Öffnung um eine kreisrunde Bohrung handelt, ist hierfür die Grenzwellenlänge in einem Rundhohlleiter maßgeblich [29]. In diesem Fall gilt für die Grenzwellenlänge der ersten möglichen Mode (H_{11}) in einer Bohrung mit Durchmesser D :

$$\lambda_{\text{c}} = 1,706 \cdot D.$$

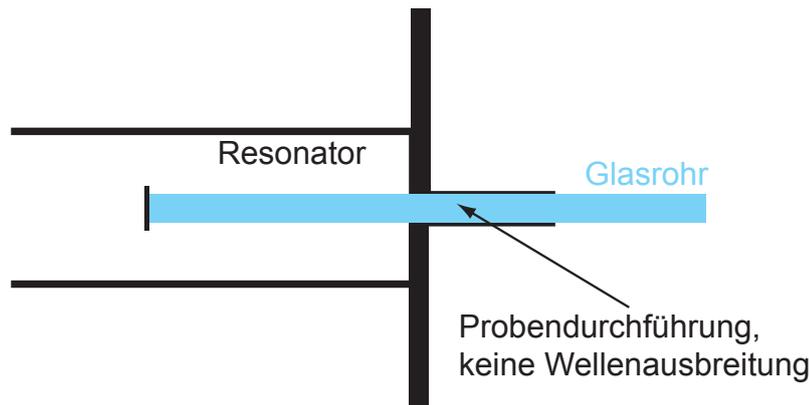


Abbildung 3.5: Die Durchführung für das die Probe tragende Glasrohr ist so bemessen, dass in ihr keine Wellenausbreitung stattfindet.

Damit folgt für die Bohrung im X-Band ($D = 4,1$ mm) eine Grenzwellenlänge $\lambda_c = 6,99$ mm. Die Mikrowellenwellenlänge der X-Band-Gunndiode ist mit 29,0 mm deutlich größer, daher findet keine Wellenausbreitung in der Bohrung statt. Ähnlich verhält sich die Situation im K-Band, wo bei einer Bohrung von 2,2 mm Durchmesser eine Grenzwellenlänge $\lambda_c = 3,75$ mm einer Vakuumwellenlänge von 12,4 mm gegenüber steht.

Resonator

Der Hohlleiterresonator entsteht aus dem Hohlleiter durch Abschließen der beiden Enden mit einer leitenden Wand, wobei eine Wand ein Koppelloch zum Ein- und Auskoppeln der Mikrowelle enthalten muss. Im Grunde ist bei diesem Aufbau der ganze Hohlleiterstab (s. Abb. 3(b)) ein Resonator, da sich das Koppelloch direkt am Gunnplexer befindet. Im Resonator entsteht durch die Überlagerung von hinlaufender und reflektierter Welle eine stehende Welle. Der Abstand zwischen zwei Maxima des magnetischen Feldes beträgt dann die Hälfte der Hohlleiterwellenlänge. Aus der Randbedingung des verschwindenden transversalen elektrischen Feldes ergibt sich, dass das relevante (transversale) magnetische Feld am Abschluss maximal ist. Folglich ist maximales Magnetfeld am Abschluss sowie in Schritten von $\frac{\lambda_H}{2}$ davon entfernt vorzufinden. In Abschnitt 3.3.2 wird gezeigt, wie sichergestellt wird, dass sich die Probe in einem Maximum des magnetischen Feldes befindet. Die Amplitude des Stehwellenfeld ist maximal, wenn die Länge c des Resonator gerade einem ganzzahligen Vielfachen von $\frac{\lambda_H}{2}$ entspricht [30]. Damit diese Bedingung erfüllt werden kann, muss die Hohlleiterwellenlänge verändert werden. Dies erfolgt mit dem im folgenden Abschnitt beschriebenen Phasenschieber. Da im Resonanzfall maximale Mikrowellenleistung in den Resonator eingekoppelt wird, bedeutet dies ein minimales DC-Signal an der Detektordiode. Mit dieser kann also das Einstellen der Resonanz kontrolliert werden.

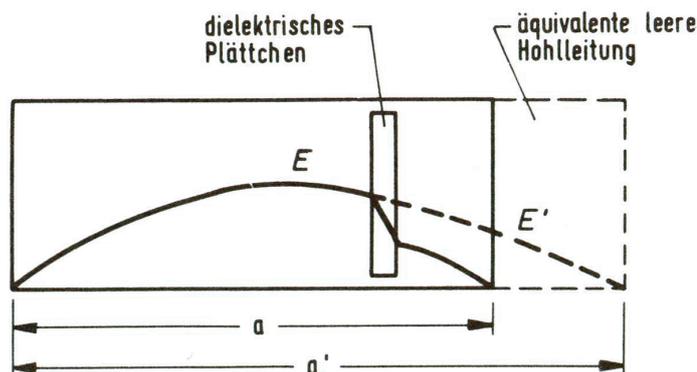


Abbildung 3.6: Ein dielektrischer Phasenschieber führt zu einer effektiven Verbreiterung des Hohlleiters von a auf a' und damit zur Phasenänderung [31].

3.1.4 Phasenschieber

Für Phasenschieber in Hohlleitertechnik gibt es verschiedene technische Ausführungen [31], deren Wirkungsweise im Wesentlichen darauf beruht, dass sie die Hohlleiterwellenlänge λ_H und damit die Phase ändern. Exemplarisch sei dies an einem dielektrischen Phasenschieber gezeigt: Bei diesem wird ein dielektrisches Plättchen in Längsrichtung in ein Stück Hohlleiter eingebaut, wie im Querschnitt in Abb. 3.6 zu sehen ist. Das Dielektrikum, das entlang der langen Hohlleiterseite a verschiebbar ist, führt zu einer effektiven Verbreiterung der Seite a , wie dies durch den eingezeichneten Verlauf des elektrischen Feldes E veranschaulicht wird. Das Dielektrikum ermöglicht eine Schwingung (durchgezogene Linie), die ohne Dielektrikum nur bei der größeren Seitenlänge a' entstehen könnte (gestrichelte Linie). Damit erhöht sich auch die Grenzwellenlänge nach (3.3) von $\lambda_c = 2a$ auf $\lambda_c = 2a'$. Die Hohlleiterwellenlänge (3.4) erniedrigt sich entsprechend, was zur Verschiebung der Phase gegenüber dem Fall der leeren Hohlleitung führt. Durch Verschieben des Dielektrikums ist bei den verwendeten Phasenschiebern eine Phasenänderung von 360° bzw. 2π zu erzielen. Der Phasenschieber ermöglicht es also, die Hohlleiterwellenlänge so zu verändern, dass die Resonanzbedingung des Resonators erfüllt ist, und wird dazu zwischen Gunnplexer und Hohlleiter in den Stab eingebaut (s. Abb. 3(a) und (b)).

3.1.5 Modulationsspule

Um die Beschreibung des in Abb. 3(b) gezeigten Stabes zu komplettieren, fehlt noch die Modulationsspule. Dabei handelt es sich um ein Spulenpaar, das durch Anlegen eines Wechselstromes ein oszillierendes Magnetfeld erzeugt. Dieses soll als kleine Störung das äußere statische Feld modulieren (s. Abschnitt 2.3.2). Um, wie aus Abb. 3(a) ersichtlich, diese beiden Magnetfelder auf gleicher Achse zu überlagern, wird die Modulationsspule zwischen die Polschuhe des statischen Magneten eingebracht. Andererseits umschließt die Modulationsspule direkt den Hohlleiterstab an der Stelle, wo die Probe positioniert

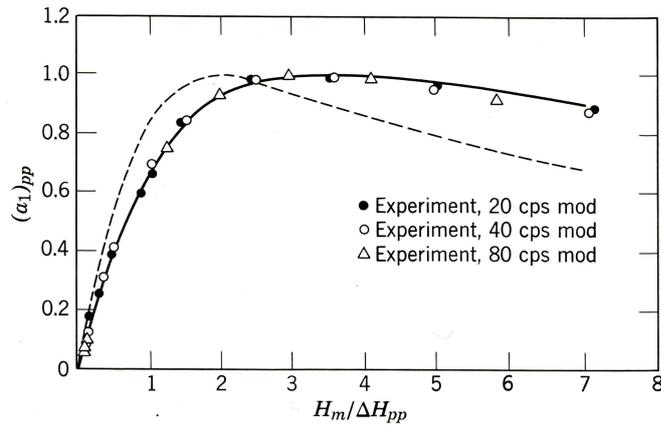


Abbildung 3.7: Die auf die natürliche Linienbreite normierte Modulationsamplitude (hier mit $H_m/\Delta H_{pp}$ bezeichnet) beeinflusst die Signalamplitude (hier $(a_1)_{pp}$) [19].

wird. Die beiden Modulationsspulen für X- und K-Band wurden in Eigenbau realisiert. Wie dabei, ausgehend von den Anforderungen und technischen Randbedingungen für die Spulen, deren Geometrie optimiert wurde, soll im Folgenden beschrieben werden.

Die grundsätzliche Anforderung an die Spule lautet, ein möglichst großes und über das Probenvolumen hin homogenes Modulationsmagnetfeld zu erzeugen. Der Wunsch nach möglichst großem $\mu_0 H_{\text{mod}}$ ergibt sich aus dessen Einfluss auf die Amplitude A_{pp} des FMR-Signals (s. Abb. 2.1(d)). Letztere muss im Falle geringen Messsignals noch gegenüber dem Rauschen erkennbar sein, unabhängig von der Breite des Resonanzsignals. Abbildung 3.7 zeigt, dass A_{pp} am größten ist, wenn die Modulationsamplitude $\mu_0 H_{\text{mod}}$ etwa einen Faktor 2-3 größer als die natürliche Resonanzlinienbreite $\mu_0 \Delta H_{pp}$ ist. Der Vergleich von tatsächlich erreichter Modulationsamplitude zu typischen Linienbreiten folgt in Abschnitt 3.3.4.

Die Erfüllung dieser Anforderungen ist jedoch eingeschränkt durch Randbedingungen bezüglich der Geometrie und Impedanzanpassung der Spule: Der Abstand der Spulen ist vorgegeben durch die Breite des Hohlleiters (kurze Seite b in Abb. 3.4(a)), die Breite der Spulen ist begrenzt durch einen maximalen Polschuhabstand des statischen Magneten, bei dem die nötigen Resonanzmagnetfelder noch gewährleistet sind. Zum anderen wird das Spulenpaar zur Modulation vom Lock-In-Verstärker Stanford Research SR830 gesteuert, wobei zur Verstärkung zwischen dem „Sine out“-Ausgang des Lock-In-Verstärkers und der Spule der Audioverstärker Dynavox E-SA-18 eingesetzt wird. Daher sollte der elektrische Widerstand der Spule zur Impedanzanpassung an den Ausgang des Audioverstärker ca. 8Ω betragen.

Um ein über das Probenvolumen hin homogenes Modulationsmagnetfeld zu erhalten, sollte der Entwurf für die Modulationsspulen idealer Weise dem der sogenannten Helmholtzspule entsprechen. Jene besteht aus zwei kurzen, gleichsinnig durchflossenen Spulen mit Radius R , welche im Abstand $D = R$ voneinander auf gleicher Achse angeordnet

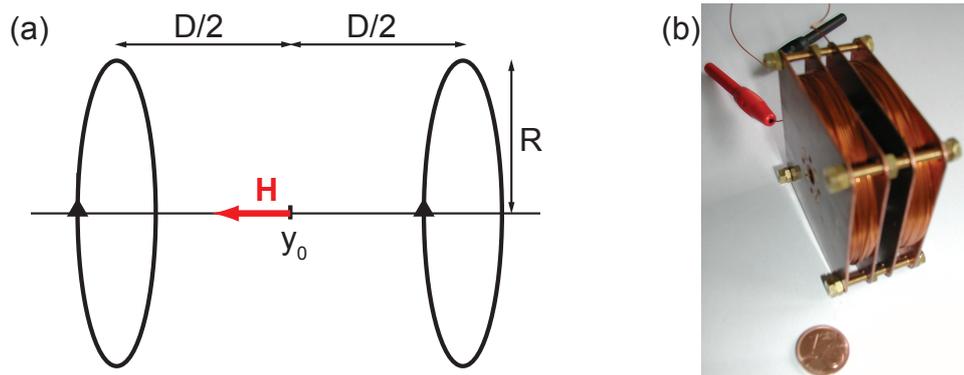


Abbildung 3.8: (a) Geometrie des Spulenpaars. (b) Fotografie der K-Band-Modulationsspule.

sind. Während eine Spule allein ein sehr inhomogenes Feld im Abstand $D/2$ erzeugt, ergibt die Überlagerung der Felder beider Spulen einen hinreichend homogenen Feldverlauf zwischen den Spulen. Beim Entwurf der Modulationsspulen ist jedoch eine gewisse Abweichung von der Helmholtz-Konstruktion nötig, um ein möglichst großes Modulationsmagnetfeld unter den gegebenen Randbedingungen zu erzielen. Diese Abweichung ist wohl vor allem dadurch gegeben, dass durch die hohe Anzahl an Wicklungen die Spule in radialer Richtung große Ausdehnung hat. Um unter den gegebenen Voraussetzungen die optimalen Werte für Drahtdurchmesser, Windungszahl sowie Radius des Spulenkörpers zu ermitteln, wurden diese vor dem Bau durch Berechnung des resultierenden Widerstands sowie des Magnetfeldes am Probenort (Spulenmitte) ermittelt.

Optimierung der Spule

Aus dem Biot-Savart-Gesetz lässt sich für eine kreisförmige Leiterschleife mit Radius R das Magnetfeld $\mu_0 H$ auf der Achse der Schleife im Abstand y angeben durch

$$\mu_0 H(y) = \frac{\mu_0 I}{2} \frac{R^2}{(R^2 + y^2)^{\frac{3}{2}}} \quad (3.5)$$

wobei

$$\mu_0 \mathbf{H} = \mu_0 H(y) \mathbf{e}_y. \quad (3.6)$$

Daraus ergibt sich für das Feld in der Mitte y_0 zwischen zwei identischen Leiterschleifen im Abstand D (s. Abb. 3.8(a))

$$\mu_0 H(y_0) = \mu_0 H\left(-\frac{D}{2}\right) + \mu_0 H\left(+\frac{D}{2}\right) = \mu_0 I \frac{R^2}{\left(R^2 + \left(\frac{D}{2}\right)^2\right)^{\frac{3}{2}}}. \quad (3.7)$$

Damit lässt sich durch Aufsummieren der Beiträge mehrerer Wicklungen und Lagen von Leiterschleifen - unter entsprechender Anpassung von Abstand und Radius - das Mag-

netfeld berechnen (s. dazu den MAPLE-Code in Anhang A). Daneben ergibt sich der Widerstand R aus der Gesamtlänge des Kupferdrahtes l , seiner Querschnittsfläche A und dem spezifischen Widerstand ρ von Kupfer zu

$$R = \rho \frac{l}{A}. \quad (3.8)$$

Aus der Anpassung an $R = 8 \Omega$ folgt für beide Spulenpaare eine Windungszahl von etwa 430 je Einzelspule bei einem Drahtdurchmesser von 0,55 mm. Um im Dauerbetrieb keine allzu starke Erwärmung der Spule zu verursachen, empfiehlt sich in Kupfer eine maximale Stromdichte von 6 A/mm^2 , was einem Strom von 1,4 A entspricht. Bei einem Gleichstrom dieser Größe liegt die mit einer Hallsonde gemessene Flussdichte in Spulennitte mit 25 mT für die X-Band-Spule bzw. 37 mT für die K-Band-Spule nahe an den berechneten Werten von 27 mT (X-Band) bzw. 34 mT (K-Band). Eine Fotografie der Modulationsspule für den K-Band-Stab ist in Abb. 3.8(b) gezeigt, eine CAD-Skizze der Modulationsspule für das X-Band findet sich in Abb. C.1 in Anhang C.

3.1.6 Statisches Magnetfeld

Zur Erzeugung des statischen externen Magnetfeldes dient ein normalleitender, wassergekühlter Elektromagnet der Firma Oerlikon mit variablem Polschuhabstand. Die Polschuhe bestehen aus einer Cobalt-Eisen-Legierung und weisen ein Sättigungsfeld von 2,2 T auf. Das erreichbare Magnetfeld ist limitiert durch das Strom liefernde Netzgerät und abhängig vom Polschuhabstand. Während dieser Diplomarbeit wurde das Labornetzgerät EA-PS 3016-20B von EA-Elektro-Automatik verwendet. Beim Betrieb mit diesem 16 V-20 A-Netzgerät liefert der Magnet beim Polschuhabstand für den X-Band-Stab (ca. 32 mm) ein maximales Magnetfeld von 0,62 T; im K-Band sind dies 0,80 T bei 25,5 mm Abstand. Die für typische ferromagnetische Materialien maximal nötigen Resonanzmagnetfelder in X- bzw. K-Band lassen sich aus (2.20) berechnen. Sie liegen bei etwa 1,4 T im X- und 1,8 T im K-Band. Mit dem zukünftig zur Verfügung stehenden Netzteil Lake Shore 642 [32] mit maximal 35 V und 70 A werden diese Felder bei den jeweiligen Abständen zu erreichen sein.

Zur Messung des Magnetfeldes des Elektromagneten (s. auch Abschnitt 3.3.1) wird das Gaussmeter Lake Shore 475 DSP mit Hallsonde eingesetzt.

3.1.7 Automatische Probenrotation

Um eine Drehung der Probe bezogen auf das äußere Magnetfeld zu ermöglichen, wurde eine entsprechende Halterung konstruiert (s. Abb. 3.9(a) und die CAD-Skizze Abb. C.2 in Anhang C). Dabei wird die Probe auf das Ende eines Glasröhrchen aufgeklebt, das durch eine Bohrung durch den Hohlleiterabschluss durchgeführt wird. Das Glasrohr ist mit Madenschrauben in einem PVC-Zylinder befestigt, der in einem Rohrfortsatz am

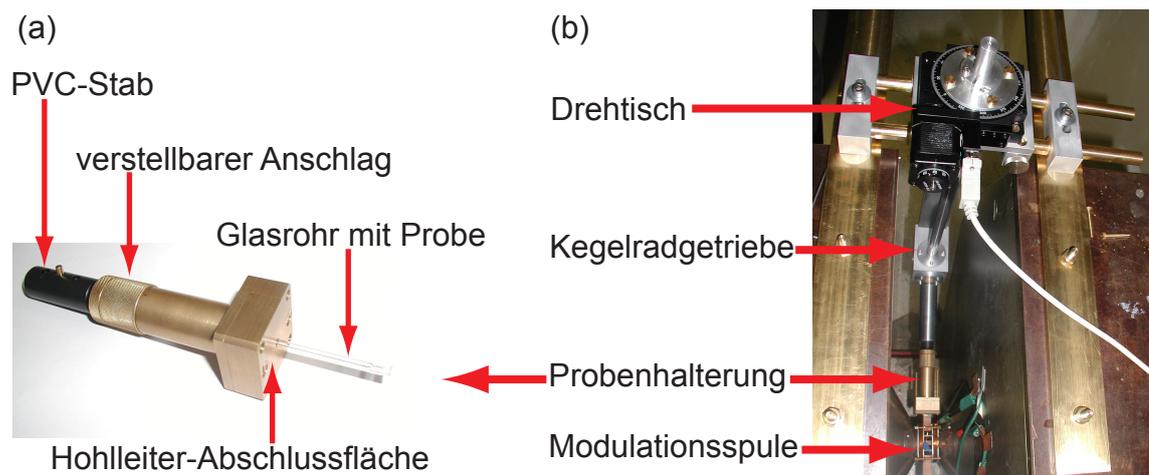


Abbildung 3.9: Fotografien zur Probenrotation: (a) Drehbare Probenhalterung. (b) Blick auf den Elektromagneten von oben.

Hohlleiterabschluss steckt und darin frei drehbar ist. Durch eine Feingewindeschraube auf dem PVC-Stab ist zudem ein verstellbarer Anschlag vorhanden, so dass der Abstand der Probe zum Hohlleiterabschluss nach dem Einbau noch verändert werden kann. Die automatische Drehung erfolgt durch einen Drehtisch, der auf dem Elektromagneten montiert ist und dessen Drehbewegung, nach einer 90°-Umlenkung mittels Kegelräder, auf den PVC-Stab übertragen wird (s. Abb. 3.9(b) und Abb. C.3).

3.1.8 LabVIEW-Messprogramm

Das LabVIEW-Messprogramm erfüllt die wichtige Aufgabe, die Messung eines einzelnen Spektrums wie auch einer ganzen Winkelserie zu automatisieren. Hinweise zum Programm finden sich in der Bedienungsanleitung zur FMR-Messung im Anhang B.

3.2 Signalentstehung und -detektion

Bevor erste Messergebnisse gezeigt werden, wird im Folgenden erläutert, wie sich die komplexe Suszeptibilität χ als Lösung der Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung im Messsignal zeigt; insbesondere ist interessant, in welchen Fällen das Messsignal den gewünschten Verlauf der Absorption zeigt und in welchen den der Dispersion. Zum Verständnis der Signalentstehung wird zunächst die elektrische Feldstärke der Mikrowelle betrachtet. Außerhalb der Resonanz sollte die reflektierte Feldstärke minimal sein, was einer maximalen Einkopplung der Mikrowelle in den Resonator entspricht. Dies ist anhand des Modenbildes in Abb. 3.10 gezeigt, welches am ESR-Aufbau für den Praktikumsversuch „Elektronenspinresonanz“ [33] am Walther-Schottky-Institut gemessen wurde. In Abb. 3.10 ist das Spannungssignal der Detektionsdiode als Funktion der Mikrowellenfrequenz aufgetragen.

Die Minima (bei etwa 450 MHz und 530 MHz) entsprechen Resonanzmoden des Resonators. Das scharfe Maximum innerhalb des Minimums bei 530 MHz dagegen stammt von der ESR einer DPPH-Probe. DPPH bezeichnet das Molekül α, α' -Diphenyl- β -Dipikryl-Hydrazyl, welches als freies Radikal mit g -Faktor 2,0036 ein starkes ESR-Signal liefert. Das Zustandekommen dieses Resonanzsignals lässt sich anhand eines Ersatzschaltbildes für den Mikrowellenresonator verstehen. Der Resonator wird als LRC-Kreis beschrieben, wie in Abb. 3.11(b) dargestellt ist. Die Probe befindet sich im Inneren der Spule und verursacht im Resonanzfall eine Induktivität

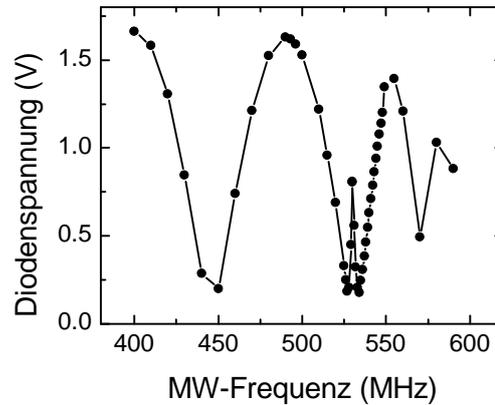


Abbildung 3.10: Die Minima im Diodensignal bedeuten maximale Leistungseinkopplung in den Resonator, entsprechen also Resonanzmoden des Resonators. Innerhalb des Minimums bei 530 MHz taucht das ESR-Signal als scharfer Absorptionspeak auf. [34]

$$L = \mu_0 \left[1 + (\chi' - i\chi'') \frac{V_{\text{Probe}}}{V_{\text{Spule}}} \right] \frac{N}{d} A, \quad (3.9)$$

wobei V_{Probe} das Probenvolumen, V_{Spule} das Spulen- bzw. Modenvolumen, N die Zahl der Wicklungen, d die Länge und A die Querschnittsfläche der Spule bezeichnen. Dies führt von der elektrischen Feldstärke E_{in} der einlaufenden zu der der reflektierten Welle

$$E_{\text{r}} \propto i\omega L \propto (i\chi' + \chi'') E_{\text{in}} \frac{V_{\text{Probe}}}{V_{\text{Spule}}}. \quad (3.10)$$

An der Detektionsdiode wird dieses Signal gemischt mit dem von der Gunnediode direkt auf den Mischer treffenden Referenzsignal (s. Abb. 3.12). O.B.d.A. sei für das Referenzsignal ein zeitlicher Verlauf mit Kreisfrequenz $\omega = 2\pi\nu$ und Amplitude a_0 gegeben durch

$$E_{\text{Referenz}} = \Re [a_0 e^{i\omega t}] = a_0 \cdot \cos(\omega t) \quad (3.11)$$

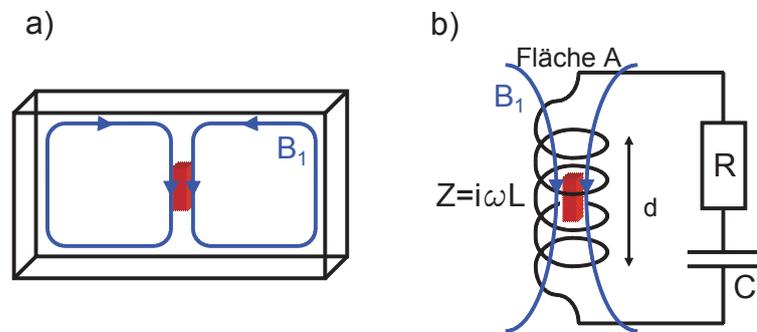


Abbildung 3.11: (a) Hohlleiterresonator und (b) zugehöriges LRC-Ersatzschaltbild [33]

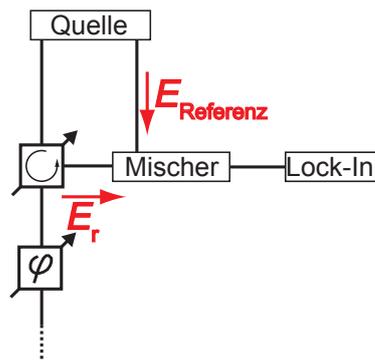


Abbildung 3.12: Mischung von reflektiertem und Referenzsignal

angenommen. Dann folgt für das reflektierte Signal nach (3.10) mit im Allgemeinen abweichender Amplitude a_1

$$\begin{aligned} E_r &= \Re [a_1 (i\chi' + \chi'') \cdot e^{i(\omega t + \phi_0)}] = \\ &= a_1 \chi'' \cos(\omega t + \phi_0) - a_1 \chi' \sin(\omega t + \phi_0) = \\ &= a_1 \chi'' \cos(\omega t) \cos \phi_0 - a_1 \chi'' \sin(\omega t) \sin \phi_0 - a_1 \chi' \sin(\omega t) \cos \phi_0 - a_1 \chi' \cos(\omega t) \sin \phi_0 \end{aligned} \quad (3.12)$$

mit der durch den Phasenschieber verursachten Phasenverschiebung ϕ_0 , wobei die letzte Umformung mittels eines trigonometrischen Additionstheorems [35] erfolgt. Eine Überlagerung, d.h. mathematisch eine Addition $E_r + E_{\text{Referenz}}$ an der Detektionsdiode, führt durch deren nichtlineare Kennlinie zu einer Mischung, also Multiplikation der Feldstärken. Anhand des folgenden Rechenbeispiels lässt sich verstehen, dass der DC-Anteil im gemischten Signal nur von dem Teil des Signal gegeben ist, der mit der Referenz in Phase ist. Die Referenz sei wieder o.B.d.A. gegeben durch

$$\text{Referenz} = \cos(\omega t), \quad (3.13)$$

das Signal habe die allgemeine Form

$$\text{Signal} = I \sin(\omega t) + Q \cos(\omega t) \quad (3.14)$$

mit im Allgemeinen komplexen Vorfaktoren I und Q , wie in (3.12) zu erkennen ist. Das gemischte Signal ergibt sich dann unter Verwendung trigonometrischer Umformungen zu

$$\text{Signal} \times \text{Referenz} = I \sin(\omega t) \cos(\omega t) + Q \cos^2(\omega t) = \frac{I}{2} \sin(2\omega t) + \frac{Q}{2} + \frac{Q}{2} \cos(2\omega t). \quad (3.15)$$

Durch die Verwendung der Modulationstechnik wird das gemischte Signal mit der (von der Mikrowellenfrequenz abweichenden) Modulationsfrequenz moduliert, d.h. es erfolgt eine weitere Multiplikation des Signals [17]. Der Lock-In-Verstärker unterdrückt durch Anwendung eines Tiefpasses auf das gemischte Signal alle Signalbestandteile, die eine andere als die Modulationsfrequenz aufweisen. Dies hat zur Folge, dass am Ende nur noch der DC-Anteil des Signals in (3.15) gemessen wird, d.h. $Q/2$. Abhängig von der Phasenverschiebung ϕ_0 ändert sich dann das Messsignal, wie durch einsetzen in (3.12) nachgeprüft werden kann: Für $\phi_0 = 0$ ist das Signal am Lock-In-Verstärker² $E_{\text{LI}} \propto \chi''$, d.h. es wird ein Absorptionssignal gemessen. Ist dagegen $\phi_0 = 90^\circ$, so folgt $E_{\text{LI}} \propto \chi'$, was einem Dispersionssignal entspricht. Eine experimentelle Prüfung dieser Theorie erfolgt in Abschnitt 3.3.3.

²Es sei hier um der Einheitlichkeit willen wieder von der elektrischen Feldstärke die Rede, zu welcher die eigentlich am Lock-In-Verstärker ablesbare Spannung proportional ist.

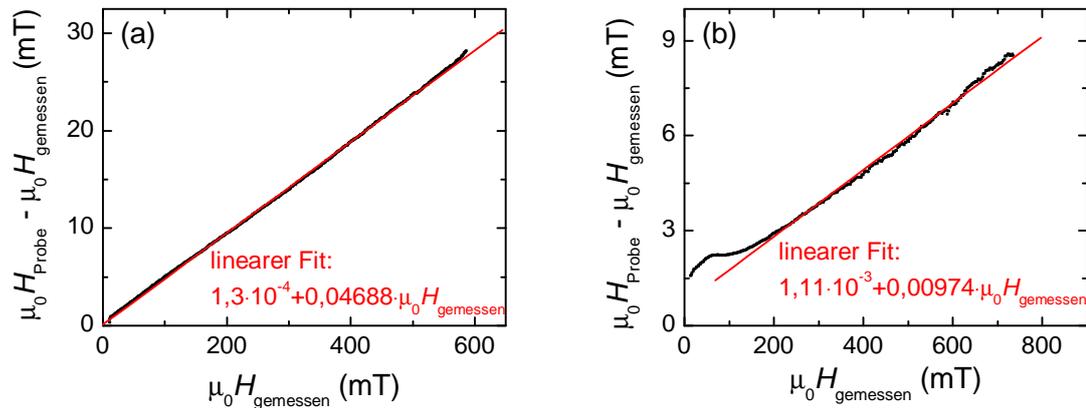


Abbildung 3.13: Magnetfeldkorrektur für (a) X-Band und (b) K-Band

3.3 Messungen zur Charakterisierung des Aufbaus

Es werden in den folgenden Abschnitten Messungen vorgestellt, die zum Auffinden der optimalen Messbedingungen notwendig sind oder allgemein den Aufbau charakterisieren. Dazu gehören Untersuchungen zum externen statischen Magnetfeld, zur optimalen Probenposition, zum Einfluss des Phasenschiebers auf das Messsignal, zur Stärke des Modulationsmagnetfeldes und zur Empfindlichkeit des Spektrometers.

3.3.1 Kalibration des externen statischen Magnetfeldes

Das vom Elektromagneten erzeugte statische Magnetfeld, das bei einer Messung durchgeführt wird, wird mittels des Gaussmeters mit Hallsonde gemessen. Oberhalb der Probe, welche sich genau in der Mitte der Polschuhe befindet, ist die Hallsonde auf dem Hohlleiter angebracht, so dass sie sich eher am Rand der Polschuhe befindet und damit ein leicht geringeres magnetisches Feld misst, als am Ort der Probe vorliegt. Zur Bestimmung dieser Abweichung wurde zweimal das Magnetfeld über den ganzen Bereich gemessen, einmal mit der Hallsonde an der üblichen Messposition, ein zweites Mal mit der Hallsonde an der Probenposition im Hohlleiterinneren. Trägt man nun die Differenz von Magnetfeld am Probenort $\mu_0 H_{\text{Probe}}$ und dem an der Messposition $\mu_0 H_{\text{gemessen}}$ über letzterem auf (Abb. 3.13), so ergibt sich in guter Näherung ein linearer Verlauf. Durch Anfitzen einer Geraden lassen sich die Parameter a und b bestimmen, die den linearen Zusammenhang gemäß

$$\mu_0 H_{\text{Probe}} - \mu_0 H_{\text{gemessen}} = a + b \cdot \mu_0 H_{\text{gemessen}} \quad (3.16)$$

erfüllen. Damit lässt sich mit den einmal (je für X- und K-Band-Stab) bestimmten Parametern, das gemessene Magnetfeld korrigieren, was im LabVIEW-Messprogramm bereits implementiert ist. Die etwas größere Abweichung vom linearen Fit für das K-Band in

Abb. 3.13(b) bei kleinen Magnetfeldwerten ist nicht ganz geklärt. Möglicherweise ist sie auf die remanente Magnetisierung der Polschuhe zurückzuführen. Jedenfalls sollte dieser Fehler kaum Wirkung in FMR-Spektren zeigen, da die Resonanzmagnetfelder im K-Band wegen (2.8) höher als im X-Band und im Allgemeinen höher als 200 mT liegen.

3.3.2 Ermittlung der optimalen Probenposition

Als nächstes ist es sehr wichtig, die richtige Position der Probe im Resonator herauszufinden. Um ein möglichst großes Messsignal zu erreichen, ist die Positionierung der Probe in einem Maximum des magnetischen Wechselfeldes der Mikrowelle notwendig. Betrachtet man die Feldverteilung bezogen auf den Hohlleiterquerschnitt (s. Abb. 3.4 (c)), so ist offensichtlich, dass die relevante Komponente des Magnetfeldes in der Mitte des Hohlleiters am größten ist. Jedoch variiert diese auch als Funktion der z -Richtung zwischen maximalem und verschwindendem Wert. Aus den Stetigkeitsbedingungen der Elektrodynamik ergibt sich, dass am Hohlleiterabschluss das elektrische Feld verschwindet, während das magnetische maximal wird. Durch die Ausbildung einer stehenden Welle im Resonator ist zu erwarten, dass der Abstand zwischen Maxima des Magnetfeldes gerade die halbe Hohlleiterwellenlänge beträgt. Um dies zu verifizieren, wurde folgende Messung gemacht: Der Abstand der Probe vom Abschluss (d.h. die Länge L in Abb. 3.14(a)) wurde verändert, was sich durch Drehen eines Anschlags mit Feingewinde am PVC-Stab gut bewerkstelligen ließ. Dabei wurde im Übrigen darauf geachtet, dass sich die Probe weiterhin im gleichen Punkt bezogen auf das externe statische sowie das Modulationsfeld befand, d.h. der Hohlleiter wurde relativ zu den Modulationsspulen und den Polschuhen des Elektromagneten verschoben. Für die jeweiligen Probenpositionen wurde dann ein FMR-Spektrum aufgenommen und die Signalamplituden verglichen. Die Messungen wurden im K- wie auch im X-Band durchgeführt.

K-Band

Als Probe wurde ein ca. 50 nm dicker Nickelfilm auf $2 \times 2 \text{ mm}^2$ -Glassubstrat verwendet. In Abb. 3.14(b) sind die FMR-Spektren für verschiedene Positionen der Probe in unterschiedlichen Farben dargestellt. Es ist eine Abhängigkeit der Signalamplitude A_{pp} von der Probenposition, jedoch keine Änderung der Linienbreite $\mu_0 \Delta H_{\text{pp}}$ erkennbar. Daher kann nach Gleichung (2.7) die Änderung von A_{pp} direkt als Intensitätsänderung betrachtet werden. Die Frequenz des K-Band-Gunnplexers von $\nu = 24,125 \text{ GHz}$ entspricht einer Vakuumwellenlänge von $\lambda_0 = \frac{c}{\nu} = 11,9 \text{ mm}$. Die dazugehörige Hohlleiterwellenlänge nach Gleichung (3.4) beträgt $\lambda_{\text{H}} = 14,3 \text{ mm}$. Die gemessenen Signalamplituden als Funktion des Abstands der Probe vom Hohlleiterabschluss sind in Abb. 3.15 gezeigt und stimmen sehr gut mit dem Fit (rot) einer stehenden Welle mit Hohlleiterwellenlänge $\lambda_{\text{H,fit}} = 14 \text{ mm}$

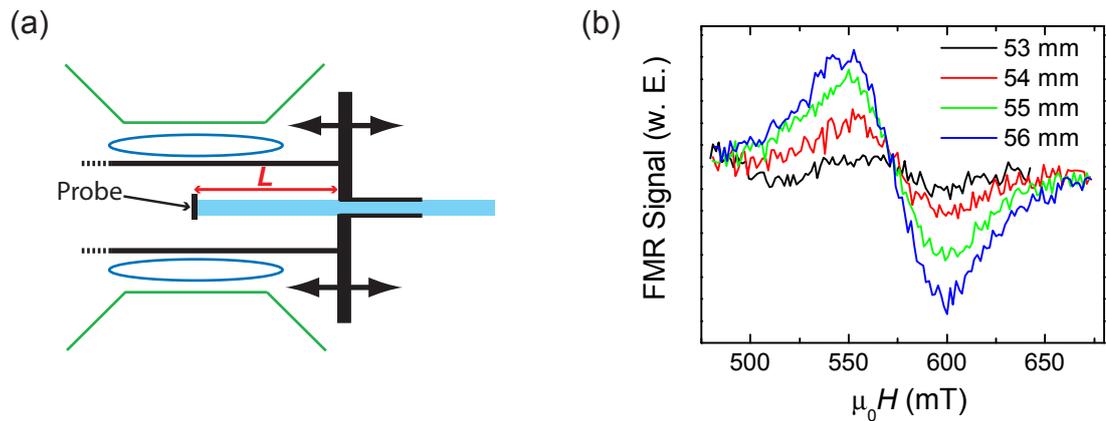


Abbildung 3.14: (a) Durch Verschieben des Hohlleiters (schwarze Pfeile) wird der Abstand L zwischen Probe und Hohlleiterabschluss variiert, was (b) die Signalamplitude der FMR-Spektren (hier im K-Band) verändert.

überein. Für den Fit wurde eine Funktion der Form

$$A_{pp} = A_0 \cdot \cos^2 \left(2\pi \frac{L}{\lambda_{H,fit}} \right) \quad (3.17)$$

mit simulierter Hohlleiterwellenlänge $\lambda_{H,fit}$ und beliebigem Skalierungsfaktor A_0 an die Messpunkte angepasst. An Abb. 3.15(b) ist zu sehen, dass der Fit auch die Bedingung des maximalen Magnetfeldes, entsprechend maximaler Signalamplitude, am Abschluss erfüllt. Wie man aus den Werten in Abb. 3.15 berechnen kann, liefert ein Einbau $\pm 0,5$ mm vom Maximum entfernt noch 95% der maximalen Signalamplitude. Der Einbau der Probe wird mit einer Schieblehre kontrolliert und ist daher auf ± 0.5 mm genau einstellbar, wobei nicht die volle Genauigkeit der Schieblehre ausgenutzt wird, weil man die Probe in der Regel nicht berühren will.

X-Band

Analog wurde im X-Band vorgegangen. Es wurde eine $5 \text{ mm} \times 5 \text{ mm} \times 50 \text{ nm}$ große Nickel-Probe verwendet. Die Spektren für verschiedene Probenpositionen zeigt Abb. 3.16(a). Aus der Frequenz von 10,3 GHz ergeben sich eine Vakuumwellenlänge $\lambda_0 = 29,0$ mm sowie eine Hohlleiterwellenlänge $\lambda_H = 37,5$ mm. Abbildung 3.16(b) zeigt die Messwerte und einen Fit mit Hohlleiterwellenlänge $\lambda_{H,fit} = 35$ mm. In diesem Fall zeigt der Fit eine etwas größere Abweichung vom berechneten Wert, was damit erklärt werden kann, dass aus technischen Gründen die Probenposition nur über 20 mm variiert werden konnte, was nur einem Maximum und einem Minimum der Signalamplitude entspricht. Insbesondere ist die Bestimmung im Bereich der minimalen Signalamplitude schwierig, da die Signalthöhe letztlich in der Größe des Rauschens liegt und von diesem schwer zu trennen ist. Zum

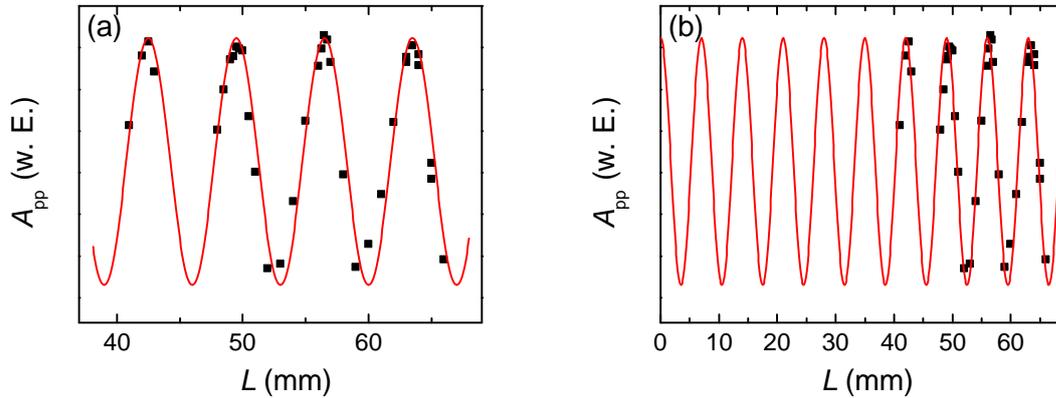


Abbildung 3.15: (a) Die Veränderung der Signalamplitude im K-Band beim Verschieben der Probe lässt sich durch eine stehende Welle fitten. (b) Auch die Randbedingung des maximalen Magnetfeldes am Abschluss ($L = 0$) ist erfüllt.

zweiten könnte auch eine leichte Störung der Mikrowellenmode durch den metallischen Film eine Rolle spielen. Aufgrund der längeren Hohlleiterwellenlänge im X-Band ist hier die genaue Position der Probe aber weniger kritisch als im K-Band. 95% der maximalen Signalamplitude werden auch bei einem Einbau ± 1 mm vom Maximum entfernt noch erreicht.

Aus diesen Messungen kann der optimale Abstand L der Proben vom Hohlleiterabschluss bestimmt werden. Das magnetische Mikrowellenfeld ist bei jedem Abstand L , der einem ganzzahligen Vielfachen der halben Hohlleiterwellenlänge entspricht, maximal. Für die optimale Probenposition muss noch die Geometrie des Aufbaus berücksichtigt werden, damit die Probe sich auch im Bereich des maximalen externen und Modulations-Magnetfeldes befindet. Die optimalen Werte, die beim Einbau der Proben aller folgenden Messungen verwendet wurden, sind $L = 49$ mm im K-Band und $L = 52,5$ mm im X-Band.

3.3.3 Einfluss des Phasenschiebers

Mit den in diesem Kapitel folgenden Experimenten soll der Einfluss des Phasenschiebers auf das Messsignal untersucht werden. Dabei wird insbesondere untersucht, ob der in Abschnitt 3.2 diskutierte Übergang von einem Absorptions- zu einem Dispersionssignal stattfindet.

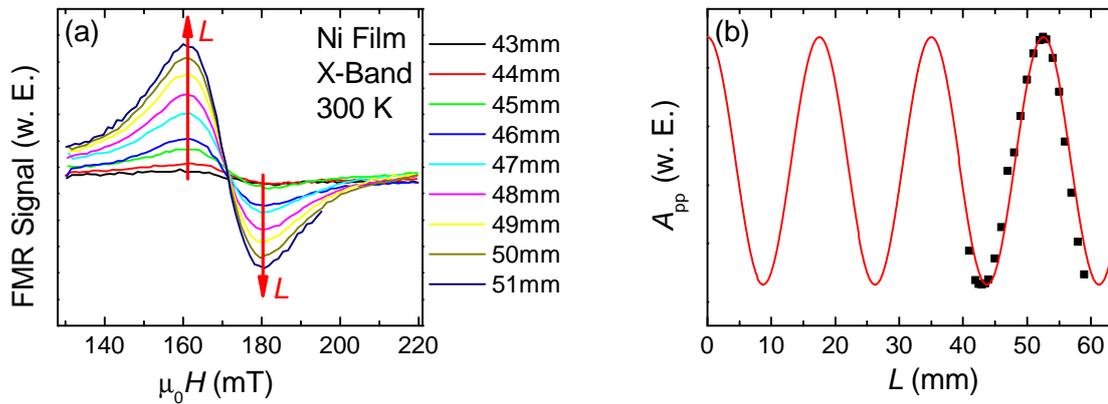


Abbildung 3.16: Auch im X-Band kann die (a) mit der Probenposition variierende Signalamplitude durch (b) eine stehende Welle angefitet werden, die am Abschluss ein Maximum aufweist.

K-Band

Um den Einfluss des Phasenschiebers untersuchen zu können, wird zunächst die Spannung an den Detektionsdioden³ mittels eines Voltmeters als Funktion der Phasenschieberstellung gemessen. Am Phasenschieber wird über den gesamten möglichen Bereich in Schritten von 5° ⁴ in beide Richtungen gedreht. Dabei liegt nur der kleine Remanenzwert des Elektromagneten von etwa 10 mT als statisches Magnetfeld an, d.h. es findet keine Resonanz statt. Der Betrag der Diodenspannung ist in Abb. 3.17(a) gezeigt. Zum einen ist zu erkennen, dass der Phasenschieber keine sichtbare Hysterese aufweist, die Drehungen in die eine (ausgefüllte Symbole) wie auch in die andere Richtung (offene Symbole) liefern für beide Dioden dasselbe Ergebnis. Zum anderen zeigt der Verlauf für beide Dioden jeweils ein Maximum und ein Minimum, wobei die Maxima an etwa der gleichen Phasenschieberposition auftreten, während die Minima der zwei Dioden um 90° gegeneinander verschoben sind. FMR-Messungen an einem Nickel-Film bei verschiedenen Phasenschieberpositionen zeigen, dass die besten Messergebnisse, was die Signalform und das Signal/Rausch-Verhältnis betrifft, an den Minimalpositionen der beiden Dioden in Abb. 3.17(a) auftreten. Die beiden FMR-Spektren in Abb. 3.17(b) und (c) wurden an den beiden Minimalpositionen der Dioden gemessen. Es zeigt sich, dass jeweils diejenige Diode, an der das Minimum eingestellt wird, eine Absorptionskurve liefert, während die jeweils andere Diode eine (nicht komplett symmetrische) Dispersion zeigt. Dieser Übergang von Dispersion zu Absorption bei Phasenverschiebung um 90° ist also im Einklang mit den in Abschnitt 3.2 gezeigten Überlegungen.

³Der K-Band-Gunnplexer enthält zwei Detektionsdioden, wodurch eine RADAR-Richtungsmessung ermöglicht wird.

⁴Dabei wurde der Drehbereich des Phasenschieberdrehknopfes von vier Umdrehungen einer Phasenverschiebung von 360° gleichgesetzt.

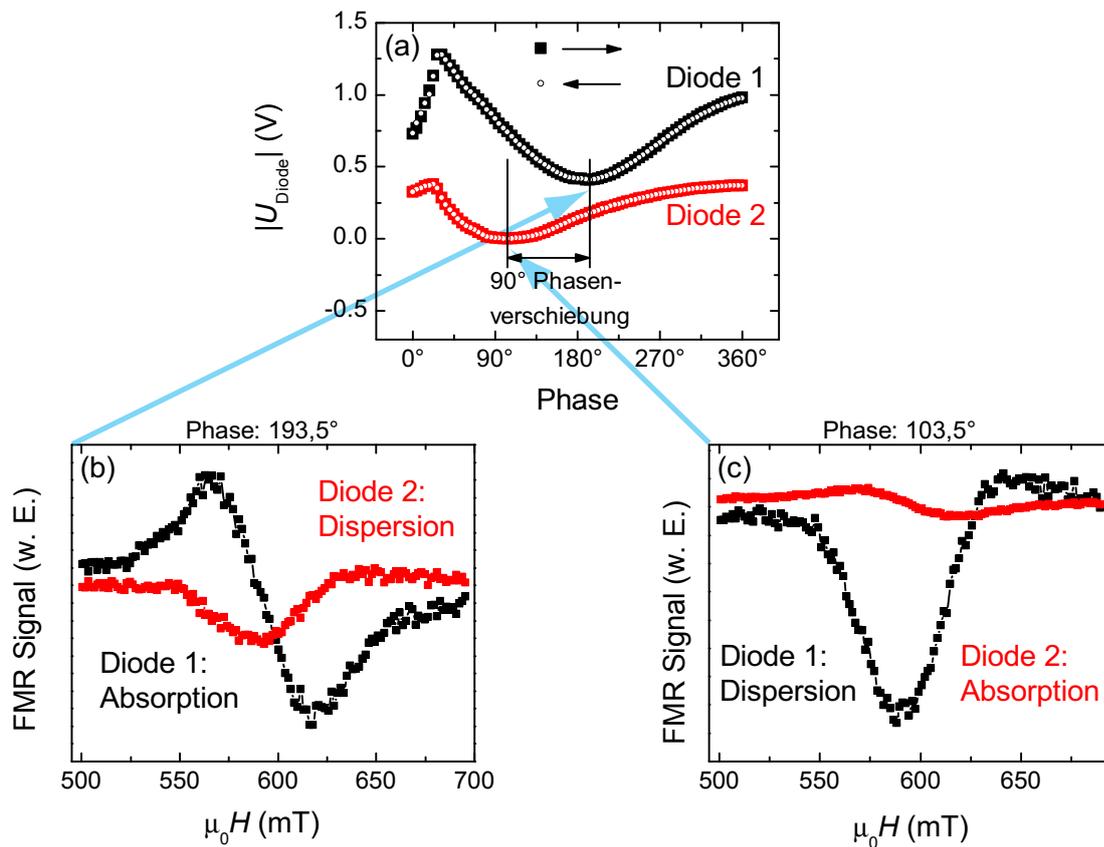


Abbildung 3.17: Einfluss des Phasenschiebers auf das FMR-Signal eines Ni-Films im K-Band-Stab bei Raumtemperatur. (a) Das Spannungssignal an den zwei Mischerdioden des K-Band-Gunnplexers verändert sich als Funktion der Phasenverschiebung. Die Signalminima an den Dioden sind um 90° phasenverschoben. (b) Der Phasenschieber ist auf das Minimum von Diode 1 eingestellt; an dieser wird Absorption gemessen, an Diode 2 dagegen Dispersion. (c) Durch Einstellen des Phasenschiebers auf das Minimum an Diode 2 dreht sich das Auftreten von Absorption und Dispersion an den beiden Dioden gerade um.

X-Band

Im X-Band-System stellt sich die Situation etwas anders da. Das Diodensignal in Abhängigkeit der Phasenschieberstellung in Abb. 3.18(a) weist nun ein deutlich anderes Verhalten auf. Es treten abrupte Sprünge auf, die des Weiteren noch verbunden sind mit einer Hysterese bezüglich der Drehrichtung. Ansonsten zeigt der Verlauf mehrere Minima und Maxima. FMR-Messungen an einem Nickel-Film wurden wiederum an verschiedenen Positionen des Phasenschiebers gemacht und auch in diesem Fall tritt das beste Signal auf, wenn der Phasenschieber so eingestellt ist, dass der Betrag der Spannung an der Diode minimal ist (Abb. 3.18(b)). Ein Dispersionssignal in Abb. 3.18(c) ist nur bei Drehung in eine Richtung, kurz vor einem Sprung in Abb. 3.18(a) zu finden. Direkt nach diesem Sprung zeigt das Signal jedoch wieder einen Absorptionsverlauf (Abb. 3.18(d)). Dass hier Absorptions- und Dispersionssignal nahe beieinander liegend anzutreffen sind, wobei ja eine Phasenunterschied von 90° zu erwarten ist, könnte auch darauf hindeuten, dass eine Drehung am X-Band-Phasenschieber sich nicht linear in Phasenverschiebung in Grad umsetzt. Diese Vermutung nährt auch das Auftreten der Unstetigkeiten in Abb. 3.18(a) und zum anderen die Tatsache, dass am Drehknopf des X-Band-Phasenschiebers, im Gegensatz zu dem im K-Band, keinerlei Skala vorhanden ist.

Unabhängig von diesem unerwarteten Verhalten im X-Band, kann aber festgestellt werden, dass das beste Signal für Absorption im X- wie auch im K-Band an einem Minimum des Diodensignals auftritt. Der Phasenschieber ist daher bei jeder Messung so einzustellen, dass an der Diode das betragsmäßig kleinste Spannungssignal auftritt. Somit ist auf einfache Weise garantiert, dass das gewünschte FMR-Signal gemessen wird.

3.3.4 Kalibration des Modulationsfeldes

Das Modulationsfeld $\mu_0 H_{\text{mod}}$, das tatsächlich am Ort der Probe wirkt, ist nicht direkt zugänglich und muss durch Kalibrationsmessungen bestimmt werden. Die Parameter der Magnetfeldmodulation, die an den Geräten eingestellt und abgelesen werden können, sind zum einen die Modulationsfrequenz, zum anderen der Stromfluss in der Spule. Während erstere direkt am Lock-In-Verstärker für dessen „Sine out“ eingestellt wird, ist letzterer wieder nur indirekt abzulesen, indem der Spannungsabfall über einem kleinen, mit der Modulationsspule in Serie geschalteten Widerstand ($0,22 \Omega$) gemessen wird. Das Modulationsfeld muss für verschiedene Werte dieser beider Größen untersucht werden.

Bestimmung der Modulationsamplitude

Die Bestimmung der Modulationsamplitude $\mu_0 H_{\text{mod}}$ erfolgt - im X-Band - aus ESR-Messungen an DPPH durch Verbreitern der Resonanzlinie. DPPH besitzt eine natürliche Resonanzlinienbreite $\mu_0 \Delta H_{\text{pp}} \approx 0,14 \text{ mT}$ ⁵. Die tatsächlich gemessene Linienbreite ent-

⁵Dieser Wert wurde durch Messung der DPPH-Probe in einem kalibrierten ESR-Spektrometer (s. 3.3.5) bestimmt. Die Literaturwerte schwanken dagegen je nach Herstellungsmethode.

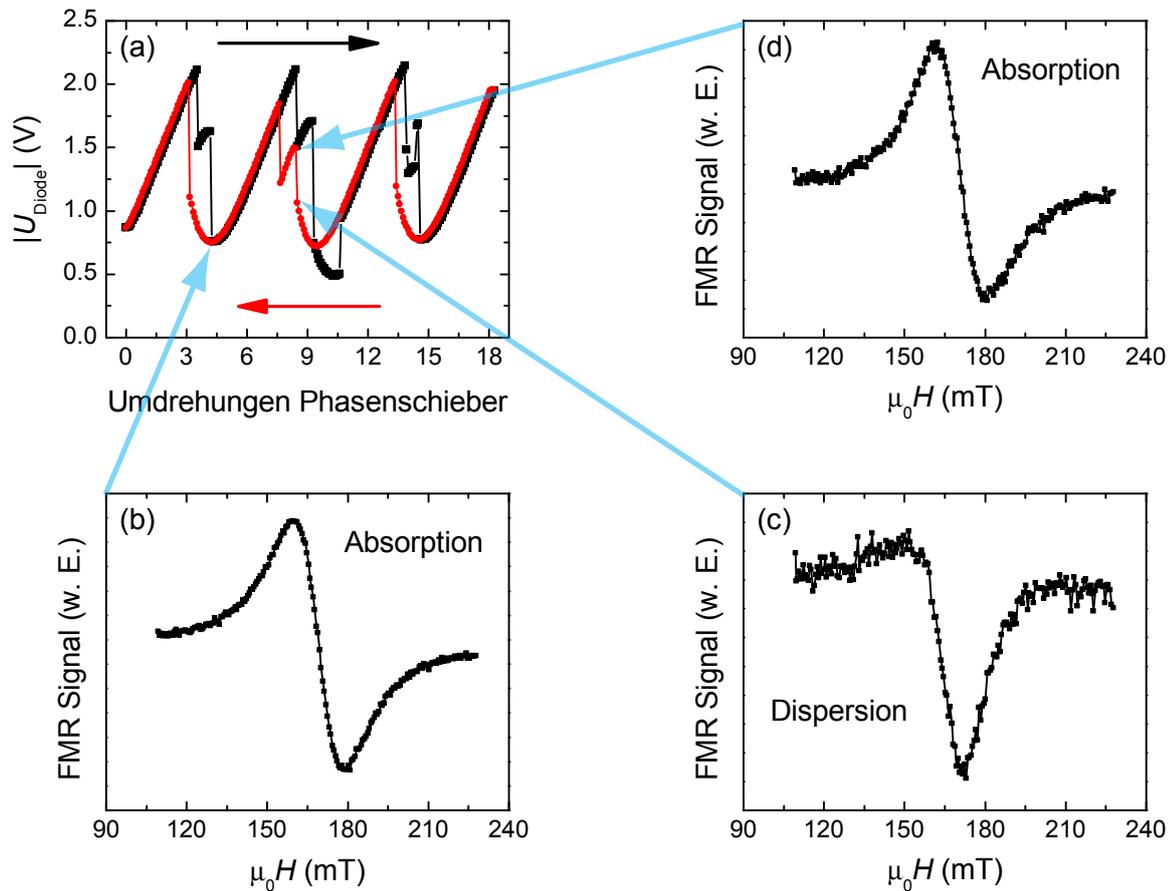


Abbildung 3.18: Einfluss des Phasenschiebers auf das FMR-Signal eines Ni-Films im X-Band-Stab bei Raumtemperatur. (a) Im X-Band zeigt das Diodensignal als Funktion der Phasenschieberstellung Hysterese sowie Sprünge. (b) Das optimale Absorptionssignal ist auch hier bei Einstellung auf das Minimum zu finden. (c) Ein Dispersionssignal ist nur an bestimmten Stellen direkt vor einem Sprung zu finden. (d) Nach dem Sprung entspricht das Signal wieder der Absorption.

spricht dieser natürlichen nur, solange die Bedingung $\mu_0 H_{\text{mod}} \leq \mu_0 \Delta H_{\text{pp}}$ erfüllt ist. Ist das Modulationsfeld dagegen größer, so kommt es zu einer Verbreiterung des Resonanzsignals. Die beobachtete Linienbreite $\mu_0 \Delta H_{\text{pp,obs}}$ ist dann ungefähr gleich dem Modulationsfeld, ein genauer Ausdruck wird in [19] angegeben:

$$\mu_0 \Delta H_{\text{pp,obs}} = \mu_0 \Delta H_{\text{pp}} \left(\left(\frac{\mu_0 H_{\text{mod}}}{\mu_0 \Delta H_{\text{pp}}} \right)^2 + 5 - 2 \left(4 + \left(\frac{\mu_0 H_{\text{mod}}}{\mu_0 \Delta H_{\text{pp}}} \right)^2 \right)^{\frac{1}{2}} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.18)$$

Durch Messen eines ESR-Signals von DPPH lässt sich also nach Ablesen von $\mu_0 \Delta H_{\text{pp,obs}}$ das anliegende Modulationsfeld $\mu_0 H_{\text{mod}}$ numerisch berechnen. Diese Methode lässt sich jedoch zurzeit nur im X-Band ausführen, da im K-Band das maximale Magnetfeld des Elektromagneten, begrenzt durch das versorgende Netzteil, nicht für das im K-Band nach Formel (2.8) erhöhte DPPH-Resonanzmagnetfeld ausreicht. Daher wird das Modulationsfeld bestimmt, indem die Hallsonde in den geöffneten Hohlleiter an den Probenort gesteckt wird und damit direkt das Modulationsfeld gemessen wird. Diese Art der Bestimmung ist jedoch möglicherweise ungenauer als die oben beschriebene, da ein Fehleinbau, insbesondere Verkippung, der Hallsonde zu Fehlern führt.

Variation der Modulationsfrequenz (X-Band)

Zunächst wurde das Modulationsfeld für verschiedene Werte der Modulationsfrequenz ν_{mod} von 21 Hz bis 1,19 kHz bestimmt. In Abb. 3.19(a) sind die ESR-Spektren exemplarisch für drei Frequenzen gezeigt. Daraus wird deutlich, dass die Resonanz für hohe Frequenzen relativ schmal ist und mit abnehmender Frequenz verbreitert. Dies bestätigt sich anhand der nach (3.18) berechneten Werte für $\mu_0 H_{\text{mod}}$. Es ist ein Abfall von etwa 12 mT bei 21 Hz auf 0,9 mT bei 1,19 kHz zu beobachten. Der Grund für diesen Abfall ist die Frequenzabhängigkeit der Eindringtiefe des magnetischen Wechselfeldes in den Hohlleiter. Da die Modulationsspule um den Hohlleiter herum angebracht ist, muss die Modulationsfeldstärke die Metallwand des Hohlleiters durchdringen können, um die Probe zu erreichen. Beim Durchgang durch das Metall fällt die magnetische Feldstärke H vom Anfangswert H_0 mit zunehmender Strecke z gemäß

$$H = H_0 \exp(-Az\sqrt{\nu_{\text{mod}}}) \quad (3.19)$$

ab [19], wobei A eine Konstante ist, die die Skintiefe, Leitfähigkeit und Permeabilität des Metalls enthält. Um diese Abhängigkeit zu verifizieren ist in Abb. 3.19(b) das Modulationsfeld (in logarithmischer Skala) über der Wurzel der Modulationsfrequenz (in linearer Skala) aufgetragen. Während sich unterhalb von etwa 100 Hz eine Sättigung hin zum DC-Wert zeigt, liegt oberhalb der exponentielle Abfall vor, verdeutlicht durch die rote Gerade. Hieraus folgt, dass die Modulationsfrequenz nicht zu hoch gewählt werden darf, um noch ausreichend Modulationsfeld zu erzielen. Andererseits ist eine Verringerung der

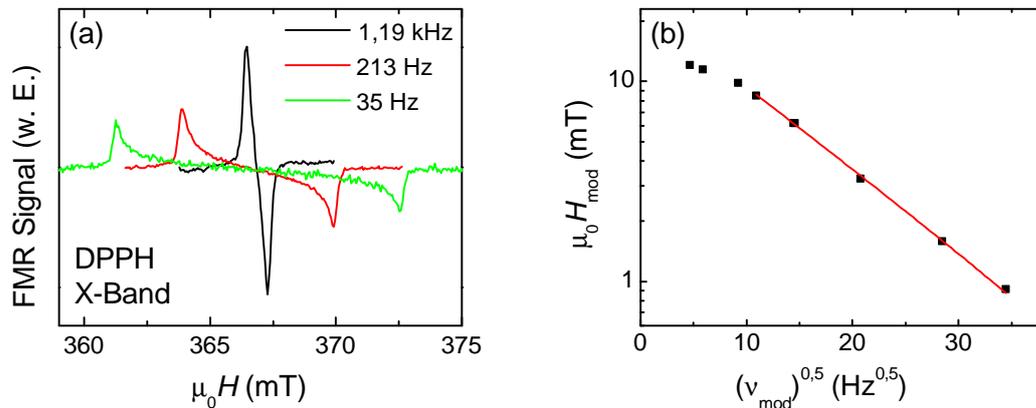


Abbildung 3.19: Einfluss der Modulationsfrequenz auf das ESR-Signal von DPPH im X-Band bei Raumtemperatur. (a) Für höhere Modulationsfrequenz ist die Resonanz schmal, für kleinere Werte verbreitert sie zunehmend. (b) Grund ist die frequenzabhängige Eindringtiefe des Modulationsfeldes in den Hohlleiter; oberhalb von 100 Hz bestätigt sich der theoretisch zu erwartende exponentielle Abfall.

Frequenz auch mit zunehmendem Rauschen bzw. höherer Integrationszeit des Lock-In-Verstärkers und damit längerer Messdauer verbunden. Daher empfiehlt sich als guter Kompromiss, die weitere Kalibration für zwei Frequenzen durchzuführen. Zum einen eine Frequenz von 213 Hz, die das geringere Rauschen liefert, zum anderen 43 Hz, falls eine noch höhere Modulationsamplitude vonnöten ist. Im Folgenden werden für diese beiden Frequenzen die Modulationsamplituden bei Variation der Verstärkung bestimmt.

Variation der Verstärkung

Die Variation der Verstärkung erfolgt durch Drehen des „volume“-Knopfes am Audioverstärker, während die Eingangsspannung (vom Lock-In-Verstärker kommend) konstant bei 150 mV RMS gehalten wird. Es zeigt sich jedoch, dass der Audioverstärker keine im ganzen Einstellungsbereich lineare Verstärkung liefert, sodass als Maß für die tatsächliche Ausgangsleistung, die die Spulen erreicht, der Spannungsabfall über dem mit der Spule in Serie liegenden $0,22 \Omega$ -Widerstand gemessen wird. In Abb. 3.20 sind die Modulationsamplituden - bestimmt wie oben aus DPPH-Messungen für das X-Band bzw. mit der Hallsonde für das K-Band - über der am Widerstand abfallenden Spannung für die Frequenzen 213 Hz, 66 Hz (nur K-Band) und 43 Hz aufgetragen. Es zeigt sich ein linearer Zusammenhang, der auch zu erwarten ist, da der Spannungsabfall letztlich proportional zum Stromfluss in der Spule ist, zu welchem wiederum das Magnetfeld linear skaliert. Als maximale Modulationsamplituden ergeben sich für die X-Band-Spule $\mu_0 H_{\text{mod}} \approx 9 \text{ mT}$ bei 213 Hz und $\mu_0 H_{\text{mod}} \approx 47 \text{ mT}$ bei 43 Hz. Im K-Band sind es $\mu_0 H_{\text{mod}} \approx 10 \text{ mT}$ bei 213 Hz und $\mu_0 H_{\text{mod}} \approx 44 \text{ mT}$ bei 43 Hz. Im Vergleich zu typischen Resonanzlinienbreiten

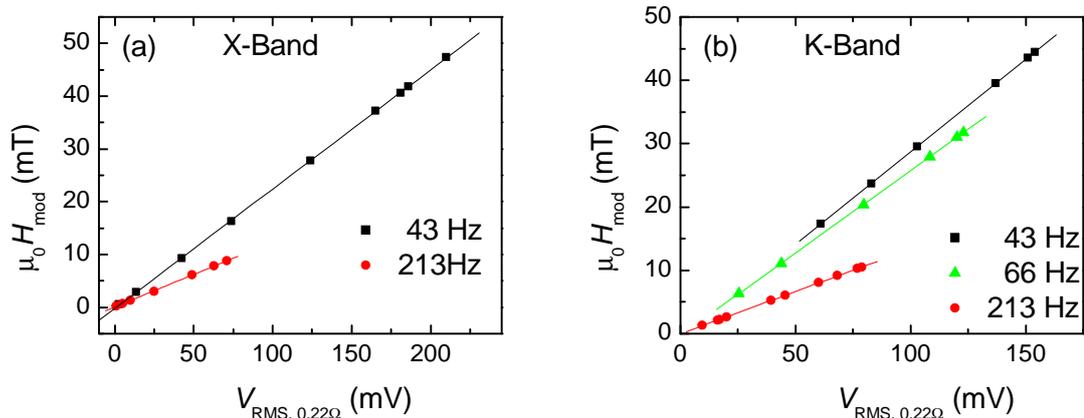


Abbildung 3.20: Für (a) X-Band und (b) K-Band sind die Modulationsamplituden für variierende Verstärkung bestimmt. Der Spannungsabfall über dem $0,22 \Omega$ -Widerstand ist ein lineares Maß für die Modulationsamplitude.

	Cobalt	Nickel	Magnetit
$\mu_0 \Delta H_{pp}$ (mT)	≈ 10	20-40	10-20

Tabelle 3.3: Resonanzlinienbreiten ausgewählter Ferromagnete.

magnetischer Filme (s. Tabelle 3.3) ist das maximale $\mu_0 H_{mod}$ damit um den anvisierten Faktor 2-3 (s. Abb. 3.7) größer.

3.3.5 Empfindlichkeit des Spektrometers

Eine ungefähre Angabe der Empfindlichkeit unseres Aufbaus bei einer Verwendung als ESR-Spektrometer kann durch eine Vergleichsmessung mit einem kalibrierten Spektrometer erfolgen. Bei letzterem handelt es sich um das kommerzielle Spektrometer ESP 300 der Firma Bruker (Karlsruhe) am Walter-Schottky-Institut. Dieses ist, durch Messung von Phosphor-dotiertem kristallinem Silizium bezüglich der in der ESR-Probe enthaltenen Spins kalibriert [18]. So lässt sich die Zahl der Spins N_{Spins} in einer DPPH-Referenzprobe („DPPH1“) aus einem ESR-Spektrum mit der zugehörigen Berechnungsformel [36]

$$N_{Spins} = 5,59 \cdot 10^7 \cdot \frac{A_{pp} \cdot S \cdot T \cdot (\mu_0 \Delta H_{pp})^2}{N \cdot H_{mod} \cdot \sqrt{P}} \frac{\sqrt{mW}}{mV \text{ K G}} \quad (3.20)$$

bestimmen, wobei S die Empfindlichkeit des Lock-In-Verstärkers, T die absolute Temperatur, N die Anzahl der Messdurchläufe und P die Mikrowellenleistung sind. Die Zahl der Spins liegt im Fall von „DPPH1“ bei $2,3 \cdot 10^{16}$. Die Grenze der Empfindlichkeit des Spektrometers, genauer die minimale Anzahl an detektierbaren Spins, ist ebenfalls be-

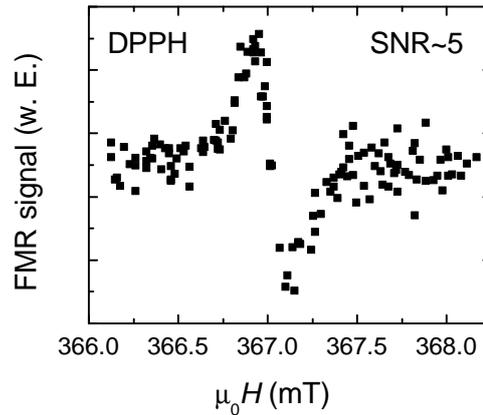


Abbildung 3.21: Die Abschätzung eines SNR von etwa 5 für diese Resonanz einer DPPH-Referenzprobe mit bekannter Anzahl von Spins ermöglicht eine ungefähre Angabe über die Empfindlichkeit des Spektrometers.

kannt und liegt bei 10^{11} Spins/ $\mu_0\Delta H_{pp}$ (G) [18]. Der Vergleich besteht nun darin, diese Probe unter ähnlichen Bedingungen, insbesondere was die Modulation betrifft, in unserem Spektrometer zu messen und das Signal/Rausch-Verhältnis abzuschätzen. Abbildung 3.21 zeigt das gemessene Spektrum im X-Band bei Untermodulation⁶ der DPPH-Resonanz. Es ist hier noch ein Signal/Rausch-Verhältnis von etwa 5 vorhanden, wobei diese sicher noch verbessert werden könnte, wenn man mehrere Spektren mitteln würde. Eine sehr konservative Abschätzung ist folglich, dass mit unserem X-Band-Spektrometer $2 \cdot 10^{16}/5 = 4 \cdot 10^{15}$ Spins/ $\mu_0\Delta H_{pp}$ (G) gemessen werden können. Eine Bestimmung der Empfindlichkeit im K-Band ist bisher nicht möglich, da mit dem aktuellen Netzteil das maximale Feld des Elektromagneten zu gering ist für die Resonanz von DPPH bei der höheren K-Band-Frequenz.

Diskussion

Zum Unterschied von bis zu vier Größenordnungen zwischen dem kommerziellen und unserem selbstgebauten Spektrometer tragen sicherlich mehrere Ursachen bei. Einen Hauptgrund dürften die stark unterschiedlichen Füllfaktoren darstellen. Der Füllfaktor bezeichnet das Verhältnis $V_{\text{Probe}}/V_{\text{Spule}}$ aus (3.9) und beschreibt, wie gut die Probe den Volumenbereich zwischen zwei Knoten des magnetischen Stehwellenfeldes im Resonator ausfüllt. Der Füllfaktor geht nach (3.10) ins gemessene Signal ein. Während der Bruker-Resonator gerade so konstruiert ist, dass das Modenvolumen V_{Spule} möglichst klein wird, ist das Modenvolumen beim Hohlleiter als Resonator deutlich größer. Weiterhin weist

⁶Ein genauer Zahlenwert für die Modulationsamplitude kann nicht angegeben werden, da mit der Kalibration in Abschnitt 3.3.4 nur Amplituden größer als die natürliche Linienbreite von DPPH (ca. 2 G) bestimmt werden können.

der Bruker-Resonator eine Güte von 5000 [18] auf. Die Güte des X-Band-Hohlleiters als Resonator bei diesem Aufbau wurde nicht gemessen, dürfte aber, wenn sie ungefähr mit der Güte eines K-Band-Hohlleiters [37] übereinstimmt, mindestens eine Größenordnung kleiner ausfallen. Ein anderer Vorteil des kommerziellen Aufbaus mag die Konstanz der Mikrowellenquelle sein, deren Frequenz durch eine Automatische Frequenz-Kontrolle [18] stabilisiert wird.

Abschließend soll jedoch noch festgestellt werden, dass dieser Unterschied in der Empfindlichkeit der beiden Spektrometer bei FMR-Messungen nicht in dieser Größe gegeben sein muss. Obige Vergleichsmessung war eine ESR-Messung mit sehr niedriger Modulationsamplitude. Ein wirklicher Vorteil des neuen Aufbaus gegenüber dem Bruker Spektrometer, nämlich die höhere mögliche Modulationsamplitude von bis zu $\mu_0 H_{\text{mod}} = 47$ mT (s. Abschnitt 3.3.4) gegenüber maximal 3,2 mT bei Bruker, spielt daher bei dieser Messung keine Rolle. Bei Messungen an Ferromagneten ist dies jedoch von Vorteil (s. Abschnitt 3.1.5), so dass dann der Unterschied in den Empfindlichkeiten der Spektrometer kleiner ausfallen dürfte.

Zusammenfassend zeigen die in diesem Kapitel vorgestellten Experimente und Analysen, dass die im Rahmen der Arbeit selbst aufgebauten Raumtemperatur-FMR-Messstäbe für X- und K-Band voll funktionstüchtig und für FMR-Messungen an ferromagnetischen Dünnschichten hinreichend empfindlich sind.

Kapitel 4

Magnetische Anisotropie in dünnen Filmen aus Chromdioxid

Die Entwicklung der Spintronik kann nicht nur darauf beschränkt sein, neuartige Bauteile aus bestehenden Materialien zu konstruieren, vielmehr ist man auch auf der Suche nach neuen Materialsystemen mit erweiterter Funktionalität. Ein Ansatz dabei ist die Suche nach ferromagnetischen Halbleitern, mittels derer eine Quelle spinpolarisierter Ladungsträger auf einfache Weise in Halbleiterbauelemente integriert werden könnte [38, 39]. Da jedoch die Curie-Temperaturen bisher untersuchter Systeme weit unterhalb von Raumtemperatur liegen, sind diese noch nicht anwendungsrelevant [40]. Eine andere interessante Gruppe von Materialien sind Ferromagnete mit hoher Spinpolarisation, d.h. insbesondere die halbmetallischen Ferromagnete [41]. In einem Ferromagneten sind die Zustandsdichten für Majoritäts- und Minoritätsladungsträger aufgrund der Austauschwechselwirkung auf der Energieskala gegeneinander verschoben, so dass am Fermi-niveau eine endliche Spinpolarisation auftritt. Bei einem Halbmetall tritt der Spezialfall auf, dass die Fermi-Energie in einer Bandlücke der Zustandsdichte des Minoritätsbands liegt¹. Folglich beträgt die Spinpolarisation der Ladungsträger 100 %. Solch ein vollständig polarisierter Strom macht Halbmetalle beispielsweise zu idealen Spininjektoren. Ein vielversprechender Vertreter der halbmetallischen Ferromagnete ist Chromdioxid (CrO_2) [42, 43, 44].

Für eine praktische Anwendung von CrO_2 in spintronischen Bauelementen ist es unerlässlich, die magnetischen Eigenschaften, und dabei besonders die magnetische Anisotropie von dünnen CrO_2 -Filmen zu untersuchen und dabei Ansätze zur Kontrolle dieser Größen herauszufinden. Mit dem in Kapitel 3 beschriebenen, im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten FMR-Spektrometer wurde dazu die magnetische Anisotropie von CrO_2 -Filmen auf TiO_2 -Substrat abhängig von Schichtdicke und Kristallorientierung quantitativ bestimmt. Des Weiteren wurde versucht, die Beiträge zur Dämpfung der Magnetisierung zu bestimmen, was eine Aussage über die Qualität der Filme ermöglicht. Nach einer kurzen Einführung zu Materialeigenschaften von CrO_2 werden in diesem Kapitel die Messergebnisse zur magnetischen Anisotropie gezeigt und mit der Literatur verglichen. Danach wird

¹Eine erweiterte Definition und genaue Klassifizierung von Halbmetallen ist z.B. in [41] zu finden.

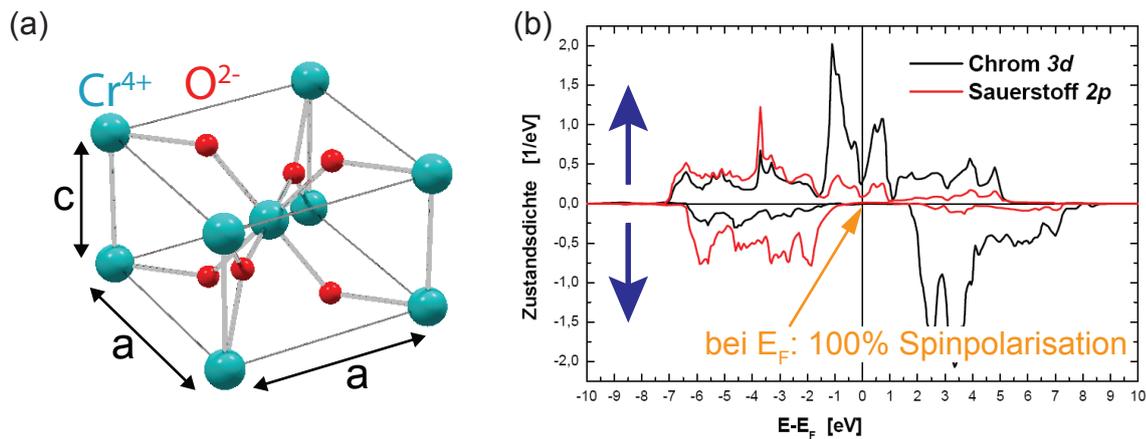


Abbildung 4.1: (a) Die Rutilstruktur von CrO_2 besteht aus zwei Formeleinheiten pro tetragonaler Einheitszelle. (b) Berechnete spinabhängige Zustandsdichte für CrO_2 . Am Fermi-niveau liegen nur Majoritätsspins vor, was eine Spinpolarisation von 100 % bedeutet (aus [52], ursprünglich [47]).

die Bestimmung der Dämpfungsparameter erläutert.

4.1 Physikalische Eigenschaften der Proben

Allgemeine Eigenschaften

CrO_2 kristallisiert in der Rutilstruktur mit zwei Formeleinheiten je tetragonaler Einheitszelle mit Gitterkonstanten $a = b = 4,421 \text{ \AA}$ und $c = 2,916 \text{ \AA}$, wie in Abb. 4.1(a) gezeigt. Die Chromionen befinden sich im Valenzzustand Cr^{4+} und weisen ein magnetisches Moment von $2 \mu_B$ pro Ion auf [45]. CrO_2 ist mit einer Curie-Temperatur von etwa 393 K [46] bei Raumtemperatur ferromagnetisch. Die Halbmetallizität von CrO_2 und die damit einhergehende Spinpolarisation von 100% wurde durch theoretische Bandstrukturberechnungen, wie in Abb. 4.1(b) zu sehen, vorausgesagt [14, 47, 48]. Experimentell wurde die Spinpolarisation durch Punktkontakt-Andreev-Reflexion bei tiefen Temperaturen [44, 49, 50, 15] und durch spin- und winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie [43, 51] bei Raumtemperatur mit Werten von 98,4 % bei 1,6 K [15] sowie 95 % bei 293 K [51] bestimmt.

Untersuchte Proben

Bei den untersuchten Proben handelt es sich um CrO_2 -Dünnschichten unterschiedlicher Schichtdicke, die epitaktisch auf (100)- oder (110)-orientierten Titandioxid(TiO_2)-Substraten gewachsen worden sind. Das Wachstum erfolgte durch chemische Gasphasenabscheidung

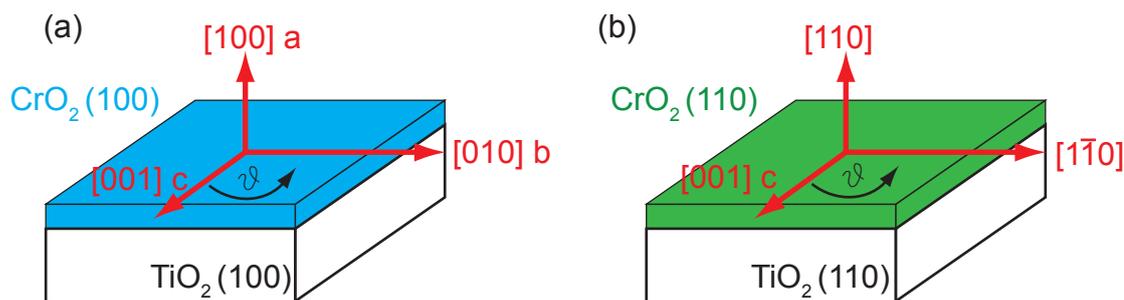


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des (a) (100)-orientierten und (b) (110)-orientierten CrO_2 -Films auf TiO_2 -Substrat mit relevanten Richtungen und dem in der Filmebene gemessenen Winkel ϑ .

(CVD) in der Gruppe von A. Gupta, University of Alabama, Tuscaloosa, USA. Für weitere Einzelheiten zum Wachstum sei auf [46, 53] verwiesen. Uns lagen (100)-orientierte CrO_2 -Filme mit Schichtdicken $d = 29 \text{ nm}$, 100 nm , 137 nm , 295 nm , $1,2 \mu\text{m}$ und (110)-orientierte Filme mit Schichtdicken $d = 25 \text{ nm}$, 50 nm , 75 nm , 85 nm und 125 nm vor. Die Gitterfehlانpassung von CrO_2 gegenüber TiO_2 beträgt $1,4 \%$ entlang der $[001]$ - oder c -Achse und $3,8 \%$ entlang der jeweils dazu senkrechten Achse in der Filmebene. Dies ist die $[010]$ -Achse für (100)-orientierte Filme und die $[1\bar{1}0]$ -Achse für (110)-orientierte Filme, wie in Abb. 4.2 oder auch in Abb. 4.9 zu erkennen ist. Der Einfluss dieser Verspannung, der mit zunehmender Schichtdicke durch (teilweise) Relaxation abnimmt, auf die magnetische Anisotropie wird im Folgenden untersucht.

4.2 Bestimmung der magnetischen Anisotropie

Zur Bestimmung der magnetischen Anisotropie wurde ferromagnetische Resonanz im X-Band ($10,3 \text{ GHz}$) und bei einigen Proben auch im K-Band ($24,125 \text{ GHz}$) gemessen². Die Winkelabhängigkeit der FMR-Spektren wurde durch eine Serie von Messungen bei verschiedenen Orientierungen des externen Magnetfeldes bezüglich der kristallographischen Achsen in den zwei Standardgeometrien gemessen: Zum einen wird die Probe so gedreht, dass das Magnetfeld entlang verschiedener Orientierungen in der Filmebene liegt, was im Folgenden als in-plane Drehung des Magnetfelds bezeichnet wird. Zum anderen erfolgt eine Drehung der Probe, so dass das Magnetfeld aus der Filmebene hinaus in die Richtung der Filmmormalen orientiert wird (out-of-plane Drehung des Magnetfelds). Zuerst wird die MA der (100)-orientierten Filme untersucht, wofür es bereits mehrere, aber voneinander abweichende Ergebnisse in der Literatur gibt [54, 55, 56, 53, 46, 57]. Nach der Darstellung unserer Messungen erfolgt daher ein Vergleich mit dieser Literatur. Danach folgen unsere Ergebnisse zur MA in (110)-orientierten Filmen, wozu unseres Wissens bisher noch keine

²Sofern keine explizite Angabe erfolgt, beziehen sich im Folgenden gezeigte Ergebnisse auf Messungen im X-Band.

Ergebnisse veröffentlicht worden sind.

4.2.1 (100)-orientierte Filme

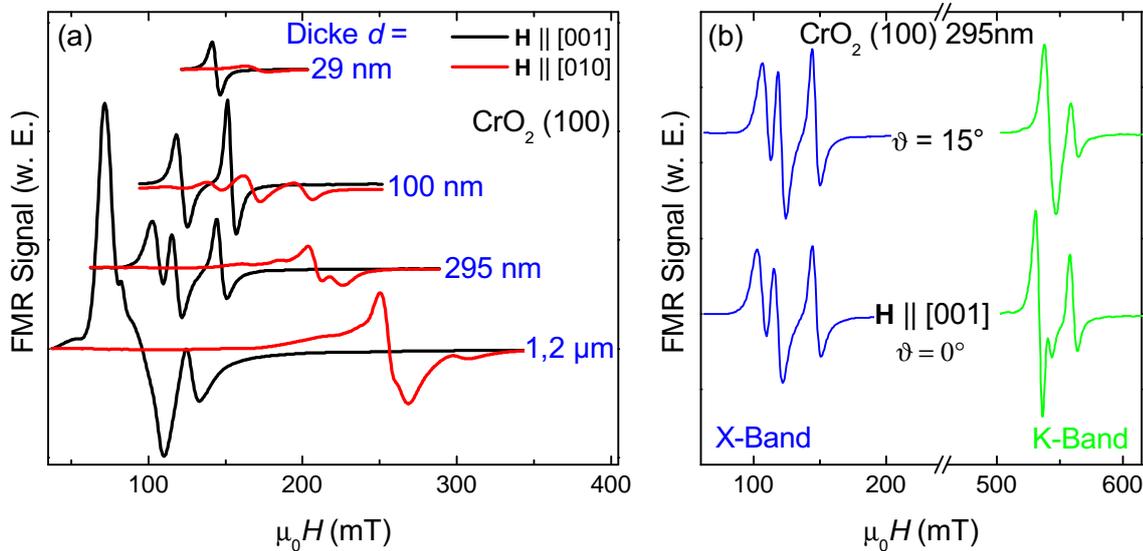


Abbildung 4.3: (a) Für verschieden dicke (100)-orientierte CrO_2 -Filme ist das FMR-Signal im X-Band gezeigt, jeweils für H entlang der c - (schwarz) und entlang der b -Achse (rot). Bei allen Filmen außer dem dünnsten treten mehrere FMR-Moden auf. (b) Zahl bzw. Intensität der FMR-Moden sind von der Mikrowellenfrequenz abhängig.

Die FMR-Spektren der (100)-orientierten CrO_2 -Filme ändern sich qualitativ mit der Schichtdicke. In Abb. 4.3(a) sind für verschiedene Schichtdicken von 29 nm bis 1,2 μm jeweils zwei Spektren abgebildet: bei den schwarzen Kurven liegt das externe Magnetfeld parallel zur kristallographischen [001]-Achse (c -Achse), bei den roten entlang der [010]-Achse (b -Achse). Sowohl die [001]- wie auch die [010]-Achse liegen in der Ebene des (100)-orientierten Films. Die Spektren für die verschiedenen Filmdicken sind entlang der Vertikalen um willkürliche Werte verschoben. Die Signalhöhe der Spektren bleibt aber untereinander quantitativ vergleichbar, so dass die zu erwartende Abnahme der Signalintensität mit abnehmender Schichtdicke erkennbar ist. Während in den Spektren des 29 nm dicken Films jeweils nur ein Resonanzsignal zu erkennen ist, weisen die Kurven aller dickeren Proben mehrere Resonanzen auf, deren Form und Lage von der Orientierung des externen Magnetfeldes abhängt. Diese sind verschiedenen Spinwellenmoden des Volumensmaterials oder Oberflächenmoden zuzuordnen [58]. Das Auftreten dieser Aufspaltung des FMR-Signals deutet auf ein pinning der Magnetisierung an den Grenzflächen des CrO_2 -Films hin. Die Oberflächenmoden entsprechen einer lokal auf die Oberfläche begrenzten Anregung der Magnetisierung. Die Spinwellenmoden sind Anregungen stehender Wellen

der Magnetisierung im Volumen des Films zuzuordnen [54]. Weiterhin ist die Ausbildung der verschiedenen Moden, was ihre Signalhöhe betrifft, bei den Messungen in X- und K-Band unterschiedlich. Abbildung 4.3(b) zeigt dazu exemplarisch Messungen an der 295 nm dicken Probe in X- (blaue Spektren) wie in K-Band (grün) für zwei verschiedene Orientierungen der Probe bezüglich des externen Magnetfeldes. Die Messungen im X-Band zeigen jeweils drei FMR-Moden. Im K-Band ist jedoch für $\mathbf{H}||[001]$ ($\vartheta = 0^\circ$) eine der Moden nur sehr gering ausgeprägt, nach Drehung der Probe zu $\vartheta = 15^\circ$ ist diese Mode ganz verschwunden. Die Ursache hierfür könnte in der frequenzabhängigen Dämpfung (s. dazu Abschnitt 4.3) liegen, welche zu unterschiedlichen Linienbreiten der Resonanzen in X- und K-Band führt.

Exemplarisch werden für den 29 nm dicken Film die FMR-Spektren der in-plane und der out-of-plane Drehung (s. Abb. 4.4(a) bzw. (b)) gezeigt. Die Spektren sind um einen konstanten Wert entlang der Vertikalen verschoben. Die hohen Resonanzmagnetfelder für Orientierungen des externen Magnetfeldes nahe der Filmmormalen können nicht beobachtet werden, da dazu die mit dem derzeitigen Netzteil erreichbare Magnetfeldstärke nicht ausreicht. Weitere in-plane Messungen für Filmdicken von 295 nm und $1,2 \mu\text{m}$ (s. Abb. 4.4(c) bzw. (d)) zeigen die Winkelabhängigkeit der Aufspaltung in mehrere FMR-Moden. Während für Orientierungen des externen Magnetfeldes nahe zur $[010]$ -Richtung nur eine starke Mode sichtbar ist, treten nahe der $[001]$ -Orientierung zwei bis drei Moden vergleichbarer Amplitude auf. Dies erschwert die Bestimmung der magnetischen Anisotropie, da in diesen Fällen nicht eindeutig klar ist, welche Moden zur Auswertung berücksichtigt werden müssen. Im Folgenden wird daher für mehrere Moden mit vergleichbarer Amplitude jeweils getrennt die MA bestimmt. Besonders schwierig ist allerdings die Bestimmung der Resonanzmagnetfelder $\mu_0 H_{\text{res}}$, wenn sich Moden überlagern. In solchen Fällen wurde dies zum Teil per Hand durchgeführt. Ansonsten erfolgte die Bestimmung der Resonanzmagnetfelder $\mu_0 H_{\text{res}}$ automatisch durch ein Software-Skript, das aus den Magnetfeldwerten von Maximum und Minimum der abgeleiteten Absorptionskurve den arithmetischen Mittelwert bildet. Die Bestimmung der magnetischen Anisotropie erfolgt dann durch Simulation der Messwerte durch numerische Lösung der Bewegungsgleichung (2.20). Für Einzelheiten zur Parametrisierung der jeweiligen Drehungen sei auf [22] verwiesen.

Simulation der Resonanzmagnetfelder

Die Abbildungen 4.5(a)-(f) zeigen für einige Messungen die aus den FMR-Spektren ausgelesenen Resonanzmagnetfelder als Funktion der Magnetfeld-Orientierung sowie die darauf angepassten FMR-Simulationen (durchgezogene Linien). Die Resonanzmagnetfelder in Abb. 4.5(a) gehören wiederum zur 29 nm dicken Probe und weisen ein Verhalten auf, das qualitativ bei den meisten untersuchten Filmen gleich ist: Die out-of-plane Drehung (blau) lässt eine starke Formanisotropie der dünnen Filme erkennen. Die Anisotropie in der Filmebene ist ebenfalls uniaxial und begünstigt die c -Achse als leichte Richtung, die

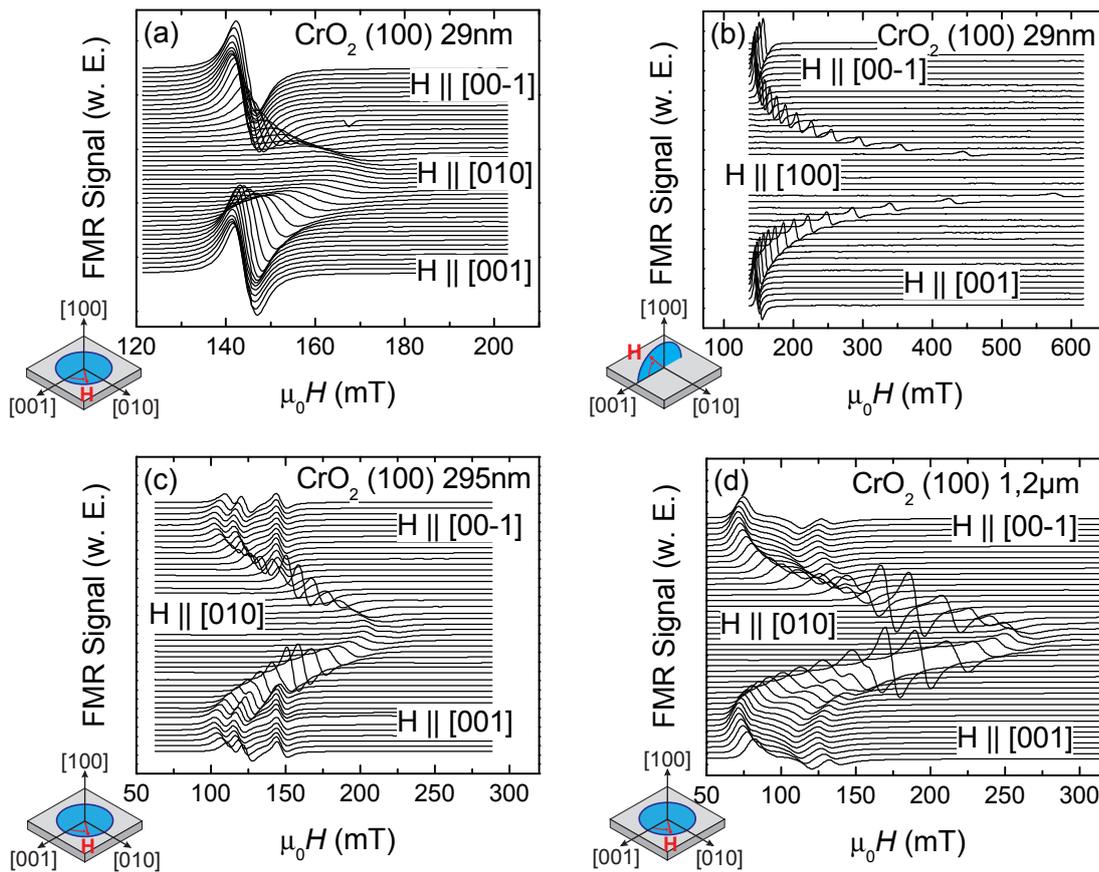


Abbildung 4.4: FMR-Spektren von (100)-orientierten CrO_2 -Filmen: (a) Drehung des externen Magnetfeldes in der Filmebene (in-plane) und (b) in einer dazu orthogonalen Ebene (out-of-plane) für den 29 nm dicken Film. (c) In-plane Drehungen für die Proben mit Filmdicke $d = 295$ nm und (d) $d = 1,2$ µm.

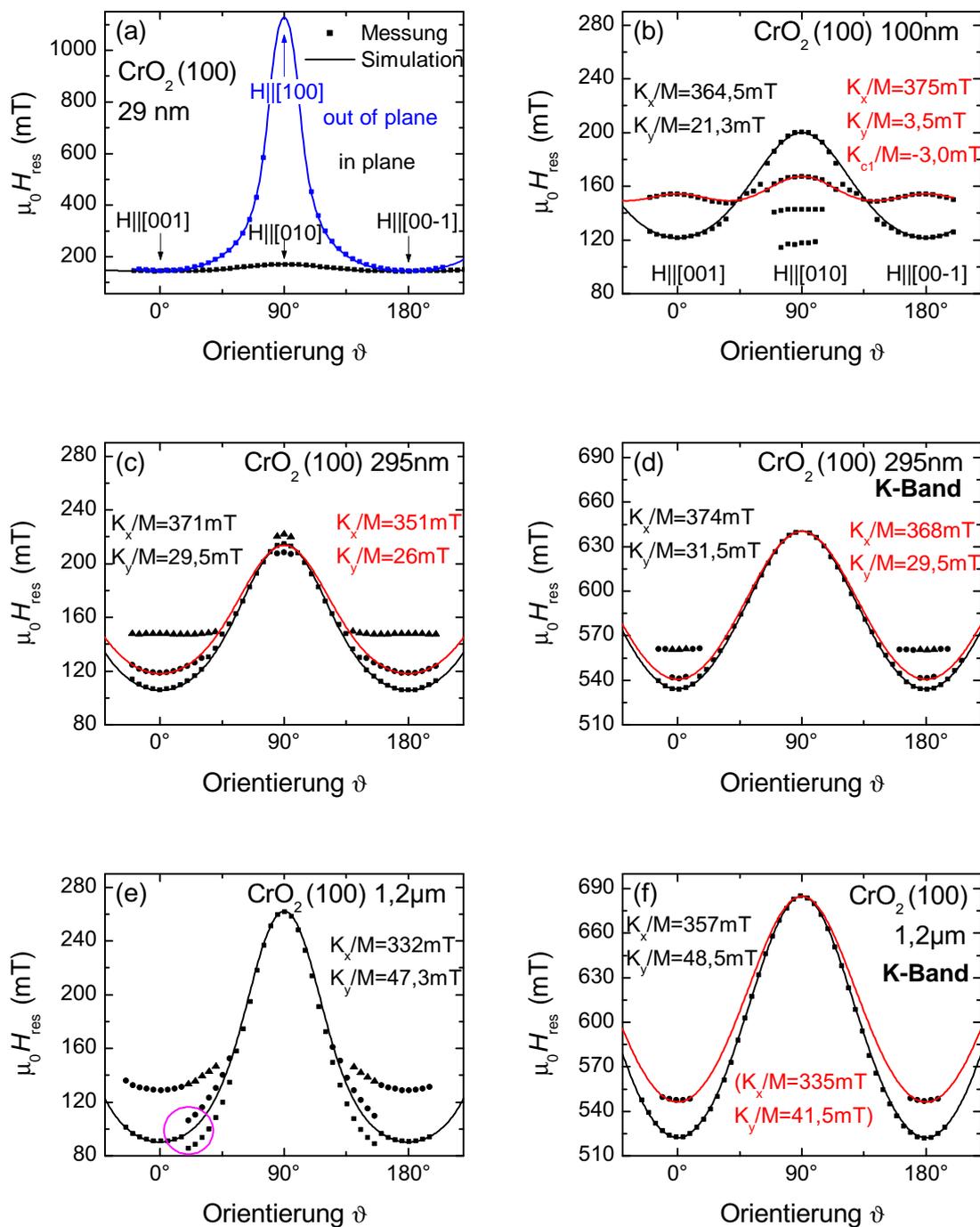


Abbildung 4.5: Gemessene und simulierte Resonanzmagnetfelder: (a) Im Allgemeinen zeigen die (100)-orientierten Filme eine starke uniaxiale Formanisotropie sowie eine uniaxiale Anisotropie in der Filmebene. Die magnetisch leichte Achse ist die c -Achse ((a), (c)-(f)). (b) Der 100 nm dicke Film zeigt eine ungewöhnliche Winkelabhängigkeit (nur in-plane Drehung gezeigt). Der uniaxiale (schwarze Simulation) und der z.T. biaxiale Beitrag (rot) werden zwei magnetischen Phasen zugeordnet.

b -Achse ist dagegen hart. Die weiteren Graphen zeigen jeweils nur die in-plane Drehung. Ein Sonderfall liegt beim 100 nm dicken Film vor: In Abb. 4.5(b) sind die Resonanzmagnetfelder mehrerer Moden mit deutlicher Richtungsabhängigkeit zu sehen. Dabei zeigt ein Teil der Resonanzen offensichtlich eine 180° -Periodizität entsprechend einer uniaxialen Anisotropie, die durch die schwarze Kurve simuliert werden kann. Ein zweiter Teil weist dagegen einen starken Beitrag einer biaxialen Anisotropie mit 90° -Periode auf (rote Simulation). Dieses Verhalten deutet auf die Ausbildung zweier magnetischer Phasen mit unterschiedlichen Anisotropien hin. Ein sehr ähnliches Verhalten bei einem auf gleiche Weise hergestellten 65 nm dicken Film wurde in [56] beschrieben, wo dies ebenfalls nur auf einen Film der untersuchten Dickenserie zutrifft. Die weiteren abgebildeten Graphen zeigen wiederum nur uniaxiale Anisotropien auf und sollen außerdem verdeutlichen, wie die Resonanzmagnetfelder beim Auftreten mehrerer Moden simuliert wurden. Wenn zwei Moden mit etwa gleich großer Amplitude vorlagen, wurden zwei Simulationen für jeweils eine bestimmte Mode durchgeführt (schwarze und rote Kurven in Abb. 4.5). Damit erhält man zumindest ein Maß für die Änderung der Anisotropiefelder bei Berücksichtigung von verschiedenen Moden, d.h. also auch ein Maß für die Unsicherheit in der Bestimmung der Anisotropie. Schwache Moden, d.h. solche mit deutlich kleinerer Amplitude, wie etwa die bei 90° in Abb. 4.5(c) wurden nicht berücksichtigt. Der magentafarbene Kreis in Abb. 4.5(e) kennzeichnet einen Bereich, wo es aufgrund der orientierungsabhängigen Überlagerung zweier Moden zu einer Unstetigkeit in den ausgelesenen Resonanzmagnetfeldern kommt (s. auch Abb. 4.5(e)). In diesem Fall wurde aus der Betrachtung der Spektren der mit der schwarzen Kurve simulierte Verlauf als der richtige identifiziert.

Für die Simulation der Resonanzmagnetfelder musste zunächst ein passender Ansatz für die verschiedenen Beiträge zur totalen freien Energiedichte nach (2.10) gefunden werden. Neben dem Zeeman-Beitrag ist für diese dünnen Filme ein starker Beitrag der Entmagnetisierung zu erwarten. Dieser entspricht einer uniaxialen Anisotropie in (100)-Richtung. Die tetragonale Kristallsymmetrie kann prinzipiell durch eine Überlagerung dreier uniaxialer Anisotropien, die jeweils senkrecht zueinander entlang der tetragonalen Kristallachsen liegen, beschrieben werden. Es kann jedoch gezeigt werden [22], dass drei zueinander senkrechte Anisotropien das System überbestimmen und effektiv auf zwei zueinander senkrechte uniaxiale Anisotropien reduziert werden können. Zweckmäßig wird dann die tetragonale Kristallsymmetrie durch zwei uniaxiale Anisotropien beschrieben, von denen eine in der Filmebene, im Folgenden o.B.d.A entlang der [010]-Achse, und die andere entlang der Filmnormalen [100] orientiert ist. Da letztere von der parallel ausgerichteten Formanisotropie nicht zu trennen ist, werden beide Beiträge zu einer effektiven Anisotropie in x -Richtung zusammengefasst, was folgenden Beitrag zur freien Energiedichte liefert:

$$F_{u,[100]} = F_{\text{Form}} + F_{\text{tetragonal},x} = \frac{\mu_0}{2} M^2 \alpha_x^2 + K_{\text{tetragonal},x} \alpha_x^2 = K_{u,x} \alpha_x^2. \quad (4.1)$$

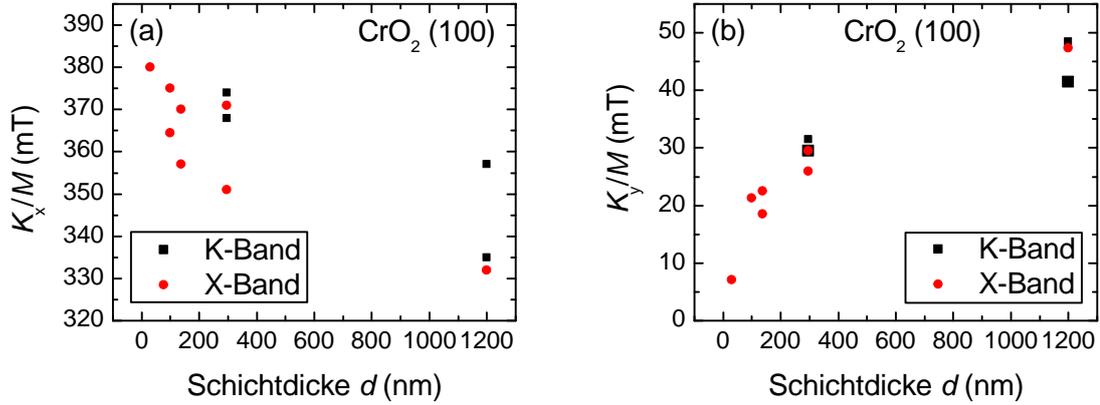


Abbildung 4.6: Anisotropiefelder der (100)-orientierten CrO₂-Filme: (a) Das Feld der uniaxialen out-of-plane Anisotropie $\frac{K_x}{M}$ nimmt mit zunehmender Schichtdicke ab. (b) Umgekehrt verhält sich die uniaxiale Anisotropie entlang der b -Achse in der Filmebene.

Für den Beitrag in der Filmebene gilt

$$F_{u,[010]} = F_{\text{tetragonal},y} = K_{u,y}\alpha_y^2. \quad (4.2)$$

Mit einem zusätzlichen Term für eine mögliche biaxiale Anisotropie folgt die totale freie Energiedichte zu

$$\begin{aligned} F_{\text{tot}} &= F_{\text{stat}} + F_{u,[100]} + F_{u,[010]} + F_{\text{biaxial}} = \\ &= -\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} + K_{u,x}\alpha_x^2 + K_{u,y}\alpha_y^2 + K_{c1}(\alpha_x^2\alpha_y^2 + \alpha_y^2\alpha_z^2 + \alpha_z^2\alpha_x^2). \end{aligned} \quad (4.3)$$

Die aus den Simulationen gewonnenen Anisotropiefelder $\frac{K_x}{M}$ und $\frac{K_y}{M}$ aus den X- und K-Band-Messungen sind in den Abbildungen 4.6 als Funktion der Schichtdicke dargestellt. Die Werte der zweiten magnetischen Phase für den 100 nm dicken Film mit biaxialer Anisotropie (s. Abb. 4.5(b)) sind darin nicht enthalten. Wo für eine Schichtdicke mehrere Werte für die Anisotropiefelder eingetragen sind, entsprechen diese verschiedenen Simulationen aufgrund der Aufspaltung in mehrere Moden. Für das out-of-plane Anisotropiefeld $\frac{K_x}{M}$ ist in Abb. 4.6(a) eine Abnahme mit zunehmender Schichtdicke zu erkennen. Der Wert verringert sich dabei um insgesamt 30...40 mT. Abbildung 4.6(b) zeigt, dass für die in-plane Anisotropie gerade das Gegenteil gilt: Das zugehörige Anisotropiefeld $\frac{K_y}{M}$ nimmt von einem Wert von etwa 7 mT bei $d = 29$ nm auf ca. 50 mT bei $d = 1,2$ μm , also um etwa 40 mT zu. Bei allen Simulationen wurde ein g -Faktor von $g = 1,97$ verwendet, was ein typischer Wert für dünne CrO₂-Filme ist [58, 56]. Im Folgenden wird die Schichtdickenabhängigkeit der Anisotropiefelder auf magnetoelastische Effekte zurückgeführt.

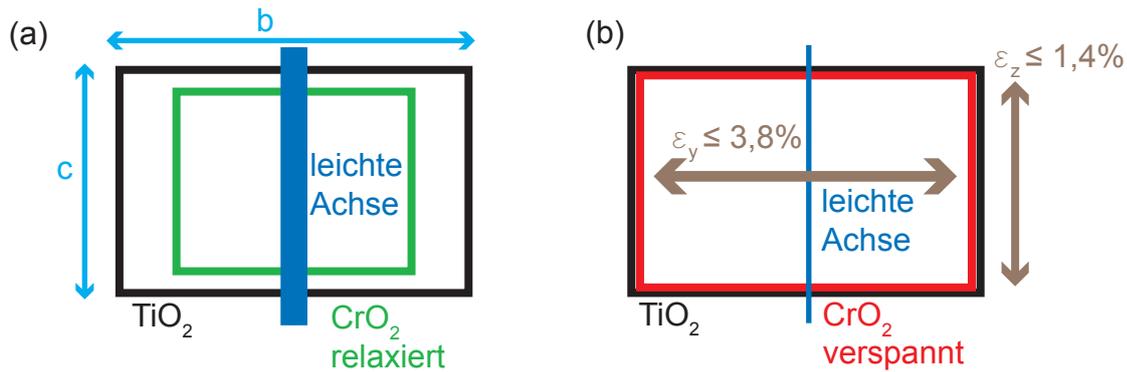


Abbildung 4.7: Schematische, nicht maßstabstreue Darstellung der in-plane Gitterkonstanten von CrO₂ (100) gegenüber dem TiO₂-Substrat (schwarz): (a) relaxierter Film (grün), (b) verspannter Film (rot) mit maximaler Gitterfehlانpassung. Diese ist entlang der b -Achse mehr als doppelt so groß als entlang der c -Achse. Die positive Magnetostriktion verringert die leichte Achse entlang c im verspannten Film.

Magnetoelastische Beschreibung der magnetischen Anisotropie

Die Veränderung der Anisotropiefelder als Funktion der Schichtdicke kann mit Hilfe magnetoelastischer Theorie erklärt werden. Dabei wird angenommen, dass der CrO₂-Film zunächst epitaktisch mit den jeweiligen Gitterfehlانpassungen auf dem TiO₂-Substrat aufwächst. Mit zunehmender Schichtdicke relaxiert der Film und nimmt die Gitterkonstanten des unverspannten CrO₂-Volumenmaterials an. So nimmt mit zunehmender Filmdicke der Einfluss der Verspannung auf die magnetische Anisotropie des Films ab.

Qualitativ kann dies anhand der Abb. 4.7 verstanden werden. Darin sind die in der Filmebene liegenden Grundflächen einer Einheitszelle von TiO₂ und CrO₂ (für (100)-Orientierung) im relaxierten und im verspannten Fall skizziert. Der relaxierte Film in Abb. 4.7(a) weist eine leichte Richtung entlang der c -Achse auf. Wenn der CrO₂-Film durch verspanntes Wachstum die Gitterkonstanten des TiO₂ annimmt (Abb. 4.7(b)), ist die tensile, d.h. positive Dehnung entlang der b -Achse mit maximal $\varepsilon = 3,8\%$ deutlich größer als die entlang der c -Achse (maximal $\varepsilon = 1,4\%$). Somit nehmen zwar sowohl die b - als auch die c -Gitterkonstante absolut an Größe zu, relativ betrachtet erfolgt jedoch die positive Dehnung der Grundfläche entlang der b -Achse. Da CrO₂ ein Material mit positiver Magnetostriktion ist ($\bar{\lambda} > 0$ [46]), bedeutet eine positive Dehnung magnetoelastisch, dass diese Richtung magnetisch leichter wird. Folglich führt die stärkere Dehnung entlang der b -Achse zu einer Abschwächung der ursprünglich vorliegenden leichten Achse in c -Richtung, wie durch die verschieden dicken leichten Achsen (blau) in Abb. 4.7 angedeutet wird.

Dies ist auch anhand der formalen Beschreibung nachzuvollziehen. An Stelle von (4.3)

tritt dann unter Vernachlässigung des biaxialen Beitrags der Ansatz

$$F_{\text{tot}} = -\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} + (K_{u,x}^* + K_{\text{magel},x}) \alpha_x^2 + (K_{u,y}^* + K_{\text{magel},y}) \alpha_y^2, \quad (4.4)$$

mit den magnetoelastischen Anisotropiekonstanten (vgl. (2.19))

$$K_{\text{magel},x} = \frac{3}{2} \bar{\lambda} (c_{12} - c_{11}) (\varepsilon_x - \varepsilon_z) \quad (4.5)$$

und

$$K_{\text{magel},y} = \frac{3}{2} \bar{\lambda} (c_{12} - c_{11}) (\varepsilon_y - \varepsilon_z), \quad (4.6)$$

wobei hier im Unterschied zu (2.19) nur zwei linear unabhängige uniaxiale Anisotropien berücksichtigt werden, da diese die Situation bereits vollständig beschreiben [17, 22]. Die Konstanten $K_{u,x}^*$ und $K_{u,y}^*$ kennzeichnen dabei die uniaxialen Anisotropien eines vollständig relaxierten Films. Außerdem ergibt sich aus den positiven Werten von ε_y und ε_z aus Gründen der Volumenerhaltung $\varepsilon_x < 0$. Genauer gilt nach [17]

$$\varepsilon_x = -\frac{c_{12}}{c_{11}} (\varepsilon_y + \varepsilon_z). \quad (4.7)$$

Da die elastischen Konstanten von CrO_2 nicht bekannt sind, werden näherungsweise die Werte von TiO_2 verwendet: $c_{11} = 2,68 \cdot 10^{11} \frac{\text{N}}{\text{m}^2}$, $c_{12} = 1,75 \cdot 10^{11} \frac{\text{N}}{\text{m}^2}$ [59]. Für die magnetostruktive Konstante wird der Wert $\bar{\lambda} = 5 \cdot 10^{-6}$ [46] verwendet. Die Sättigungsmagnetisierung wurde aus SQUID-Magnetometrie-Messungen bestimmt, woraus als Mittelwert der verschiedenen dicken Filme $M = 7,0 \cdot 10^5 \text{ A/m}$ folgt. Damit ergibt sich für maximale Verspannung des Films, d.h. $\varepsilon_y = 3,8\%$, $\varepsilon_z = 1,4\%$ und nach (4.7) $\varepsilon_x = -3,4\%$:

$$K_{\text{magel},x} = +48 \text{ mT} \text{ und } K_{\text{magel},y} = -24 \text{ mT}. \quad (4.8)$$

Diese beiden Werte entsprechen also der Änderung der uniaxialen Anisotropiekonstanten ausgehend von einem vollständig relaxierten hin zu einem komplett verspannten Film. Der negative Wert für $K_{\text{magel},y}$ bestätigt nochmals die qualitativ erläuterte Reduktion der uniaxialen Anisotropie in der Filmebene mit abnehmender Schichtdicke. Der positive Wert für $K_{\text{magel},x}$ ist ebenfalls konsistent mit der negativen Dehnung $\varepsilon_x = -3,4\%$ in Wachstumsrichtung. Ein Vergleich mit den gemessenen Werten in den Abbildungen 4.6 ist allerdings nur bedingt möglich. Zwar kann davon ausgegangen werden, dass die Anisotropie des $1,2 \mu\text{m}$ dicken Films der eines relaxierten CrO_2 -Films entspricht, der dünnste vermessene Film mit 29 nm ist jedoch sicherlich nicht komplett verspannt, da eine Teilrelaxation wegen der großen Gitterfehlانpassung bereits nach wenigen Monolagen einsetzt. Insofern fällt der aus magnetoelastischer Theorie erwartete Wert von $K_{\text{magel},y} = -24 \text{ mT}$ deutlich zu klein aus gegenüber der gemessenen Änderung von $K_{u,y}$ von etwa -40 mT . Dagegen scheint der Wert von $K_{\text{magel},x} = +48 \text{ mT}$ gegenüber einer gemessenen Änderung von $30 - 40 \text{ mT}$ realistischer.

Für eine genauere quantitative Analyse wäre jedoch eine exakte Vermessung der Verspannung durch Röntgenbeugung nötig. Diese Messungen sind sehr aufwändig und hätten den Rahmen dieser Arbeit gesprengt. Weiterhin ist die magnetostruktive Konstante λ nur mit geringer Genauigkeit bekannt. In Kapitel 6 wird mit Piezo-modulierter FMR eine Methode zur Bestimmung der magnetostruktiven Konstanten vorgestellt. Eine quantitative Messung von λ in CrO_2 bietet sich daher für die Zukunft an. Da jedoch die elastischen Konstanten für CrO_2 gar nicht bekannt sind, ist eine quantitative Auswertung weiterhin mit Unsicherheiten behaftet. Trotz allem lässt sich festhalten, dass die magnetoelastische Theorie die Änderung der magnetischen Anisotropie als Funktion der Schichtdicke nicht nur qualitativ richtig beschreibt, sondern dass auch die quantitative Übereinstimmung (im Rahmen eines Faktors 2) zwischen Theorie und Experiment angesichts der verwendeten Näherungen durchaus zufriedenstellend ist.

Es soll nun noch das quantitative Skalenverhalten der Anisotropiefelder als Funktion der Schichtdicke (s. Abb. 4.6) untersucht werden. In [53] wird für die in-plane Anisotropie ein Modell für Verspannungsrelaxation durch Versetzungen von Matthews und Blakeslee [60, 61, 62] herangezogen, dabei wird jedoch festgestellt, dass die Verspannung und damit die magnetoelastische Anisotropie mit zunehmender Schichtdicke weniger stark abnimmt als theoretisch vorhergesagt, was allgemein für oxidische ferromagnetische Filme beobachtet wird [63, 64]. Umgekehrt nimmt die gesamte in-plane Anisotropie $\frac{K_y}{M}$ weniger stark mit der Schichtdicke d zu. Anstatt eines theoretisch vorhergesagten Anstiegs mit $\approx -d^{-1}$ wird in [53] ein Verhalten von $\approx -d^{-0,3}$ beobachtet. Davon abweichend kann für die hier gezeigten Messungen eine noch langsamere Relaxation festgestellt werden. In der logarithmischen Auftragung der Schichtdicke in Abb. 4.8(a) liegen die Werte für $\frac{K_y}{M}$ in guter Näherung auf einer Geraden. Es zeigt sich also ein logarithmischer Anstieg $\approx \ln(d)$. Für die Felder der uniaxialen Anisotropie in der Wachstumsrichtung des Films, $\frac{K_x}{M}$, die in [53] nicht betrachtet werden, zeigt sich ein ähnliches Bild in Abb. 4.8(b). Sofern man die Simulationen für mehrere Moden getrennt betrachtet, lassen sich diese mit zwei Geraden anfitten. Die Anisotropien der beiden Moden weisen also eine Schichtdickenabhängigkeit $\approx \ln(d)$ auf. Dieses experimentell eindeutige Skalenverhalten ist theoretisch unverständlich.

Vergleich mit Literatur und Diskussion

Die magnetische Anisotropie von CrO_2 -Filmen auf (100)- TiO_2 -Substrat, die auf die gleiche Weise mittels CVD in der Gruppe von A. Gupta hergestellt worden sind, wurde schon in FMR-Messungen [54, 55, 56] sowie in VSM- [53] oder SQUID-Magnetometrie-Messungen [46, 57] untersucht. Alle diese Messungen zeigen eine ähnliche, starke Abhängigkeit der magnetischen Anisotropie von der Schichtdicke aufgrund des Einflusses von verspanntem Wachstum. Die Messungen unterscheiden sich jedoch darin, ob ein Schalten der magnetisch leichten Richtung in der Filmebene von der c - zur b -Achse für die dünnsten Filme erfolgt. Dass die leichte Achse für alle Filme einer Dickenserie entlang der c -Achse

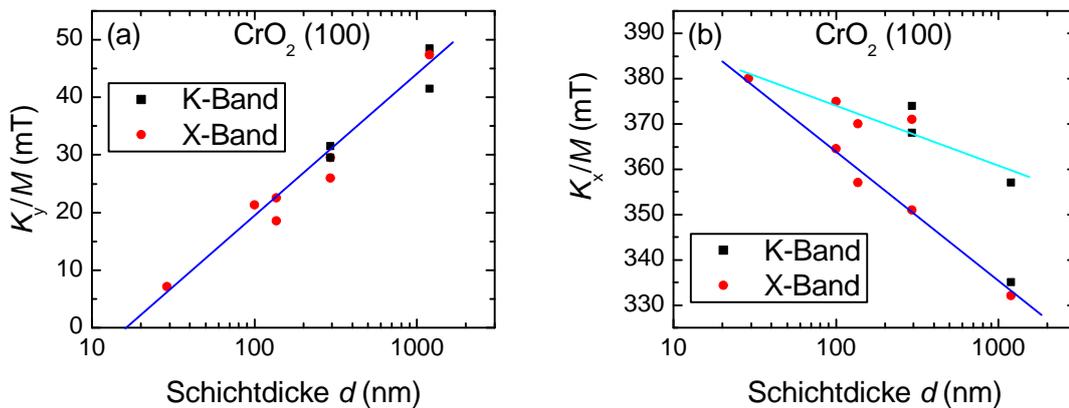


Abbildung 4.8: Skalverhalten der Anisotropiefelder: (a) In logarithmischer Auftragung der Schichtdicke d liegen die Anisotropiefelder $\frac{K_y}{M}$ in etwa auf einer Geraden (blau), skalieren also mit $\ln(d)$. (b) Das gleiche Skalverhalten zeigt sich für $\frac{K_x}{M}$, jedoch getrennt für die zu unterschiedlichen Moden gehörigen Anisotropiefelder.

orientiert ist, wie dies in den hier gezeigten Messungen der Fall ist, wird auch in [54, 57] beobachtet. Dagegen liegt in [55, 53, 56] die leichte Achse für ca. 30 nm dicke Filme entlang der b -Achse, für 45 nm und dickere Filme entlang der c -Achse. Dieses Schalten ist darauf zurückzuführen, dass die verspannungsinduzierte magnetoelastische Anisotropie die kristalline Anisotropie übersteigt. Da beim hier untersuchten 29 nm dicken Film das effektive Anisotropiefeld nur 7 mT beträgt, wäre es möglich, dass ein Schalten der leichten Achse bei einem dünneren Film auftritt, wie in Abb. 4.8 durch den Schnittpunkt der Ausgleichsgerade mit der horizontalen Achse suggeriert wird.

Dass diese verschiedenen Serien von CrO₂-Filmen sich in den auftretenden Verspannungen unterscheiden, unterstreicht, wie kritisch Wachstumsparameter und Präparation des Substrats für die Herstellung der Filme sind. Da CrO₂ eine thermodynamisch metastabile Phase bei Raumtemperatur und Atmosphärendruck ist, bestehen generell hohe Anforderungen an den Wachstumsprozess von Filmen guter struktureller Qualität [65]. Zudem hat sich gezeigt, dass bisher nur der CVD-Prozess mit CrO₃ als Ausgangsmaterial kohärent verspannte Filme hervorgebracht hat [58]. Weiterhin ist die richtige Behandlung des Substrats vor dem Wachstumsprozess sehr wichtig. Hier wurde festgestellt [66], dass ohne eine Reinigung des Substrats mit verdünnter Flußsäure (HF) die CrO₂-Filme verspannungsfrei bleiben. Erst dieser Ätzprozess verändert die TiO₂-Oberfläche derart, dass ein epitaktisches, verspanntes Wachstum möglich ist.

Insofern ist naheliegend, dass leicht veränderte Wachstumsbedingungen das Maß der Verspannung der CrO₂-Filme beeinflussen und die unterschiedlichen Ergebnisse in dieser Arbeit und der zitierten Messungen hervorrufen.

4.2.2 (110)-orientierte Filme

Der magnetoelastischen Theorie zufolge ist in den (110)-orientierten Filmen eine ähnliche Abhängigkeit der magnetischen Anisotropie von der Schichtdicke wie bei den (100)-orientierten Filmen zu erwarten, da die Situation der unterschiedlichen Gitterfehlanspassungen in beiden Fällen gegeben ist. Dies ist an Abb. 4.9 zu sehen. Die (110)-Fläche hat als Seitenkanten neben der c -Achse eine Seite der Länge $\sqrt{2}b$. Da sich diese nur um einen konstanten Faktor von der Länge b unterscheidet, beträgt auch in dieser Richtung die Gitterfehlanspassung $\varepsilon_{[1\bar{1}0]} = 3,8\%$, während $\varepsilon_z = 1,4\%$ ist. Dies war der Ausgangspunkt für eine Serie von FMR-Messungen an (110)-orientierten CrO_2 -Filmen.

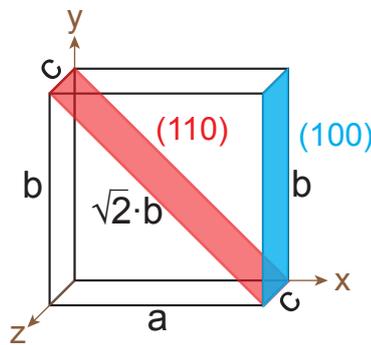


Abbildung 4.9: Darstellung der (100)- und (110)-orientierten Flächen einer tetragonalen Einheitszelle.

Analoge Messungen zu denen an den (100)-orientierten Proben wurden an fünf (110)-orientierten Filmen mit Schichtdicken zwischen 25 nm und 125 nm gemacht. Die FMR-Spektren für Drehungen des Magnetfeldes in der Probenebene sind in Abb. 4.10 exemplarisch gezeigt. Wiederum weisen die Filme eine starke uniaxiale Formanisotropie (mit Konstante $K_{[110]}$) sowie eine uniaxiale Anisotropie in der Filmebene (mit Konstante $K_{[1\bar{1}0]}$) auf. Letztere begünstigt die c -Achse als leichte magnetische Achse. Bei den kleineren Schichtdicken 25 nm, 50 nm (s. Abb. 4.10(a) bzw. (b)) und 75 nm kann jeweils nur eine Mode bei allen Orientierungen des externen Magnetfeldes beobachtet werden. Bei der Probe mit $d = 85$ nm (s. Abb. 4.10(c)) ist eine zweite Mode für Orientierungen des Magnetfeldes nahe der $[001]$ -Richtung im Ansatz zu erkennen, bei der 125 nm dicken Probe sind diese beiden FMR-Moden etwa gleich stark (s. Abb. 4.10(d)). Im Gegensatz zu den (100)-orientierten Filmen ist es in diesem Fall aber möglich, die mit zunehmender Schichtdicke auftretende Mode bei kleinerem Resonanzmagnetfeld von der eigentlichen FMR-Mode bei größerem Resonanzmagnetfeld zu trennen. Die Resonanzmagnetfelder als Funktion der Magnetfeldorientierung sind in den Abbildungen 4.11 aufgetragen. Beim 85 nm dicken Film ist eine zweite Mode bei einigen Orientierungen um 0° zu sehen (s. Abb. 4.11(d)), für $d = 125$ nm (s. Abb. 4.11(e) und (f)) sind diese auch mit einer Simulation berücksichtigt worden.

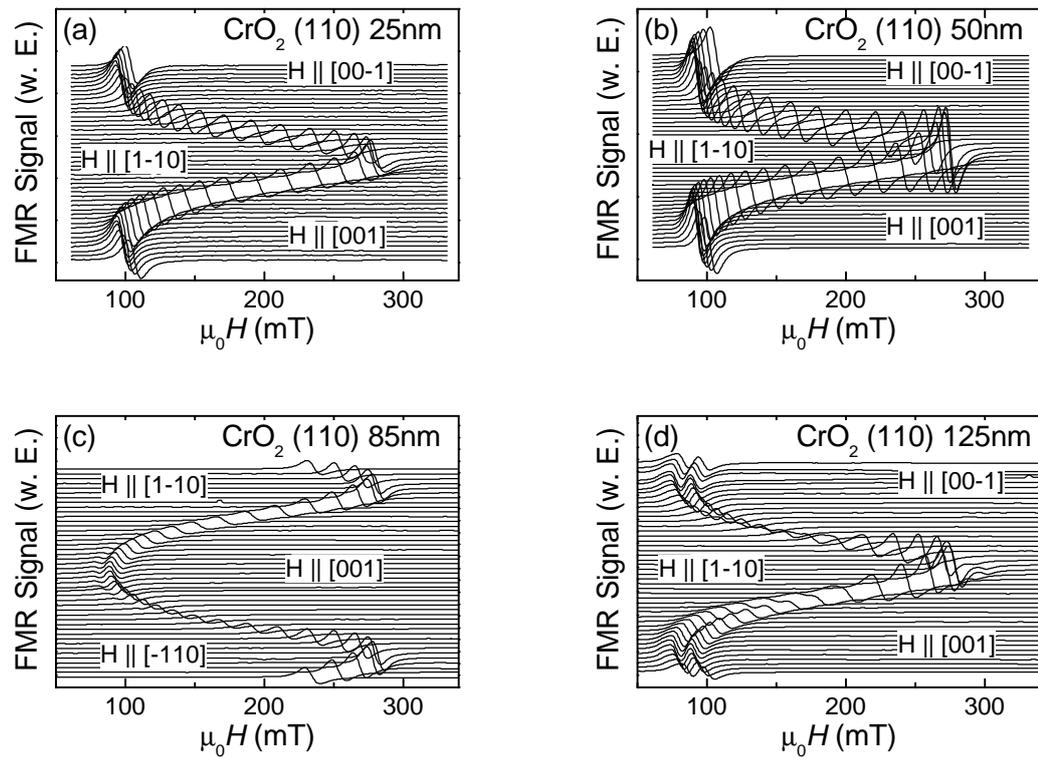


Abbildung 4.10: FMR-Messungen der (110)-orientierten CrO_2 -Filme, Drehung des Magnetfeldes in der Filmebene. Bei Schichtdicken von 25 nm (a) und 50 nm (b) ist jeweils nur eine FMR-Mode erkennbar. Bei 85 nm (c) und 125 nm (d) entsteht eine zweite Mode nahe der $[001]$ -Richtungen.

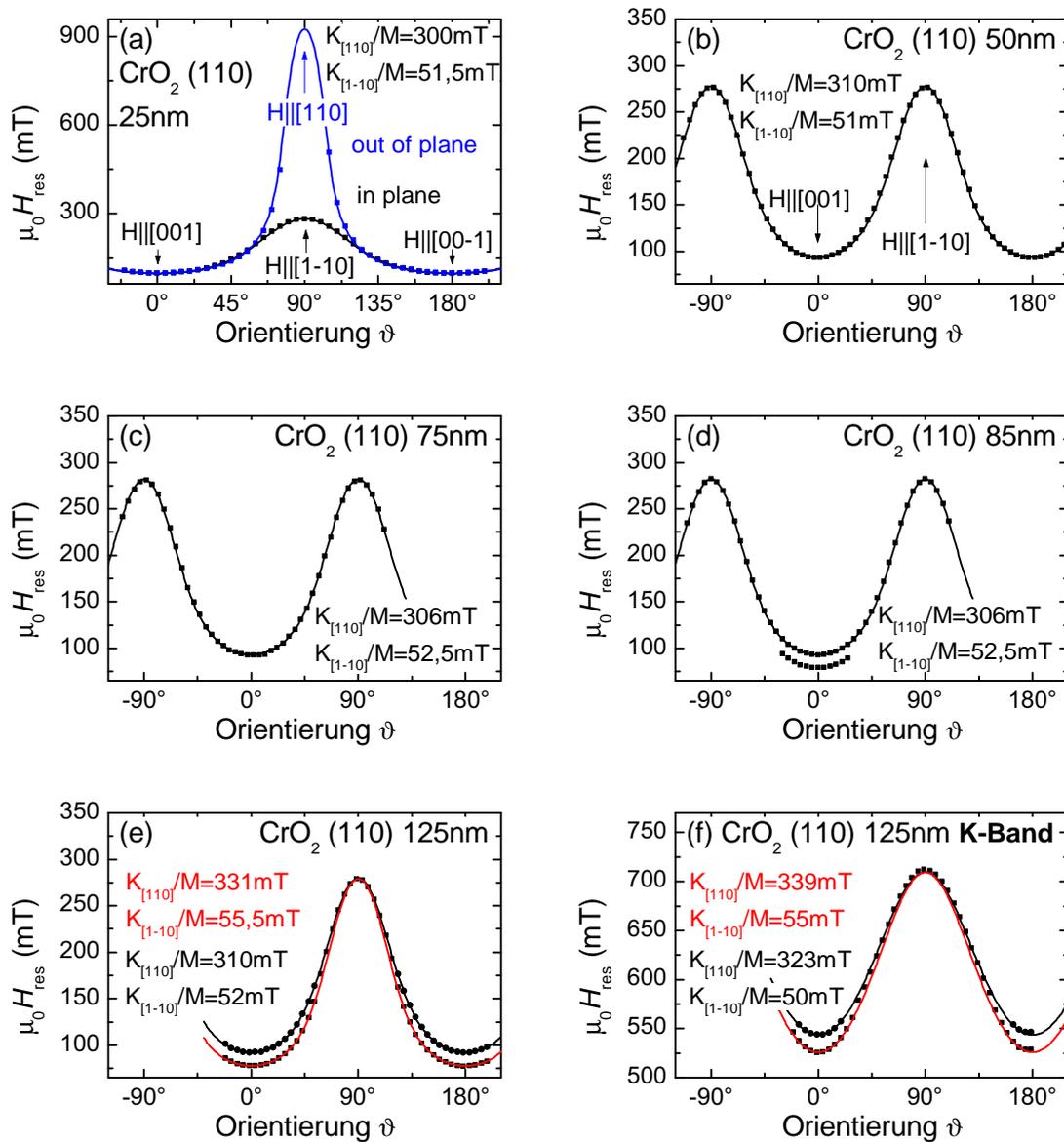


Abbildung 4.11: Gemessene (Symbole) und simulierte (Linien) FMR-Resonanzmagnetfelder der (110)-orientierten CrO_2 -Filme. Die Filme zeigen eine starke uniaxiale Anisotropie entlang der Filmmormalen (a) sowie eine uniaxiale Anisotropie in der Filmebene ((a)-(f)).

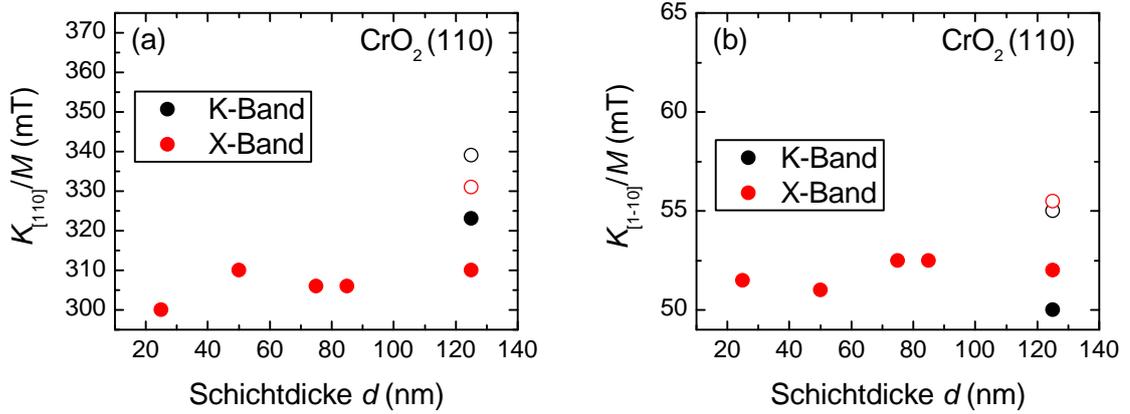


Abbildung 4.12: Anisotropiefelder der (110)-orientierten CrO₂-Filme: Weder die Felder der out-of-plane Anisotropie (a) noch die der in-plane Anisotropie (b) zeigen eine durch Verspannung bedingte Abhängigkeit von der Filmdicke.

Für die Simulationen wurde eine freie Energiedichte

$$\begin{aligned}
 F_{\text{tot}} &= F_{\text{stat}} + F_{\text{u},[110]} + F_{\text{u},[1\bar{1}0]} = \\
 &= -\mu_0 \mathbf{M} \cdot \mathbf{H} + \frac{1}{2} K_{\text{u},[110]} (\alpha_x + \alpha_y)^2 + \frac{1}{2} K_{\text{u},[1\bar{1}0]} (\alpha_x - \alpha_y)^2
 \end{aligned} \quad (4.9)$$

angesetzt, wobei die beiden uniaxialen Anisotropiebeiträge analog zum Fall der (100)-orientierten Filme die tetragonale Kristallanisotropie sowie die Formanisotropie beschreiben:

$$F_{\text{u},[110]} = F_{\text{Form}} + F_{\text{tetragonal},[110]} = K_{\text{u},[110]} (\alpha_x + \alpha_y)^2 \quad (4.10)$$

und

$$F_{\text{u},[1\bar{1}0]} = F_{\text{tetragonal},[1\bar{1}0]} = K_{\text{u},[1\bar{1}0]} (\alpha_x - \alpha_y)^2. \quad (4.11)$$

Die aus den Simulationen bestimmten Anisotropiefelder $K_{[110]}/M$ und $K_{[1\bar{1}0]}/M$ sind in den Abbildungen 4.12 als Funktion der Schichtdicke aufgetragen. Die offenen Symbole bei $d = 125$ nm entsprechen den erst bei dicken Filmen auftauchenden Moden. Betrachtet man jedoch nur die Simulationen der eigentlichen FMR-Moden (ausgefüllte Symbole), so ändern sich die Anisotropiefelder der (110)-orientierten Filme nur sehr wenig als Funktion der Schichtdicke. In Abb. 4.12(a) schwankt das out-of-plane Anisotropiefeld $K_{[110]}/M$ ohne Trend im Bereich von nur wenigen mT. Ähnliches gilt für die in-plane Anisotropiefelder $K_{[1\bar{1}0]}/M$ in Abb. 4.12(b). Die ungefähren Durchschnittswerte von $K_{[110]}/M = 307$ mT und $K_{[1\bar{1}0]}/M = 52$ mT liegen im gleichen Größenbereich wie die Anisotropiefelder des dicksten, am stärksten relaxierten (100)-orientierten Films.

Die fehlende Abhängigkeit der magnetischen Anisotropie von der Schichtdicke in den (110)-orientierten Filmen widerspricht der magnetoelastischen Theorie. Da kein Effekt

von Dehnung als Funktion der Schichtdicke zu beobachten ist, ist zu vermuten, dass die dünnen (110)-orientierten Film nicht kohärent verspannt auf dem Substrat aufgewachsen sind. In der Literatur ist magnetische Anisotropie von (110)-orientierten CrO_2 -Filmen nicht diskutiert. Wie schon für die (100)-orientierten Filme festgestellt wurde, ist epitaktisch verspanntes Wachstum stark von den Wachstumsparametern und der Substratbehandlung abhängig. Insbesondere könnte das Ätzen des Substrats mit HF, das sich für (100)-orientierte Proben als notwendig erwiesen hat, auf der (110)-Oberfläche anders wirken. Womöglich müssen die entsprechenden Herstellungsprozesse für (110)-orientierte Filme noch optimiert werden.

4.3 Bestimmung der Magnetisierungsdämpfung

Neben der Bestimmung der magnetischen Anisotropie bietet ferromagnetische Resonanz auch die Möglichkeit, eine Aussage über die Qualität dünner ferromagnetischer Filme zu treffen [67]. Dies geschieht über eine Betrachtung der Magnetisierungsdämpfung, die in die Linienbreite einer Resonanzkurve eingeht. Die Linienbreite $\mu_0\Delta H$ setzt sich gemäß

$$\mu_0\Delta H = \mu_0\Delta H_i(\nu) + \mu_0\Delta H_0 \quad (4.12)$$

aus einem intrinsischen, von der Mikrowellenfrequenz ν abhängigen Anteil $\mu_0\Delta H_i$ einerseits und einem nicht intrinsischen Beitrag $\mu_0\Delta H_0$ andererseits zusammen. Letzterer spiegelt magnetische Inhomogenitäten der Probe wider. Durch frequenzabhängige Messungen, in diesem Fall im X- und K-Band, können der frequenzabhängige intrinsische und der extrinsische Anteil unterschieden und bestimmt werden. Damit dies möglich ist, muss zunächst ein Ausdruck für die Frequenzabhängigkeit des intrinsischen Beitrags gefunden werden. Dies geschieht im Folgenden im Rahmen der Energieformulierung der FMR.

Herleitung des intrinsischen Dämpfungsterms

Der intrinsische Dämpfungsbeitrag entspricht dem Dämpfungsterm α der Landau-Lifschitz-Gilbert-Gleichung (2.9). In der Energieformulierung der FMR in Abschnitt 2.3 wurde die Dämpfung vernachlässigt, da sie für die Position der Resonanzmagnetfelder und damit für die Bestimmung der magnetischen Anisotropie nicht notwendig ist. Bei Berücksichtigung der Dämpfung α kann aus der Bewegungsgleichung der FMR (2.20) ein Ausdruck für die intrinsische Resonanzlinienbreite $\mu_0\Delta H_i$ abgeleitet werden [68, 69]:

$$\mu_0\Delta H_i = \frac{\partial(\mu_0 H)}{\partial\omega} \Delta\omega, \quad (4.13)$$

mit

$$\Delta\omega = \frac{\gamma\alpha}{M} \left(\frac{\partial^2 F_{\text{tot}}}{\partial\Theta^2} + \frac{1}{\sin^2\Theta} \frac{\partial^2 F_{\text{tot}}}{\partial\Phi^2} \right)_{\Theta_0, \Phi_0}. \quad (4.14)$$

Da die Bewegungsgleichung (2.20) nur für ausgezeichnete Orientierungen des externen Magnetfeldes analytisch lösbar ist, gilt dies ebenso für die Ableitung in (4.13). Unter den Orientierungen mit analytischen Lösungen zeichnet sich wiederum eine aus, in deren Endergebnis für $\mu_0\Delta H_i$ keine Anisotropiekonstanten oder Resonanzmagnetfelder eingehen. Für den Fall der (100)-orientierten CrO_2 -Filme trifft dies für $\mathbf{H}||[001]$ zu, nicht aber z.B. für $\mathbf{H}||[010]$. Im Folgenden wird daher die intrinsische Resonanzlinienbreite für den Spezialfall $\mathbf{H}||[001]$ ($\Theta = 90^\circ$, $\Phi = 0^\circ$) für (100)-orientierte Filme betrachtet.

Die totale freie Energiedichte für (100)-orientierte CrO_2 -Filme ist gegeben durch (s. (4.3))

$$F_{\text{tot}} = F_{\text{stat}} + F_{\text{u},[100]} + F_{\text{u},[010]}. \quad (4.15)$$

Daraus folgt als analytische Lösung der Bewegungsgleichung (2.20)

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right) = \left(\mu_0 H_{\text{res},[001]} + 2\frac{K_{\text{u},x}}{M}\right) \left(\mu_0 H_{\text{res},[001]} + 2\frac{K_{\text{u},y}}{M}\right). \quad (4.16)$$

Damit kann die Ableitung

$$\frac{\partial\omega}{\partial(\mu_0 H)} = \frac{\gamma^2}{\omega} \left(\mu_0 H_{\text{res},[001]} + \frac{K_{\text{u},x}}{M} + \frac{K_{\text{u},y}}{M}\right) \quad (4.17)$$

berechnet und in

$$\mu_0\Delta H_i = \left(\frac{\partial\omega}{\partial(\mu_0 H)}\right)^{-1} \Delta\omega \quad (4.18)$$

eingesetzt werden. Daraus folgt schließlich der gesuchte Ausdruck für die intrinsische Resonanzlinienbreite für den Fall $\mathbf{H}||[001]$:

$$\mu_0\Delta H_{i,[001]} = \frac{2\alpha\omega}{\gamma} = \frac{4\pi\alpha\nu}{\gamma}. \quad (4.19)$$

Bestimmung der Dämpfungsbeiträge

Mit dem nun berechneten Ausdruck für die intrinsische Resonanzlinienbreite (4.19) nimmt (4.12) die Form

$$\mu_0\Delta H_{[001]} = \mu_0\Delta H_0 + \frac{4\pi\alpha\nu}{\gamma} \quad (4.20)$$

an. Diese lineare Gleichung in der Frequenz ν erlaubt eine einfache Bestimmung der Dämpfungskonstante α sowie des Dämpfungsbeitrags $\mu_0\Delta H_0$, wie aus der Skizze in Abb. 4.13 hervorgeht. Die zwei gemessenen Resonanzlinienbreiten in X- und K-Band werden mit einer Geraden verbunden. Deren y -Achsenabschnitt liefert den nicht intrinsischen Dämpfungsbeitrag $\mu_0\Delta H_0$, aus der Steigung ergibt sich die Dämpfungskonstante α .

Bei der praktischen Auswertung im Fall der CrO_2 -Filme tritt allerdings ein Problem auf. Wie aus Abb. 4.13 oder Gleichung (4.20) ersichtlich ist, wird bei höherer Mikrowellenfrequenz ν eine größere Linienbreite $\mu_0\Delta H$ erwartet. Die Messungen zeigen aller-

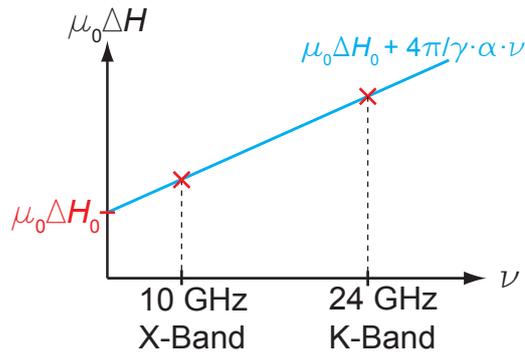


Abbildung 4.13: Skizze zur Bestimmung der Dämpfungsbeiträge: Aus dem linearen Fit der Messungen in X- und K-Band ergibt sich $\mu_0\Delta H_0$ aus dem y -Achsenabschnitt und α aus der Steigung der Geraden.

dings genau das Gegenteil: Während im X-Band (10,3 GHz) die Resonanzlinienbreite bei $\mu_0\Delta H_{[001],X} \approx 12,4$ mT liegt, beträgt sie im K-Band nur $\mu_0\Delta H_{[001],K} \approx 9,7$ mT. Dies hätte nach Gleichung (4.20) eine negative Dämpfungskonstante α zur Folge, was jedoch unphysikalisch ist. Es stellt sich daher die Frage, welche Einflüsse die Resonanzlinienbreiten in unterschiedlichem Maße für die beiden Frequenzen verfälschen könnten.

Ein mögliches Problem ist eine unvollständige Sättigung der Magnetisierung des Films. Bei nicht ausreichend großem externem Magnetfeld werden nicht alle magnetischen Momente parallel ausgerichtet. Für Bereiche mit unterschiedlich orientierten Magnetisierungen ergeben sich aus (2.9) jedoch auch unterschiedliche Resonanzmagnetfelder, was eine Verbreiterung der Absorptionslinie des ganzen Films hervorruft. Da nach (2.8) die Resonanz im X-Band bei deutlich kleineren externen Magnetfeldern als im K-Band stattfindet, ist dies ein Effekt, der die Linienbreite im X-Band deutlich stärker verbreitert als im K-Band und somit die gemessenen Werte erklären könnte.

Eine weitere denkbare Fehlerquelle besteht darin, dass magnetische Inhomogenitäten des Films aufgrund der frequenzabhängigen Längenskalen der Messung in X- und K-Band unterschiedlich zur nicht-intrinsischen Linienbreite $\mu_0\Delta H_0$ beitragen. Zum einen ist im X-Band ein Magnetfeld-Maximum einer stehenden Welle im Resonator aufgrund der größeren Wellenlänge auf einen größeren Bereich verteilt als im K-Band. Zum anderen ist bei der kleineren Frequenz im X-Band die Skin-Eindringtiefe des magnetischen Wechselfeldes in die Probe größer. Somit ist die X-Band-Messung im Allgemeinen auf ein größeres Volumen der Probe sensitiv, wodurch hier Defekte die Linie verbreitern könnten, die für die K-Band-Messung weniger relevant sind.

Weiterhin gibt es eine mögliche technische Fehlerquelle. Eine Unschärfe $\Delta\omega_G$ der Ausgangsfrequenz des Gunnplexers wird nach (4.13) ebenfalls zu einer Verbreiterung der Resonanzlinie führen. Wie groß eine solche Unschärfe ist und ob sie für X- und K-Band-Gunnplexer unterschiedlich groß ausfällt, ist jedoch nicht bekannt.

Am naheliegendsten scheint als Fehlerquelle zunächst die ungenügende Sättigung der

Magnetisierung im X-Band. Um dies als Ursache zu verifizieren oder auch auszuschließen, empfiehlt sich die Bestimmung der Dämpfungsbeiträge an einem weichmagnetischen Material wie etwa Permalloy. Da dort die Sättigung der Magnetisierung bei kleineren externen Magnetfeldern eintritt, kann dann ein Unterschied der Magnetisierung in X- und K-Band ausgeschlossen werden. Aus zeitlichen Gründen konnte eine derartige Vergleichsmessung nicht mehr im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt werden.

Kapitel 5

Ferromagnetische Resonanz in Spinventil- und GMR-Strukturen

Die Verleihung des Nobelpreises für Physik im Jahre 2007 an Albert Fert und Peter Grünberg für ihre Entdeckung des Riesenmagnetwiderstands (GMR) [1, 2] würdigt einen magnetoresistiven Effekt, der nicht nur interessante neue Grundlagenphysik hervorgebracht hat, sondern auch eine bedeutende technologische Entwicklung durchlaufen hat. Hatten doch zwischen der Entdeckung im Jahre 1988 und dem ersten kommerziellen Einsatz von GMR-Strukturen in Festplattenleseköpfen (1997) nur knapp zehn Jahre gelegen. Eng verbunden mit der Entdeckung des GMR ist auch die der Zwischenschicht-Austauschkopplung, die zunächst als notwendig für das Auftreten des GMR diskutiert wurde. Es zeigte sich jedoch bald, dass der GMR auch in magnetisch nicht gekoppelten, sogenannten Spinventilstrukturen auftritt. In diesem Kapitel wird FMR-Spektroskopie benutzt, um die magnetische Anisotropie eines solchen Spinventils zu untersuchen. Weiterhin wird diese Probe mit einem MOKE-Magnetometer vermessen und diese Messmethode der FMR-Spektroskopie gegenübergestellt. Schließlich wird diskutiert, inwiefern mittels FMR die Zwischenschicht-Kopplung quantitativ bestimmt werden kann.

5.1 GMR, Zwischenschicht-Kopplung und Spinventile

Der Riesenmagnetwiderstand kann in Strukturen beobachtet werden, in denen (mindestens) zwei Ferromagneten durch eine nicht-ferromagnetische metallische Schicht getrennt sind. Der Effekt besteht in der großen Änderung des elektrischen Widerstands der Schichtstruktur, wenn die Ausrichtung der Magnetisierungen der Schichten von parallel (R_p) zu antiparallel (R_{ap}) verändert wird. Der GMR-Effekt wird üblicherweise als

$$\text{GMR} = \frac{R_{ap} - R_p}{R_p} \quad (5.1)$$

ausgedrückt, wobei Werte bis etwa 80 % bei Raumtemperatur und 200 % bei 4,2 K erreicht werden. Auf einfache Weise lässt sich der GMR-Effekt im Rahmen des Mottschen Zwei-Spinalkanal-Modells veranschaulichen: Ladungsträger mit Spin parallel bzw.

antiparallel zur Magnetisierungsrichtung streuen aufgrund unterschiedlicher Zustandsdichten verschieden stark [70]. Die Streurrate hängt damit von der Orientierung der Magnetisierung ab. Wie bereits erwähnt, tritt der GMR-Effekt unabhängig davon auf, ob eine Zwischenschicht-Kopplung der Ferromagneten vorliegt oder nicht. Diese Kopplung bedeutet eine relative Ausrichtung der Magnetisierungen der zwei Ferromagnete abhängig von der Dicke der nicht ferromagnetischen Zwischenschicht (s. Abschnitt 5.3). Im Folgenden sollen Systeme mit austauschgekoppelten ferromagnetischen Schichten als GMR-Strukturen bezeichnet werden, unter einem Spinventil ist dagegen ein magnetisch ungekoppeltes System zu verstehen.

5.2 Magnetische Anisotropie eines Spinventils

Da in einem Spinventil keine Zwischenschichtkopplung vorliegt, kann prinzipiell die magnetische Anisotropie der beiden Ferromagneten separat bestimmt werden. Dies erfolgt in diesem Abschnitt für die Probe G1bc, d.h. eine $2 \times 2 \text{ mm}^2$ große Mehrlagenprobe mit der Schichtfolge Glas / Co(10 nm) / Cu(7 nm) / CoFeB(6 nm) / Nb(10 nm), wobei Glas als Substrat und Nb als Deckschicht dienen. Die beiden ferromagnetischen Filme Co und CoFeB sind durch das diamagnetische Cu getrennt. Diese Probe wurde von Georg Woltersdorf an der Universität Regensburg durch Sputtern hergestellt. Da es sich um polykristalline magnetische Filme handelt, ist das Koordinatensystem nicht durch die Kristallstruktur festgelegt. Im Folgenden wird die Filmebene als (001)-Ebene beschrieben, wobei die Seitenkanten der Probe entlang der x - bzw. y -Richtung ([100] bzw. [010]) orientiert sind. Da hier nur Messungen mit externem Magnetfeld in der Filmebene betrachtet werden, führen wir einen Winkel α ein, der in der Filmebene von der x -Achse aus gemessen wird, wie auch in Abb. 5.2 zu sehen ist.

5.2.1 FMR-Messung

Die Spinventil-Probe wurde mit dem im Rahmen dieser Arbeit aufgebauten X-Band-Spektrometer ($\nu_{\text{MW}} = 10,3 \text{ GHz}$) auf magnetische Anisotropie untersucht. Dazu wurde eine Serie von FMR-Spektren als Funktion der Magnetfeldorientierung in der Filmebene aufgezeichnet. Die Magnetfeldmodulationsamplitude betrug 3 mT bei einer Modulationsfrequenz von 213 Hz. In den Spektren in Abb. 5.1(a) sind deutlich zwei getrennte Resonanzlinien sichtbar, von denen diejenige bei niedrigerem Resonanzmagnetfeld aufgrund früherer Messungen [17] der Cobalt-Schicht zugeordnet werden kann. Folglich wird die zweite Resonanz mit der kleineren Signalamplitude CoFeB zugeschrieben. Es zeigt sich zudem bei beiden Schichten eine leichte uniaxiale Anisotropie mit 180° -Periodizität, die im Plot der Resonanzmagnetfelder in Abb. 5.1(b) noch deutlicher zu sehen ist. Die experimentell bestimmten Resonanzmagnetfelder $\mu_0 H_{\text{res}}$ können mit einer uniaxialen Anisotropie in der Filmebene simuliert werden (s. weiße Linien über den Messpunkten), wobei jedoch zu beachten ist, dass die Richtungen dieser uniaxialen Anisotropien nicht

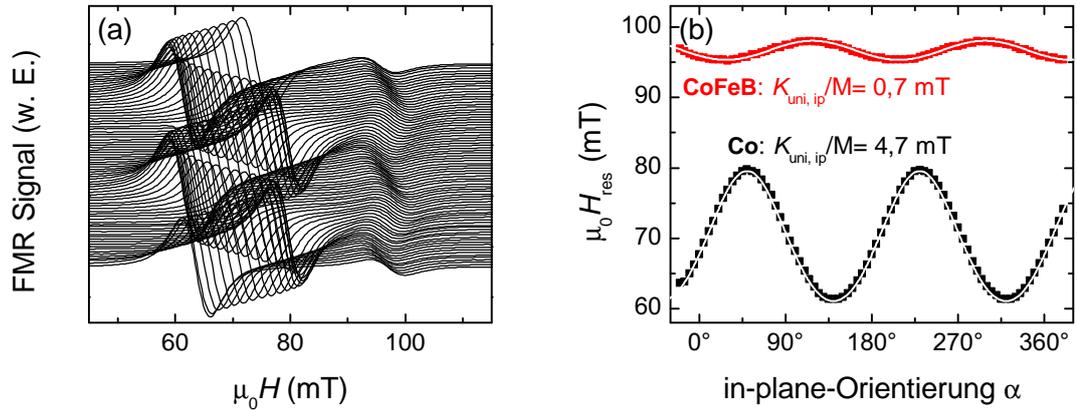


Abbildung 5.1: FMR-Messungen an der Probe G1bc: (a) FMR-Spektren einer in-plane Drehung mit den getrennten Resonanzen von Co ($\mu_0 H_{\text{res}} \approx 70$ mT) und CoFeB ($\mu_0 H_{\text{res}} \approx 100$ mT). (b) Zugehörige Resonanzmagnetfelder als Funktion der Orientierung α des externen Magnetfeldes in der Filmebene für Co (schwarz) und CoFeB (rot). Die Simulationen der FMR-Resonanzmagnetfelder sind als weiße Linien über den Messpunkten gezeichnet.

entlang der Koordinatenachsen orientiert sind. Allgemein ist eine uniaxiale Anisotropie proportional zum Quadrat des Richtungskosinus von Magnetisierungsrichtung \mathbf{M}/M und Richtung der uniaxialen Anisotropie \mathbf{u} , d.h.

$$F_{\text{uni}} = K_{\text{uni}} \left(\frac{\mathbf{M}}{M} \cdot \mathbf{u} \right)^2 = K_{\text{uni}} (\alpha_x u_x + \alpha_y u_y + \alpha_z u_z)^2, \quad (5.2)$$

wobei α_i mit $i \in \{x, y, z\}$ die Richtungskosinus der Magnetisierung bedeuten und nicht mit dem Winkel α zu verwechseln sind. Der normierte Vektor \mathbf{u} entspricht der Richtung der harten Achse für positives K_{uni} bzw. der leichten Achse für negatives K_{uni} .

Die totale freie Energiedichte F_{tot} des Spinventils ist dann gegeben durch

$$F_{\text{tot}} = \sum_{(1,2)} F_{\text{stat},i} + F_{\text{uni,oop},i} + F_{\text{uni,ip},i}, \quad (5.3)$$

wobei alle Beiträge jeweils für Schicht 1 und 2 aufsummiert werden.

$$F_{\text{stat},i} = -\mu_0 \mathbf{M}_i \cdot \mathbf{H} \quad (5.4)$$

bezeichnet wiederum den magnetfeldabhängigen Zeeman-Term. Außerdem enthält Gleichung (5.3) die uniaxialen Beiträge der Entmagnetisierung

$$F_{\text{uni,oop},i} = K_{\text{uni,oop},i} \alpha_z^2 \quad (5.5)$$

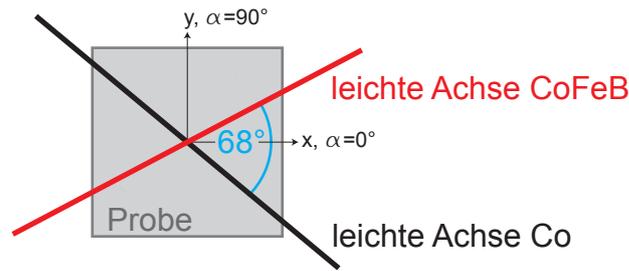


Abbildung 5.2: Lage der leichten Achsen in der Filmebene. Die leichte Achse von Co (schwarz) schließt mit derjenigen von CoFeB (rot) einen Winkel von 68° ein.

sowie die uniaxialen Anisotropien in der Filmebene

$$F_{\text{uni,ip},i} = K_{\text{uni,ip},i} (\alpha_x u_x + \alpha_y u_y + \alpha_z u_z)^2, \quad (5.6)$$

wobei im hier betrachteten Fall die Magnetisierung immer in der (100)-Filmebene liegt und daher $\alpha_z u_z = 0$ ist. Durch zwei separate Simulationen für die beiden ferromagnetischen Schichten - die Energierterme der jeweils anderen Schicht werden dabei vernachlässigt - ergeben sich Werte für die in-plane Anisotropiefelder von $K_{\text{uni,ip,Co}}/M = 4,7$ mT für Cobalt und $K_{\text{uni,ip,CoFeB}}/M = 0,7$ mT für CoFeB. Dabei liegt die leichte Richtung von Co bei $\alpha = -40^\circ$ und die von CoFeB bei $\alpha = +28^\circ$ und beide schließen miteinander einen Winkel von 68° ein, wie in Abb. 5.2 dargestellt ist. Die Werte für die Anisotropiefelder sind vergleichsweise klein, allerdings würde man zunächst keine in-plane Anisotropie erwarten, da es sich um polykristalline Filme ohne Kristallanisotropie handelt. Der Ursprung dieser uniaxialen Anisotropien ist daher nicht klar.

5.2.2 MOKE-Messung

Neben ferromagnetischer Resonanz steht mit einem neuen Versuchsaufbau zum Magneto-optischen Kerr-Effekt (MOKE) am Walther-Meissner-Institut [71] eine weitere Messmethode für magnetische Anisotropie zur Verfügung. Im Folgenden wird eine Messung der Probe G1bc mit diesem MOKE-Magnetometer beschrieben und mit der FMR-Messung verglichen. Zuvor wird jedoch noch kurz die Funktionsweise von MOKE skizziert.

Funktionsweise eines MOKE-Magnetometers

Der magneto-optische Kerr-Effekt bedeutet eine Drehung der Polarisationsrichtung von Licht in Abhängigkeit von der Magnetisierung eines Ferromagneten, an dessen Oberfläche das Licht reflektiert wird. Der von A. Brandlmaier und M. Pelkner in Zusammenarbeit mit G. Woltersdorf aufgebaute Messplatz ist in Abb. 5.3 schematisch abgebildet: Das nach Durchqueren eines Polarisators linear polarisierte Licht trifft unter einem festen Winkel auf die Oberfläche des Ferromagneten. Das reflektierte Licht durchläuft einen

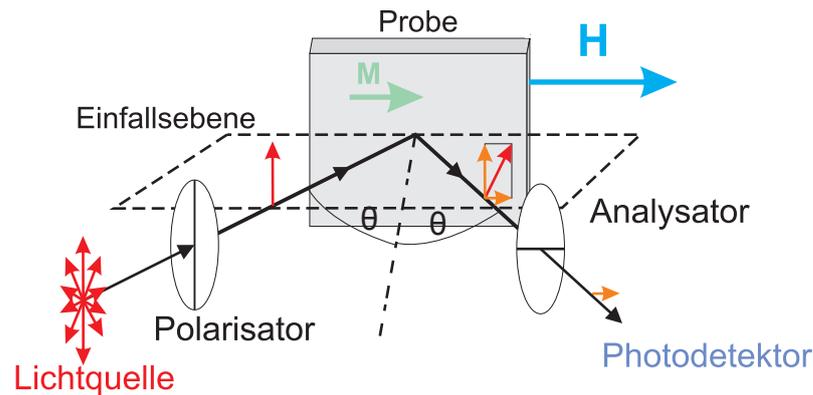


Abbildung 5.3: Schemabild des LMOKE-Aufbaus [71].

zum Polarisator senkrecht orientierten Analysator und wird schließlich von einer Fotodiode detektiert. Abhängig von Betrag und Orientierung der Magnetisierung \mathbf{M} weist das an der Probe reflektierte Licht eine andere Polarisation auf (angedeutet durch die orangenen Pfeile in Abb. 5.3), wobei in dieser Versuchsanordnung nach Durchlaufen des Analysators nur der Polarisationsanteil des Lichts parallel zum Magnetfeld detektierbar ist. Folglich ist das gemessene Spannungssignal an der Fotodiode proportional zur Magnetisierungskomponente parallel zum Magnetfeld. Diese Art von MOKE-Messung wird daher als longitudinaler oder kurz LMOKE bezeichnet. Aus dem Diodensignal kann jedoch kein absoluter Wert für die Magnetisierung bestimmt werden. In guter Näherung kann aber die longitudinale Magnetisierungskomponente bei großem äußerem Magnetfeld der Sättigungsmagnetisierung gleichgesetzt werden. Bei einer MOKE-Messung wird der Betrag des Magnetfeldes in einer Schleife variiert und das zur longitudinalen Magnetisierungskomponente proportionale Spannungssignal an der Fotodiode aufgezeichnet.

Messung

Bei der Messung im LMOKE-Aufbau wurde die Probe G1bc bezüglich der Orientierung des externen Magnetfeldes gedreht und somit eine Messreihe von $M(H)$ -Schleifen für verschiedene Orientierungen des in-plane Magnetfeldes aufgezeichnet. Die Abbildungen 5.4(a)-(d) zeigen MOKE-Messungen für vier ausgewählte Orientierungen α des Magnetfeldes in der Probenfläche. Die angegebenen Winkel entsprechen denen der FMR-Messung in Abb. 5.1(b). Offensichtlich weisen die Messungen deutlich unterschiedliche Verläufe auf. So zeigen die Kurven bei $\alpha = 24^\circ$ in Abb. 5.4(a) und $\alpha = 140^\circ$ in Abb. 5.4(d) zwei getrennte Schaltfelder der zwei magnetischen Schichten. Der Begriff Schaltfeld bedeutet, dass bei diesem Magnetfeld ein abrupter Sprung der Magnetisierung auftritt. Dagegen verschwindet bei der Kurve für $\alpha = 50^\circ$ in Abb. 5.4(b) das größere Schaltfeld und nur noch das kleinere ist zu erkennen; umgekehrt verhält es sich beim Signal bei $\alpha = 115^\circ$ in Abb. 5.4(c), wo nur noch das größere Schaltfeld vorhanden ist. Weiterhin

zeigen sich unterschiedliche Steigungen der MOKE-Kurven. Abbildung 5.4(e) zeigt eine Auswertung der jeweiligen Schaltfelder H_s der beiden Schichten in Abhängigkeit der Orientierung des Magnetfeldes. In den Richtungen der magnetisch harten Achsen, wie sie aus den FMR-Messungen bestimmt wurden, kann für die jeweilige Schicht kein abruptes Schalten der Magnetisierung aufgelöst werden, d.h. die Schaltfelder verschwinden. Im Folgenden wird gezeigt, dass die Kurvenformen der MOKE-Messungen durch die unterschiedlichen Anisotropien der beiden magnetischen Schichten beschrieben werden können.

Stoner-Wohlfarth-Simulation

Dazu werden die MOKE-Messungen auf der Grundlage der aus FMR bestimmten Anisotropien simuliert. Dies geschieht mittels des sogenannten Stoner-Wohlfarth-Ansatzes [72]. Das Stoner-Wohlfarth-Modell beschreibt auf einfache Weise den Magnetisierungszustand eines Ferromagneten. Dabei wird der Ferromagnet als eindomänig vorausgesetzt, d.h. mögliche Einflüsse von Domänenwänden oder Inhomogenitäten werden vernachlässigt. Außerdem nimmt das Modell an, dass die Magnetisierung zu jeder Zeit in die Richtung des globalen Minimums der freien Energie des Ferromagneten zeigt. Ausgangspunkt ist daher wie schon bei den FMR-Simulationen die totale freie Energiedichte nach Gleichung (5.3). Durch Minimieren dieser totalen freien Energiedichte nach den Winkeln der Magnetisierung lässt sich die Gleichgewichtsorientierung der Magnetisierung für das jeweils anliegende Magnetfeld bestimmen. Nun kann die longitudinale Magnetisierung, genauer die Projektion der Magnetisierung auf das Magnetfeld, als Kosinus des von Magnetisierung und externem Magnetfeld eingeschlossenen Winkels bestimmt werden. Durch Wiederholen dieser Berechnung als Funktion des Magnetfeldes lässt sich somit eine komplette LMOKE-Messung simulieren. Voraussetzung dazu ist aber, die nötigen Parameter in den Gleichungen (5.3) mit (5.6) vorzugeben. Hierbei wurden als Anisotropiefelder die aus der FMR-Messung erhaltenen Werte (s. Abschnitt 5.2.1) eingesetzt. Da die MOKE-Messung, wie oben erwähnt, keine absoluten Magnetisierungswerte liefert, enthält auch die Stoner-Wohlfarth-Simulation nur auf die Sättigungsmagnetisierung normierte Werte für M . Da aber die zwei ferromagnetischen Schichten im Allgemeinen nicht den gleichen Beitrag zum MOKE-Signal liefern, wurde bei der Überlagerung der Beiträge der zwei Schichten ein Gewichtungsfaktor eingeführt, der für eine optimale Simulation der Messwerte auf 1,8 angepasst wurde. Physikalisch setzt dieser Faktor die Sättigungsmagnetisierung multipliziert mit der Schichtdicke für die beiden Schichten ins Verhältnis. Geht man von etwa gleichen Sättigungsmagnetisierungen der beiden Schichten aus ($M_S \approx 1,6 \cdot 10^6 \text{ A/m}$, s. Abb. 10.17 in [73]), so liefert der Quotient der Schichtdicken von Co (10nm) und CoFeB (6nm) allein einen Wert von 1,67. Die Differenz zum verwendeten Wert von 1,8 kann im Rahmen dieser einfachen Überlegung als gute Näherung betrachtet werden, zumal sicherlich noch weitere Effekte, wie die Eindringtiefe des Lichts in die Probe und die unterschiedliche Größe der Kerr-Drehung, zu unterschiedlichen Beiträgen der beiden Schichten führen. In

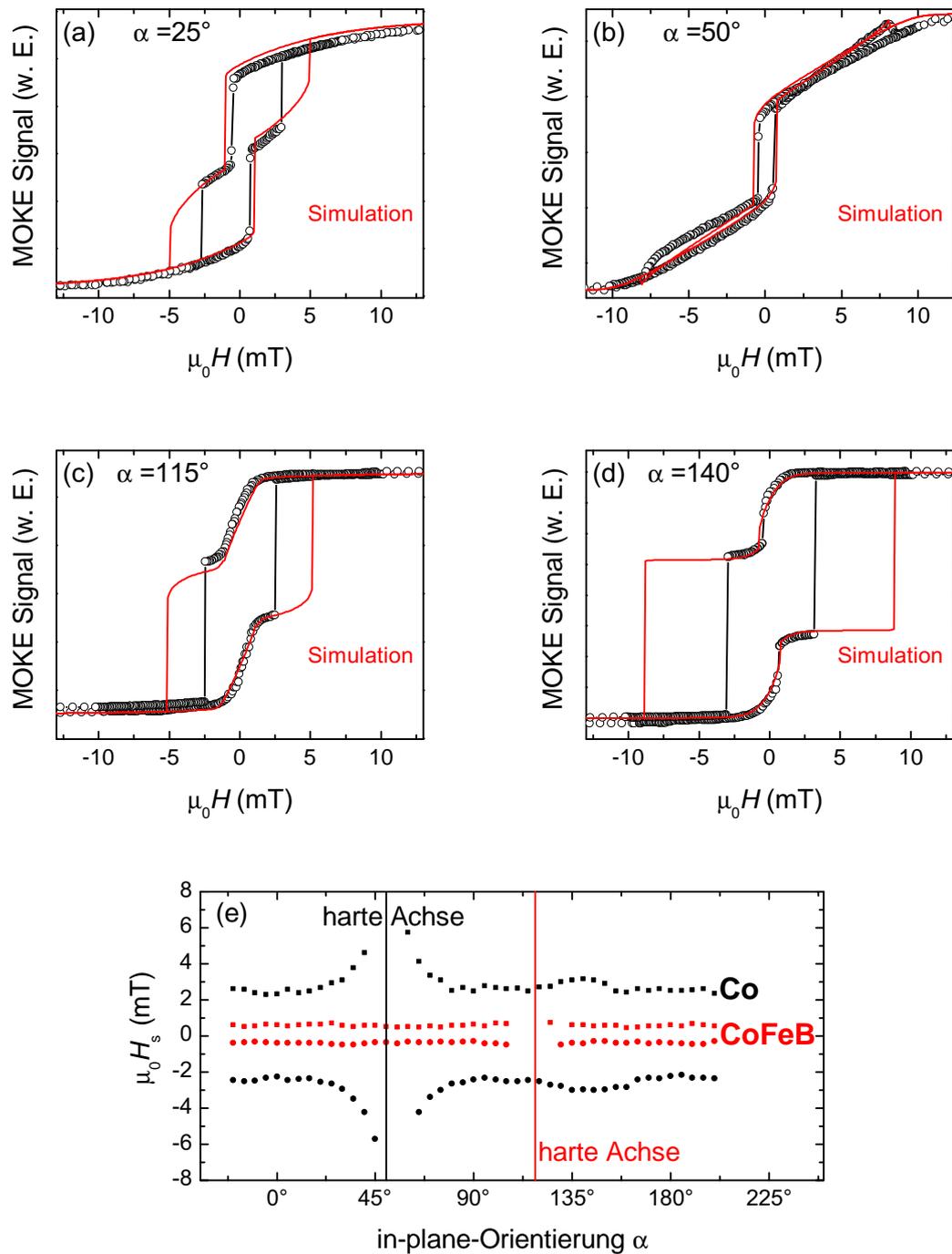


Abbildung 5.4: MOKE-Messungen (schwarze offene Symbole) und zugehörige Stoner-Wohlfarth-Simulationen für vier verschiedene Orientierungen des Magnetfeldes zur Probe G1bc: (a) $\alpha = 25^\circ$ (ca. leichte Achse CoFeB), (b) $\alpha = 50^\circ$ (harte Achse Co), (c) $\alpha = 115^\circ$ (harte Achse CoFeB) und (d) $\alpha = 140^\circ$ (leichte Achse Co). (e) Eine Auswertung der Schaltfelder zeigt, dass diese jeweils entlang der harten Achse verschwinden.

den Abbildungen 5.4(a)-(d) sind zusätzlich zu den LMOKE-Messungen (schwarze offene Symbole) die dazugehörigen Stoner-Wohlfarth-Simulationen (rote Linien) gezeigt. Die Simulation stimmt dabei hervorragend mit den Messwerten überein - mit der Ausnahme, dass die Schaltfelder, vor allem für Co, in der Simulation um etwa einen Faktor zwei zu groß ausfallen. Dies ist allerdings ein grundsätzliches Problem des Stoner-Wohlfarth-Modells [74], das ja Domänen-Bildung vernachlässigt, wobei aber Domänen für den Umagnetisierungsprozess typischerweise eine wichtige Rolle spielen. Die Hystereseurve in Abb. 5.4(b) zeigt zudem das sogenannte crossover, d.h. Kreuzen der beiden Zweige der $M(H)$ -Kurve für zunehmende bzw. abnehmende Magnetfeldstärke. Dieses ist im Stoner-Wohlfarth-Modell enthalten und tritt auf, wenn das externe Magnetfeld einen Winkel nahe 90° mit einer leichten Achse (in diesem Fall der von Cobalt) einschließt. Genauer kann im Rahmen des Stoner-Wohlfarth-Modells berechnet werden, dass das crossover ab einem Winkel von etwa 77° zwischen Magnetfeld und leichter Achse auftritt [75]. Dass das crossover in Abb. 5.4(b) nicht nur in der Simulation, sondern auch in der gemessenen Kurve (jedoch nur bei dem Teil der Hysterese bei positivem Magnetfeld) zu beobachten ist, ist durchaus bemerkenswert. Denn in der theoretischen Beschreibung des Stoner-Wohlfarth-Modells wird das crossover und die damit entstehende zusätzliche Hysterese als unphysikalisch bezeichnet [75], und auf die Vernachlässigung höherer Ordnungen im Beitrag der uniaxialen Anisotropie zur freien Energie zurückgeführt. Inwiefern diese Beobachtung also tatsächlich physikalisch gehaltvoll ist oder nur ein Messartefakt darstellt, könnte in zukünftigen Experimenten näher untersucht werden.

5.2.3 Diskussion

Die Simulation der MOKE-Messungen mit dem Stoner-Wohlfarth-Modell auf der Grundlage der aus der FMR-Messung bestimmten Anisotropiefelder erlaubt einen recht direkten Vergleich der beiden Messmethoden. Dass die MOKE-Messungen und die Simulationen (mit Ausnahme der Schaltfelder) sehr gut übereinstimmen, zeigt die Konsistenz der zwei Messmethoden. Allerdings haben die Messtechniken ihre Stärken und Schwächen. FMR-Spektroskopie hat den großen Vorteil, dass sie über die Freie-Energie-Formulierung eine sehr genaue *quantitative* Bestimmung der magnetischen Anisotropie ermöglicht. Ein Nachteil besteht allerdings darin, dass dazu Magnetfelder im Größenbereich von etwa 100 mT bis zu 1 T verwendet werden müssen. Diese Magnetfelder sind viel größer als die in technologischen Anwendungen relevanten Werte, die eher in der Größenordnung der bei MOKE verwendeten Magnetfelder von wenigen mT liegen. Dieser anwendungsrelevantere Rahmen stellt daher einen Vorteil der MOKE-Magnetometrie dar. Andererseits liefert MOKE-Magnetometrie nur *qualitative* Aussagen über die magnetische Anisotropie. Angesichts dieser Unterschiede von FMR-Spektroskopie und MOKE-Magnetometrie stellt die hier festgestellte Konsistenz der zwei Messmethoden ein wichtiges Ergebnis dar.

5.3 FMR in gekoppelten GMR-Strukturen

Die in diesem Kapitel bisher beschriebene Untersuchung eines Spinventils basiert darauf, dass die ferromagnetischen Schichten nicht gekoppelt sind und daher die quantitative FMR-Auswertung sowie die Stoner-Wohlfarth-Simulation für beide Schichten unabhängig voneinander vorgenommen werden können. Interessant ist jedoch auch der Fall von magnetisch gekoppelten GMR-Strukturen. Wie sich die ferromagnetische Resonanz in gekoppelten von der in ungekoppelten Systemen unterscheidet und wie mittels FMR die Zwischenschichtkopplung auch quantitativ bestimmt werden kann [76, 77], soll im Folgenden beschrieben werden.

Eine Kopplung tritt bei genügend dünner nicht-ferromagnetischer Zwischenschicht auf und äußert sich in einer parallelen, antiparallelen oder auch 90°-Ausrichtung der Schichtmagnetisierungen, wobei es als Funktion der Zwischenschichtdicke zu einer Oszillation zwischen paralleler und antiparalleler Orientierung kommt. Unabhängig von ihrer mikroskopischen Ursache kann die Zwischenschichtkopplung phänomenologisch beschrieben werden. Dazu wird die Zwischenschicht-Kopplungsenergiedichte F_{inter} wie folgt angesetzt [70]:

$$F_{\text{inter}} = -J_1 \frac{\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2}{M_1 M_2} - J_2 \left(\frac{\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2}{M_1 M_2} \right)^2. \quad (5.7)$$

Hierbei sind \mathbf{M}_1 und \mathbf{M}_2 die Magnetisierungen in den zwei ferromagnetischen Schichten, J_1 und J_2 sind die Kopplungsparameter. Dabei beschreibt der erste Term, die sogenannte bilineare Kopplung, eine parallele ($J_1 > 0$) bzw. antiparallele ($J_1 < 0$) Kopplung. Dominiert dagegen der zweite Term, die biquadratische Kopplung, so kommt es zu einer 90°-Ausrichtung. Letzteres wird im Rahmen der folgenden Betrachtung vernachlässigt, d.h. $J_2 = 0$ gesetzt.

In Kapitel 2 wurde die Energie-Formulierung der FMR mit einem Ausdruck für die totale freie Energiedichte (2.10) und der FMR-Bewegungsgleichung (2.20) eingeführt. Diese Theorie ist weiterhin anwendbar für gekoppelte ferromagnetische Filme, indem der Ausdruck für die Kopplungsenergie (unter Vernachlässigung der biquadratischen Kopplung)

$$F_{\text{inter}} = -J_1 \frac{\mathbf{M}_1 \cdot \mathbf{M}_2}{M_1 M_2} \quad (5.8)$$

zur totalen freien Energie F_{tot} hinzuaddiert wird. Die Bewegungsgleichung (2.20) nimmt dann die Form

$$\left(\frac{\omega}{\gamma} \right)^4 - b \left(\frac{\omega}{\gamma} \right)^2 + c = 0 \quad (5.9)$$

an, wobei b und c zwei lange, in [77] angegebene Ausdrücke sind, die eine Vielzahl von Kombinationen von Ableitungen der totalen freien Energiedichte nach den Winkeln Θ_1 , Φ_1 , Θ_2 und Φ_2 der zwei Magnetisierungen $\mathbf{M}_1 = (M_1, \Theta_1, \Phi_1)$ und $\mathbf{M}_2 = (M_2, \Theta_2, \Phi_2)$ enthalten.

Aus (5.9) kann bei Kenntnis der Anisotropiefelder der zwei Schichten aus den gemess-

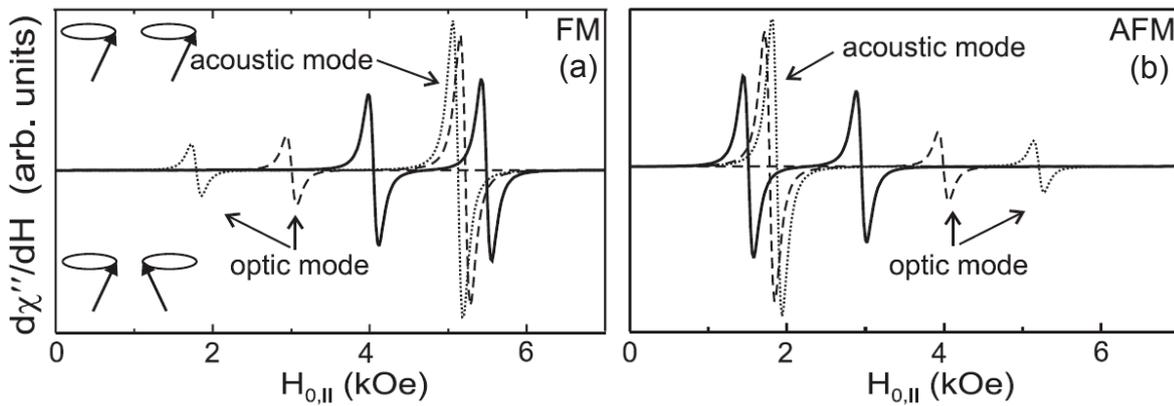


Abbildung 5.5: FMR-Signal in GMR-Strukturen: Bei Vorliegen einer Zwischenschichtkopplung bilden sich akustische und optische Moden. Die Richtung der Verschiebung dieser Moden gegenüber den FMR-Signalen ungekoppelter Schichten (durchgezogene Linie) hängt ab von (a) ferromagnetischer oder (b) antiferromagnetischer Kopplung der Schichten. Die gepunkteten Kurven entsprechen einer stärkeren Kopplung als die gestrichelten. Aus [77].

senen Resonanzmagnetfeldern die Kopplungskonstante J_1 bestimmt werden. Dies wird deutlich, wenn man versteht, welchen Einfluss die Kopplung der Ferromagneten auf das FMR-Spektrum hat. Dazu betrachten wir nun zwei Ferromagneten mit unterschiedlichem Resonanzmagnetfeld, dargestellt durch die durchgezogenen Linien in Abb. 5.5. Sind die Schichten gekoppelt, so kommt es, analog zur Situation beim gekoppelten Pendel, zur Ausbildung zweier Eigenmoden. Die akustische Mode einerseits entspricht dem Fall, dass die Magnetisierungen in den beiden Schichten in Phase präzedieren, während diese bei der optischen Mode außer Phase sind. Die genaue Lage der beiden Eigenmoden hängt vom Vorzeichen und von der Größe von J_1 ab. Für $J_1 > 0$, d.h. ferromagnetischer Kopplung der Schichten, verschieben sich die Eigenmoden zu kleineren Magnetfeldern (gestrichelte Linien in Abb. 5.5(a)), bezogen auf die Resonanzmagnetfelder der beiden ungekoppelten Schichten. Bei antiferromagnetischer Kopplung ($J_1 < 0$) liegen die optische und akustische Resonanz bei höheren Magnetfeldern als die der ungekoppelten (Abb. 5.5(b)). Mit zunehmendem Betrag der Austauschkopplung nimmt die Größe dieser Verschiebung der Eigenmoden zu. Außerdem wächst dabei die Intensität der akustischen auf Kosten der der optischen Mode, wie dies anhand der gepunkteten Linie in den Abbildungen 5.5 (a) und (b) zu sehen ist. Die eben beschriebene Situation ist leicht verändert, wenn die zwei magnetischen Schichten identische Resonanzen zeigen. Analog zum Fall zweier gekoppelter identischer Pendel, wo ein Schwingung in Phase die Oszillationsfrequenz nicht ändert, bleibt hier die akustische Mode unverschoben; die optische dagegen verhält sich wie oben beschrieben.

Aus der Verschiebung der Resonanzmagnetfelder des gekoppelten gegenüber dem ungekoppelten Fall kann nun mittels (5.9) die Austauschkopplung J_1 berechnet werden, sofern

die Resonanzmagnetfelder bzw. Anisotropien der ungekoppelten Schichten bekannt sind. Messtechnisch stellt dies eine große Herausforderung dar: Üblicherweise hat man nur fertige Mehrlagenstrukturen vorliegen, d.h. ein System aus gekoppelten ferromagnetischen Schichten. Die Bestimmung der magnetischen Anisotropie an separat hergestellten Einzelschichten ist problematisch, da z.B. die Ferromagneten in den Einzelschichten vergleichbare Grenzflächeneigenschaften aufweisen sollten wie in der Mehrlagenstruktur. Zur quantitativen Bestimmung der Austauschkopplung ist daher ein gezieltes Wachstum nicht nur der GMR-Strukturen, sondern auch der jeweiligen Ferromagnete als Einzelschichten, sowie eine Untersuchung der strukturellen Eigenschaften der Schichten und insbesondere ihrer Grenzflächen notwendig. Dies war im Rahmen dieser Diplomarbeit nicht mehr möglich, stellt aber ein interessantes zukünftiges Projekt dar.

Kapitel 6

Piezo-modulierte Ferromagnetische Resonanz

Wie schon in Abschnitt 2.1 angesprochen, ist die Anwendung von Modulationsspektroskopie mit Hilfe eines Lock-In-Verstärkers in aller Regel ein fester Bestandteil von ESR- bzw. FMR-Spektrometern, um die nötige Empfindlichkeit des Aufbaus zu gewährleisten. Magnetfeldmodulation ist die übliche, weil technisch am einfachsten zu realisierende Modulationsmethode und findet daher auch im in Kapitel 3 beschriebenen Spektrometer Anwendung. Als weitere Möglichkeit wird in diesem Kapitel eine Form der dehnungsmodulierten FMR vorgestellt.

Dehnungsmodulation wurde erstmals 1972 von Collins et al. [78] für ESR-Spektroskopie (SMESR - strain-modulated ESR) angewendet. Ein Messaufbau hierzu ist in [79] beschrieben. Henning und den Boef [80] übernahmen diese Technik 1978 für dehnungsmodulierte FMR (SMFMR). SMFMR ermöglicht eine sehr genaue Bestimmung von magnetostriktiven Konstanten [81, 82] und ist daher in Review-Artikeln über Magnetostriktion [83, 84] als Messmethode aufgeführt.

Ein entscheidender Nachteil von SMFMR besteht darin, dass das Ausüben einer Spannung auf die Probe eine technisch aufwändige Probenhalterung sowie einen eigens dafür angepassten Mikrowellenresonator benötigt. Des Weiteren ist der Probenhalter in [79] nicht bezüglich des statischen Magnetfeldes drehbar und somit keine Bestimmung von magnetischer Anisotropie möglich. Abhilfe hierfür verschafft die im Folgenden weiter erläuterte Methode der Piezo-modulierten ferromagnetischen Resonanz (PMFMR), bei der ein Piezo-Aktor die darauf angebrachte Probe dehnt, was Halterung und Drehbarkeit innerhalb des Resonators auf unkomplizierte Weise ermöglicht.

Die grundsätzliche, qualitative Wirkungsweise der PMFMR wurde schon von Mathias Weiler in seiner Diplomarbeit [17] beschrieben und wird in Abschnitt 6.2 nochmals kurz zusammengefasst. Ein wichtiger Punkt blieb dabei jedoch noch unbehandelt: Um gegenüber der in Jahrzehnten ausgereiften konventionellen FMR-Spektroskopie eine ernsthafte Alternative darstellen zu können, muss die PMFMR auch die quantitativ gleichen Ergebnisse liefern. Daher widmet sich dieses Kapitel, nach einer kurzen Beschreibung der verwendeten Probe und der Funktionsweise von PMFMR, in erster Linie dem quantitativen Vergleich von konventioneller und Piezo-modulierter FMR. Sämtliche FMR-Messungen

in diesem Kapitel wurden (vor der Fertigstellung des Spektrometers aus Kapitel 3) im Bruker ESP 300 Spektrometer am Walter-Schottky-Institut durchgeführt.

6.1 Präparation von Proben für PMFMR

Die Probe für Piezo-modulierte FMR besteht aus einem Piezo-Aktor, auf den ein 300 nm dicker Ni-Film aufgedampft wurde. Als Piezo-Aktor wird das Modell Piezomechanik PSt 150/2x3/5 [85] verwendet. Dieses besteht aus einem Stapel von ferroelektrischen PZT (Blei-Zirkonat-Titanat)-Keramiken. Die Präparation des Piezo-Aktors sowie das Aufdampfen des Ni-Filmes wurden von Andreas Brandlmaier am WMI durchgeführt. Um in den Kryostaten des ESR Spektrometers mit einem Innendurchmesser von 4 mm zu passen, wurden vom Piezo-Aktor einige Stapelschichten abgeschliffen, so dass seine Abmessungen von ursprünglich $a \times b \times L = 2 \times 3 \times 5 \text{ mm}^3$ auf $a \times b \times L = 2 \times 3 \times 2,5 \text{ mm}^3$ reduziert wurden. Da in einem Piezo-Stapel jede Einzelschicht die gleiche Längenänderung zur gesamten Dehnung beiträgt, kann davon ausgegangen werden, dass das Abschleifen des Stapels die relative Längenänderung des Stapels nicht ändert. Laut Herstellerangaben [85] beträgt die größte relative Längenänderung 0,13 % im maximalen Bereich für die am Piezo-Aktor anliegende Spannung zwischen -30 V und $+150 \text{ V}$. Des Weiteren wurde auf der für den Ni-Film bestimmten Seite die relativ raue Polymerbeschichtung, die der elektrischen Isolation des Piezo-Stapels dient, abgeschliffen und durch ca. 150 nm PMMA ersetzt. Daraufhin wurde ein 300 nm dicker Ni-Film auf einer kreisrunden Fläche mit 2 mm Durchmesser aufgedampft und mit einer 10 nm dicken Gold-Deckschicht gegen Oxidation geschützt.

6.2 Funktionsprinzip der PMFMR

Die Funktionsweise der PMFMR beruht auf dem Einfluss der Dehnung des ferromagnetischen Films, vermittelt durch den Piezo-Aktor, auf die magnetische Anisotropie. Dies lässt sich anhand der Abb. 6.1 erklären. Bei Anlegen einer positiven bzw. negativen Spannung U_{Piezo} an den Piezo-Aktor dehnt sich dieser entlang seiner Hauptausdehnungsrichtung aus bzw. zieht sich zusammen. Geht man davon aus, dass diese positive bzw. negative Dehnung kohärent auf den aufgedampften Nickel-Film übertragen wird, so wird in diesem eine magnetoelastische Anisotropie hervorgerufen (vgl. Abschnitt 2.3.1). Diese Anisotropie ist rein uniaxial und hat gemäß Gleichung (2.19) unterschiedliches Vorzeichen bei positiver bzw. negativer Dehnung. Der Verlauf der FMR-Resonanzmagnetfelder mit diesen durch den Piezo-Aktor induzierten Anisotropien ist in Abb. 6.1(a) als Funktion der Orientierung des externen Magnetfeldes in der Filmebene gezeigt. Die grüne Kurve für $U_{\text{Piezo}} > 0$ und die rote für $U_{\text{Piezo}} < 0$ entsprechen jeweils einer uniaxialen Anisotropie mit 180° -Periodizität, jedoch mit umgekehrtem Vorzeichen. Diese Anisotropien führen zu einer Verschiebung der Absorptionskurven zwischen den Fällen mit positiver bzw.

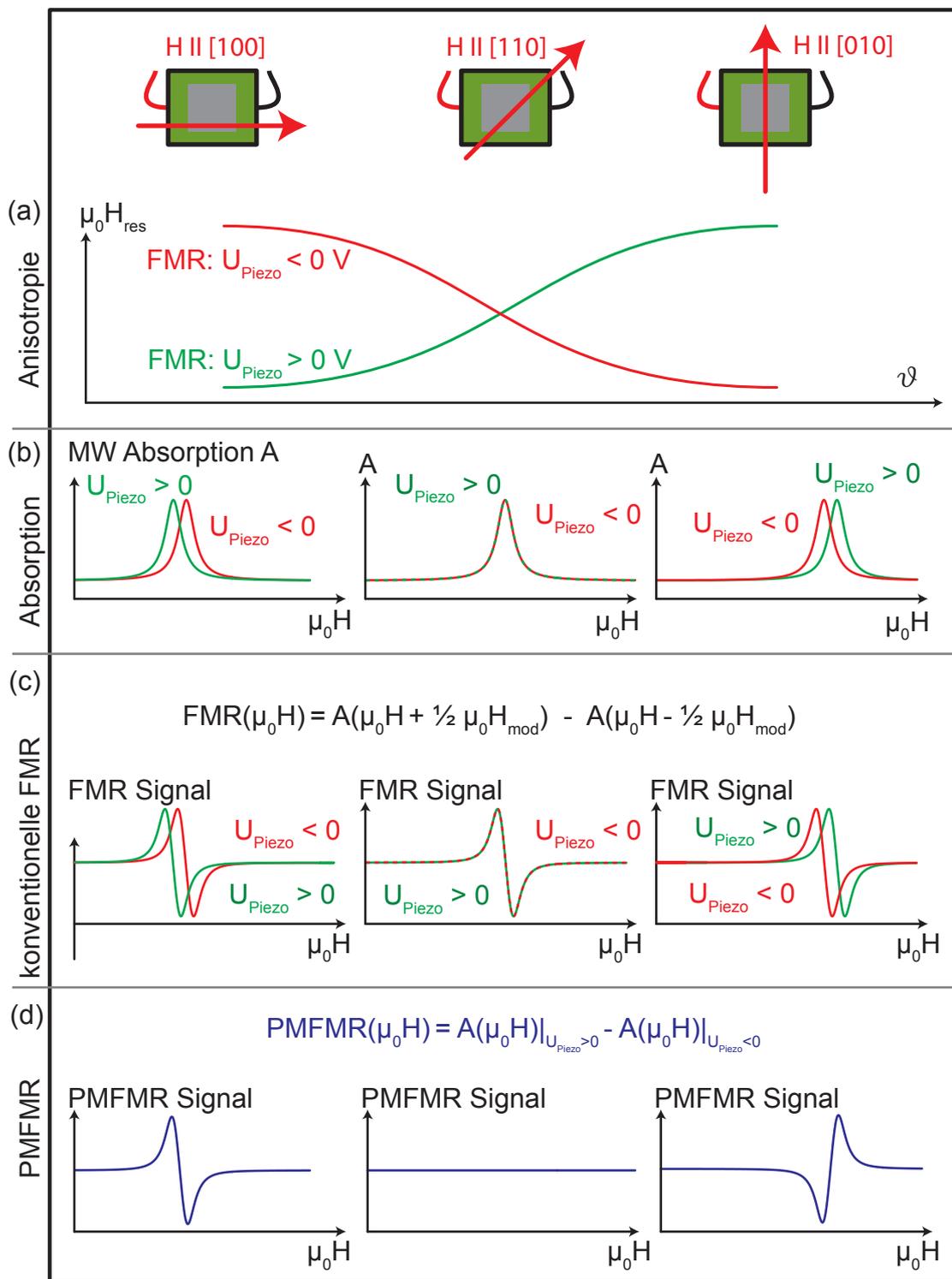


Abbildung 6.1: Darstellung der magnetischen Anisotropie, der Mikrowellenabsorption und der zugehörigen konventionellen sowie Piezo-modulierten FMR-Signale für drei verschiedene Orientierungen des äußeren Magnetfeldes zur Probe nach [17].

negativer Gleichspannung U_{Piezo} , wobei Größe und Richtung der Verschiebung wiederum orientierungsabhängig sind (Abb. 6.1(b)). Für den Fall $\mathbf{H}||[110]$ (Mitte) bewirken positive wie auch negative Spannung am Piezo-Aktor dieselbe Anisotropie und damit auch dasselbe Resonanzmagnetfeld. Abbildung 6.1(c) zeigt die zu den Absorptionskurven gehörigen konventionellen FMR-Spektren. Diese entsprechen der Ableitung des Absorptionssignals und zeigen dieselbe orientierungsabhängige Verschiebung der Resonanzmagnetfelder. Bei PMFMR tritt an Stelle der Magnetfeldmodulation eine Modulation der Spannung am Piezo-Aktor. Eine Wechsellspannung am Piezo-Aktor führt zu einer periodisch variierenden Dehnung des Nickel-Films und damit, abhängig von der Orientierung des äußeren Magnetfeldes zur Probe, zu einer periodischen Verschiebung des Resonanzmagnetfeldes $\mu_0 H_{\text{res}}$. Folglich ist ein PMFMR Signal gegeben durch die Differenz der Absorptionssignale (A):

$$\text{PMFMR}(\mu_0 H) = A(\mu_0 H)|_{U_{\text{Piezo}} > 0} - A(\mu_0 H)|_{U_{\text{Piezo}} < 0}. \quad (6.1)$$

Die tatsächliche Verschiebung des Resonanzmagnetfeldes durch die Modulation ist ein wesentlicher Unterschied der PMFMR gegenüber der konventionellen FMR, wo das Resonanzmagnetfeld konstant bleibt. Dies hat auch zur Folge, dass in der PMFMR nur Signale moduliert werden, die magnetoelastisch an die Dehnung des Piezo-Aktors gekoppelt sind. ESR Signale, die bei konventioneller Modulation vorhanden sind, sind daher grundsätzlich im PMFMR-Spektrum nicht zu sehen. Außerdem bildet die Richtungsabhängigkeit der PMFMR mit Umkehrung der Signalform sowie Auslöschung des Signals für bestimmte Richtungen des externen Magnetfeldes, wie in Abb. 6.1(d) gezeigt, einen weiteren Unterschied zur konventionellen FMR.

6.3 Konventionelle und PM-FMR an der Probe NP10

Die eben theoretisch beschriebene Funktionsweise der PMFMR wird in diesem Abschnitt für die Probe NP10 durch Messungen verdeutlicht. Zunächst wird der Einfluss der Dehnung auf die MA durch konventionelle FMR-Messungen untersucht, darauf folgen PMFMR-Messungen der Nickel-Piezo-Hybridprobe.

6.3.1 Dehnungsinduzierte magnetische Anisotropie

Der Einfluss von Dehnung, vermittelt durch einen Piezo-Aktor, auf die Anisotropie eines darauf befindlichen magnetischen Films wurde bereits in früheren Arbeiten am Walther-Meissner-Institut beschrieben. Andreas Brandlmaier untersuchte dies an dünnen kristallinen Fe_3O_4 -Filmen auf MgO -Substrat, die auf den Piezo-Aktor aufgeklebt wurden [22, 9]. Mathias Weiler verfolgte das erweiterte Konzept von direkt auf den Piezo-Aktor aufgedampften Cobalt- und Nickel-Filmen in seiner Diplomarbeit [17]. Für den verwendeten Nickel-Piezo-Hybrid NP10 wird ebenfalls der Einfluss der Dehnung auf die MA untersucht. Mit konventionellen FMR-Messungen kann die Änderung der MA abhängig

von der angelegten Spannung am Piezo-Aktor bestimmt werden. Abbildung 6.2 zeigt die FMR-Resonanzmagnetfelder als Funktion der Orientierung des externen Magnetfeldes, das in der Filmebene angelegt wird, für Gleichspannungen von -10 V, 0 V und $+10$ V am Piezo-Aktor. Die Resonanzmagnetfelder für $U_{\text{Piezo}} = -10$ V (rot) und für $U_{\text{Piezo}} = +10$ V

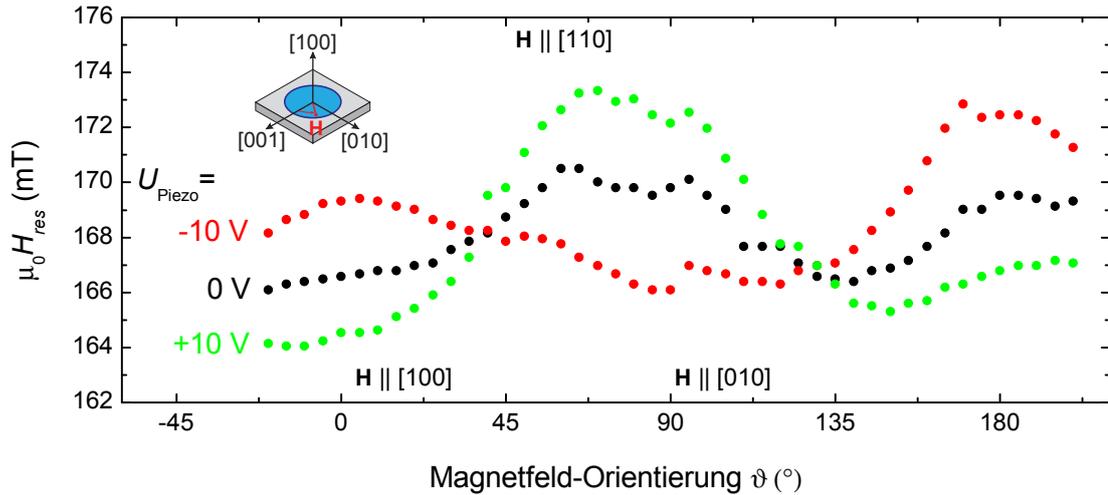


Abbildung 6.2: FMR-Resonanzmagnetfelder der Ni-Piezo-Hybridprobe NP10 für $+10$ V, -10 V bzw. 0 V am Piezo-Aktor.

(grün) zeigen jeweils eine uniaxiale Anisotropie. Während jedoch für $U_{\text{Piezo}} = -10$ V das kleinste Resonanzmagnetfeld bei $\mathbf{H} \parallel [010]$ beobachtet wird, liegt dieses Minimum für $U_{\text{Piezo}} = +10$ V bei $\mathbf{H} \parallel [100]$. Man kann also von einer Inversion der uniaxialen Anisotropie, d.h. einer Drehung der magnetisch leichten Achse um 90° in der Filmebene sprechen. Dass die Werte für $+10$ V bzw. -10 V keine exakte 180° -Periodizität aufweisen, wie man sie für uniaxiale MA erwarten würde, kann auf die schon ohne anliegende Spannung (schwarz) vorhandene Anisotropie zurückgeführt werden. Diese Anisotropie im eigentlich ungedehnten Zustand ohne Spannung am Piezo-Aktor dürfte auf eine thermische Ausdehnung des Piezo-Aktors oder des Nickel-Films beim Aufdampfprozess zurückzuführen sein. Im Wesentlichen zeigt sich aber, dass der Piezo-Aktor im Nickel-Film eine uniaxiale Anisotropie in der Filmebene hervorruft, wobei diese ihr Vorzeichen beim Übergang von positiver zu negativer Spannung U_{Piezo} ändert.

Wichtig ist außerdem die Feststellung, dass die vom Piezo-Aktor hervorgerufene Änderung der Resonanzmagnetfelder richtungsabhängig ist. So zeigt sich ungefähr bei $\mathbf{H} \parallel [110]$ kein Effekt durch die Dehnung, während er für $\mathbf{H} \parallel [100]$ und $\mathbf{H} \parallel [010]$ jeweils maximal, aber gerade entgegengesetzt wirkt.

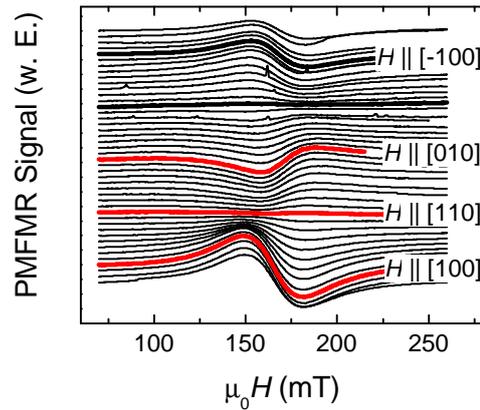


Abbildung 6.3: PMFMR-Winkelserie der Nickel-Piezo-Hybridprobe NP10 mit äußerem Magnetfeld in der Filmebene. Die roten Spektren entsprechen den in Abb. 6.1 dargestellten Fällen.

6.3.2 PMFMR-Messungen

Abbildung 6.3 zeigt eine Serie von PMFMR-Messungen der Probe NP10 mit dem äußeren Magnetfeld in der Filmebene. Die Spektren sind um einen konstanten Wert gegeneinander auf der vertikalen Achse verschoben. Die drei rot eingefärbten Spektren entsprechen gerade den drei in Abb. 6.1 dargestellten Orientierungen. Offenbar stimmen die gemessenen Spektren mit den theoretisch erwarteten Signalverläufen qualitativ überein.

Zwei Messergebnisse zur Signalamplitude der PMFMR, die auch schon in [17] gezeigt wurden, sollen hier noch erwähnt sein, da sie im Folgenden vorausgesetzt werden. Zum einen zeigt die Signalamplitude A_{pp} eine Abhängigkeit von der Modulationsfrequenz ν_{mod} , wie dies in Abb. 6.4(a) gezeigt ist. Die blauen Messwerte für Cobalt stammen aus [17], die roten sind Daten der Probe NP10. Das entscheidende Ergebnis ist, dass die Signalamplitude in einem Bereich von 100 Hz bis 10 kHz maximal und in etwa konstant ist. Daher soll die verwendete Frequenz für PMFMR immer in diesem Bereich liegen. Als zweites hat die Amplitude der Wechsellspannung am Piezo-Aktor Einfluss auf die Signalamplitude. Abbildung 6.4(b) zeigt, dass sie linear mit der peak-to-peak-Spannung $U_{\text{Piezo}}^{\text{PP}}$ ansteigt. Bei allen folgenden PMFMR-Messungen ist eine Spannung $U_{\text{Piezo}}^{\text{PP}} = 20 \text{ V}$ angelegt.

6.4 Quantitativer Vergleich mit konventioneller FMR

Ein großer Vorteil von Dehnungs-modulierter FMR gegenüber der Magnetfeld-modulierten FMR ist die höhere Empfindlichkeit bei der Bestimmung der magnetostriktiven Konstanten λ . Mit Dehnungs-Modulation können noch Werte in der Größenordnung $\lambda \approx 10^{-9}$ bestimmt werden [80]. In jedem Fall aber sollten beide Methoden die gleichen Werte für λ liefern. Ein quantitativer Vergleich der Piezo-modulierten mit der konventionellen

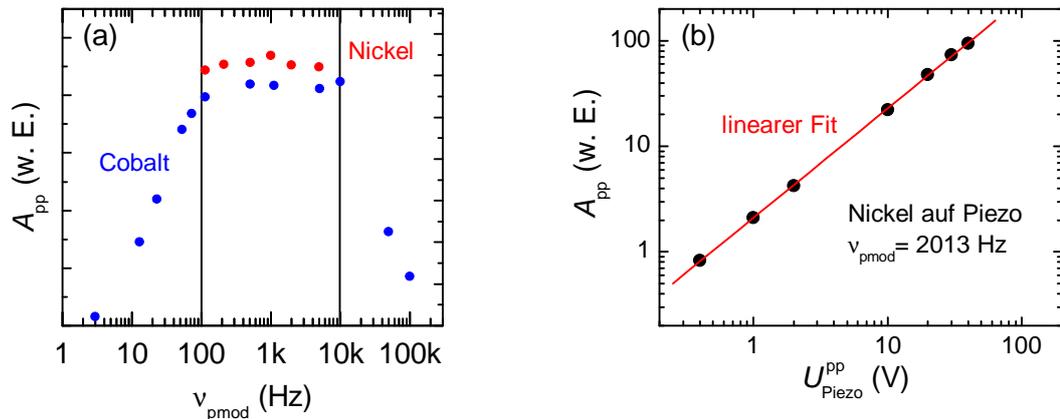


Abbildung 6.4: (a) Einfluss der Modulationsfrequenz auf die Signalamplitude für den Cobalt-Piezo- (blau) [17] und den Nickel-Piezo-Hybrid (rot). Im Bereich von 100 Hz bis 10 kHz ist A_{pp} konstant. (b) Die Signalamplitude nimmt linear mit der peak-to-peak-Spannung am Piezo-Aktor zu.

FMR ist daher essentiell, um die Aussagekraft und Genauigkeit von PMFMR-Messungen richtig einschätzen zu können.

6.4.1 Vergleich der Signalintensitäten

Der Ansatz zum quantitativen Vergleich der beiden Methoden basiert auf einem Vergleich der Signalintensitäten. Die Intensität I des ESR/FMR-Signals des kalibrierten Spektrometers Bruker ESP 300 am Walther-Schottky-Institut (s. Abschnitt 3.3.5) ist im Wesentlichen gegeben durch [36]

$$I \propto \frac{A_{pp} \cdot S \cdot \Delta H_{pp}^2}{N \cdot H_{mod} \cdot \sqrt{P}}, \quad (6.2)$$

wobei A_{pp} die Signalamplitude, S die Empfindlichkeit des Lock-In-Verstärkers, $\mu_0 \Delta H_{pp}$ die Resonanzlinienbreite, N die Anzahl von Durchläufen, $\mu_0 H_{mod}$ die Modulationsamplitude und P die Mikrowellenleistung sind. Außerdem ist die Signalintensität als Maß für die Anzahl von vorhandenen Spins eine intrinsische Eigenschaft der untersuchten Probe und damit unabhängig von der Art der Modulation. Folglich können die Intensitäten von konventioneller (I_{cFMR}) und Piezo-modulierter FMR (I_{PMFMR}) gleichgesetzt werden¹:

$$I_{cFMR} \stackrel{!}{=} I_{PMFMR}. \quad (6.3)$$

¹Zu den technischen Voraussetzungen für ein Gleichsetzen der Intensitäten s. Abschnitt 6.4.4.

Mit (6.2) folgt dann bei jeweils gleicher Mikrowellenleistung und Anzahl an Durchläufen:

$$\frac{A_{\text{pp,c}} \cdot S_c \cdot \Delta H_{\text{pp,c}}^2}{H_{\text{mod,c}}} = \frac{A_{\text{pp,PM}} \cdot S_{\text{PM}} \cdot \Delta H_{\text{pp,PM}}^2}{H_{\text{mod,PM}}}. \quad (6.4)$$

Während die Signalamplituden ($A_{\text{pp,c}}$, $A_{\text{pp,PM}}$) und Linienbreiten ($\mu_0 \Delta H_{\text{pp,c}}$, $\Delta H_{\text{pp,PM}}$) für beide Messungen aus den Spektren abgelesen werden können, werden die Lock-In-Empfindlichkeiten (S_c , S_{PM}) sowie die Modulationsamplitude der konventionellen FMR $\mu_0 H_{\text{mod,c}}$ als Parameter eingestellt. Folglich kann die Modulationsamplitude der PMFMR, $\mu_0 H_{\text{mod,PM}}$, als einzige Unbekannte aus (6.4) bestimmt werden:

$$\mu_0 H_{\text{mod,PM}} = \frac{A_{\text{pp,PM}} \cdot S_{\text{PM}} \cdot \Delta H_{\text{pp,PM}}^2}{A_{\text{pp,c}} \cdot S_c \cdot \Delta H_{\text{pp,c}}^2} \mu_0 H_{\text{mod,c}} \quad (6.5)$$

Andererseits ist die Modulationsamplitude der PMFMR gerade gegeben durch die Differenz der Resonanzmagnetfelder von maximaler ($+U_p$) und minimaler Spannung ($-U_p$) der am Piezo-Aktor anliegenden sinusförmigen Wechselspannung:

$$\mu_0 H_{\text{mod,PM}} = \mu_0 |H_{\text{res}}(+U_p) - H_{\text{res}}(-U_p)|. \quad (6.6)$$

Die rechte Seite von (6.6) kann nun dadurch bestimmt werden, dass bei Anlegen einer DC-Spannung von $U_{\text{DC}} = +U_p$ bzw. $U_{\text{DC}} = -U_p$ am Piezo-Aktor konventionelle FMR gemessen und daraus das zugehörige Resonanzmagnetfeld $\mu_0 H_{\text{res}}(+U_p)$ bzw. $\mu_0 H_{\text{res}}(-U_p)$ bestimmt wird. Der Vergleich mit der konventionellen FMR besteht nun also darin, die Gültigkeit von (6.6) experimentell zu überprüfen. Dabei liegt das besondere Augenmerk auf folgenden zwei Fragestellungen:

1. Wie groß ist $\mu_0 H_{\text{mod,c}}$ tatsächlich am Ort der Probe?

Die Probe mitsamt des Piezo-Aktors hat eine relativ große Ausdehnung und stört die stehende Welle im Mikrowellenresonator erheblich. Daher kann das Spektrometer nur abgestimmt werden (d.h. durch eine kritische Kopplung von Hohlleiter- und Resonatorimpedanzen die Leistungseinkopplung in den Resonator maximiert werden), wenn sich die Probe statt in der Mitte nur am Rand des Resonators befindet. Ob und wie stark das konventionelle Modulationsfeld an dieser Stelle vom Wert in der Resonatormitte, der aus einer Kalibrationsmessung bekannt ist, abweicht, wird in 6.4.2 untersucht.

2. Ist die Ausdehnung des Piezo-Aktors im DC-Betrieb gleich der im AC-Betrieb?

Es ist durchaus naheliegend, dass die tatsächliche Längenänderung des Piezo-Aktors eine Funktion der Frequenz ist und dass diese insbesondere bei Anlegen einer hochfrequenten Wechselspannung kleiner ausfällt als beim Anlegen der entsprechend großen DC-Werte. Dieser mögliche Effekt wird in 6.4.3 untersucht.

6.4.2 Untersuchung der Magnetfeld-Modulationsamplitude als Funktion des Ortes

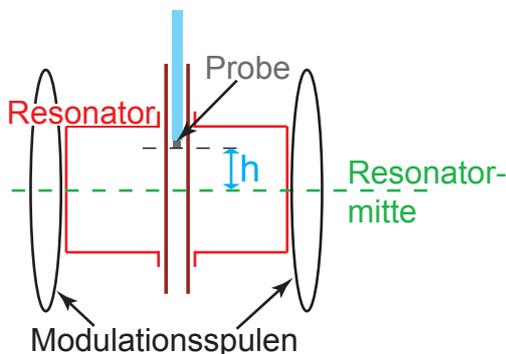


Abbildung 6.5: Schema zur Messung der konventionellen Modulationsamplitude

Die Amplitude des durch die Modulationsspulen erzeugten Magnetfeldes ist maximal auf der Achse der Spulenwicklungen, welche sinnvoller Weise durch die Resonatormitte läuft. Entfernt man sich aus diesem Zentrum, ist ein Abfallen der Modulationsamplitude zu erwarten. Um das exakt am Probenort wirkende Modulationsmagnetfeld zu ermitteln, wird systematisch $\mu_0 H_{\text{mod},c}$ als Funktion des Ortes im Resonator bestimmt. Dies erfolgt, wie schon in Abschnitt 3.3.4 genauer erläutert, durch Messen der Verbreiterung der DPPH-Resonanzlinie. Eine in ihren Abmessungen möglichst kleine DPPH-Probe wird in unterschiedlichen Abständen h von der Resonatormitte (s. Abb. 6.5) positioniert; es wird jeweils ein Resonanzsignal gemessen und aus der abgelesenen Linienbreite $\mu_0 \Delta H_{\text{pp,obs}}$ nach Formel (3.18) die Modulationsamplitude $\mu_0 H_{\text{mod},c}$ berechnet. Die so erhaltenen Werte zeigt Abb. 6.6. Die Modulationsamplitude ist in der Resonatormitte maximal und beträgt hier $\mu_0 H_{\text{mod},c} = 32,9 \text{ G}$, was sogar etwas über dem nominell im Messprogramm eingestellten Wert von 32 G liegt. Die Probe auf dem Piezo-Aktor kann nur bis etwa $h = 9 \text{ mm}$ in den Resonator eingebracht werden, so dass das Spektrometer gleichzeitig noch abgestimmt werden kann. Hier ist die Modulationsamplitude auf $\mu_0 H_{\text{mod},c} = 7,1 \text{ G}$ abgefallen. Dies bedeutet also mehr als einen Faktor vier Unterschied zwischen dem tatsächlichen und dem im Messprogramm eingestellten Wert für $\mu_0 H_{\text{mod},c}$ und muss daher auf jeden Fall in den Rechnungen nach (6.4) berücksichtigt werden.

Problematisch ist auch, dass sich in dem Bereich von $h = 8 \dots 10 \text{ mm}$ die Modulationsamplitude relativ stark ändert, während in der Resonatormitte annähernd ein Plateau vorliegt. Bei $h = 9 \text{ mm}$ bedeutet ein Fehleinbau von $\pm 0,25 \text{ mm}$ bereits eine Abweichung in der Modulationsamplitude von $\pm 10 \dots 15 \%$. Ein Fehler in der Bestimmung der exakten Höhe von $\pm 0,25 \text{ mm}$ wird als typische experimentelle Unsicherheit angenommen und findet sich in den horizontalen Fehlerbalken in Abb. 6.6 wieder. Der vertikale Fehlerbalken resultiert aus einem Positionsfehler in radialer Richtung des Glasröhrchens. Da die DPPH-Probe nicht exakt in der Mitte des Glasröhrchens, sondern am Rand sitzt, führt

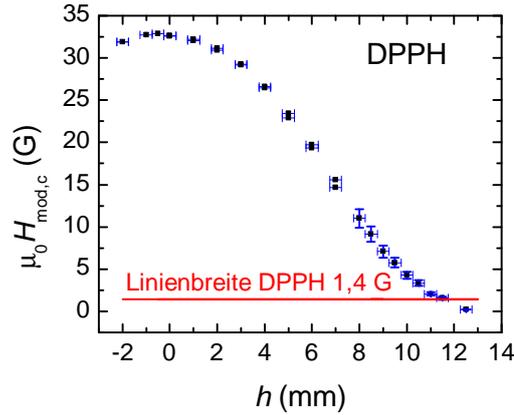


Abbildung 6.6: Die Magnetfeldmodulationsamplitude fällt von einem maximalen Wert in der Resonanzmitte (32,9 G) mit zunehmender Höhe stark ab.

eine Drehung des Glasröhrchen zu einer Änderung von $\mu_0 H_{mod,c}$. Dieser Effekt ist nur bei den für die PMFMR-Probe relevanten Höhen gemessen und beträgt hier in etwa 10 %.

6.4.3 Messung der Längenänderung des Piezo-Aktors

Die Messung der tatsächlichen Längenänderung des Piezo-Aktors erfolgt mit Hilfe eines Dehnmessstreifens (DMS). Dazu wird von einem Piezo-Aktor, der baugleich zu dem für den Ni-Piezo-Hybrid verwendeten ist, wieder die Polymerbeschichtung, jedoch nicht der PZT-Stapel selbst abgeschliffen. Dann wird ein DMS vom Typ WK-06-062TT-350 [86] des Herstellers Vishay mit dem dafür vorgesehenen Kleber (Vishay M-Bond 600 [86]) auf den Piezo-Aktor aufgebracht. Ein sogenannter Folien-DMS besteht aus einem mehrere μm dicken Widerstandsdraht (meist Konstantan-Legierungen), der mäanderförmig aufgereiht und von zwei Kunststofffolien mechanisch gestützt wird (s. Abb. 6.7). Die Längenmessung beruht auf der Widerstandsänderung des DMS bei Dehnung. Es gilt für die relative Widerstandsänderung

$$\frac{\Delta R}{R} = K \cdot \frac{\Delta l}{l} = K \cdot \varepsilon, \quad (6.7)$$

wobei $\frac{\Delta l}{l} = \varepsilon$ die relative Längenänderung ist und der sogenannte K -Faktor eine Konstante, die spezifisch für den jeweiligen Typ von DMS ist und im Falle des hier verwendeten einen Wert von 1,99 annimmt. Praktisch wird bei den folgenden Messungen die Änderung der Spannung über dem DMS gemessen, wenn durch diesen ein konstanter Gleichstrom fließt. Aus (6.7) folgt daher

$$\frac{\Delta U}{U} = \frac{I \cdot \Delta R}{I \cdot R} = K \cdot \varepsilon. \quad (6.8)$$

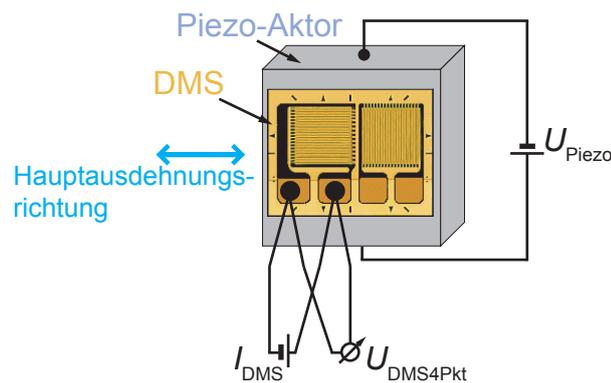


Abbildung 6.7: Messschema zur DC-Längenänderung des Piezo-Aktors.

DC-Längenänderung

Zuerst wird die Längenänderung des Piezo-Aktors bei Anlegen von DC-Spannungen gemessen. Das Prinzip dieser Messung geht aus Abb. 6.7 hervor. An den Piezo-Aktor werden verschiedene Gleichspannungen U_{Piezo} angelegt. Dabei dehnt oder verkürzt sich der Piezo-Aktor am meisten entlang seiner Hauptausdehnungsrichtung. Parallel zu dieser verlaufen die Drahtschleifen des linken DMS-Gitters in Abb. 6.7. Über dessen Kontakte fließt ein konstanter Gleichstrom I_{DMS} und in einer 4-Punkt-Messung wird die über dem DMS abfallende Spannung $U_{DMS4Pkt}$ gemessen. Abb. 6.8(a) zeigt Ergebnisse dieser Messung, wobei nach (6.8) aus der Spannungsänderung die Dehnung berechnet ist. Als Bezugswert der relativen Änderung dient jeweils der minimale Wert einer Spannungsschleife. Zum einen wird bei der großen Schleife zweimal der komplette Spannungsbetriebsbereich des Piezo-Aktors von -30 V bis $+150\text{ V}$ durchgefahren. Es zeigt sich eine sehr deutliche Hysterese und eine insgesamt wenig lineare Kennlinie. Kurvenverlauf und maximale Dehnung entsprechen den Herstellerangaben [85]. Eine Beschränkung des Spannungsbereichs auf $\pm 10\text{ V}$ entspricht dem Arbeitsbereich des Piezo-Aktors bei PMFMR. Die zugehörigen Kurven der relativen Dehnung in Abb. 6.8(b) verlaufen in grober Näherung linear, zeigen aber immer noch eine geringe Hysterese. Für den Vergleich mit dem AC-Betrieb des Piezo-Aktors ist hiervon in erster Linie der Gesamthub in ε_{DC} wesentlich. Dieser beschreibt die relative Längenänderung ε_{DC} des Piezo-Aktors zwischen $U_{Piezo} = -10\text{ V}$ und $U_{Piezo} = 10\text{ V}$. Es wurden die Werte von insgesamt 17 Durchläufen gemittelt, woraus sich ein Wert von $\varepsilon_{DC,-10V \rightarrow 10V} = (1,19 \pm 0,04) \cdot 10^{-4}$ ergibt.

AC-Längenänderung

Zum Vergleich wird nun die Längenänderung des Piezo-Aktors bei Anlegen einer Wechselspannung mit unterschiedlichen Frequenzen untersucht. Die Messung erfolgt wie in Abb. 6.9 skizziert: Der Piezo-Aktor wird mit einer Wechselspannung U_{Piezo} durch den Signalgenerator Agilent 33250A betrieben. Dessen „Sync out“-Ausgang ist mit dem „Ref In“

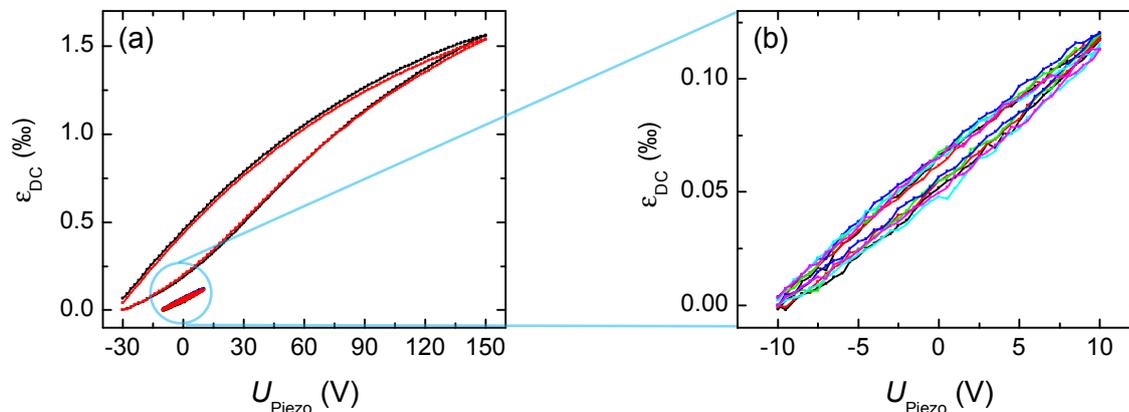


Abbildung 6.8: Messung der DC-Dehnung ϵ_{DC} des Piezo-Aktors als Funktion der angelegten Spannung U_{Piezo} : (a) Entlang des maximalen Arbeitsbereichs des Piezo-Aktors von -30 V bis 150 V zeigt sich eine große Hystereseschleife. (b) Ausschnitt aus (a): Die leicht hysteretischen Kurven entsprechen einem üblichen Einsatzbereich des Piezo-Aktors bei PMFMR von ± 10 V.

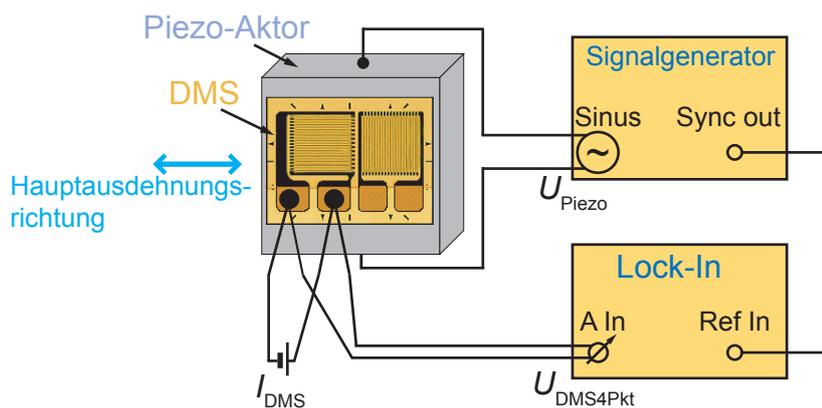


Abbildung 6.9: Messschema zur AC-Längenänderung des Piezo-Aktors.

des Lock-In-Verstärkers SR830 verbunden. Letzterer misst den Spannungsabfall über dem DMS, über den wiederum ein konstanter Gleichstrom I_{DMS} fließt. Durch die Wirkungsweise des Lock-In-Verstärkers wird nur eine Spannungsänderung am DMS mit gleicher Frequenz wie die des Signalgenerators gemessen, also nur die tatsächlich durch Dehnung des Piezo-Aktors hervorgerufene Spannungsänderung; mögliches Rauschen wird unterdrückt. Um AC-Betrieb mit DC-Betrieb vergleichen zu können wurden am Piezo-Aktor eine peak-to-peak-Spannung $U_{\text{Piezo}}^{\text{pp}} = 20 \text{ V}$ und verschiedene Frequenzen im Bereich von 10 mHz bis 5 kHz eingestellt. Hierbei muss noch erwähnt werden, dass das Spannungssignal am Lock-In-Verstärker (insbesondere in der Y-Phase) mit der Frequenz stark zugenommen hat, was rechnerisch eine Zunahme der Dehnung bedeuten würde. Vergleichsmessungen ohne Stromversorgung des DMS zeigten jedoch auch eine entsprechende Zunahme, so dass dieser Effekt nicht auf eine tatsächliche Dehnung des Piezo-Aktors, sondern auf ein Quersprechen zwischen der Treibspannung am Piezo-Aktor und den DMS-Kontakten zurückzuführen ist. Zur Berechnung der im Folgenden gezeigten relativen Längenänderungen wurde daher das Spannungssignal am Lock-In-Verstärker bei der stromlosen Messung von der Spannung der eigentlichen Messung mit Strom durch den DMS subtrahiert. Abb. 6.10(a) zeigt die Dehnung des Piezo-Aktors in Abhängigkeit von der Frequenz.

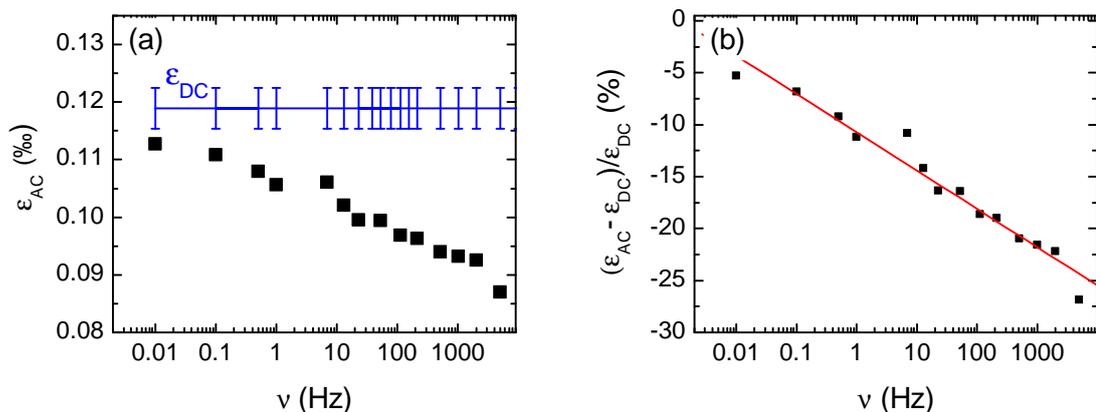


Abbildung 6.10: (a) Messung der AC-Dehnung ε_{AC} des Piezo-Aktors als Funktion der angelegten Treibfrequenz ν . Sie liegt unter dem Wert der DC-Dehnung und nimmt mit zunehmender Frequenz ab. (b) Die relative Abweichung der AC- von der DC-Dehnung als Funktion der Frequenz. Bei üblichen Frequenzen für PMFMR (ab 500 Hz) liegt eine Abweichung von mehr als 20 % vor.

In blauer Farbe ist zusätzlich der zugehörige DC-Wert mit Fehlerbalken eingezeichnet. Offensichtlich ist die AC-Dehnung immer kleiner als der DC-Wert. Außerdem sinkt die AC-Dehnung mit zunehmender Frequenz. In Abb. 6.10(b) wird die relative Abweichung der Dehnungen $\frac{\varepsilon_{\text{AC}} - \varepsilon_{\text{DC}}}{\varepsilon_{\text{DC}}}$ dargestellt. Die Fitgerade in Abb. 6.10(b) verdeutlicht den exponentiellen Abfall von $\frac{\varepsilon_{\text{AC}} - \varepsilon_{\text{DC}}}{\varepsilon_{\text{DC}}}$ als Funktion der Frequenz. Bei einer geeigneten Frequenz für

Piezo-modulierte FMR von 513 Hz ist beispielsweise die AC-Dehnung um 21 % niedriger als der DC-Wert. Diese Abweichung muss beim Vergleich zwischen Piezo-modulierter und konventioneller FMR berücksichtigt werden. Die Größe der Piezo-Modulationsamplitude $\mu_0 H_{\text{mod,PM}}$ ist im Wesentlichen bestimmt durch die Differenz der konventionellen Resonanzmagnetfelder von positiver und negativer Peak-Spannung, also

$$\mu_0 H_{\text{mod,PM}} \propto \mu_0 \Delta H_{\text{res}}(U_{\text{Piezo}}^{\text{pp}}). \quad (6.9)$$

Zum anderen wird in [17] gezeigt, dass das konventionelle Resonanzmagnetfeld bis auf einen kleinen Hysterese-Effekt linear zur angelegten Spannung am Piezo-Aktor ist. Damit folgt also

$$\mu_0 \Delta H_{\text{res}} \propto U_{\text{Piezo}}^{\text{pp}}. \quad (6.10)$$

Und zum dritten ist die Dehnungskennlinie des Piezo-Aktors im verwendeten Spannungsbereich in guter Näherung linear (s. Abb. 6.8(b)), so dass gilt:

$$\varepsilon \propto U_{\text{Piezo}}^{\text{pp}}. \quad (6.11)$$

Aus den Gleichungen (6.9), (6.10) und (6.11) zusammen folgt schließlich

$$\mu_0 H_{\text{mod,PM}} \propto \varepsilon, \quad (6.12)$$

d.h. die Piezo-Modulationsamplitude ist direkt proportional zur Dehnung des Ni-Piezo-Hybrids. In den nach Gleichung (6.5) berechneten Wert für $\mu_0 H_{\text{mod,PM}}$ gehen Parameter eines PMFMR-Spektrums ($A_{\text{pp,PM}}$, S_{PM} , $\Delta H_{\text{pp,PM}}$) ein und damit indirekt die Dehnung im AC-Betrieb ε_{AC} . Die Piezo-Modulationsamplitude soll allerdings nach (6.6) mit der Differenz von Resonanzmagnetfeldern aus konventioneller FMR, für die die Dehnung im DC-Betrieb ε_{DC} relevant ist, verglichen werden. Dementsprechend muss die Piezo-Modulationsamplitude für den Vergleich von PMFMR und konventioneller FMR gemäß

$$\mu_0 H_{\text{mod,PM,korr.}}(\nu) = \mu_0 H_{\text{mod,PM}} \frac{\varepsilon_{\text{DC}}}{\varepsilon_{\text{AC}}}(\nu) \quad (6.13)$$

korrigiert werden.

6.4.4 Quantitativer Vergleich

Es folgt nun der quantitative Vergleich von Piezo-modulierter und konventioneller FMR unter Berücksichtigung der zwei diskutierten Korrekturen. Dazu wird Formel (6.6) betrachtet: Die rechte Seite ist die Differenz der konventionellen Resonanzmagnetfelder, die aus den Spektren abgelesen werden können. Der korrigierte Wert für die Piezo-Modulationsamplitude auf der linken Seite errechnet sich nach Kombination von (6.4)

und (6.13) und unter Berücksichtigung der Höhenabhängigkeit von $\mu_0 H_{\text{mod},c}(h)$ zu

$$\mu_0 H_{\text{mod},\text{PM},\text{korr.}}(h,\nu) = \frac{A_{\text{pp,PM}} \cdot S_{\text{PM}} \cdot \Delta H_{\text{pp,PM}}^2}{A_{\text{pp,c}} \cdot S_{\text{c}} \cdot \Delta H_{\text{pp,c}}^2} \cdot H_{\text{mod},c}(h) \cdot \frac{\varepsilon_{\text{DC}}}{\varepsilon_{\text{AC}}}(\nu) \quad (6.14)$$

Um wie in Gleichung (6.3) die Intensitäten von konventioneller und Piezo-modulierter FMR gleichsetzen zu können, müssen noch zwei technische Voraussetzungen bei der Messung gegeben sein. Zum einen sind die Messungen mit beiden Modulationsarten selbstredend bei unveränderter Position der Probe durchzuführen. Zum anderen muss ausgeschlossen sein, dass der AC-Betrieb des Piezo-Aktors, einhergehend mit einer periodischen Längenänderung desselben, in irgendeiner Weise die Güte des Mikrowellenresonators beeinflusst. Zum Test wurden einmalig zwei konventionelle FMR-Spektren der Probe gemessen: einmal ohne Spannung am Piezo-Aktor, einmal bei Anliegen einer Wechselspannung mit $U_{\text{Piezo}}^{\text{PP}} = 20 \text{ V}$. Dabei wurde keine signifikante Abweichung beobachtet, so dass eine größere Störung der Mikrowellenmode durch den AC-Betrieb des Piezo-Aktors ausgeschlossen werden kann.

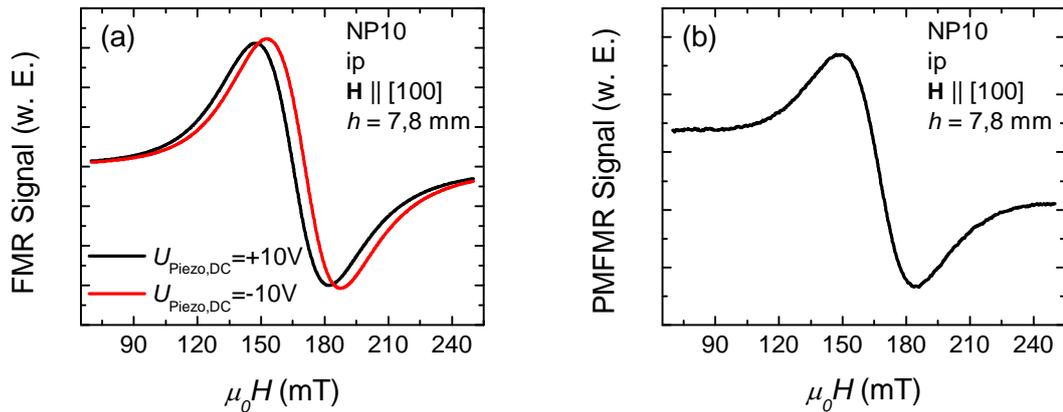


Abbildung 6.11: (a) Aus zwei konventionellen FMR-Spektren bei $U_{\text{Piezo,DC}} = +10 \text{ V}$ bzw. $U_{\text{Piezo,DC}} = -10 \text{ V}$ kann die Differenz der Resonanzmagnetfelder bestimmt werden. (b) Aus dem PMFMR-Spektrum kann durch Intensitätsvergleich mit konventioneller FMR nach Gleichung (6.14) $\mu_0 H_{\text{mod},\text{PM},\text{korr.}}$ bestimmt werden.

Es wurden nun an verschiedenen Probenpositionen h im Resonator zum einen konventionelle FMR-Messungen bei Anliegen von $+10 \text{ V}$ bzw. -10 V am Piezo-Aktor gemacht (s. Abb. 6.11(a)), zum anderen PMFMR-Messungen mit $U_{\text{Piezo}}^{\text{PP}} = 20 \text{ V}$ und Frequenzen zwischen $0,5 \text{ kHz}$ und 2 kHz (s. Abb. 6.11(b)). In Abb. 6.12 ist mit roten Symbolen die Differenz der Resonanzmagnetfelder der konventionellen FMR $\mu_0 \Delta H_{\text{res}} = \mu_0 |H_{\text{res}}(-10 \text{ V}) - H_{\text{res}}(+10 \text{ V})|$ eingetragen. In schwarz sind die nach (6.14) berechneten Werte für $\mu_0 H_{\text{mod},\text{PM},\text{korr.}}$ mit Fehlerbalken eingezeichnet. Als Fehler trägt zum einen das höhenabhängige konventionelle Modulationsfeld (s. Abschnitt 6.4.2) bei, wo eine Unsi-

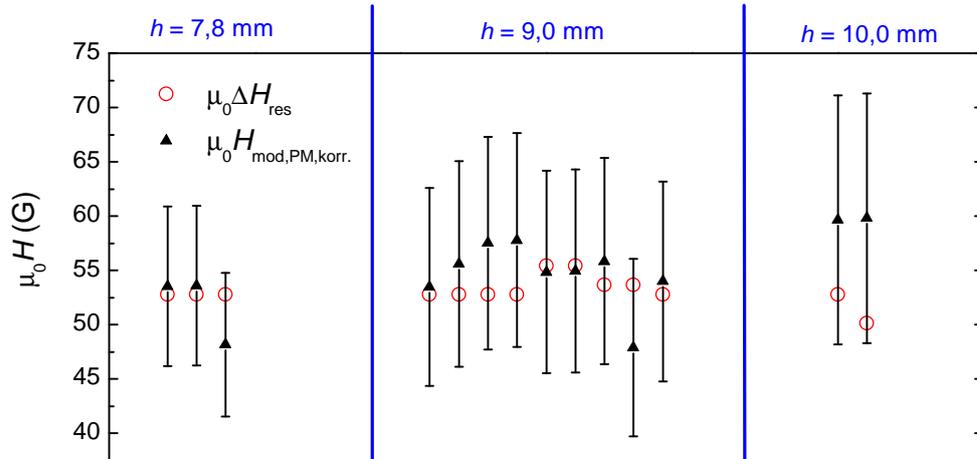


Abbildung 6.12: Für drei verschiedene Einbauhöhen der Ni-Piezo-Hybridprobe im Resonator sind die Differenzen der Resonanzmagnetfelder aus konventioneller FMR (rot) und die Werte für die Piezo-Modulationsamplitude gemäß Gleichung (6.14) (schwarz) mitsamt Fehlerbalken gezeigt. Die Datenpunkte sind auf der horizontalen Achse willkürlich verschoben. Die gute Übereinstimmung zwischen den beiden Messmethoden beweist die quantitative Aussagekraft der PMFMR.

cherheit in h beim Einbau von $\pm 0,25$ mm angenommen wird. Auch eine Drehung der Probe, die nicht exakt in der Mitte des Glasröhrchens, sondern am Rand sitzt, führt zu einer Änderung von $\mu_0 H_{\text{mod},c}$ von 10 %. Zum anderen zeigen die konventionellen FMR-Spektren Intensitätsschwankungen von etwa 5 %. Diese drei Beiträge werden mit Gaußscher Fehlerfortpflanzung berücksichtigt. Es sind jeweils mehrere Messungen bei den drei Probenpositionen $h = 7,8$ mm, $h = 9,0$ mm und $h = 10,0$ mm gezeigt, wobei die Datenpunkte auf der horizontalen Achse zur besseren Darstellung willkürlich verschoben sind. Für größere Werte von h kann $\mu_0 H_{\text{mod},\text{PM},\text{korr.}}$ nicht mehr angegeben werden, da die Bestimmung von $\mu_0 H_{\text{mod},c}$ mit zunehmender Unsicherheit verbunden ist. Wie in Abb. 6.6 zu erkennen ist, kann ab $h = 10,0$ mm die DPPH-Linie nicht mehr übermoduliert werden. Damit fehlt die Grundlage für die genaue Bestimmung von $\mu_0 H_{\text{mod},c}$ nach (3.18). Die ungenaue Kenntnis von $\mu_0 H_{\text{mod},c}$ macht sich auch schon bei $h = 10,0$ mm bemerkbar, wo die Werte für $\mu_0 H_{\text{mod},\text{PM}}$ deutlich höher liegen als bei den anderen beiden Höhen.

Insbesondere bei den zwei niedrigeren, aber allgemein bei allen drei gezeigten Höhen, liegen die Werte für $\mu_0 \Delta H_{\text{res}}$ nahe an den Werten für $\mu_0 H_{\text{mod},\text{PM},\text{korr.}}$ und immer innerhalb des Fehlerbalkens. Somit ist die Gültigkeit von Formel (6.6) und damit die quantitative Übereinstimmung von konventioneller und Piezo-modulierter FMR gezeigt. Wegen ihrer besonderen Vorteile bei der Bestimmung der magnetoelastischen Konstante, ist die Piezo-modulierte FMR hierfür zweifelsfrei eine Alternative zur konventionellen FMR.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

Ferromagnetische Resonanz ist ohne Zweifel eine der wichtigsten Spektroskopiemethoden zur Untersuchung von ferromagnetischen Materialien. In erster Linie ermöglicht FMR eine sehr genaue, quantitative Bestimmung der magnetischen Anisotropie. Die magnetische Anisotropie ist eine der zentralen Eigenschaften von Ferromagneten, da sie die Orientierung der Magnetisierung bestimmt. Daher ist eine genaue Kenntnis der magnetischen Anisotropie sowohl für die Realisierung einer effizienten Kontrolle der Magnetisierungsrichtung wie auch für die Anwendung von Ferromagneten in spintronischen Bauteilen von großer Bedeutung.

In Rahmen dieser Arbeit wurde ein Messplatz für FMR am Walther-Meißner-Institut aufgebaut. Mit diesem Messaufbau wurde dann die magnetische Anisotropie von einer Serie von CrO_2 -Filmen sowie von einem Spinventil bestimmt. Außerdem wurden mit der Bestimmung der Magnetisierungsdämpfung durch Messung bei verschiedenen Frequenzen und der Bestimmung der magnetoelastischen Konstante durch die Piezo-modulierte FMR weitere Möglichkeiten der FMR-Spektroskopie aufgezeigt.

Aufbau des FMR-Messplatzes

Das Hauptaugenmerk lag bei dieser Arbeit auf dem Aufbau des FMR-Messplatzes. Dabei handelt es sich um ein Magnetfeld-moduliertes Spektrometer, das in Hohlleitertechnik für die zwei Mikrowellenfrequenzbereiche X- und K-Band (ca. 10 GHz bzw. 24 GHz) für Raumtemperaturmessungen realisiert wurde, und mit der automatisierten Probenrotation die Bestimmung der magnetischen Anisotropie ermöglicht. Zum tatsächlichen „Aufbauen“ zählte hierbei nicht nur das Zusammenfügen gekaufter Einzelteile, sondern auch die Konstruktion und die zu einem großen Teil selbst durchgeführte Anfertigung von Komponenten wie den Modulationsmagnetspulen, der Probenhalterung und -rotation, sowie das Schreiben des Messprogramms. Die einzelnen Komponenten sowie die Funktionsweise des Spektrometers, d.h. die Signalentstehung und -detektion, wurden - soweit möglich - quantitativ untersucht und der Aufbau charakterisiert. Das externe Magnetfeld sowie das Modulationsmagnetfeld wurden kalibriert, die richtige Einbauposition der Probe ermittelt und wichtige Messparameter, vor allem die Einstellung des

Phasenschiebers, untersucht. Schließlich wurde die Empfindlichkeit des Spektrometers anhand von Elektronenspinresonanz(ESR)-Messungen mit einem kommerziellen ESR-Spektrometer verglichen. Dabei zeigt sich, dass unser Spektrometer eine ca. vier Größenordnungen schlechtere Empfindlichkeit aufweist. Allerdings ist dieser Vergleich nur für ESR-Messungen gültig. Für FMR-Experimente bietet unser System etliche Vorteile, insbesondere die hohe mögliche Magnetfeld-Modulationsamplitude. Zudem reduziert die Verwendung des Hohlleiters als Mikrowellenresonator mit niedriger Güte zwar die Empfindlichkeit des Messaufbaus etwas, hat aber andererseits den Vorteil, dass FMR-Experimente innerhalb der gesamten X- bzw. K-Band-Frequenzbreite, d.h. über einen Bereich von mehreren GHz möglich sind. Mit einer frequenzvariablen Mikrowellenquelle und einer Detektionsdiode, bzw. mit einem Netzwerkanalysator, könnte in Zukunft die volle Frequenzbreite der Hohlleiter ausgenutzt werden. Dies ermöglicht z.B. die Bestimmung der Magnetisierungsämpfung, wie in Abschnitt 4.3 exemplarisch diskutiert.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass nun ein voll funktionstüchtiges Raumtemperatur-FMR-Spektrometer in Hohlleitertechnik für die zwei Frequenzbereiche X- und K-Band zur Verfügung steht. Die Empfindlichkeit reicht für ferromagnetische Dünnschichten bei weitem aus, wie in den Kapiteln 4 und 5 gezeigt wurde.

Natürlich sollte in Zukunft der Messplatz für FMR-Experimente als Funktion der Temperatur aufgerüstet werden, um den Einfluss der Temperatur auf die magnetische Anisotropie bzw. auch Ferromagnete mit Curie-Temperaturen unterhalb von 300 K untersuchen zu können. Anstatt zwischen die Polschuhe des normalleitenden Magneten würden die aufgebauten FMR-Stäbe dann in einen am WMI vorhandenen supraleitenden Split-coil-Magnetkryostaten eingebracht. Die Stäbe sind dafür bereits konzipiert, allerdings wären noch einige technische Änderungen notwendig. Zum einen muss der bestehende Stab mit einer vakuumdichten Durchführung versehen werden. Außerdem wird die Magnetfeld-Modulation wegen der auftretenden mechanischen und thermischen Belastung wohl nicht in einem supraleitenden Magnetkryostaten anwendbar sein. Als alternative Modulationsmethode bietet sich die Frequenzmodulation an, die auch mit den Gunnplexern realisierbar ist: Das Anlegen einer oszillierenden Spannung an die eingebaute Varaktordiode ermöglicht die Modulation der Mikrowellenfrequenz des Gunnplexers. Schließlich muss der momentan vorhandene Mechanismus zur Probenrotation an die geometrischen Anforderungen des supraleitenden Magnetkryostaten angepasst werden. Eine einfache Alternative bestünde in der Rotation des gesamten FMR-Stabes.

FMR an CrO₂-Dünnschichten

Mit dem neu aufgebauten FMR-Spektrometer wurde die magnetische Anisotropie von CrO₂-Dünnschichten untersucht. Aufgrund seiner experimentell bestätigten hohen Spinpolarisation ist CrO₂ als ferromagnetisches Halbmetall ein überaus interessantes Material für den Einsatz in spintronischen Bauelementen. Eine detaillierte Kenntnis der magneti-

schen Anisotropie von CrO_2 ist für Anwendungen allerdings eine wichtige Voraussetzung. Daher wurde die magnetische Anisotropie als Funktion der Schichtdicke für eine Serie von (100)- und (110)-orientierten CrO_2 -Filmen auf TiO_2 -Substraten untersucht.

Bei den (100)-orientierten Filmen zeigte sich eine deutliche Abhängigkeit der Anisotropiefelder von der Schichtdicke, was auf eine Verspannung der CrO_2 -Filme beim epitaktischen Wachstum zurückgeführt werden konnte. Die Abhängigkeit der Anisotropiefelder von der Schichtdicke lässt sich dabei mit magnetoelastischer Theorie qualitativ verstehen. Angesichts von nur ungenau bekannten Parametern, wie den elastischen Konstanten für CrO_2 und der kristallinen Verspannung in den Filmen als Funktion der Schichtdicke, ist die Übereinstimmung von theoretischer Modellierung und Experiment auch quantitativ zufriedenstellend. Außerdem wurde beobachtet, dass die Anisotropiefelder wie $\ln(d)$ mit der Schichtdicke d skalieren. Um dieses Verhalten zu verstehen, sind weitere experimentelle und vor allem theoretische Anstrengungen nötig.

Für die (110)-orientierten Filme wurde dagegen keine Änderung der magnetischen Anisotropie als Funktion der Schichtdicke festgestellt. Dies ist wahrscheinlich darauf zurückzuführen, dass diese CrO_2 -Filme nicht epitaktisch verspannt auf dem (110)- TiO_2 -Substrat aufgewachsen sind. Um dies zweifelsfrei zu bestätigen, wäre eine detaillierte, quantitative Vermessung der Gitterkonstanten mit Röntgenbeugung der nächste Schritt.

FMR in Spinventil- und GMR-Strukturen

Mit FMR lässt sich nicht nur die magnetische Anisotropie von ferromagnetischen Einzel-filmen, sondern unter gewissen Bedingungen auch die Anisotropie von ferromagnetischen Multilag-Systemen untersuchen. Dies wurde in Kapitel 5 für ein Spinventil exemplarisch diskutiert. Außerdem wurde diese Probe am neuen Messplatz für LMOKE-Magnetometrie am WMI vermessen und die so erhaltenen $M(H)$ -Schleifen mit dem Stoner-Wohlfarth-Modell simuliert. Wenn man die aus der FMR-Messung gewonnenen Anisotropiefelder für diese Simulation verwendet, kann man einen Vergleich der FMR- und LMOKE-Messungen ziehen. Die gute quantitative Übereinstimmung von LMOKE-Messungen und Stoner-Wohlfarth-Simulationen bestätigt die Konsistenz dieser beiden Messmethoden.

Ein weiterer interessanter Aspekt in diesem Zusammenhang wäre, FMR an austauschgekoppelten GMR-Strukturen zu messen, womit eine quantitative Bestimmung der Zwischenschichtkopplung möglich ist, wie in Abschnitt 5.3 dargestellt wurde. Allerdings sind solche Experimente mit stringenten Anforderungen, insbesondere der Messung der Anisotropie der Einzelschichten, verknüpft.

Piezo-modulierte FMR

Schließlich wurde mit der Piezo-modulierten FMR (PMFMR) eine unkonventionelle Modulationstechnik vorgestellt. Diese beruht darauf, dass die (periodische) Dehnung eines

Ferromagneten durch einen Piezo-Aktor eine uniaxiale magnetoelastische Anisotropie hervorruft und damit die FMR-Resonanzposition (periodisch) verschiebt. Das Hauptaugenmerk lag in dieser Arbeit auf dem quantitativen Vergleich zwischen konventioneller und Piezo-modulierter FMR. Durch eine Betrachtung der jeweiligen Signalintensitäten konnte die quantitative Übereinstimmung der beiden Modulationsmethoden gezeigt werden. Auf dieser Basis ist nun PMFMR als Messmethode zur Bestimmung der magnetostriktiven Konstante λ etabliert. Derartige Experimente wären z.B. für die mit konventioneller FMR untersuchten CrO_2 -Filme interessant, da die magnetostriktive Kopplung λ in CrO_2 nur ungenau bekannt ist.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass mit dem nun funktionstüchtigen FMR-Spektrometer viele neue, relevante Fragestellungen im Bereich der ferromagnetischen Dünnschichten angegangen werden können. Zudem ist die Weiterentwicklung des Spektrometers ein wichtiger Aspekt für die Zukunft.

Anhang A

Optimierung der Magnetfeld-Modulationsspulen

MAPLE-Code:

```
restart;
Ri:=0.010;           # Innenradius, Radius Spulenkörper (m)
a:=11;              # Anzahl Wicklungen nebeneinander
b:=39;              # Anzahl Lagen
N:=a*b;             # Anzahl Wicklungen gesamt für eine Spule
d:=0.00055;         # Durchmesser Cu-Draht (m)
rho:=1.78E-8;       # spez. Widerstand Cu
mu0:=evalf(0.4e-6*Pi);
imax:=6E6;          # max. Stromdichte (A/m^2) ohne starke Erwärmung
                    # (Wikipedia.de: "Stromdichte")

L:=0: # Länge des Cu-Drahts einer Spule
for i from 1 to b
do
    r:= Ri+i*d-d/2:
    L:=L+a*2*Pi*r:
end do:
L:
l:=2*evalf(L);      # Länge des Cu-Drahts SpulenPAAR

R:= rho*l/(d^2/4*evalf(Pi)); # Widerstand des Spulenpaars

Imax:=imax*d^2/4*evalf(Pi); # max. Strom ohne starke Erwärmung

c:=0.016:           # kleinster Abstand der Spulen
```

```
B:=0: # Berechnung B-Feld in Spulenmitte:
for i from 1 to b
  do
    r:=Ri+i*d-d/2:
    for j from 1 to a
      do
        e:=c+j*d;
        B:=B+mu0*Imax*r^2/((r^2+e^2/4)^(3/2));
        #print(e);
        #print(B);
      end do;
    end do:
  printf("R=%f Ohm\n",R);
  printf("B=%f T",B);
```

Anhang B

Bedienungsanleitung FMR

Wichtig: Als Erstes die Wasserkühlung für den Magneten einschalten! Der Lock-In-Verstärker wird niemals ausgeschaltet!

Einbau einer Probe

- Sicherstellen, dass die Mikrowellenquelle (Spannung am Agilent E3616A Power-Supply auf 0V) und das Magnetfeld (Aux Out 1 am SR830 DSP Lock-In-Verstärker auf 0V) ausgeschaltet sind.
- Schrauben, die den Schrittmotor samt Umlenkwellen auf der oberen Schiene fixieren, lösen und die Apparatur vorsichtig zurückziehen.
- Schrauben am Messingblock mit Probenhalter am Stabende entfernen und den Messingblock langsam nach hinten herausziehen. Dabei darauf achten, dass die innere schwarze PVC-Welle mit Glasröhrchen nicht herausfällt, da sie nicht fixiert ist. Außerdem beachten, die Probe nirgendwo anzustoßen.
- Die alte Probe mit einer Pinzette vorsichtig vom Glasröhrchen entfernen.
- Für eine in-plane (ip) Messung muss ein normales (d.h. senkrecht abgesägtes) Glasröhrchen verwendet werden, bei einer out-of-plane (oop) Messung ist das vorne waagrecht halbierte Röhrchen zu verwenden.
- Um das Glasröhrchen auszutauschen, muss das schwarze PVC-Stück aus dem Messingblock herausgezogen werden. Die drei kleinen Madenschrauben lösen.
- Beim Einbau des Glasröhrchens beachten: Die Mitte der Probe muss einen Abstand von 52mm (X-Band) bzw. 49mm (K-Band) zum Messingblock haben. Mit dem Messinganschlag auf dem PVC-Stab ist dieser Abstand auch nach Einbau des Glasrohrs noch um einige mm verstellbar. Die Madenschrauben **sehr vorsichtig** wieder festziehen.

- Die zu vermessende Probe (nur seitlich mit einer Pinzette anfassen!) von unten mit etwas Fixogum versehen und in richtiger Orientierung zum Magnetfeld (hängt von der Orientierung der Probe ab) auf das Glasröhrchen aufbringen. Dabei ist auf die Zentrierung zu achten. Außerdem muss sichergestellt werden, dass die Probe bezüglich des kleinen Messingnippels am schwarzen PVC-Stab richtig ausgerichtet ist. Orientierung der Probe im Laborbuch aufzeichnen!
- Probenhalterung an den Hohlleiter mit 2 Schrauben (mit Schraubenzieher) anflanschen, Antriebswelle des Schrittmotors vorsichtig auf schwarzen PVC-Stab schieben. Arretierschrauben für Schrittmotor handfest anziehen.

Vorbereiten einer Messung

- Alle Geräte einschalten.
- Die Versorgungsspannung der Gunnediode am Agilent-Netzteil **langsam** auf **10,00V** für das X-Band bzw. **5,00V** für das K-Band erhöhen. Mit der Messung sollte erst begonnen werden, wenn der Strom konstant bei ungefähr **451mA** für das X-Band und **93mA** für das K-Band liegt.
- Am Lock-In-Verstärker ist eine Time Constant von **1s** der Standardwert. Die Sensitivity hängt vom Probensignal ab, ein ungefährender Richtwert sind $100\mu\text{V}$ (auf Overload achten!). Die Modulation im rechten Teil des Lock-In-Verstärkers einstellen: Standardwerte sind hier für beide Frequenzbänder: Phase ca. **71°**, Freq **213Hz**, Ampl **+0,150V**.
- Jetzt muss die Phase der Mikrowelle justiert werden. Davor sollte man sich erden, um den Gunnplexer nicht durch elektrostatische Entladungen zu beschädigen. Entscheidend ist der DC Spannungswert am Keithley Multimeter. Nun muss so lange am Phasenschieber am Versuchsaufbau gedreht werden, bis dieser Wert ein (betragsmäßiges) Minimum annimmt. Durch weiteres Drehen versucht man, beide Komponenten (X und Y) des Lock-In-Verstärkers möglichst klein zu machen, um eine entsprechend niedrige Sensitivity wählen zu können. (Hierbei ist es hilfreich, die Time constant des LI kurzzeitig auf 100ms zu erniedrigen.)
- Am dynavox Audioverstärker wird mit dem Lautstärkereger die Größe der Magnetfeldmodulation eingestellt. Die am gelben Hewlett Packard Multimeter ablesbare Spannung kann in der am Messplatz ausliegenden Umrechnungstabelle einer Modulationsamplitude zugeordnet werden. Ein Richtwert für ferromagnetische Proben ist eine Spannung von **25mV** am Multimeter, was bei 213Hz im X-Band einer Modulation von 3mT entspricht.

- Der Lock-In-Verstärker wird auf *Aux Out* gestellt. Der hier angezeigte Wert gibt die Steuerungsspannung für die Stromquelle des Elektromagneten an und sollte noch auf 0,000V stehen.

Starten einer Messung

- Die Messeinrichtung lässt sich über den PC mit LabVIEW steuern. Folgende Programme müssen aufgerufen werden:
 - Steuerung für den Drehtisch: *wmi1.vi* unter *D:\Labview_progs\Drehtisch*
 - Messung eines einzelnen FMR-Spektrums: *FMR.vi* unter *D:\Labview_progs*
 - Skript-Generator: *FMR_Skript_Generator.vi* unter *D:\Labview_progs*
 - Sequence Control: *Sequence control_3-MOKE-seb.ms.vi* unter *D:\Labview_progs*
- Vor Beginn der eigentlichen Messung müssen ein paar Testmessungen zum Anpassen der Parameter gemacht werden. Je nach Probe bieten sich dazu Messungen bei z.B. 0°, 45° und 90° an. Dafür wird im Programm *wmi1.vi* bei *Destination Position* der gewünschte Wert eingegeben und auf *Run* geklickt. Bei der Eingabe ist darauf zu achten, dass zwei Nachkommastellen mit angegeben werden müssen, also für 45,00° ist „4500“ einzugeben.
- Im Programm *FMR.vi* wird nun die minimale und die maximale Steuerungsspannung (möglich sind 0V bis 10V) bei *start field* und *end field* eingegeben. Bei den Testmessungen sollte man den kompletten Bereich abfahren um zu schauen, auf welches Intervall man sich nachher beschränken kann. Bei *end field* lässt sich in der zweiten Spalte die Schrittweite definieren. Für Testmessungen ist im Allgemeinen 0,020V ausreichend.
- Unter *b* und *a* sind Korrekturparameter für das Magnetfeld einzugeben, da sich die Hallsonde nicht genau im Zentrum des Magneten befindet. Die Parameter sind unterschiedlich für X- und K-Band:

	<i>a</i>	<i>b</i>
X-Band	0,000125	0,04688
K-Band	0,00111	0,00974

- Nachdem man unter *file path* Verzeichnis und Dateinamen gewählt hat lässt sich die Messung durch Klicken auf *Run* starten. Der *Aux Out* des Lock-In-Verstärkers zeigt nun den aktuellen Magnetfeldspannungswert an.
- Nach Ende der Messung ist UNBEDINGT die Steuerungsspannung am Lock-In-Verstärker manuell über das Drehrad langsam auf den Anfangswert der folgenden

Testmessung zurückzudrehen, da sonst bei Start der nächsten Messung der Wert abrupt auf 0V springen würde.

Auswerten der Testmessungen

- Die Auswertung der erzeugten *.dat Dateien erfolgt mit Origin.
- Dazu werden die Daten über *New Worksheet* und *Import ASCII* hereingeladen.
- Die erste Spalte (A) gibt das Magnetfeld in Tesla an, die zweite (B) und dritte (C) Spalte sind die X- und Y- Komponente des Lock-In-Verstärkers in Volt, die vierte (D) Spalte ist die Steuerungsspannung in Volt.
- Zuerst trägt man B und C gegen A auf und zoomt speziell in den Bereich der Resonanz. In C soll dabei möglichst kein Anteil des Signals stecken. Ist das doch der Fall, muss die Phase korrigiert werden. Der entsprechende Wert lässt sich wie folgt bestimmen: Man gibt im *Script Window* ein: „run user-schwarz.txt“. Nun wählt man die Spalten B und C des Worksheets aus und klickt oben in der Menüleiste auf *User* und dann auf *Shift phase*. Hier ist nun der optimale Wert zu ermitteln. Dann den am Lock-In-Verstärker eingestellten Wert anpassen.
- Import aller Testmessungen.
- Um den benötigten Bereich für die Steuerungsspannung zu bestimmen, trägt man nun B gegen D für alle getesteten Winkel auf und wählt einen großzügigen Bereich um die Resonanzpeaks.
- Sollte der Resonanzpeak zu schwach ausgeprägt sein, kann man versuchen, die Messung mit einer größeren Modulationsamplitude durchzuführen. Dazu erhöht man die Lautstärke am Audioverstärker. Dabei auf Übermodulation der Resonanzlinie achten.
- Sensitivity an die Signalhöhe anpassen.
- Reicht die Schrittweite aus, um Maximum und Minimum der Resonanz genau bestimmen zu können?

Mit den Testmessungen sollte man also folgende Parameter bestimmen:

- optimale Lock-In-Phase
- geeignete Modulationsamplitude
- benötigter Spannungsbereich für das Magnetfeld
- nötige Schrittweite
- Sensitivity

Starten der kompletten Messreihe

- Für eine automatisierte FMR-Winkelserie muss eine Skriptdatei mit dem Programm FMR_Skript_Generator.vi erzeugt werden.
- Hier ist bei *Script file path* anzugeben, wo das Skript (*.txt) abgelegt wird. Bei *Measurement files - name prefix* wird der Ort und das Präfix der Messdateien festgelegt. Das Programm hängt automatisch ein **n** für die **n**-te Messung an den Dateinamen an.
- Im Panel *settings FMR spectrum* müssen nun der ermittelte Anfangs- und Endwert für die Steuerungsspannung sowie Schrittweite und Sensitivity eingegeben werden. Standardwert für die Wartezeit ist **500ms**.
- Rechts daneben im Panel *settings sample rotation* wird der abzufahrende Winkelbereich definiert. Standardmäßig wird hier ein Bereich von **-20°** bis **+200°** in **5°** Schritten gewählt. Die Wartezeit zwischen den einzelnen Winkelmessungen beträgt **10s**.
- Klicken auf *Run* erstellt die Skriptdatei am angegebenen Ort.
- Aufgrund der Hysterese der Kegelradumlenkung muss mit dem Programm wmi1.vi der Drehtisch auf einen Winkel von z.B. **-30,00°** gefahren werden.
- Dann wird das Programm Sequence control_3-MOKE-seb_ms.vi verwendet. Hier klickt man ohne weitere Einstellungen auf *Run*, worauf sich ein Fenster öffnet. Darin muss man den Pfad der Skriptdatei angeben. Jetzt wird automatisch der benötigte Winkel eingestellt und das Programm FMR.vi mit den vorher eingegebenen Parametern aufgerufen.

Anhang C

CAD-Skizzen

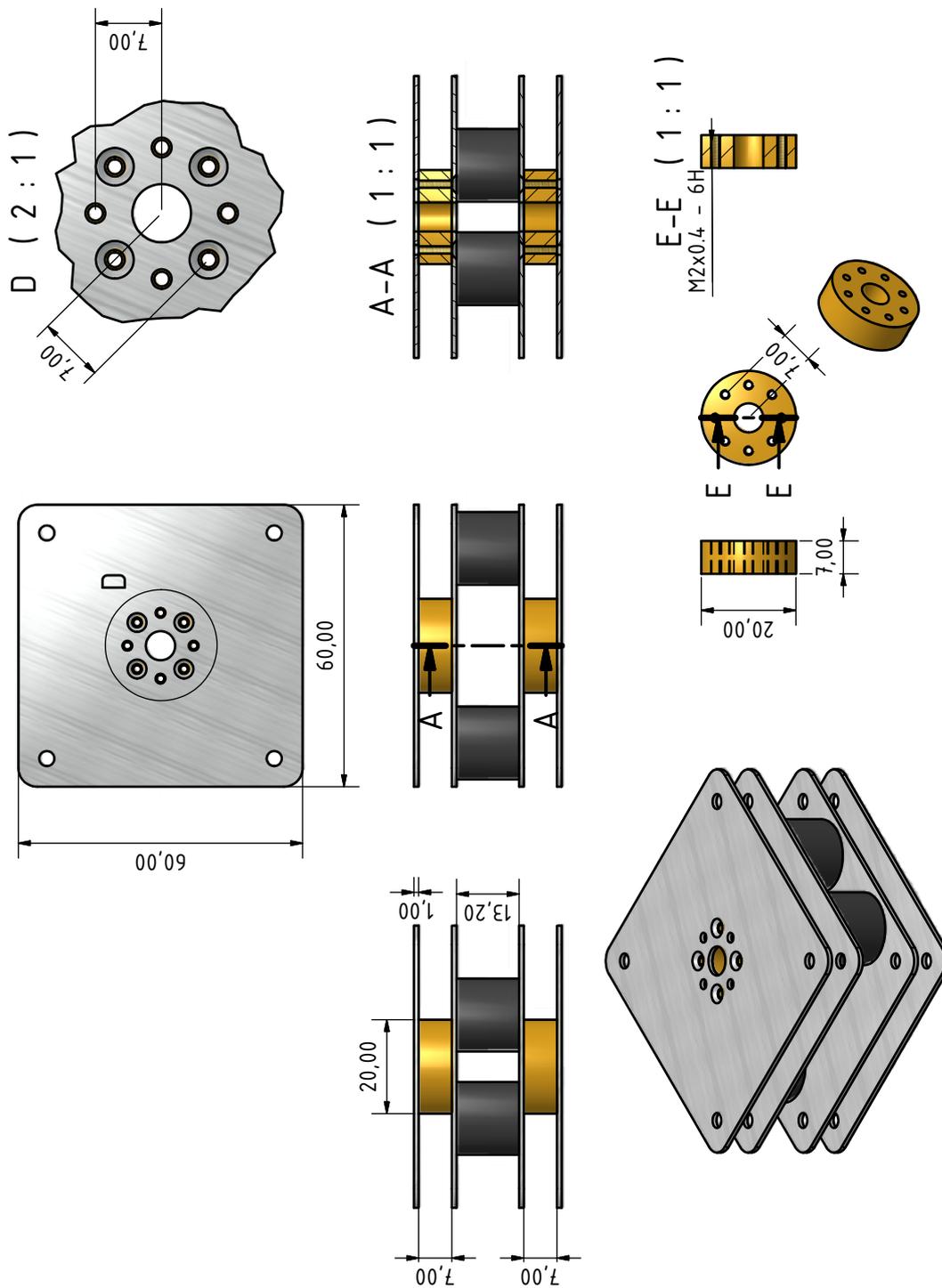


Abbildung C.1: CAD-Skizze der Modulationsspule für das X-Band.

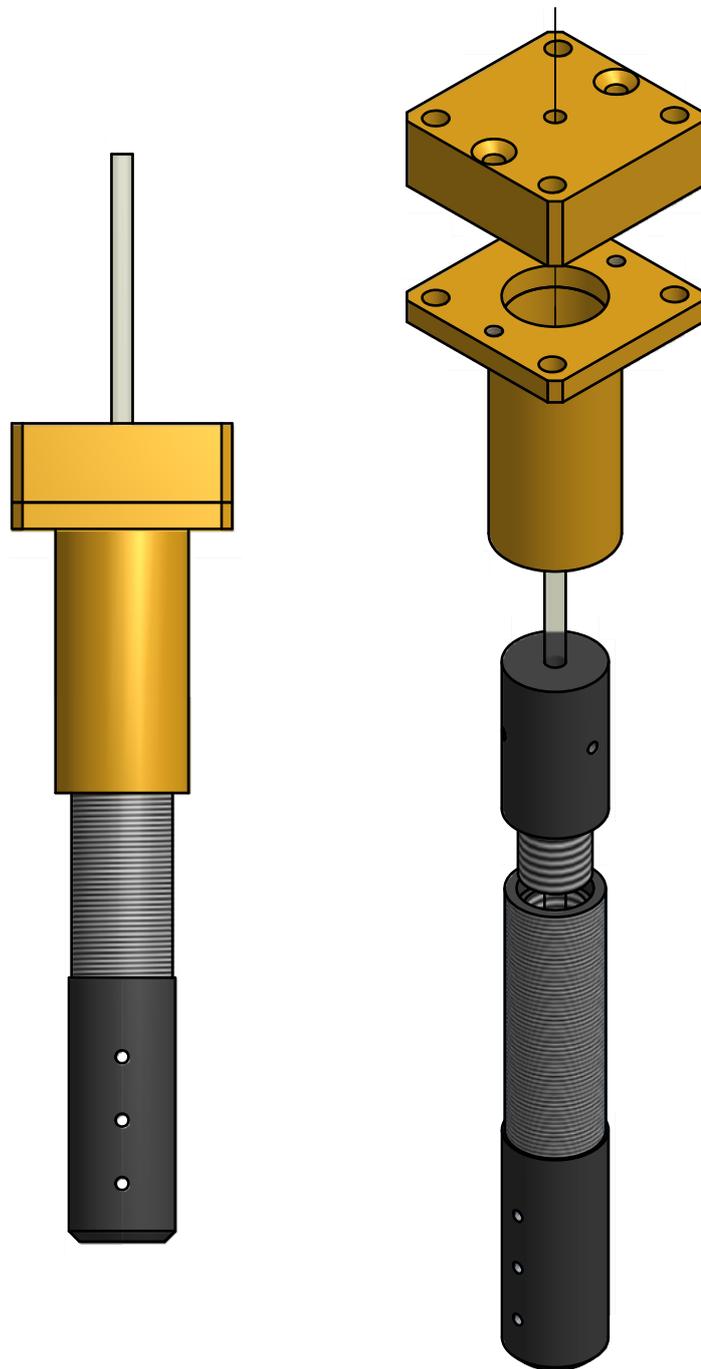
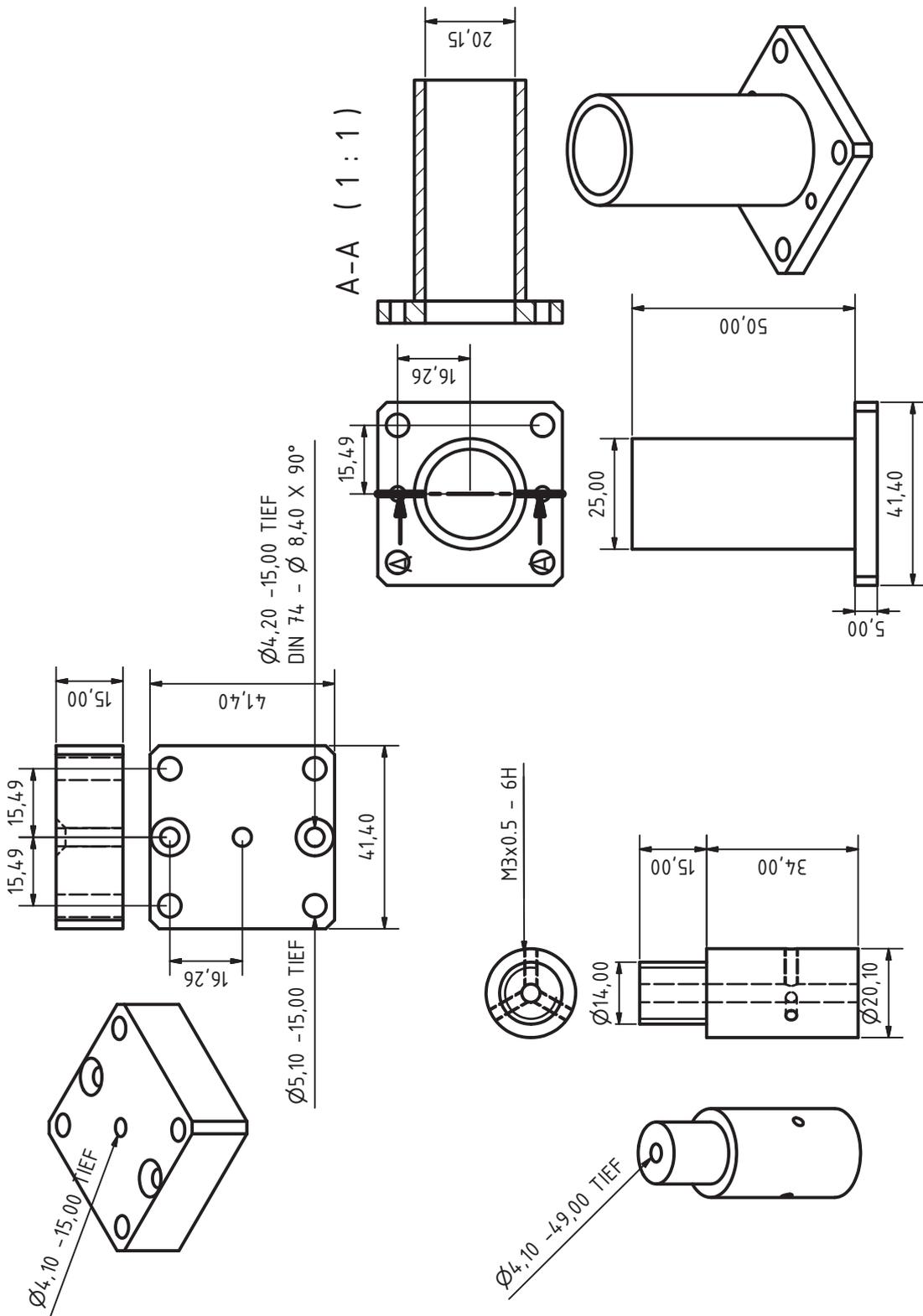


Abbildung C.2: CAD-Skizze der Probenhalterung für das X-Band.



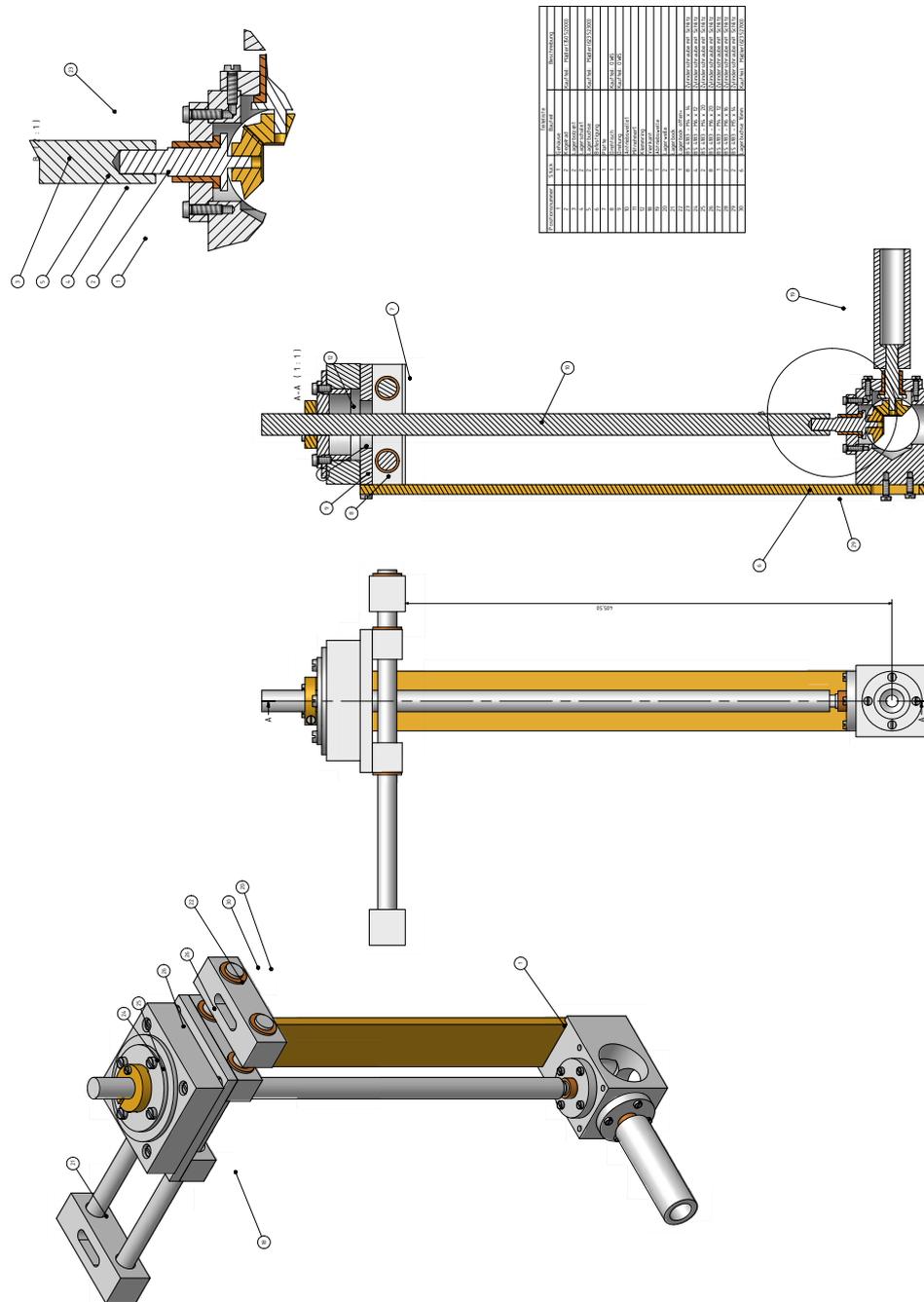


Abbildung C.3: CAD-Skizze der Vorrichtung zur automatischen Probenrotation von T. Brenninger.

Literaturverzeichnis

- [1] BAIBICH, M. N., J. M. BROTO, A. FERT, F. N. VAN DAU, F. PETROFF, P. EITENNE, G. CREUZET, A. FRIEDERICH und J. CHAZELAS: *Giant Magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr Magnetic Superlattices*. Physical Review Letters, 61:2472, 1988.
- [2] BINASCH, G., P. GRÜNBERG, F. SAURENBACH und W. ZINN: *Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange*. Phys. Rev. B, 39(7):4828–4830, Mar 1989.
- [3] SLONCZEWSKI, J. C.: *Current-driven excitation of magnetic multilayers*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 159:L1–L7, 1996.
- [4] BERGER, L.: *Emission of spin waves by a magnetic multilayer traversed by a current*. Phys. Rev. B, 54(13):9353–9358, Oct 1996.
- [5] ZHANG, S., P. M. LEVY und A. FERT: *Mechanisms of Spin-Polarized Current-Driven Magnetization Switching*. Phys. Rev. Lett., 88(23):236601, May 2002.
- [6] SPALDIN, NICOLA A. und MANFRED FIEBIG: *The Renaissance of Magnetoelectric Multiferroics*. Science, 309:391, 2005.
- [7] EERENSTEIN, W., N. D. MATHUR und J. F. SCOTT: *Multiferroic and magnetoelectric materials*. Nature, 442:759, 2006.
- [8] BOOTSMANN, M.-T., S. DOKUPIL, E. QUANDT, T. IVANOV, N.C. ABEDINOV und M. LOHDORF: *Switching of magnetostrictive micro-dot arrays by mechanical strain*. Magnetics, IEEE Transactions on, 41(10):3505–3507, Oct. 2005.
- [9] BRANDLMAIER, A., S. GEPRÄGS, M. WEILER, A. BOGER, M. OPEL, H. HUEBL, C. BIHLER, M. S. BRANDT, B. BOTTERS, D. GRUNDLER, R. GROSS und S. T. B. GOENNENWEIN: *In situ manipulation of magnetic anisotropy in magnetite thin films*. Physical Review B, 77:104445, 2008.
- [10] GOENNENWEIN, S. T. B., M. ALTHAMMER, C. BIHLER, A. BRANDLMAIER, S. GEPRÄGS, M. OPEL, W. SCHOCH, W. LIMMER, R. GROSS und M. S. BRANDT: *Piezo-voltage control of magnetization orientation in a ferromagnetic semiconductor*. physica status solidi (RRL), 2:96, 2008.

- [11] BIHLER, C., M. ALTHAMMER, A. BRANDLMAIER, S. GEPRAGS, M. WEILER, M. OPEL, W. SCHOCH, W. LIMMER, R. GROSS, M. S. BRANDT und S. T. B. GOENNENWEIN: *Ga_{1-x}Mn_xAs/piezoelectric actuator hybrids: A model system for magnetoelastic magnetization manipulation*. Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics), 78(4):045203, 2008.
- [12] WEILER, M., A. BRANDLMAIER, S. GEPRAEGS, M. ALTHAMMER, M. OPEL, C. BIHLER, H. HUEBL, M. S. BRANDT, R. GROSS und S. T. B. GOENNENWEIN: *Voltage controlled inversion of magnetic anisotropy in a ferromagnetic thin film at room temperature*. Cond. Mat. oai:arXiv.org:0810.0389, 2008.
- [13] JOHNSON, M T, P J H BLOEMEN, F J A DEN BROEDER und J J DE VRIES: *Magnetic anisotropy in metallic multilayers*. Reports on Progress in Physics, 59(11):1409–1458, 1996.
- [14] SCHWARZ, K: *CrO₂ predicted as a half-metallic ferromagnet*. Journal of Physics F: Metal Physics, 16(9):L211–L215, 1986.
- [15] ANGUELOUCH, A., A. GUPTA, GANG XIAO, D. W. ABRAHAM, Y. JI, S. INGVARSSON und C. L. CHIEN: *Near-complete spin polarization in atomically-smooth chromium-dioxide epitaxial films prepared using a CVD liquid precursor*. Phys. Rev. B, 64(18):180408, Oct 2001.
- [16] BLOCH, F.: *Nuclear Induction*. Phys. Rev., 70(7-8):460–474, Oct 1946.
- [17] WEILER, MATHIAS: *Magnetization control in multiferroic heterostructures*. Diplomarbeit, Walther-Meissner-Institut, 2007.
- [18] BRANDT, MARTIN S.: *Spinabhängiger Transport und Rekombination in Halbleitern*. Doktorarbeit, Max-Planck-Institut für Festkörperforschung Stuttgart, 1992.
- [19] POOLE, C. P.: *Electron Spin Resonance*. Interscience Publishers, 1967.
- [20] GILBERT, THOMAS L.: *A Phenomenological Theory of Damping in Ferromagnetic Materials*. IEEE Transactions On Magnetism, 40:3443, 2004.
- [21] GOENNENWEIN, S. T. B.: *Two-Dimensional Electron Gases and Ferromagnetic Semiconductors: Materials for Spintronics*. Doktorarbeit, Technische Universität München, 2003.
- [22] BRANDLMAIER, A.: *Magnetische Anisotropie in dünnen Schichten aus Magnetit*. Diplomarbeit, Walther-Meissner-Institut, 2006.
- [23] BLUNDELL, S.: *Magnetism in Condensed Matter*. Oxford University Press, 2001.
- [24] MORRISH, A. H.: *The Physical Principles of Magnetism*. IEEE Press, 2001.

- [25] SZE, S. M.: *Physics of Semiconductor Devices*. Wiley-Interscience, 1981.
- [26] MDT CORPORATION: *Datenblatt: Voltage Controlled Transceivers*.
- [27] MDT CORPORATION: *Fundamentals Of Commercial Doppler Systems*.
- [28] PEHL, ERICH: *Mikrowellentechnik Band 1: Wellenleitungen und Leitungsbausteine*. Dr. Alfred Hüthig Verlag GmbH, 1984, S. 58ff.
- [29] PEHL, ERICH: *Mikrowellentechnik Band 1: Wellenleitungen und Leitungsbausteine*. Dr. Alfred Hüthig Verlag GmbH, 1984, S. 69f.
- [30] PEHL, ERICH: *Mikrowellentechnik Band 1: Wellenleitungen und Leitungsbausteine*. Dr. Alfred Hüthig Verlag GmbH, 1984, S. 134.
- [31] PEHL, ERICH: *Mikrowellentechnik Band 1: Wellenleitungen und Leitungsbausteine*. Dr. Alfred Hüthig Verlag GmbH, 1984, S. 155f.
- [32] LAKE SHORE CRYOTRONICS, INC.: *Model 642 Electromagnet Power Supply*.
- [33] PEREIRA, RUI N., ANDRÉ STEGNER und HANS HUEBL: *Fortgeschrittenen-Praktikum: Electron Paramagnetic Resonance*.
- [34] LACHNER, JOHANNES, ALEXANDER MEHLICH und MANUEL J. SCHWARZ: *Fortgeschrittenenpraktikum: Auswertung zum Versuch Elektronenspinresonanz*.
- [35] BRONSTEIN, I. N., K. A. SEMENDJAJEW, G. MUSIOL und H. MÜHLIG: *Taschenbuch der Mathematik*. Harri Deutsch, 2001.
- [36] GRAF, TOBIAS: *Spin-Spin interactions of localized electronic states in semiconductors*. Doktorarbeit, Technische Universität München, 2003.
- [37] SCHROMM, STEFAN: *Hochfeld-ESR-Spektroskopie molekularer Eisen-Sterne*. Doktorarbeit, Friedrich-Alexander-Universität Erlangen-Nürnberg.
- [38] WOLF, S. A., D. D. AWSCHALOM, R. A. BUHRMAN, J. M. DAUGHTON, S. VON MOLNAR, M. L. ROUKES, A. Y. CHTCHELKANOVA und D. M. TREGER: *Spintronics: A Spin-Based Electronics Vision for the Future*. Science, 294(5546):1488–1495, 2001.
- [39] OHNO, H.: *Making Nonmagnetic Semiconductors Ferromagnetic*. Science, 281:951, 1998.
- [40] MACDONALD, A. H., P. SCHIFFER und N. SAMARTH: *Ferromagnetic semiconductors: moving beyond (Ga,Mn)As*. Nature Materials, 4:195–202, 2005.
- [41] COEY, J. M. D. und M. VENKATESAN: *Half-metallic ferromagnetism: Example of CrO₂ (invited)*. Band 91, Seiten 8345–8350. AIP, 2002.

- [42] HWANG, H. Y. und S.-W. CHEONG: *Enhanced Intergrain Tunneling Magnetoresistance in Half-Metallic CrO₂ Films*. Science, 278:1607, 1997.
- [43] KÄMPER, K. P., W. SCHMITT, G. GÜNTHERODT, R. J. GAMBINO und R. RUF: *CrO₂—A New Half-Metallic Ferromagnet?* Phys. Rev. Lett., 59(24):2788–2791, Dec 1987.
- [44] SOULEN, R. J., JR., J. M. BYERS, M. S. OSOFSKY, B. NADGORNÝ, T. AMBROSE, S. F. CHENG, P. R. BROUSSARD, C. T. TANAKA, J. NOWAK, J. S. MOODERA, A. BARRY und J. M. & NBS P; D. COEY: *Measuring the Spin Polarization of a Metal with a Superconducting Point Contact*. Science, 282(5386):85–88, 1998.
- [45] CHAMBERLAND, B. L.: *The chemical and physical properties of CrO₂ and tetravalent chromium oxide derivatives*. Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences, 7:1–31, 1977.
- [46] LI, X. W., A. GUPTA und GIANG XIAO: *Influence of strain on the magnetic properties of epitaxial (100) chromium dioxide (CrO₂) films*. Applied Physics Letters, 75(5):713–715, 1999.
- [47] KOROTIN, M. A., V. I. ANISIMOV, D. I. KHOMSKII und G. A. SAWATZKY: *CrO₂: A Self-Doped Double Exchange Ferromagnet*. Phys. Rev. Lett., 80(19):4305–4308, May 1998.
- [48] LEWIS, STEVEN P., PHILIP B. ALLEN und TAIZO SASAKI: *Band structure and transport properties of CrO₂*. Phys. Rev. B, 55(16):10253–10260, Apr 1997.
- [49] R. J. SOULEN, JR., M. S. OSOFSKY, B. NADGORNÝ, T. AMBROSE, P. BROUSSARD, S. F. CHENG, J. BYERS, C. T. TANAKA, J. NOWACK, J. S. MOODERA, G. LAPRADE, A. BARRY und M. D. COEY: *Andreev reflection: A new means to determine the spin polarization of ferromagnetic materials*. 85(8):4589–4591, 1999.
- [50] JI, Y., G. J. STRIJKERS, F. Y. YANG, C. L. CHIEN, J. M. BYERS, A. ANGUELOUCH, GANG XIAO und A. GUPTA: *Determination of the Spin Polarization of Half-Metallic CrO₂ by Point Contact Andreev Reflection*. Phys. Rev. Lett., 86(24):5585–5588, Jun 2001.
- [51] DEDKOV, YU. S., M. FONINE, C. KÖNIG, U. RÜDIGER, G. GÜNTHERODT, S. SENZ und D. HESSE: *Room-temperature observation of high-spin polarization of epitaxial CrO₂(100) island films at the Fermi energy*. Applied Physics Letters, 80(22):4181–4183, 2002.
- [52] GOLD, S.: *Winkel- und Temperaturabhängigkeit der magnetokristallinen Anisotropieenergie und der mikroskopischen magnetischen Momente des ferromagnetischen Halbmetalls CrO₂*. Doktorarbeit, Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 2005.

- [53] MIAO, GUOXING, GANG XIAO und ARUNAVA GUPTA: *Variations in the magnetic anisotropy properties of epitaxial CrO₂ films as a function of thickness*. Physical Review B (Condensed Matter and Materials Physics), 71(9):094418, 2005.
- [54] RAMEEV, B. Z., R. YILGIN, B. AKTAS, A. GUPTA und L. R. TAGIROV: *FMR studies of CrO₂ epitaxial thin films*. Microelectronic Engineering, 69:336–340, 2003.
- [55] RAMEEV, B. Z., A. GUPTA, G. X. MIAO, G. XIAO, F. YILDIZ, L. R. TAGIROV und B. AKTAS: *FMR study of strain-induced magnetic anisotropies in CrO₂ thin films*. physica status solidi, 201:3350–3353, 2004.
- [56] RAMEEV, B.Z., A. GUPTA, F. YILDIZ, L.R. TAGIROV und B. AKTAS: *Strain-induced magnetic anisotropies in epitaxial CrO₂ thin films probed by FMR technique*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 300:e526–e529, 2006.
- [57] ANGUELOUCH, A., A GUPTA und G XIAO: *Thickness dependence of magnetic and transport properties of chromium dioxide (CrO₂) strained epitaxial thin films*. IEEE TRANSACTIONS ON MAGNETICS, 37:4, 2001.
- [58] RAMEEV, B. Z., A. GUPTA, A. ANGUELOUCH, G. XIAO, F. YILDIZ, L. R. TAGIROV und B. AKTAS: *Probing magnetic anisotropies in half-metallic CrO₂ epitaxial films by FMR*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 272-276:1167–1168, 2004.
- [59] ISAAK, D.G., J.D. CARNES, O.L. ANDERSON und H. CYNNE E. HAKE: *Elasticity of TiO₂ rutile to 1800 K*. Phys Chem Minerals, 26:31–43, 1998.
- [60] MATTHEWS, J.W. und A.E. BLAKESLEE: *Defects in epitaxial multilayers: I. Misfit dislocations*. Journal of Crystal Growth, 27:118–125, 1974.
- [61] MATTHEWS, J. W.: *Defects associated with the accommodation of misfit between crystals*. Journal of Vacuum Science and Technology, 12(1):126–133, 1975.
- [62] MATTHEWS, J. W. (Herausgeber): *Epitaxial Growth*. Academic Press, 1975.
- [63] SUZUKI, T., Y. NISHI und M. FUJIMOTO. *Philos. Mag. A*, 79:2461, 1999.
- [64] OH, SANG HO und CHAN GYUNG PARK: *Misfit strain relaxation by dislocations in SrRuO₃/SrTiO₃ (001) heteroepitaxy*. Journal of Applied Physics, 95(9):4691–4704, 2004.
- [65] RANNO, L., A. BARRY und J. M. D. COEY: *Production and magnetotransport properties of CrO₂ films*. Band 81, Seiten 5774–5776. AIP, 1997.
- [66] MIAO, GUO-XING, GANG XIAO und ARUNAVA GUPTA: *Influence of substrate treatment on the growth morphology and magnetic anisotropy of epitaxial CrO₂ films*. physica status solidi, 203:1513–1520, 2006.

- [67] CELINSKI, Z. und B. HEINRICH: *Ferromagnetic resonance linewidth of Fe ultrathin films grown on a bcc Cu substrate*. Journal of Applied Physics, 70:5935–5937, 1991.
- [68] MECKENSTOCK, RALF: *Untersuchung der magnetischen Eigenschaften von Fe/Ag-Schichtsystemen mit der konventionellen und der orts aufgelösten ferromagnetischen Resonanz*. Doktorarbeit, Ruhr-Universität Bochum, 1997.
- [69] VONSOVSKII, S. V.: *Ferromagnetic Resonance*. Pergamon Press, New York, 1966.
- [70] GROSS, R. und A. MARX: *Spinelektronik - Vorlesungsskript*, 2004.
- [71] PELKNER, MATTHIAS. Diplomarbeit, Walther-Meissner-Institut Garching, 2008.
- [72] STONER, E. C. und E. P. WOHLFARTH: *A mechanism of magnetic hysteresis in heterogenous alloys*. Philos. Trans. R. Soc. London A, Math. Phys. Sci., A240:599–642, 1948.
- [73] O'HANDLEY, ROBERT C.: *Modern Magnetic Materials*. John Wiley & Sons, 2000.
- [74] TANNOUS, C. und J. GIERALTOWSKI: *The Stoner-Wohlfarth model of Ferromagnetism: Static properties*. 2006.
- [75] STANCU, ALEXANDRU und IRINEL CHIORESCU: *Crossover Condition in the Coherent Rotation Model and the Preisach-Type Models*. IEEE Transactions On Magnetics, 33:2573, 1997.
- [76] HEINRICH, B. und J. F. COCHRAN: *Ultrathin metallic magnetic films: magnetic anisotropies and exchange interactions*. Advances in Physics, 42:5:523, 1993.
- [77] LINDNER, J. und K. BABERSCHKE: *Ferromagnetic resonance in coupled ultrathin films*. J. Phys.: Condens. Matter, 15:465, 2003.
- [78] COLLINS, M. A., S. D. DEVINE, R. A. HOFFMAN und W. H. ROBINSON: *Ultrasonic Modulated Electron Resonance*. Journal of Magnetic Resonance, 6:376, 1972.
- [79] BOEF, J. H. DEN und J. C. M. HENNING: *A strain-modulated electron spin resonance spectrometer*. Review of Scientific Instruments, 45:1199, 1974.
- [80] HENNING, J. C. M. und J. H. DEN BOEF: *Magnetostriction Measurement by Means of Strain Modulated Ferromagnetic Resonance (SMFMR)*. Applied Physics A, 16:353, 1978.
- [81] ZUBEREK, R., H. SZYMCZAK, D. ZYMIERSKA, G. SURAN und M. NAILI: *Magnetostriction of amorphous CoZrM (M = Ti, Nb, Pt) thin films*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 104-107:117, 1992.

-
- [82] ZUBEREK, R., K. FRONC, A. SZEWCZYK und H. SZYMCZAK: *FMR and SMFMR investigation of epitaxial Fe/GaAs(001) thin films with Si and Ge overlayer*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 260:386, 2003.
- [83] SZYMCZAK, H.: *From almost zero magnetostriction to giant magnetostrictive effects: recent results*. Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 200:425, 1999.
- [84] EKREEM, N. B., A. G. OLABI, T. PRESCOTT, A. RAFFERTY und M. S. J. HASHMI: *An overview of magnetostriction, its use and methods to measure these properties*. Journal of Materials Processing Technology, 191:96, 2007.
- [85] PIEZOMECHANIK GMBH, MÜNCHEN: *Low voltage co-fired multilayer stacks, rings and chips for actuation*, 2006.
- [86] VISHAY MEASUREMENTS GROUP: *Precision Strain Gages*.

Danksagung

Abschließend möchte ich mich bei all denen bedanken, die durch fachliche oder freundschaftliche Unterstützung zum Entstehen dieser Diplomarbeit beigetragen haben. Insbesondere gilt mein Dank:

Prof. Dr. Rudolf Gross, der mir die Möglichkeit gab, diese Diplomarbeit am Walther-Meissner-Institut anfertigen zu können. Des Weiteren danke ich ihm für die lehrreichen Diskussionen und Erklärungen und die unterhaltsamen Geschichten zu allen Themenbereichen.

Dr. Sebastian T. B. Gönnerwein, für die hervorragende Betreuung dieser Diplomarbeit. Besonders danke ich ihm für seine motivierenden und humorvollen Worte und für die viele Zeit, die er für diese Arbeit aufgebracht hat; zum einen dafür, selbst für ein „schnelles“ Freitag-Nachmittag-Experiment mit im Labor zu stehen; zum anderen dafür, immer sofort einen Lösungsvorschlag zu finden, wenn ich mal wieder ratlos vor seiner Tür stand.

Andreas Brandlmaier, vor allem für die Zusammenarbeit bei PMFMR, aber auch für viele weitere Hilfestellungen zu FMR-Simulationen und anderem. Seine große Ausdauer und Frustrationstoleranz beim Lösen von Problemen hat mich oft beeindruckt.

Mathias Weiler, der mir ebenfalls ein kompetenter Ansprechpartner in allen fachlichen Fragen und besonders zu FMR war. Seine Begeisterung beim Erklären von physikalischen Zusammenhängen machte es sehr angenehm, von ihm zu lernen. Besonders danke ich ihm auch für eine gründliche Korrektur des Großteils dieser Arbeit.

Franz Czeschka, für die Unterstützung bei allen Fragen zu Chromdioxid. Außerdem danke ich ihm dafür, die Betreuung des FMR-Messplatz übernommen zu haben. Bei seiner überlegten Arbeitsweise weiß ich „meinen“ Aufbau in guten Händen.

Prof. Dr. Martin Brandt, der mir sein ESR-Labor für Messungen zur Verfügung stellte. Außerdem danke ich ihm für seine Erklärungen zu theoretischen oder technischen Details der FMR-Spektroskopie und nicht zuletzt für seine lustigen und informativen Geschichten über die Welt inner- und außerhalb der Uni.

Christoph Bihler, der mir eine gründliche Einführung in die Benutzung der ESR-Anlage am WSI gab und bei allen meinen weiteren Fragen zur Stelle war. Außerdem danke ich

ihm, wie allen weiteren Teilnehmern des Walt(h)er-Seminars, für Hinweise und Verbesserungsvorschläge.

Dr. Matthias Opel, für viele kleine Tipps und Ratschläge.

Mathias Pelkner, der mit mir die MOKE-Messungen durchgeführt hat.

Prof. Dr. Arunava Gupta, University of Alabama, Tuscaloosa, USA und Dr. Georg Woltersdorf, Universität Regensburg, für die Bereitstellung von Proben.

Thomas Brenninger, der die automatische Probendrehung konstruiert hat und bei weiteren technischen Fragen immer hilfsbereit war.

Robert Müller, der mir bei der Anfertigung einiger Komponenten half. Dank seiner Einführung in Bohrmaschine und Drehbank konnte ich diese bis zu einem gewissen Punkt selbst anfertigen; darüber hinaus war er mit Rat und Tat zur Stelle.

Helmut Thies und seiner Werkstatt-Mannschaft für das Bauen der automatischen Probendrehung.

Allen weiteren technischen und wissenschaftlichen Mitarbeitern und insbesondere auch meinen Zimmergenossen für Hilfestellungen jedweder Art.

Schließlich danke ich meinen Freunden und meiner Familie für die Unterstützung außerhalb des Uni-Alltags.