

# Magnetische Korrelationen in lateral strukturierten Fe/Cr-Schichtsystemen

von  
Elisabeth Josten

Diplomarbeit in Physik  
angefertigt am  
Institut für Festkörperforschung - Streumethoden (IFF-4)  
Forschungszentrum Jülich

vorgelegt der  
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät  
der  
Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität  
Bonn

im August 2009



„Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt sowie die Zitate kenntlich gemacht habe.“

Referent: Prof. Dr. Thomas Brückel  
Korreferent: Prof. Dr. Karl Maier



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>7</b>
<b>2</b>	<b>Theoretischer Hintergrund</b>	<b>9</b>
2.1	Konkurrierende magnetische Einflüsse in Fe/Cr-Mehrfachschichtsystemen . . . . .	9
2.2	Neutronenstreuung . . . . .	13
2.2.1	Streuthetheorie . . . . .	13
2.2.2	Neutronenreflektometrie mit Polarisationsanalyse und offspekulärer Streuung . . . . .	16
<b>3</b>	<b>Experimentelle Methoden</b>	<b>23</b>
3.1	Probenpräparation . . . . .	23
3.1.1	Molekularstrahlepitaxie . . . . .	23
3.1.2	Nanoimprint Lithografie . . . . .	25
3.1.3	Ätzprozesse . . . . .	27
3.2	Probencharakterisierung . . . . .	29
3.2.1	Beugung niederenergetischer Elektronen . . . . .	29
3.2.2	Magnetooptischer Kerr-Effekt . . . . .	30
3.2.3	Rasterelektronenmikroskop . . . . .	33
3.2.4	Rasterkraftmikroskop . . . . .	35
3.2.5	Neutronenreflektometer TREFF . . . . .	36
<b>4</b>	<b>Präparation und Strukturierung von Fe/Cr-Schichtsystemen</b>	<b>39</b>
4.1	Probenherstellung mit Hilfe der Molekularstrahlepitaxie . . . . .	39
4.2	Strukturierung mittels Nanoimprint Lithografie und reaktivem Ionenätzen	41
<b>5</b>	<b>Magnetische Eigenschaften von Fe/Cr-Schichtsystemen</b>	<b>55</b>
5.1	Abhängigkeit der Eigenschaften von der Anzahl der Fe-Schichten . . . . .	55
5.1.1	Untersuchung der makroskopischen magnetischen Eigenschaften . . . . .	56
5.1.2	Neutronenstreuung mit Polarisationsanalyse . . . . .	60
5.2	Einfluß der lateralen Strukturierung . . . . .	72
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>79</b>
<b>7</b>	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>83</b>
	<b>Anhang A: Daten der Simulation zur Neutronenreflektometrie</b>	<b>85</b>



# Kapitel 1

## Einleitung

Magnetische Schichtsysteme sind wichtige Bestandteile der Bauelemente der zukünftigen spinbasierten Informationstechnologie. Die aktuellen Anwendungsgebiete sind bereits sehr vielfältig, ob als magnetischer Speicher (MRAM) oder als Magnetfeldsensoren zum Auslesen der Informationen aus Computer-Festplatten (Ausnutzung des Riesenmagnetowiderstands (GMR)-Effektes [4]).

Die Miniaturisierung solcher Elemente wird immer bedeutender. Die Verkleinerung der Bauelemente führt dazu, dass die gespeicherte Energie pro Bit kleiner und das System immer anfälliger auf äußere Einflüsse wird. Durch geringere Energiebarrieren können thermische Einflüsse das System in seinem Verhalten verändern, so dass die Lebensdauer der gespeicherten Informationen. Zusätzlich werden die Dipol-Einflüsse der Nachbarn immer stärker, da sich ihr Abstand immer weiter verkleinert. Die Industrie hat für die vorhandenen Systeme die Formen und Abstände der Elemente optimiert, um die Beeinflussung durch Streufelder zu verringern. Die genauere Untersuchung der physikalischen Grundlagen kann dies eventuell weiter verbessern. Somit wird eine weitere Miniaturisierung ohne Verlust der Stabilität der Speicherbausteine möglich. Aus diesem Grund ist das Kopplungsverhalten von magnetischen Strukturen von großem Interesse, vor allem um ein physikalisches Verständnis für diese Phänomene zu erhalten.

In dieser Arbeit werden deshalb zwei grundlegende Fragestellungen untersucht:

- Wie beeinflusst eine laterale Strukturierung ein magnetisches Vielfachschichtsystem?
- Wie beeinflussen sich die Magnetisierungen in den einzelnen Strukturen gegenseitig?

Um diese Fragestellung anzugehen, wird ein Modellsystem benötigt, das klare Eigenschaften aufweist, reproduzierbar ist und konkurrierende Einflüsse besitzt. Diese Anforderungen werden durch ein epitaktisches Fe/Cr-Schichtsystem erfüllt. Dies ist ein gut bekanntes und vielfach untersuchtes System, an dem schon in den 80er Jahren die antiferromagnetische Kopplung zweier ferromagnetischer Schichten über eine nicht magnetische, metallische Zwischenschicht nachgewiesen wurde [17, 16]. Aufgrund der gut bekannten Eigenschaften kann man die durch die Strukturierung hervorgerufenen neuen Phänomene leichter interpretieren.

Ein erster Bestandteil dieser Arbeit besteht darin, Fe/Cr-Mehrfachschichtsysteme mit der zur Verfügung stehenden MBE herzustellen. Die Strukturierung der epitaktisch aufgedampften Schichten erfolgt durch Nanoimprintlithografie [14], ein relativ junges, aber vielversprechendes Verfahren in Bezug auf die Miniaturisierung der Strukturen [10, 2, 3]. Ein weiterer wichtiger Bestandteil dieser Arbeit ist die Weiterentwicklung der Nanoimprint

Lithografie zur Strukturierung der Schichtsysteme für kleinflächige Proben und  $1 \times 1 \text{ cm}^2$  große Strukturierungsflächen. Anschließend werden die erzeugten Strukturen mit dem Magnetooptischen Kerr-Effekt vorcharakterisiert und danach durch Neutronenstreuung unter streifendem Einfall mit Polarisationsanalyse untersucht. So ist es uns möglich das magnetische Verhalten des Schichtsysteme Schicht für Schicht mit lateraler Auflösung zu charakterisieren.



# Kapitel 2

## Theoretischer Hintergrund

### 2.1 Konkurrierende magnetische Einflüsse in Fe/Cr-Mehrfachschichtsystemen

In dem in dieser Arbeit untersuchten Modellsystem der Fe/Cr-Mehrfachschichten beeinflussen die magnetische Zwischenschichtaustauschkopplung, diverse Anisotropien und die durch das externe Magnetfeld hervorgerufene Zeeman-Energie das Verhalten der magnetischen Momente der einzelnen Schichten. Die Betrachtung dieser einzelnen Einflüsse und ihr Zusammenspiel benötigt man, um das Verhalten von unstrukturierten magnetischen Mehrfachschichtsystemen in einem äußeren Magnetfeld zu verstehen.

#### Magnetische Zwischenschichtaustauschkopplung

Die Wechselwirkung zwischen zwei ferromagnetischen Schichten über eine nicht ferromagnetische Schicht wird als Zwischenschichtaustauschkopplung bezeichnet. Geometrische Eigenschaften, wie z.B. die Dicke der Zwischenschicht, Abfolge der Materialien, Rauigkeiten der Grenzflächen und auch die elektronische Struktur des Zwischenschichtmaterials beeinflussen diese. Bei geeignetem Schichtmaterial z.B. Fe/Cr, Fe/Au oder Co/Cu und nicht zu hoher Rauigkeit ist diese Kopplung eine Funktion der Dicke der Zwischenschicht, so dass eine parallele (ferromagnetische Kopplung) oder antiparallele (antiferromagnetische Kopplung) Ausrichtung der Schichtmagnetisierungen in Remanenz beobachtbar ist. Durch die Grenzflächenrauigkeit, die beim Aufwachsen der Schichten nie ganz vermeidbar ist, treten Dickenfluktuationen auf, so dass Bereiche ferromagnetischer und antiferromagnetischer Kopplung in der Schichtebene nahe beieinander liegen, die dann im Übergangsbereich eine 90°-Kopplung hervorrufen. An der korrelierten Rauigkeit entstehen zusätzlich Dipolkopplungen der beiden Schichten (orange-peel Kopplung).

In Abhängigkeit des Zwischenschichtmaterials gibt es verschiedene Ursachen für die Kopplung von ferromagnetischen Schichten:

1. Bei 3d-Übergangsmetallen und einer Zwischenschicht, die keine statische magnetische Ordnung besitzt, liegt eine indirekte Austauschkopplung über die Metallelektronen (Leitungselektronen der Zwischenschicht) vor. Der Mechanismus ist analog zur RKKY (Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida)-Wechselwirkung. Art und Stärke der indirekten Austauschkopplung oszillieren als Funktion der Zwischenschichtdicke. Die

Periode der Oszillation ist durch die Bandstruktur des Zwischenschichtmaterials vorgegeben.

2. Besitzt die Zwischenschicht eine antiferromagnetische Ordnung, die durch interatomare antiferromagnetische Austauschkopplung zustande kommt, so gibt es eine direkte Kontakt-Austauschwechselwirkung. Diese Kopplung kommt an der Grenzfläche durch die direkte magnetische Austauschwechselwirkung nächster Nachbarzustände (Überlapp der Wellenfunktionen) zustande. Dies entspricht dem Mechanismus in exchange-bias Systemen.
3. Falls die Zwischenschicht antiferromagnetisch und metallisch ist, kommen noch zusätzliche zur interatomaren Kopplung eine indirekte Wechselwirkungen (RKKY-Wechselwirkung) durch die Metallelektronen (Leitungselektronen in der Zwischenschicht) hinzu. Art und Stärke der indirekten Austauschkopplung oszillieren als Funktion der Zwischenschichtdicke. Die Periode der Oszillation ist durch die Bandstruktur des Zwischenschichtmaterials vorgegeben.

Während die Kopplung über das diamagnetische Au mit aller Wahrscheinlichkeit nach dem Mechanismus 1) stattfindet, erwartet man für Cr oder Mn den in 2 dargestellten Mechanismus der Kopplung.

Eine phänomenologische Beschreibung der Zwischenschichtkopplungsenergie in Abhängigkeit des relativen Winkels der makroskopischen magnetischen Momente lautet wie folgt:

$$E_{Kopplung} = -J_1 \frac{\vec{M}_1 \cdot \vec{M}_2}{|\vec{M}_1| \cdot |\vec{M}_2|} - J_2 \left( \frac{\vec{M}_1 \cdot \vec{M}_2}{|\vec{M}_1| \cdot |\vec{M}_2|} \right)^2 = -J_1 \cos(\Delta\varphi) - J_2 \cos^2(\Delta\varphi) \quad (2.1)$$

$E_{Kopplung}$  ist die Zwischenschichtkopplungsenergie eines Systems zweier ferromagnetischer Schichten, die eine dritte, nichtmagnetische Schicht einschließen.  $\vec{M}_1$  und  $\vec{M}_2$  sind die Magnetisierungsvektoren der ferromagnetischen Schichten und  $\Delta\varphi$  die relativen Winkel zwischen den Magnetisierungen der ferromagnetischen Schichten. Der erste  $J_1$ -Term der Gleichung wird als bilinearer Term,  $J_2$  als biquadratischer Term der Kopplung bezeichnet. Die Form der bilinearen Kopplung ist das makroskopische Analogon zur quantenmechanischen Austauschkopplung zweier Spins. Sie wird durch die Austauschwechselwirkung verursacht. Überwiegt  $J_1$ , so ergibt sich für ein positives  $J_1$  eine ferromagnetische und für ein negatives eine antiferromagnetische Kopplung der Magnetisierungen. Dominiert  $J_2$ , so erhält man für negatives  $J_2$  die 90°-Kopplung. In vielen Proben, in denen eine antiferromagnetische, bilineare Kopplung vorherrscht, existieren auch kleine biquadratische Anteile. Art und Größe der Kopplung sind durch die Werte von  $J_1$  und  $J_2$  beschrieben.

## Anisotropie

In einem Ferromagneten (z.B. Fe) sind die itineranten Elektronen für die spontane Magnetisierung (parallele Spinordnung) verantwortlich. Diese Wechselwirkung ist isotrop, d.h. sie hat unabhängig von der Richtung denselben Betrag. Anisotropien führen aber dazu, dass es gewisse Vorzugsrichtungen, sogenannte leichte Achsen (im Gegensatz zu harten

Achsen) gibt, in denen sich die magnetischen Momente ohne äußere Einflüsse ausrichten. Um eine Orientierung der Momente in die harte Richtung zu erreichen, benötigt man einen zusätzlichen Energiebeitrag in Form eines äußeren Feldes. Die Ursachen dieser Vorzugsrichtungen sind die magnetischen Dipol-Dipol-Wechselwirkungen und die Spin-Bahn-Kopplung. Wird die Ausrichtung von magnetischen Momenten verändert, so liegt aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung auch gleichzeitig eine Änderung des Bahndrehimpulses vor, was zu einer Energieänderung im Kristallgitter führt. Je nach Zusammensetzung und Kristallstruktur sind manche Ausrichtungen energetisch günstiger als andere. Die magnetische Anisotropieenergie stellt die Energie dar, die aufgebracht werden muss, um die Magnetisierung von der leichten in die schwere Richtung zu drehen. Eine ausführliche Beschreibung der magnetischen Anisotropie ist in [11] und [6] zu finden. Die Gesamtanisotropie setzt sich aus folgenden Anteilen zusammen:

**Kristallanisotropie** Die Kristallanisotropie ist ein Faktor, der allgemein in jedem Kristall eine Rolle spielt. Je nach Kristallstruktur kommt es zu strukturabhängigen Ausbildungen leichter Magnetisierungsrichtungen entlang der Kristallrichtungen. Die Richtung, für die die kleinste Energie angenommen wird, wird leichte Magnetisierungsrichtung genannt. Hauptursache hierfür ist die Orientierung der Elektronenorbitale, die über die Spin-Bahn-Wechselwirkung bestimmte Spineinstellungen bevorzugen können. In bcc-Fe sind die [100]-Richtungen leichte, [110] und [111] schwere Magnetisierungsrichtungen.

**Formanisotropie** Die Formanisotropie beinhaltet den Einfluß der Probengeometrie auf die Magnetisierung. Sie ist eine Folge der langreichweitigen Dipol-Dipol-Wechselwirkung und beinhaltet die magnetische Streufeldenergie pro Probenvolumen in Abhängigkeit von der Magnetisierungsrichtung. In dünnen Schichten trägt die Formanisotropie zu einem großen Teil zur Gesamtanisotropie bei. Sie sorgt dafür, dass eine Magnetisierung in der Schichtebene bevorzugt wird, da die Streufelder minimal sind, wenn die magnetischen Momente in der Ebene liegen.

**Oberflächenanisotropie** Die Oberflächenanisotropie, deren wichtigster Beitrag von der Abweichung der Umgebung von oberflächennahen Atomen von der im isotropen Kristall hervorgerufen wird. Im Bulk spielt dieser Faktor keine Rolle. Mit abnehmender Schichtdicke nimmt die Bedeutung dieser Anisotropie immer mehr zu, da das Verhältnis von Oberfläche bzw. oberflächennahen Bereichen zum Gesamtvolumen ansteigt. Sie kann dazu führen, dass eine leichte Richtung senkrecht zur Oberfläche bevorzugt wird. Bei Schicht im Bereich von über 1 nm Dicke kann dieser Beitrag im allgemeinen vernachlässigt werden.

In epitaktisch präparierten dünnen Schichten weichen die Eigenschaften der verwendeten Materialien deutlich von den Bulk-Eigenschaften ab. Diese Effekte sind allerdings bei den meisten Materialien nur in einem sehr grenzflächennahen Bereich signifikant. Es wurde gezeigt, dass die Magnetisierung an Grenzflächen niedriger ist, was durch eine Verschmälerung der Energiebänder an einer freien Oberfläche, durch die geringere Koordinationszahl der Atome und einer daraus resultierenden erhöhten Polarisation erklärt werden kann.

Die Vermutung liegt nahe, dass lateral strukturierte Proben noch einen zusätzlichen Effekt durch die Dipolkopplung benachbarter Strukturen zeigen. Es können vorher gleichwertige leichte Richtungen aufspalten oder sogar andere Vorzugsrichtungen hervorgerufen werden. Wie sich dieser Einfluß der Strukturen auf die Magnetisierungen und damit auch auf die Anisotropie auswirkt, soll in dieser Arbeit untersucht werden.

## **Zeeman-Energie**

Der Zeeman-Term

$$E_{Zeeman} = -\vec{M} \cdot \vec{H} \quad (2.2)$$

ist proportional zum äußeren Feld  $H$ . Er gibt die Energie eines Dipols in einem äußeren Magnetfeld an.

## **Gesamtenergie**

Die magnetische Gesamtenergie pro Flächeneinheit eines Schichtsystems mit antiferromagnetische gekoppelten Schichten ist durch die Zwischenschichtaustauschkopplungs-, die Zeeman- und die Anisotropieenergie gegeben:

$$E_{Gesamt} = E_{Kopplung} + E_{Anisotropie} + E_{Zeeman} \quad (2.3)$$

Für die in der vorliegenden Arbeit untersuchten dünnen Eisenschichten dominiert die Formanisotropie, die eine Magnetisierung in der Schichtebene bevorzugt. Für eine Schicht aus bcc Fe(100) liegt als Kristallanisotropie eine sechszählige kubische Anisotropie vor. Durch die Formanisotropie, die eine Ausrichtung in der Ebene bevorzugt, wird die Gesamtanisotropie vierzählig. Betrachtet man im Speziellen ein Schichtsystem mit zwei ferromagnetischen Schichten, die über eine Zwischenschicht miteinander antiferromagnetisch gekoppelt sind, so erhält man folgende Formeln für die obigen Terme [23]:

$$E_{Kopplung} = -J_1 \cdot \cos(\varphi_1 - \varphi_2) - J_2 \cdot \cos^2(\varphi_1 - \varphi_2) \quad (2.4)$$

$$E_{Zeeman} = -\mu_0 \cdot H \cdot (M_1 \cdot d_1 \cdot \cos(\varphi_1) + M_2 \cdot d_2 \cdot \cos(\varphi_2)) \quad (2.5)$$

$$E_{Anisotropie} = +\frac{K_1}{4} \cdot (d_1 \cdot \sin^2(2\varphi_1) + d_2 \cdot \sin^2(2\varphi_2)) \quad (2.6)$$

Hierbei ist  $H$  die Feldstärke des externen Magnetfeldes, das entlang einer der leichten Achsen ausgerichtet ist.  $M_1$  und  $M_2$  sind die Sättigungsmagnetisierungen der ferromagnetischen Lagen.  $\varphi_1$  und  $\varphi_2$  sind die Winkel zwischen der jeweiligen Magnetisierung und dem externen Feld.  $K_1$  bezeichnet die kubische Anisotropiekonstante erster Ordnung und  $d_1$ ,  $d_2$  sind die jeweiligen Schichtdicken. Die Grenzflächenanisotropie, die zu einer uniaxialen Anisotropie führt und die Orange-Peel-Kopplung über Rauigkeiten werden in diesem Modell nicht betrachtet. Desweiteren wird in diesem Modell eine homogene Magnetisierung angenommen, so dass keine Potentialwälle oder thermische Einflüsse betrachtet werden.

Bei sehr kleinen magnetischen Feldern sorgt die antiferromagnetische Kopplung für die antiparallele Ausrichtung der magnetischen Momente entlang der von der Anisotropie

vorgegebenen leichten Achsen. Mit zunehmenden äußeren Magnetfeld nimmt der Einfluß der Kopplung immer mehr ab, die Zeeman-Energie gewinnt immer mehr an Einfluß. Aus der Summe der verschiedenen Einflüsse folgen für Zwischenwerte des Magnetfelds unterschiedliche Magnetisierungseinstellungen der Schichten. Dieses Modell wird für verschiedene Systeme in Kapitel 5.1.1 simuliert.

## 2.2 Neutronenstreuung

Die Neutronenstreuung ist neben der Röntgenstreuung und der Elektronenbeugung eine der wichtigsten Methoden zur Untersuchung der Struktur kondensierter Materie. Man kann im wesentlichen zwei Arten der Streuung unterscheiden. Zum einen die elastische Streuung zur Strukturbestimmung und zum anderen die inelastische Streuung, die Informationen über die Dynamik im Kristall liefert.

Die Neutronen zeichnen ganz besondere Eigenschaften aus, die von entscheidendem Vorteil gegenüber den Röntgen- und Elektronenstrahlen sind. Als neutrale Sonden können sie sehr leicht in das Innere der Materie eindringen, da sie wenig mit der Materie wechselwirken und so relativ dicke Proben durchstrahlen können, ohne sie zu zerstören, (insbesondere im Gegensatz zu den oberflächensensitiven Elektronen). Desweiteren sorgt die Ladungsneutralität dafür, dass der Streuquerschnitt, im Gegensatz zu Röntgenstrahlung, nicht von der Kernladungszahl abhängt. Somit ist es ihnen möglich leichte Elemente (wie z. B. Wasserstoff) in Verbindung mit schweren Elementen zu messen. Eine weitere wichtige Eigenschaft ist das hohe magnetische Moment der Neutronen von  $\mu_n = 1,913 \frac{e\hbar}{2m_p}$ , wodurch sie neben der starken Wechselwirkung (Wechselwirkung mit den Atomkernen) noch magnetisch mit den Momenten der Elektronen wechselwirken können. Da die de-Broglie-Wellenlänge  $\lambda_n = \sqrt{\hbar^2/2m_n E}$  thermischer Neutronen (Energie von 25 meV) in der Größenordnung der Atomabstände von Kristallgittern (etwa 1 Angström) liegt, treten bei der elastischen Streuung von Neutronen im Kristall Interferenzeffekte auf, die für Strukturuntersuchungen ausgenutzt werden können.

Die elastische Neutronenstreuung stellt also eine geeignete Methode zur Untersuchung der inneren atomaren und magnetischen Struktur der von uns zu untersuchenden Schichtsysteme dar. Im Speziellen verwenden wir die Neutronenreflektometrie als elastische, tiefenempfindliche und laterale Strukturen auflösende Methode. Mit Hilfe der Polarisationsanalyse (siehe Kapitel 2.2.2) ist eine vollständige Trennung von nuklearer und magnetischer Streuung möglich. Zunächst werden aber die Grundlagen der Neutronenstreuung vorgestellt, die ausführlich in [5] beschrieben sind.

### 2.2.1 Streutheorie

Für die theoretische Betrachtung eines Neutronenstreuexperimentes (Geometrie siehe Abb. 2.1) sind die Neutronen als eine ebene Materiewelle aufzufassen, die einen bestimmten Impuls  $\vec{p} = m \cdot \vec{v} = \hbar/\vec{k}$  und eine dazugehörige Energie besitzen  $E = \hbar^2 \cdot k^2/2m$ . Da hier nur elastische Streuung (kein Energieübertrag) betrachtet wird, sind die Beträge der Wellenvektoren der einfallenden  $|\vec{k}_i|$  und gestreuten  $|\vec{k}_f|$  Teilchen gleich. Die Differenz der beiden Wellenvektoren bezeichnet man als den Streuvektor  $\vec{Q} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$ , der proportional

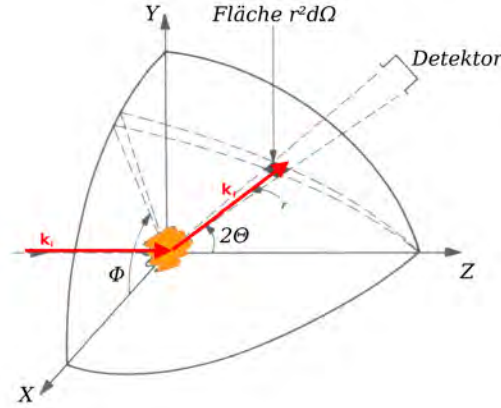


Abbildung 2.1: Geometrie eines Streuexperimentes aus [5]

zum Impulsübertrag (Richtungsänderung des Neutrons) ist.

Die einfallende Welle wird nach der Streuung an einer Probe von einem Detektor gemessen, dessen Position relativ zur einfallenden Welle durch die beiden Winkel  $\theta$  und  $\varphi$  gegeben ist und der einen Raumwinkel  $d\Omega$  überspannt. Treffen  $F_i$  Teilchen pro Zeiteinheit und Einheitsfläche auf die Probe, so zählt der Detektor im Abstand  $r$  mit Fläche  $dS$  die  $dn$  Teilchen, die in den Detektor im Raumwinkelelement  $d\Omega = dS/r^2$  gestreut werden.  $dn$  ist offensichtlich proportional zu  $d\Omega$  und  $F_i$ . Die von den Winkeln  $\theta$  und  $\varphi$  abhängige Proportionalitätsfaktor  $d\sigma(\theta, \varphi)$  bezeichnet man auch als den differentiellen Streuquerschnitt, der die Einheit einer Fläche ( $1\text{ barn} = 10^{-24}\text{ cm}^2$ ) besitzt.

$$dn = F_i \frac{d\sigma(\Theta, \varphi)}{d\Omega} d\Omega \quad (2.7)$$

Den totale Streuquerschnitt erhält man durch die Integration über alle Winkel.

$$\sigma = \int \frac{d\sigma(\Theta, \varphi)}{d\Omega} d\Omega \quad (2.8)$$

Für die Berechnung von  $\frac{d\sigma}{d\Omega}$  betrachten wir den Einfluss eines Potentials  $V(\vec{r})$  (nur vom Abstand abhängig) auf das einfallende Teilchen mit der reduzierten Masse  $m_{red}$  im Schwerpunktsystem, bzw. dessen Wellenfunktion mit der stationären Schrödingergleichung, da wir nur elastische Streuung betrachten.

$$\left[ -\frac{\hbar^2 \Delta}{2m_{red}} + V(\vec{r}) \right] \phi(\vec{r}) = E\phi(\vec{r}) \quad (2.9)$$

Um die Wellenfunktion des Teilchens zu berechnen und dabei sinnvolle Lösungen zu erhalten, muß sie einigen Randbedingungen genügen. Durch einen ausreichend großen Abstand der Quelle zur Probe lässt sich die Welle der einfallenden Teilchen vor der Wechselwirkung durch eine ebene Welle  $e^{ikz}$  beschreiben. Betrachtet man die Neutronen nach der Streuung und weit entfernt von der Probe, so gibt es eine Überlagerung von gestreuter und transmittierter Welle. Diese wird genau wie die einfallende Welle in großen Abständen wieder durch eine ebene Welle dargestellt. Die gestreute Welle muss wegen der Erhaltung der Gesamtwahrscheinlichkeit (bei einem Teilchenstrom wegen der Teilchenzahlerhaltung) in einer gegebenen Richtung  $e^{ikz}/r$ -Form haben. Da im allgemeinen keine isotrope Streuung

vorliegt, muss noch ein Faktor, der von den Winkeln  $\theta$  und  $\varphi$  abhängt, vorhanden sein. Man erhält dann folgende Lösung für die Wellenfunktion:

$$\phi(r) \underset{r \rightarrow \infty}{\sim} e^{ikz} + f_k(\Theta, \varphi) \frac{e^{ikr}}{r} \quad (2.10)$$

Hierbei ist  $f_k$  der einzige Parameter, der von den Winkeln  $\theta$  und  $\varphi$  abhängt.

Die Verbindung der Wahrscheinlichkeitswelle mit dem differentiellen Streuquerschnitt folgt aus der Betrachtung der Wahrscheinlichkeitsstromdichte, die man mit dem Streuquerschnitt in Verbindung setzt (über Annahme eines großen Abstandes zur Probe).

$$dn = C J_d r^2 d\Omega = C \frac{\hbar k}{m_{red}} (f_k(\Theta, \varphi))^2 d\Omega$$

Der im Streuexperiment gemessene differentielle Streuquerschnitt ist analog zur Intensität der elektromagnetischen Wellen und wird als Streuintensität bezeichnet:  $I \propto \frac{d\sigma}{d\Omega} \cdot d\Omega = |f_k|^2$ . Man erkennt hier, dass es nichts anderes als das Betragsquadrat der Streuamplitude ist. Desweiteren erkennt man, dass bei der Messung die Phaseninformation von  $f_k$  verloren geht.

Es soll nun Gleichung 2.9 nach  $\phi(r)$  gelöst werden, um die Streuamplitude und damit den differentiellen Streuquerschnitt berechnen zu können. In der Gleichung wird noch  $E = \frac{\hbar^2 k^2}{2m_{red}}$  und  $V(\vec{r}) = \frac{\hbar^2}{2m_{red}} U(\vec{r})$  ersetzt, da nur Lösungen positiver Energie betrachtet werden.

$$[\Delta + k^2 - U(\vec{r})] \phi(\vec{r}) = 0 \quad (2.11)$$

Die Gleichung 2.11 lässt sich mit Hilfe einer Greenfunktion zu einer integralen Darstellung umformen. Mit Hilfe der Fernfeldnäherung und einem Iterationsverfahren, der sogenannte Born'sche Reihe, lässt sich eine näherungsweise Lösung finden. Unter der Annahme einer schwachen Wechselwirkung mit dem Potential reicht in vielen Fällen schon ein Abbrechen nach dem ersten Term um gute Resultate zu erhalten, wobei man von der ersten Born'schen Näherung spricht. Anschaulich bedeutet diese Annahme, dass nur Prozesse ohne Mehrfachstreuung betrachtet werden, was für die Neutronenstreuung oft eine gute Näherung darstellt. Dies ergibt dann folgende Streuamplitude

$$f_k^{(Born)}(\Theta, \varphi) = -\frac{1}{4\pi} \int d^3r' e^{-ik_f r'} U(\vec{r}') e^{ik_i r'} \quad (2.12)$$

$$= -\frac{1}{4\pi} \int d^3r' e^{-i\vec{Q} r'} U(\vec{r}') \quad (2.13)$$

mit dem Streuvektor  $\vec{Q} = \vec{k}_f - \vec{k}_i$ . An dieser Gleichung erkennt man, dass die Streuamplitude die Fourier-Transformation des Streupotentials ist. Prinzipiell könnte man das Potential auch wieder durch Rücktransformation von der Streuamplitude berechnen und so die Informationen über die Probe erhalten. Da man aber nicht die Streuamplitude sondern nur ihr Betragsquadrat über den differentiellen Streuquerschnitt messen kann, geht die Phaseninformation verloren. Aus diesem Grunde kann man aus den Messergebnissen nicht ohne weiteres direkt alle interessierenden physikalischen Eigenschaften der Probe bestimmen, obwohl diese Einfluss auf  $f_k$  nehmen. Deshalb wird im allgemeinen ein Modell der betrachteten Struktur erstellt, die Streuintensität berechnet und in einem iterativen Prozess die Parameter des Modells angepasst.

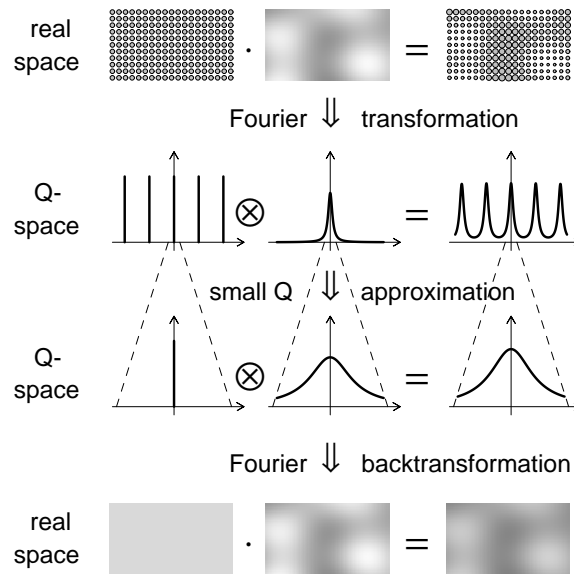


Abbildung 2.2: Kontinuumsbeschreibung bei Streuung mit kleinen Winkeln aus [5]

### 2.2.2 Neutronenreflektometrie mit Polarisationsanalyse und offspekulärer Streuung

Um Schichtsysteme, z.B. die hier untersuchten Fe/Cr-Vielfachschichten, auf ihre makroskopischen strukturellen und magnetischen Eigenschaften (z.B. Schichtdicken, Oberflächenrauigkeiten, Materialdichten oder ihre Magnetisierung) hin zu untersuchen, ist die Neutronenreflektometrie und offspekuläre Streuung mit Polarisationsanalyse hervorragend geeignet.

Zum einen ist unser ausgesuchtes Modellsystem ausreichend bekannt, wie z.B. die Gitterparameter und Kristallstruktur, so dass eine Untersuchung der atomaren Struktur nicht benötigt wird, daher ist die Weitwinkelbeugung nicht von Interesse. Zum anderen liegt die Wellenlänge im Angström-Bereich, so dass diese kleiner als die zu untersuchenden Strukturen ist. Um im Vergleich zu dieser Wellenlänge große Strukturen zu messen, muß mit kleinen Streuwinkeln gearbeitet werden, da man bei der Streuung die Fouriertransformierte des Potentials misst.

Betrachtet man das Potential eines Kristalls mit mesoskopischer Struktur, z.B. Schichten verschiedener Materialien, so kann dieses als Produkt des diskreten Atomgitters und der mesoskopischen Struktur betrachtet werden (siehe Abb.2.2, 1.Zeile). Wie in Kapitel 2.2.1 vorgestellt wurde, misst man die Streuintensität, die proportional zum Streuamplitudenquadrat ist. Die Streuamplitude wiederum ist die Fouriertransformation des Potentials und damit der realen Struktur. Um die Streuamplitude zu erhalten, können nach dem Fourier-Transformationen-Theorem die beiden sich überlagernden Strukturen separat transformiert und anschließend gefaltet werden. Das bedeutet, dass die Streuamplitude eine Faltung der Fouriertransformierten der Kristall- und der Überstruktur ist. Wie in der Graphik zu erkennen ist, erhält man als Fouriertransformierte der realen Struktur eine glatte periodische Funktion, da die Fouriertransformierte eines idealen periodischen Gitters eine Summe aus Deltafunktionen ist und die einer langsam variierenden Funktion auch im Q-Raum eine glatte Funktion ergibt, die für große Q rasch abfällt (2. Zeile). Betrachtet man nur einen kleinen Q-Bereich (3. Zeile), so erhält man einen



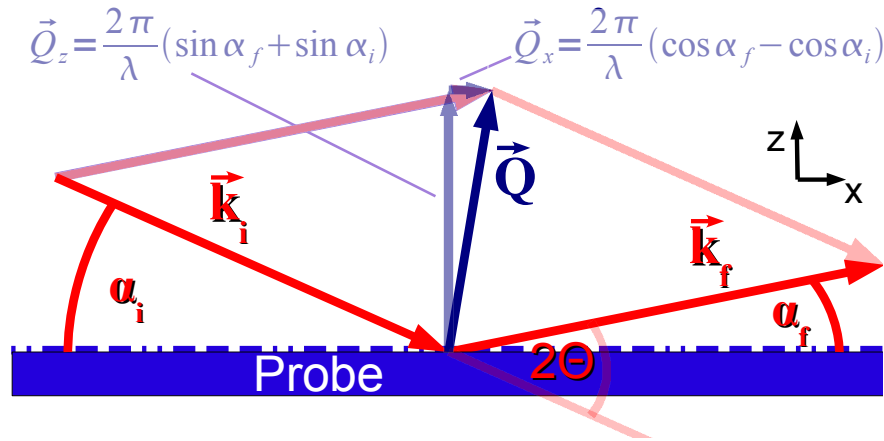


Abbildung 2.3: Streuung unter streifendem Einfall

kleinen Ausschnitt dieser Faltung. Nach der Rücktransformation (4. Zeile) erhält man für die Überstruktur das übliche Potential, jedoch ist der Anteil der vorherigen periodischen Gitterstruktur nur noch als eine Konstante über dem ganzen Raum zu erhalten. Nach der Multiplikation im Realraum der einzelnen Komponenten sind nur noch Informationen über die mesoskopischen Eigenschaften der Probe vorhanden. Eigenschaften auf kleineren Längenskalen sind mit Streuung unter streifendem Einfall also nicht zugänglich. Aus diesem Grund kann man bei der Kleinwinkelstreuung und Reflektometrie das Material als Kontinuum betrachten.

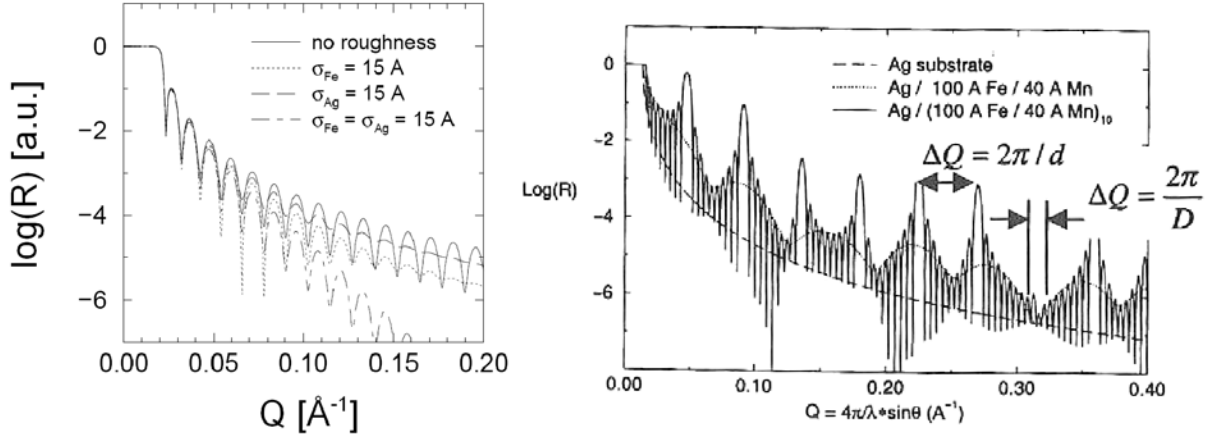
Ein Schema der Geometrie eines solchen Experimentes ist in Abbildung 2.3 dargestellt.  $\alpha_i$  ist der Einfallswinkel, also der Winkel zwischen Strahlungsquelle und Probenoberfläche,  $\alpha_f$  der Ausfallswinkel, also der Winkel zwischen Probenoberfläche und Detektor und  $2\theta$  die Summe aus beiden Winkeln. Wenn  $\alpha_i$  und  $\alpha_f$  gleich sind ( $|\vec{k}_i| = |\vec{k}_f|$ ), spricht man von spekulärer Streuung. Dieser Anteil erhält nur Informationen in z-Richtung (vertikale Struktur in die Tiefe), da der Streuvektor  $\vec{Q}$  immer senkrecht zur Oberfläche steht. Es können somit keine Erkenntnisse über die Änderungen der Streudichteverteilung in einer Richtung innerhalb der Ebene gewonnen werden. Bei unterschiedlichen Winkeln liegt eine diffuse, bzw. offspekuläre Streuung vor. Diese enthält zusätzlich Informationen in x-Richtung ( $Q_x$ ) und somit Informationen über die longitudinalen Strukturen in der Streuebene.

**Spekuläre Reflexion** Aus den oben beschriebenen Begründungen der Kontinuumsannahme, kann das Problem der Streuung unter streifendem Einfall an einem Vielschichtsystem analog zur Optik betrachtet werden. Somit kann ein komplexer Brechungsindex definiert werden, der über die Wellengleichung direkt aus dem Kristallpotential abgeleitet werden kann [5, 22]:

$$n = 1 - \delta + i\beta \quad (2.14)$$

$$\text{mit } \delta = \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_j \Re(b_j) \rho_j \quad (2.15)$$

$$\text{und } \beta = \frac{\lambda^2}{2\pi} \sum_j \Im(b_j) \rho_j \quad (2.16)$$



(a) Reflektivitätskurve einer Einzelschicht) (b) Reflektivitätskurve eines Vielschichtsystems

**Abbildung 2.4:** Reflektivitätskurven (aus [12])

Die Streulängen  $b$  sind für die meisten Materialien positiv, also sind ihre Brechungsindizes laut (2.14) und (2.15) kleiner als 1. Daher gibt es beim Übergang von Luft zur Probe einen Winkelbereich mit Totalreflexion. Der kritische Winkel der Totalreflexion folgt aus dem Snellius'schen Brechungsgesetz.

$$n_1 \sin(\delta_1) = n_2 \sin(\delta_2) \quad (2.17)$$

Mit der Bedingung  $\sin(\delta_2) = 1$  und  $\alpha_i = \pi/2 - \delta_1$  aus unserer Winkeldefinition folgt dann:

$$\alpha_{\text{Totalreflexion}} = \pi/2 - \arcsin\left(\frac{n_2}{n_1}\right) \quad (2.18)$$

Mit (2.15) erhält man  $\alpha_{\text{Totalreflexion}} \approx \lambda \sqrt{\frac{1}{\pi} \sum_j b_j \rho_j}$ . Die spekuläre Reflektivitätskurve besitzt also die Eigenschaft, dass die gemessene Intensität des reflektierten Strahls bis zu einem gewissen Winkel konstant bleibt (siehe 2.4). Bei größeren Winkeln, nach dem so genannten Totalreflexionsplateau, fällt die reflektierte Intensität schnell ab (aus der Bornapproximation erhält man  $I \sim 1/Q_z^4$ , [5]), da ein immer größer werdender Anteil transmittiert wird. Gibt es Sprünge in der Streulängendichte und damit im Brechungsindex, werden auch an diesen Teile der Welle reflektiert. Die Anteile von Reflexion und Transmission werden durch die Fresnelschen Formeln aus der Optik für den Reflektivitätskoeffizienten  $R$ , den Transmissionskoeffizienten  $T$  und der Absorption der dazwischenliegende Schicht, bestimmt welche wiederherum von der Dichte der verschiedenen Schichten abhängt. Durch konstruktive bzw. destruktive Interferenz der an den verschiedenen Grenzflächen reflektierten Wellen entstehen in der Messkurve neben den verschiedenen Ordnungen von Hauptmaxima (siehe Abb. 2.4(a)), zusätzlich noch periodisch auftretende Nebenmaxima mit geringerer Intensität (siehe Abb. 2.4(b)).

Bei bekannter Wellenlänge kann man aus den Hauptmaxima die einzelnen Schichtdicken ( $d$ ) und aus dem Abstand der Nebenmaxima die Gesamtschichtdicke ( $D$ ), bestimmen. Ein Phänomen, das sowohl bei einschichtigen als auch bei mehrschichtigen Systemen auftritt, ist die Abnahme der Intensität aufgrund von Oberflächenrauigkeit bzw. Grenzflächenrauigkeit. Aus der Bornapproximation folgt, dass die Intensität um den so genannten

Debye-Waller Faktor,  $\exp(-Q_z^2\sigma^2)$ , schneller abfällt, je größer die mittlere Rauigkeit  $\sigma$  ist [5]. Aufgrund der Rauigkeit entsteht eine zufällige Richtungsverteilung der Neutronen, so dass dieser Anteil in den off-spekulären Anteil gestreut wird. Bei strukturierten Proben ist noch zu beachten, dass die Schichten bei der spekulären Reflektivität als Kontinuum angenommen und in x-Richtung über die vorhandene laterale Struktur, die aus Luft und dem Material besteht, gemittelt wird.

**Off-spekuläre (diffuse) Streuung** Aufgrund von Rauigkeit werden sowohl bei strukturierten als auch bei unstrukturierten Proben auch Neutronen aus der spekulären Richtung heraus gestreut und erzeugen einen diffusen Untergrund. Besonders starke Intensität der diffusen Streuung tritt bei  $\alpha_i$  bzw.  $\alpha_f$  Winkeln im Totalreflexionsbereich auf, die sogenannten Yoneda-Peaks. Dieser Effekt beruht auf Mehrfachstreuung und Verstärkung des Wellenfeldes und lässt sich nicht mehr mit der Bornapproximation behandeln. Man muss eine störungstheoretische Behandlung, die so genannte Bornapproximation mit gestörten Wellen (**D**istorted **W**ave **B**orn **A**pproximation - DWBA) anwenden.

Zum anderen gibt es off-spekuläre Strukturpeaks, die durch eine periodische Struktur in x-Richtung auf der Probe hervorgerufen werden. Unter bestimmten Winkeln kommt es zu konstruktiver Interferenz zwischen den an den Strukturen gestreuten Wellen, analog zur Beugung an einem Gitter in der Optik.

**Auswahlregeln der Polarisationsanalyse** Neben der atomaren Struktur der Probe lässt sich mit Hilfe der Neutronenstreuung auch die magnetische Struktur analysieren, indem das magnetische Moment des Neutrons (bzw. dessen Spin) ausgenutzt wird. Wie auch bei den strukturellen Eigenschaften können hier wegen der Kontinuumsbeschreibung bei kleinen Einfallswinkel nur magnetische Eigenschaften auf einer mesoskopischen Skala analysiert werden. Zum Beispiel kann eine atomare antiferromagnetische Struktur eines Materials nicht aufgelöst werden, dagegen aber die magnetische Überstruktur durch die magnetischen Eigenschaften der Schichten.

Zu der Wechselwirkung der Neutronen mit dem Kernpotential des Materials (starke Wechselwirkung) kommt zusätzlich die Wechselwirkung des Spins mit der magnetischen Induktion  $B$  der Probe dazu (Dipol-Dipol-Wechselwirkung). Die magnetische Streuung ausgehend vom Kernspin kann im allgemeinen vernachlässigt werden. Das gesamte Wechselwirkungspotential für Neutronen mit einer magnetischen Probe lautet nun:

$$V = \frac{2\pi\hbar^2}{m_n}b\rho - \gamma_n\mu_n\sigma\underline{B} \quad (2.19)$$

Hierbei ist  $\underline{\sigma}$  ein Vektoroperator, dessen Komponenten die Pauli-Matrizen beinhaltet.  $b$  ist die Streulänge und  $\rho$  die Dichte, so dass sie zusammen die Streulängendichte ergeben. Die Stärke der Streuung ist für magnetische Materialien in der gleichen Größenordnung wie die nukleare Streuung und kann damit im Experiment gemessen werden. Dieses Potential wird zur Lösung des Streuproblems in die Schrödingergleichung 2.9 eingesetzt, jedoch wird hier die Wellenfunktion  $\phi$  durch einen Spinor ersetzt:

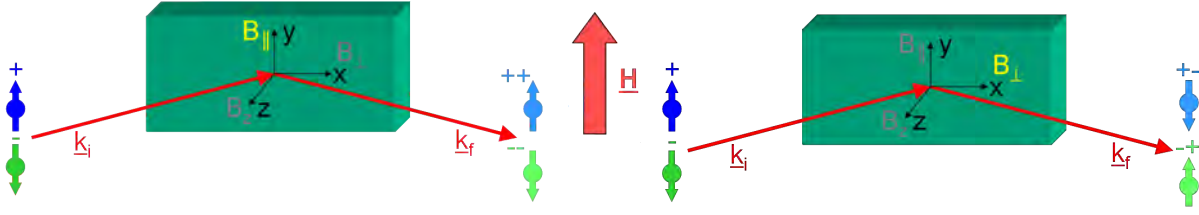


Abbildung 2.5: Auswahlregeln

$$\phi \rightarrow \begin{pmatrix} \phi_+(r) \\ \phi_-(r) \end{pmatrix} \quad (2.20)$$

Das Plus steht hier für Spin up (parallel zur Quantisierungsachse), das Minus für Spin down (antiparallel zur Quantisierungsachse). Die Wellengleichung kann wie zuvor gelöst werden, führt aber bei diesem Potential zu einem gekoppelten Gleichungssystem:

$$\Psi_+''(z) + \left[ k_{0z}^2 - 4\pi b\rho + \frac{2m\gamma\mu_N}{\hbar^2} B_{\parallel} \right] \Psi_+(z) + \frac{2m\gamma\mu_N}{\hbar^2} B_{\perp} \Psi_-(z) \quad (2.21)$$

$$\Psi_-''(z) + \left[ k_{0z}^2 - 4\pi b\rho - \frac{2m\gamma\mu_N}{\hbar^2} B_{\parallel} \right] \Psi_-(z) + \frac{2m\gamma\mu_N}{\hbar^2} B_{\perp} \Psi_+(z) \quad (2.22)$$

$B_{\perp}$  und  $B_{\parallel}$  sind dabei die Komponenten der magnetischen Induktion in Schichtebenen senkrecht, bzw. parallel zur Projektion des Führungsfeldes in die Schichtebene. An diesen Gleichungen kann man erkennen, dass beim Vorhandensein eines Magnetfeldes parallel zum externen Feld und einem nuklearen Anteil, die Gleichungen entkoppelt sind und nur Nicht-spin-Flip-Intensitäten vorhanden sind. Ist dagegen auch noch ein senkrechter magnetischer Anteil vorhanden, so sind die Gleichungen gekoppelt und es gibt auch eine Spin-Flip Möglichkeit. In den beiden NSF-Messungen erhält der komplexe Brechungsindex einen zusätzlichen Beitrag, der je nach Spin-Orientierung einmal addiert und einmal subtrahiert wird.

Der Neutronenstrahl ist polarisiert, d.h. die Spins sind parallel (+) oder antiparallel (-) zum externen Führungsfeld ausgerichtet. Mit den Spinflippern kann man je nach Spinausrichtung vor und nach der Messung vier verschiedene Reflektionskanäle anwählen und messen:

$$\begin{aligned} NSF \left\{ \begin{array}{l} ++ : up - up - Kanal \\ -- : down - down - Kanal \end{array} \right. \\ SF \left\{ \begin{array}{l} +- : up - down - Kanal \\ -+ : down - up - Kanal \end{array} \right. \end{aligned}$$

Für jeden Spin-Kanal ergeben sich Intensitätskarten wie sie in Abbildung 2.6 dargestellt sind. Hier ist der Einfallswinkel gegen den Ausfallswinkel aufgetragen und eine logarithmische Farbskala für die Streuintensitäten gewählt. Ein Beispiel der spekulären und off-spekulären Intensitäten ist hier dargestellt.

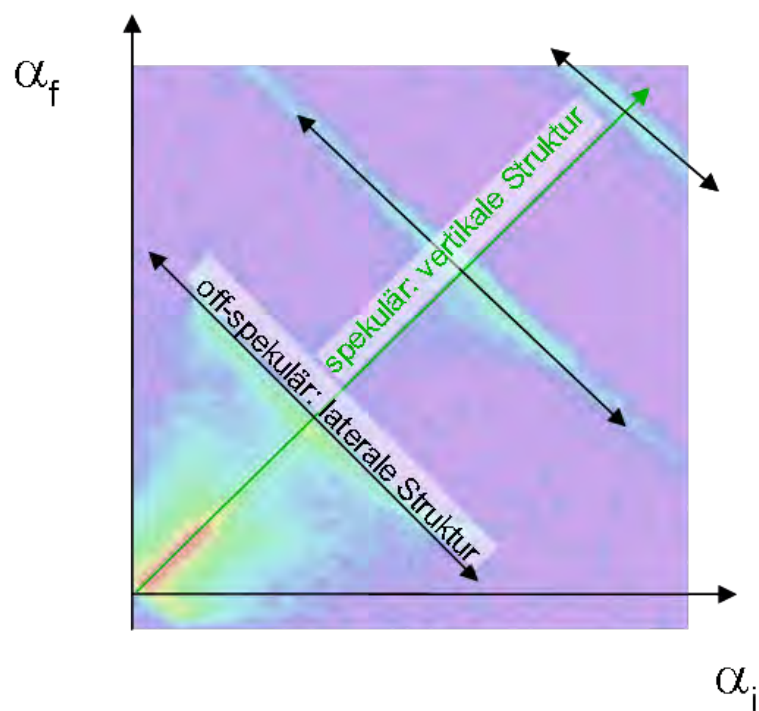


Abbildung 2.6: Intensitätskarte



# Kapitel 3

## Experimentelle Methoden

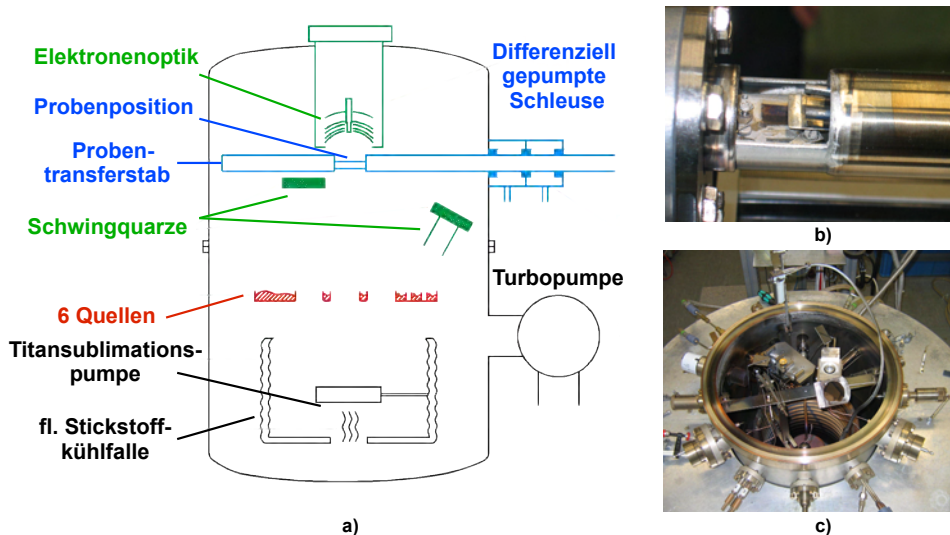
### 3.1 Probenpräparation

#### 3.1.1 Molekularstrahlepitaxie

Die Molekularstrahlepitaxie (engl.: molecular beam epitaxy - MBE) ist ein Verfahren zur Herstellung von dünnen einkristallinen Schichten, die zur Präparation der in dieser Arbeit verwendeten Proben benutzt wird. Hierbei wird Material von einer Quelle verdampft, das sich anschließend geradlinig im Hochvakuum ausbreitet, da die mittlere freie Weglänge der Teilchen wesentlich größer ( $> 1$  km) als der Abstand zwischen Quelle und Substrat ist. Auf der Oberfläche des Substrates angekommen, gehen die Atome/Moleküle eine chemische Bindung mit dem Substrat ein und können dort auf einem einkristallinen Substrat epitaktisch aufwachsen. Unter Epitaxie versteht man die Anpassung der Kristallstruktur der aufwachsenden Schicht an die Struktur des Substrates. Dies kann realisiert werden solange Gitterparameter und Symmetrie von Substrat und Schicht aneinander angepasst sind.

Während der Bedampfung kann die Probe beheizt werden. Die Temperatur beeinflusst die thermische Bewegung und führt zur gleichmäßigen Verteilung der Teilchen auf der Oberfläche. Die Wachstumsrate von typischerweise  $0,2 \text{ \AA/s}$  ist gering genug, um eine Oberflächendiffusion der auftreffenden Teilchen auf der wachsenden Oberfläche zu gewährleisten [18] und um eine monolagengenaue Materialabscheidung zu realisieren. Daher ergeben sich gut gewachsene Schichtoberflächen. Das Wachstum findet unter Ultrahochvakuumbedingungen statt, so dass der Einfluss des Restgases auf das Schichtwachstum vernachlässigbar ist und eine gute chemische Reinheit von über 99 % gewährleistet ist.

Der Aufbau der verwendeten MBE-Anlage ist in Abbildung 3.1 skizziert. Das Ultrahochvakuum (UHV), welches in der Hauptkammer vorliegt, wird durch den parallelen Einsatz von verschiedenen Pumpen erzeugt. Eine Turbopumpe mit vorgeschalteter Drehschieberpumpe stellt, nach einem Ausheizen von zwei Tagen bei  $150^\circ$ , in der Hauptkammer ein Vakuum von  $10^{-9}$  mbar her. Durch das zusätzliche Einschalten einer Stickstoffkühlfalle mit Titansublimationspumpe, wird ein Restdruck von  $10^{-10}$ - $10^{-11}$  mbar erzeugt. Im einzelnen sorgt die stickstoffbefüllte Kühlfalle dafür, dass ein großer Teil der im Restgas enthaltenen Wassermoleküle sich dort niederschlägt. Zusätzlich werden Titanatome auf die Kühlfalle aufgedampft, die sich mit dem vorhandenen atomaren und molekularen Wasserstoff verbinden. Sind die Quellen in Betrieb, steigt der Druck beim Bedampfen, abhängig vom dem Depositionsmaterial und der Verdampfungsrate, auf  $10^{-10}$  mbar bis



**Abbildung 3.1:** a) Schema der verwendeten MBE-Anlage b) Probenhalter c) Blick auf die geöffnete MBE (entnommen aus [23] und [15])

$10^{-9}$  mbar an. Diese Bedingungen stellen eine gute Voraussetzung für die Präparation von Schichtsystemen mit hoher Reinheit dar.

Das Substrat wird mit einem Probentransferstab durch eine differenziell gepumpte Schleuse in die Hauptkammer eingebracht, ohne das dort herrschende Ultrahochvakuum zu brechen. In diesem Stab befindet sich ein Probenhalter aus Edelstahl, auf welchem das Substrat mit zwei Klammern befestigt wird. Diese Edelstahlplatte kann über ihre Halterung elektrisch geheizt werden. Die Temperatur wird mit Hilfe eines Thermoelements, das an der Unterseite des Probenhalters angebracht ist, gemessen. Somit wird nicht die Substrattemperatur, sondern die Temperatur an der Unterseite bestimmt. Nachdem sich ein thermisches Gleichgewicht eingestellt hat, ist davon auszugehen, dass die Temperatur des Substrates stabil und bei einer reproduzierbaren Temperatur (unterhalb der gemessenen) gehalten werden kann. Die thermische Ankopplung des Probenhalters an das Substrat ist für Schichten guter Qualität von großer Bedeutung. Probleme können z.B. durch Unebenheiten des Halters entstehen, die punktuell durch Überhitzung zu polykristallinem Wachstum führen. Ein Umgehen dieses Problems durch indirektes Heizen des Substrats ist, vor allem bei hohen Temperaturen, technisch schwer zu realisieren. Oberhalb des Probenhalters ist eine Blende eingebaut, die während des Aufdampfens mit Hilfe eines Schrittmotors kontinuierlich über die Probe gefahren werden kann. Somit ist es möglich keilförmige Schichten herzustellen.

Die verwendete Anlage besitzt insgesamt sechs Quellen (vier direkte und zwei indirekte Elektronenstrahlverdampfer), aus denen die Schichtmaterialien verdampft werden. Bei einer direkten Quelle (z.B. für Eisen und Silber) werden aus einer stromdurchflossenen Glühwendel Elektronen emittiert und mit Hilfe einer Hochspannung im kV-Bereich in Richtung des Ausgangsmaterials beschleunigt und mit einem Magneten direkt auf das Quellenmaterial geleitet. Durch die Energie der auftreffenden Elektronen wird das Material am Auftreffpunkt so stark erhitzt, dass es verdampft. Im Gegensatz dazu besteht eine indirekte Quelle aus einem durch den Elektronenstrahl erhitzten Wolframtiegel, aus



dem das erhitzte Ausgangsmaterial von der gesamten Tiegeloberfläche verdampft. Diese Methode ist gut geeignet für Stoffe, die sublimieren (z.B. Chrom), da es bei der direkten Quelle nicht nachfließen kann und somit der Elektronenstrahl ein Loch in den Materialvorrat brennen würde. Bei beiden Varianten wird die Verdampfungsrate und somit auch die Depositionsrate mit Hilfe der Hochspannung zwischen Tiegel und Glühwendel und des Stromes, der durch die Glühwendel fließt, und damit der Elektronenemission gesteuert.

Zur Ermittlung der Aufdampfrate und der Schichtdicke wird ein Schwingquarz verwendet, der in der Nähe der Probe angebracht ist und dementsprechend mitbedampft wird. Seine Eigenfrequenz von anfänglich 6 MHz nimmt proportional zur zunehmender Massenbelegung ab und ist somit ein Maß für die aufgedampfte Schichtdicke. Die Schichtdicken sind sehr gut reproduzierbar, allerdings gibt es aufgrund der fehlenden Eichung des Schwingquarzes eine systematische Abweichung der absoluten Schichtdicke von 7-8%. Aus der Frequenzänderung, der Dichte des aufzudampfenden Materials und dem noch einzurechnenden Geometriefaktor können die obigen Größen bestimmt werden.

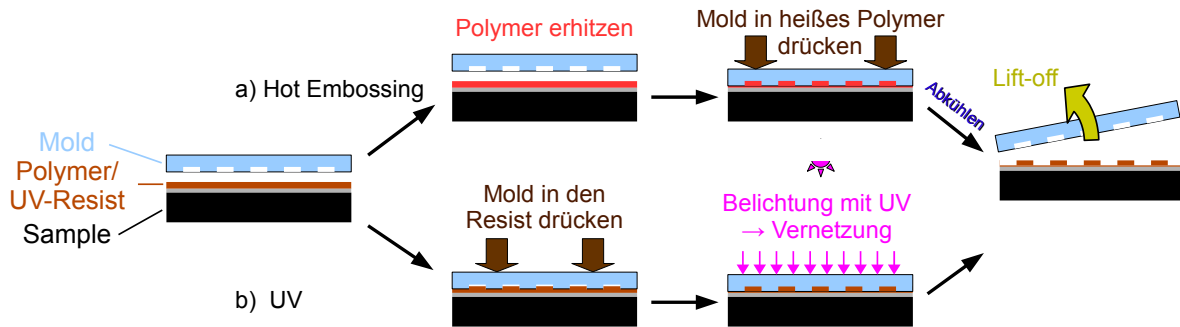
Zur Analyse der Schichtqualität steht eine LEED-Optik zur Verfügung. Die Beugung niederenergetischer Elektronen (Low Energy Electron Diffraction) ist eine bewährte Methode zur Untersuchung der Struktur von kristallinen Oberflächen. Eine LEED-Aufnahme ist nicht während des Wachstums möglich, da die Elektronenoptik und Bedampfungsquellen auf verschiedenen Seiten des Probenstabs liegen und somit die Probe nach dem Bedampfen umgedreht werden muss. Auf diese Methode wird in Kapitel 3.2.1 näher eingegangen.

### 3.1.2 Nanoimprint Lithografie

Die Nanoimprint Lithografie (engl. Nanoimprint lithography - NIL) ist ein Lithografie-Verfahren zur Herstellung von Nanostrukturen. Diese junge Technologie wurde erstmals von Stephen Y. Chou 1995 angewandt. Zu dieser Zeit konnten bereits Nanostrukturen von 25 nm Größe präpariert werden [9]. Seitdem wurde die Technologie stetig weiterentwickelt - Strukturen von kleiner als 10 nm sind inzwischen herstellbar [10, 2, 3]. Heutzutage wird sie überwiegend im Forschungsbereich der Nanoelektronik und Photonik angewendet.

Bei der Nanoimprint Lithografie handelt es sich um ein Prägeverfahren, bei dem die Struktur mit Hilfe eines Stempels übertragen wird. Es gibt hauptsächlich zwei Arten der Strukturübertragung, einmal das sogenannte Heißprägen (engl. Hot Embossing oder Thermal Nanoimprint Lithography - kurz T-NIL) und die UV-Nanoimprint Lithografie (kurz UV-NIL).

**Hot Embossing** In einem Standard Hot Embossing Prozess wird eine dünne Schicht des Imprintlackes, ein thermoplastisches Polymer (Polymethylmethacrylat - PMMA), mit einem Spin coater auf das Substrat oder Schichtsystem aufgeschleudert. Nach dem Ausheizen des PMMA ist eine stabile Lackschicht entstanden. Hiernach wird ein harter Stempel (Mold), der z.B. aus Silizium oder Nickel besteht, auf der Probe justiert und aufgelegt (siehe Abbildung 3.2 a). Wird das Schichtpaket nun über die Glasübergangstemperatur des Polymers erhitzt, so kann man mit Hilfe von Druck den Stempel in den nun weichen und nicht mehr formstabilen Lack drücken. Der Thermoplast wird mechanisch verformt und die Zwischenräume des Stempels werden ausgefüllt. Nach dem Abkühlen unter die Glasübergangstemperatur werden die beiden Komponenten vorsichtig voneinander getrennt



**Abbildung 3.2:** Schematische Darstellung des a) Hot Embossings und der b) UV-Nanoimprint Lithografie

und ein Negativabdruck des Stempels ist im Lack vorhanden. Der Abkühlvorgang und Prägevorgang darf nicht zu schnell erfolgen, damit die Spannungen in der Lackschicht, die sich aus dem Temperaturwechsel und dem Verformungsprozess ergeben, abgebaut werden können. Erfolgt der Abkühlvorgang zu schnell, spannt sich der Lack so stark, dass sich Defekte in den geprägten Strukturen bilden können. [24]

Der Vorteil dieser Methode ist, dass man einen Mold aus z.B. Silizium ohne Vorbehandlung unter dem Rasterelektronenmikroskop nach Defekten untersuchen kann. Nachteile dieses NIL-Verfahrens ist die Erhitzung des Schichtpaketes. Es können Schädigungen der Probe entstehen, z.B. Interdiffusion bei einem Multilayer.

**UV-Nanoimprint Lithografie** Bei der UV-Nanoimprint Lithografie (Abbildung 3.2 b)), wird ein UV-sensitiver Lack auf ein Substrat aufgebracht, der aus unvernetzten Monomeren besteht und sich in einem flüssigen Zustand befindet. Ein Stempel muß bei dieser Methode UV-durchlässig sein, damit das Licht zum Lack durchdringen kann. Häufig wird ein harter Mold (z.B. Quarzglas) verwendet. Es gibt aber auch Anwendungen mit einem weichen Stempel, die sogenannten Soft-UV-Nanoimprint-Lithografie. Es kann sich hierbei sowohl um Elastomere (z.B. Polydimethylsiloxan-PDMS) [20] als auch um Plastomere [14] handeln. Die Verwendung dieser Materialien ist möglich, da die UV-NIL bei Raumtemperatur betrieben wird.

Nachdem der Stempel auf der Probe ausgerichtet, in den Lack gedrückt worden und alle Hohlräume des Molds ausgefüllt sind, wird der Lack unter Druck durch das eingestrahlte UV-Licht ausgehärtet und vernetzt. Hierbei gehen die einzelnen Monomere eine chemische Bindung ein, so dass verzweigte Polymerketten entstehen. Dieser Vorgang ist nicht reversibel (im Gegensatz zum thermischen Imprintverfahren). Nach dem eigentlichen Imprintprozess werden beide Komponenten vorsichtig voneinander getrennt und der Lack besitzt das Negativabbild der Struktur.

Der Vorteil der UV-basierten NIL ist die Strukturübertragung bei Raumtemperatur. Dies ist möglich, da der Lack durch UV-Licht ausgehärtet wird. Außerdem kann man unter niedrigem Druck arbeiten, da der Lack vor der Vernetzung eine niedrige Viskosität besitzt.

Die Nanostrukturen werden je nach Anwendung durch anisotropes Ätzen in das darunterliegende Substrat übertragen (siehe Kapitel 3.1.3).

Die Adhäsion zwischen ausgehärtetem Lack und Stempel ist ein wichtiger Parameter bei

der NIL (neben Temperatur und Druck). Es sollte eine defektfreie Trennung gewährleistet sein. Hierzu wird eine Antihafschicht in einem Silanisierungsverfahren auf den Stempel aufgetragen. In einem Aufdampfungsverfahren wird die Chemikalie 1H,1H,2H,2H-Perfluorooctyltrichlorosilan verdampft und bindet sich kovalent an die Oberfläche des Masters, bis eine vollständige Monolage entstanden ist. Es handelt sich hierbei um eine selbstangeordnete Monoschicht (SAM - Self Assembled Monolayer). An ihr können sich keine weiteren Moleküle mehr binden. Diese verhindert ein Aneinanderhaften von Mold und ausgehärtetem Lack und macht somit die NIL erst möglich.

Die Strukturierung der Stempel kann z.B. mit Interferenzlithografie, Elektronenstrahlolithografie, Ionenstrahlolithografie oder NIL-Verfahren durchgeführt werden.

Nach dem jetzigen Entwicklungsstand wird die Auflösung durch die minimale Strukturbreite des Stempels bestimmt. Die Auflösung wird also nicht durch Streuprozesse, die bei optischen Lithografie-Verfahren auftreten, limitiert und es können Strukturen mit einer Auflösung unterhalb der Beugungsgrenze von sichtbarem Licht hergestellt werden. Dies ist einer der Hauptvorteile der NIL. Nebenbei ist es ein kostengünstiges Verfahren mit einem hohen Durchsatz. Beim Herstellungsprozess ist allerdings die Temperatur- und Druckbeständigkeit der verwendeten Materialien zu beachten.

### 3.1.3 Ätzprozesse

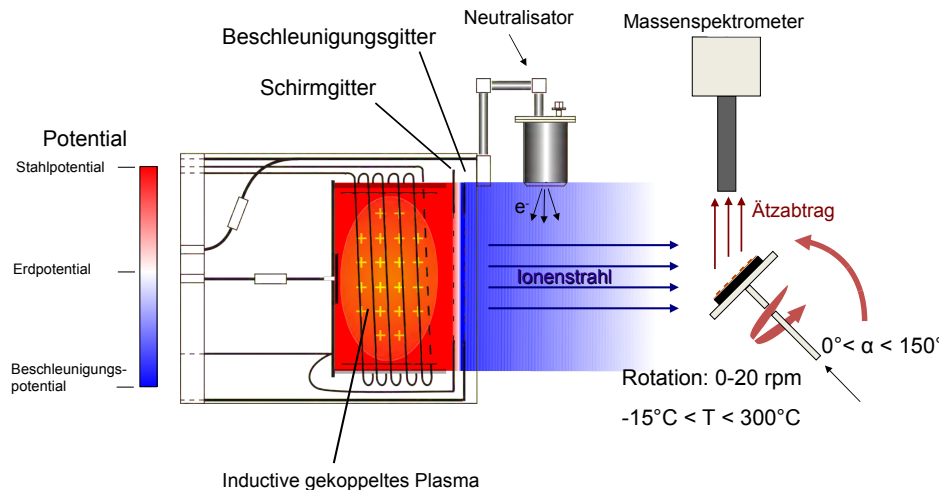
Die im Lack erzeugten Strukturen müssen noch mit Hilfe von Ätzprozessen in das darunterliegende Substrat übertragen werden.

Nassätzverfahren sind durch ein isotropes Ätzprofil gekennzeichnet. Diese können zur Strukturierung kaum eingesetzt werden, da der Ätzangriff richtungsunabhängig erfolgt und somit die Schicht unter der Maske stark unterätzt wird. Somit würde kein exaktes Abbild der Maske erzeugt oder sogar eine Ablösung der Schicht erfolgen. Bei Strukturgrößen im Nanometerbereich, wie sie in dieser Arbeit angestrebt werden, führt das Nassätzverfahren zu keinem akzeptablen Ergebnis. Diese Strukturen sind nur noch mit Hilfe von Trockenätzverfahren erreichbar, die ein anisotropes Ätzprofil erlauben.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden zwei Prozesse benutzt, das reaktive Ionenstrahlätzen (engl. reactive ion beam etching - RIBE) und das Ionenstrahlätzen (engl. ion beam etching - IBE).

**Reaktives Ionenstrahlätzen** Das reaktive Ionenstrahlätzen ist ein Ätzverfahren, bei dem physikalische und chemische Effekte kombiniert werden. Hierbei wird die Probenoberfläche mit einem ionisierten Reaktionsgas beschossen (z.B.  $\text{CF}_4$ ,  $\text{CHF}_3$ ,  $\text{O}_2$ ) und die chemischen Bindungen der Atome an der Oberfläche werden durch die Stoßenergie geschwächt oder zerstört. Somit kann das reaktive Gas leichter mit der Oberfläche reagieren und der chemische Prozess in den betroffenen Gebieten wird verstärkt. Durch den chemischen Angriff wird die Bindungsenergie des zu ätzenden Materials reduziert und es bilden sich flüchtige Verbindungen (Ätzprodukte). Die chemische Reaktion wird durch physikalisches Herauslösen von Oberflächenatomen noch verstärkt. Durch die Ionenstrahlrichtung ist dieser Prozess weitgehend gerichtet.

Ein Vorteil dieser kombinierten Methode ist, dass sie eine höhere Ätzrate als ein rein



**Abbildung 3.3:** RIBE-Anlage Ionfab 300 Plus von der Firma Oxford Plasma Technology [Oxford]

physikalischer Prozess besitzt, aber trotzdem einen hohen anisotropen Charakter behält. Wird der Teilchenstrahl senkrecht auf die Oberfläche gelenkt, so kann man mit dieser Methode feine und tiefe Strukturen herstellen. Desweiteren besitzt sie eine hohe Materialelektivität und eine geringe Oberflächenschädigung, so dass man eine Schicht wegätzen kann ohne, die darauffolgende zu stark anzugreifen. Insgesamt ist dieser Ätzprozess gut zur Lackätzung, also zur Entfernung von organischen Verbindungen, oder auch der Ätzung von Oxiden ( $\text{SiO}_2$ ) geeignet.

**Ionenstrahlätzen** Das Ionenstrahlätzen ist ein physikalisches Trockenätzverfahren, bei dem die Oberfläche durch den Beschuss mit hochenergetischen Edelgasionen (z.B. Argon mit 100eV bis einige keV) angegriffen wird. Allein die kinetische Energie der Ionen führt zum Herauslösen („Herausschlagen“) der Atome, eine chemische Reaktion findet nicht statt. Die Schichten werden mechanisch abgetragen. Allerdings kann es sein, dass sich ein Teil der abgetragenen Schicht in der Nähe wieder anlagert. Ein drehender Probenhalter und ein geschickt gewählter Kippwinkel der Probe zum Ionenstrahl (typisch  $5\text{-}7^\circ$ ) kann bei diesem Problem Abhilfe schaffen. Die Ätzung erfolgt bevorzugt in Richtung der auftreffenden Ionen, also anisotrop. Um Wechselwirkungen der Ionen mit anderen Teilchen zu verhindern, sollte ein Hochvakuum (besser als  $10^{-4}$  mbar) vorliegen.

Dieses Verfahren wird im wesentlichen für Stoffe benutzt, die mit den gebräuchlichen Ätzgasen keine flüchtigen Produkte bilden, es eignet sich exzellent für Gold und Platin (diese sind kaum nasschemisch ätzbar). In unserem Fall nutzen wir die hohe Selektivität zwischen Lack und Metall aus. Metallschichten werden bei diesem Verfahren 100 mal schneller als Lack abgetragen. So ist eine Ätzung in den Gräben möglich, ohne die Lackschicht zu sehr anzugreifen. Bündelt man die Teilchenstrahlen, so ist ein gezielter Ätzprozess zur Bearbeitung von strukturierten Proben möglich. Allerdings wird die Ätzmaske bei einem großflächigen Ätzvorgang ebenfalls angegriffen und es entstehen Abrundungen an den Kanten. Eine niedrige Substratätzrate, eine hohe Oberflächenschädigung und die geringe Materialelektivität sind nachteilige Eigenschaften dieses physikalischen Prozesses.

Die Proben für diese Arbeit wurden mit einer RIBE-Anlage Ionfab 300 Plus von der Firma Oxford Plasma Technology bearbeitet (Abb. 3.3). Diese Anlage ermöglicht uns wahlweise das reaktive Ionenstrahlätzen und das Ionenstrahlätzen durch Wahl entsprechender Ätzgase wie z.B.  $\text{CF}_4$  oder Argon durchzuführen.

Eine RIBE-Anlage besteht grundsätzlich aus einer Ionenquelle und einer Vakuumkammer, in der sich ein Neutralisator und ein kühlbarer Probenstisch befinden. Ein Ätzgas (z.B. Argon oder Sauerstoff) wird in die Ionenquelle (Ionenkanone) eingelassen. Ein Plasma wird bei einer Anregungsfrequenz im Bereich der Radiofrequenzen über Stoßionisation erzeugt, d.h. es entstehen Radikale und/oder Ionen aus den Ätzgasbestandteilen. Diese positiv geladenen Teilchen werden aufgrund des negativ aufgeladenen Gitters in Richtung der Probe beschleunigt und mit dem Schirmgitter fokussiert. Das elektrische Potential ist in der Schemazeichnung dargestellt. Um eine Aufladung der Probe durch die auftreffenden Teilchen und eine damit verbundene Abstoßung der nachfolgenden Ionen zu verhindern, ist ein Neutralisator eingebaut. Dieser emittiert Elektronen, um die positiv geladenen Ionen zu neutralisieren.

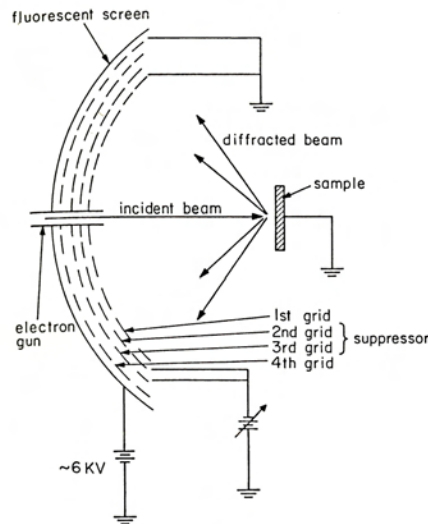
Je größer die angelegte Beschleunigungsspannung ist, desto stärker ist der anisotrope Ätzprozess. Die beschleunigten Ionen erzeugen den physikalischen Anteil der Ätzrate, die aus dem Ätzgas im Plasma generierten reaktiven Ionen zusätzlich noch den chemischen Angriff. Die sich bildenden flüchtigen Verbindungen, werden durch das Pumpensystem abgesaugt. Der Probenteller ist drehbar, um Abschattungseffekte zu minimieren und die ausgeschlagenen Atome (hervorgerufen durch den physikalischen Ätzprozess), die sich an den Wänden der geätzten Struktur ablagern können, zu entfernen. Desweiteren kann dieser unter verschiedenen Winkeln zum Strahl eingestellt werden. Ein Massenspektrometer ist vorhanden, um z.B. die Ätztiefe für die verschiedenen Materialien in situ zu überprüfen. Der Prozess muss im Hochvakuum stattfinden, damit die mittlere freie Weglänge der Ionen ausreicht, um die Probenoberfläche mit hoher Energie zu erreichen.

## 3.2 Probencharakterisierung

### 3.2.1 Beugung niederenergetischer Elektronen

Die Beugung niederenergetischer Elektronen (engl.: Low Energy Electron Diffraction, kurz LEED) ist eine Methode zur strukturellen Untersuchung von Oberflächen. Niederenergetische Elektronen (ca. 50-500 eV) werden von der zu untersuchenden Probenoberfläche reflektiert und durch Interferenz zwischen den an den Gitteratomen elastisch gestreuten Elektronen bildet sich ein Beugungsmuster (Braggstreuung) auf dem Beobachtungsschirm aus. Aus diesem Muster von Reflexen kann man auf die Gitterperiodizität und daraus auf die Struktur des Materials schließen. Aus der Symmetrie des Musters lässt sich auf die Symmetrie der Kristalloberfläche schließen. Die Oberflächenempfindlichkeit der niederenergetischen Elektronen resultiert aus der Tatsache, dass sie eine geringe Eindringtiefe von etwa 1 nm besitzen.

Diese Methode wird bei der Probenpräparationen verwendet, um in-situ zu überprüfen, ob ein epitaktisches Wachstum (einkristalline Struktur) auf der Oberfläche vorliegt. Quantitative Aussagen über Gitterkonstanten sind prinzipiell möglich, werden hier jedoch nicht



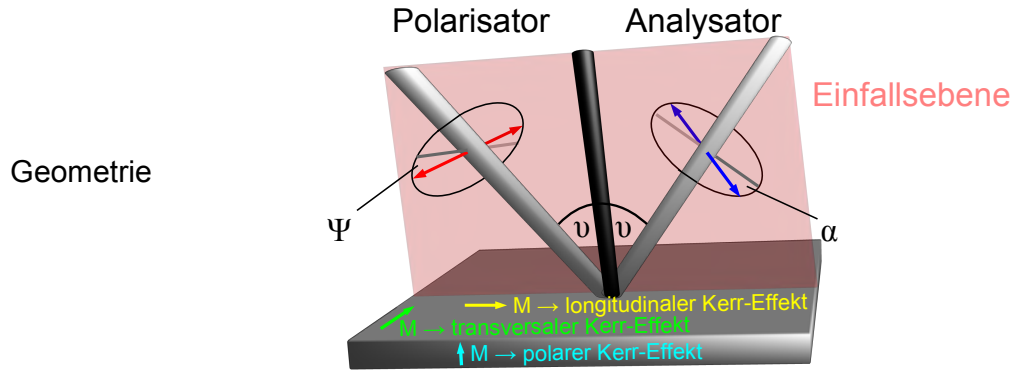
**Abbildung 3.4:** Schematische Darstellung eines LEED-Aufbaus entnommen aus [19]

bestimmt. Es findet eine qualitative Betrachtung der Breiten, Positionen und Intensitäten der Reflexe auf dem Schirm in Abhängigkeit der Elektronenenergie statt, um so Aussagen über die Qualität jeder einzelnen aufgetragenen Schicht treffen zu können. Das LEED-Muster einer monokristallinen Schicht besteht im Idealfall aus scharfen, intensitätsstarken Punkten, die symmetrisch angeordnet sind. Die Zunahme kleiner Wachstumsinseln lässt die Beugungsreflexe verbreitern. Ohne periodische Oberflächenstruktur verschwinden die Reflexe.

Eine schematische Darstellung des LEED-Aufbaus sieht man in Abbildung 3.4. Die Elektronen werden von einer Glühkathode emittiert, treten durch ein Loch im Leuchtschirm und werden dabei durch eine Anode (50-500 V) in Richtung der Probe beschleunigt und durch elektrostatische Linsen fokussiert (Elektronenkanone). Nach der Beschleunigung bewegen sie sich im Vakuum zur Probe und werden dort elastisch und inelastisch gestreut. Für die Charakterisierung der Struktur sind nur die elastisch gestreuten Elektronen interessant. Die gestreuten Elektronen bewegen sich dann in Richtung eines Fluoreszenzschirms, der das Beugungsmuster sichtbar macht. Damit nur die elastisch gestreuten Elektronen auf den Schirm gelangen, befinden sich der Fluoreszenzschirm hinter 4 Gittern, an denen eine Bremsspannung angelegt wird, die die inelastisch gestreuten Elektronen unterdrückt.

### 3.2.2 Magnetooptischer Kerr-Effekt

Eine schnelle und gute Methode zur Charakterisierung makroskopischer magnetischer Eigenschaften der aufgedampften Schichten ist der magnetooptische Kerr-Effekt (MOKE), bei dem sich die Polarisationssebene eines linear polarisierten Lichtstrahls bei Reflexion an einer magnetisierten Probe um einen Winkel  $\theta_K$  (Kerr-Winkel) dreht. Hierbei ist die Änderung der Polarisationssebene im Idealfall proportional zur Magnetisierung der Probe. Bei einem sich ändernden äußeren Magnetfeld und der damit verbundene Magnetisie-



**Abbildung 3.5:** Darstellung der Strahlgeometrie von MOKE

rungsänderung kann das Ummagnetisierungsverhalten z.B. von dünnen Schichten und Schichtsystemen untersucht werden.

Beim magnetooptischen Kerr-Effekt wird je nach Orientierung der Magnetisierung zur Reflexionsebene des Lichts zwischen longitudinalem, transversalem und polarem Kerr-Effekt unterschieden (vergleiche in Abb. 3.5). Liegt die Magnetisierung  $M$  parallel zur Reflektionsebene und Oberfläche, so existiert ein longitudinaler Kerr-Effekt. Ist  $M$  zwar parallel zur Oberfläche, aber senkrecht zur Reflexionsebene, so liegt ein transversaler Kerr-Effekt vor. Beim polaren Kerr-Effekt ist  $M$  senkrecht zur Oberfläche der Probe. Gemessen wird die Intensität nach einem Analysator, die das Amplitudenquadrat des durch den Kerr-Effekt veränderten elektrischen Lichtvektor darstellt.

$$I_{Mess} = \left\| (P_{\parallel} + K_{\parallel}) \cdot \cos(\alpha) - (P_{\perp} + K_{\perp}) \cdot \sin(\alpha) \right\|^2 \quad (3.1)$$

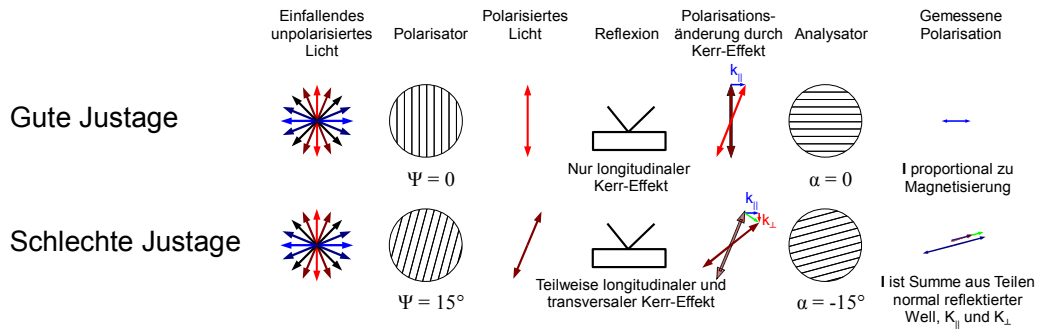
Hierbei ist  $\alpha$  der Winkel zwischen Analysator und Reflexionsebene.  $K_{\parallel}$  und  $K_{\perp}$  sind die Kerr-Amplituden,  $P_{\parallel}$  und  $P_{\perp}$  die Anteile des polarisierten Strahls, die parallel bzw. senkrecht zur Einfallsebene stehen. Die Kerr-Amplituden geben an wie sich die Polarisation durch den Kerr-Effekt ändert. Aus der Theorie [21] ergeben sich folgende Formeln zur Berechnung der Kerr-Amplituden:

$$K_{\parallel} = -2 \cdot M_t \cdot K_t \cdot \sin(\Psi) + (M_l \cdot K_l - M_p \cdot K_p) \cdot \cos(\Psi) \quad (3.2)$$

$$K_{\perp} = (M_l \cdot K_l + M_p \cdot K_p) \cdot \sin(\Psi) \quad (3.3)$$

Die einzelnen magnetooptischen Parameter  $K_x$  hängen außer von den Materialkonstanten und der Tiefe der beobachteten Schicht auch von der Geometrie ab.  $M_t$ ,  $M_l$  und  $M_p$  sind die auf die Sättigungsmagnetisierung normierten Komponenten des Magnetisierungsvektors.  $\Psi$  ist der Winkel, der die Polarisationsebene des einfallenden Lichtes gegenüber der Normalen der Einfallsebene beschreibt. Bei  $\Psi = 0$  ist die Polarisation senkrecht zur Einfallsebene, bei  $\Psi = 90^\circ$  ist sie parallel zur Ebene.

Um die polare Magnetisierung messen zu können, wählt man den Einfallswinkel  $\vartheta = 0^\circ$ . Denn der Term  $\sin(\vartheta)$ , zu dem  $K_l$  und  $K_t$  proportional ist, verschwindet und die magnetooptischen Parameter für den transversalen und den longitudinalen Kerr-Effekt sind 0. Dagegen ist  $K_p$  unabhängig vom Einfallswinkel und die Kerrdrehung ist nur zur



**Abbildung 3.6:** Darstellung der Auswirkung einer nicht perfekten Justage auf die MOKE-Messung

polaren Magnetisierung proportional.

Bei dünnen Schichten spielt die polare Magnetisierung nur eine untergeordnete Rolle, da wegen der Formanisotropie die Magnetisierungsrichtung senkrecht zur Schichtebene ungünstig ist. Deshalb ist bei dem verwendeten MOKE-Aufbau der Laserstrahl schräg auf die Probe gerichtet und also  $\sin(\vartheta) > 0$ .

Den transversalen Kerr-Effekt misst man mit  $\Psi = \alpha = 45^\circ$ . Dabei sind, unter der Annahme von Magnetisierung in der Schichtebene,  $K_{\parallel} = \frac{1}{\sqrt{2}}(-2M_t K_t + M_l K_l)$ ,  $K_{\perp} = \frac{1}{\sqrt{2}}M_l K_l$  und damit  $I_{Mess} = \|-M_t K_t\|^2$ . In der longitudinalen Geometrie ist  $\Psi = \alpha = 0^\circ$  und es bleibe nur die Komponente  $K_{\parallel} = M_l K_l$  übrig, die den Analysator ungehindert passiert.

Für unsere Untersuchungen wird in der longitudinalen Kerr-Geometrie gemessen. Da aber im allgemeinen eine perfekte Einstellung des Polarisators und des Analysators nicht möglich ist, wird immer noch ein Teil des transversalen Effektes mit gemessen - je nach Justage des Aufbaus. 3.6

Der Versuchsaufbau ist schematisch in Abb. 3.7 gezeigt. Als Lichtquelle wird ein Dioden-Laser mit einer Wellenlänge von 670 nm benutzt. Zur Polarisierungseinstellung des Laserlichtes ist ein Polarisator nach dem Laser eingesetzt. Der Laserstrahl wird auf die zu untersuchende Probenoberfläche gelenkt, die sich zwischen den Polschuhen des Elektromagneten befindet und wird reflektiert. Der reflektierte Strahl passiert eine Pockelzelle, einen Polarisationsfilter (Analysator) und wird durch eine Linse auf eine Photodiode fokussiert. Die Pockelzelle wird mit einem periodischen Signal angesteuert und gibt die Periode an den Analysator weiter, der auf einen festen Winkel eingestellt ist. Die Intensitätsänderung wird dann mit der Photodiode gemessen und aus dem verstärkten Signal die MOKE-Kurve mittels einem Lock-In-Verstärker bestimmt. Das Lock-In-Verfahren hat den Vorteil, dass Störungen wie Hintergrundbeleuchtung fast vollständig unterdrückt werden. Das Signal der longitudinalen Magnetisierung wird von thermischer Drift, Rauschen und dem transversalen Effekt überlagert. Daher können aus den Ummagnetisierungskurven nur die Feldstärken für die jeweiligen Umklappprozesse bestimmt werden, die Bestimmung der Magnetisierung bleibt qualitativ.



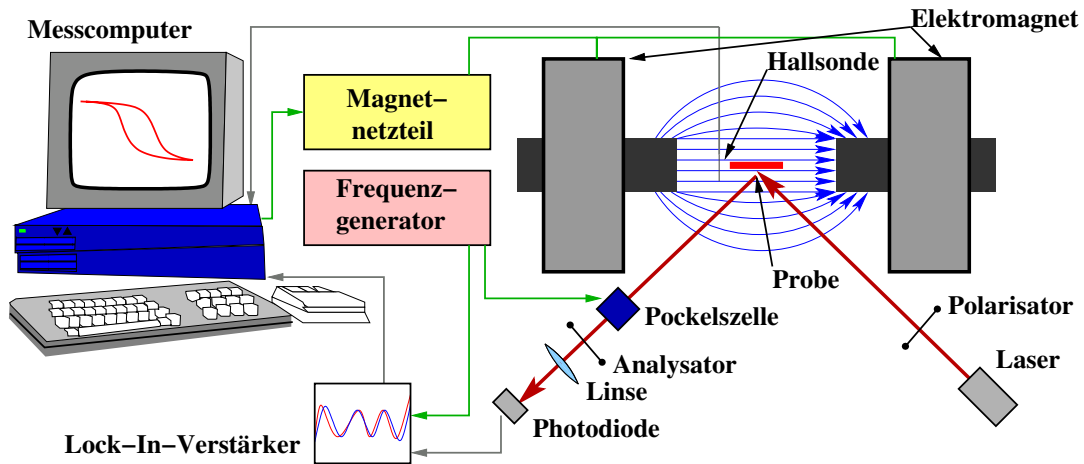


Abbildung 3.7: Aufbau der verwendeten MOKE-Anlage (aus [15])

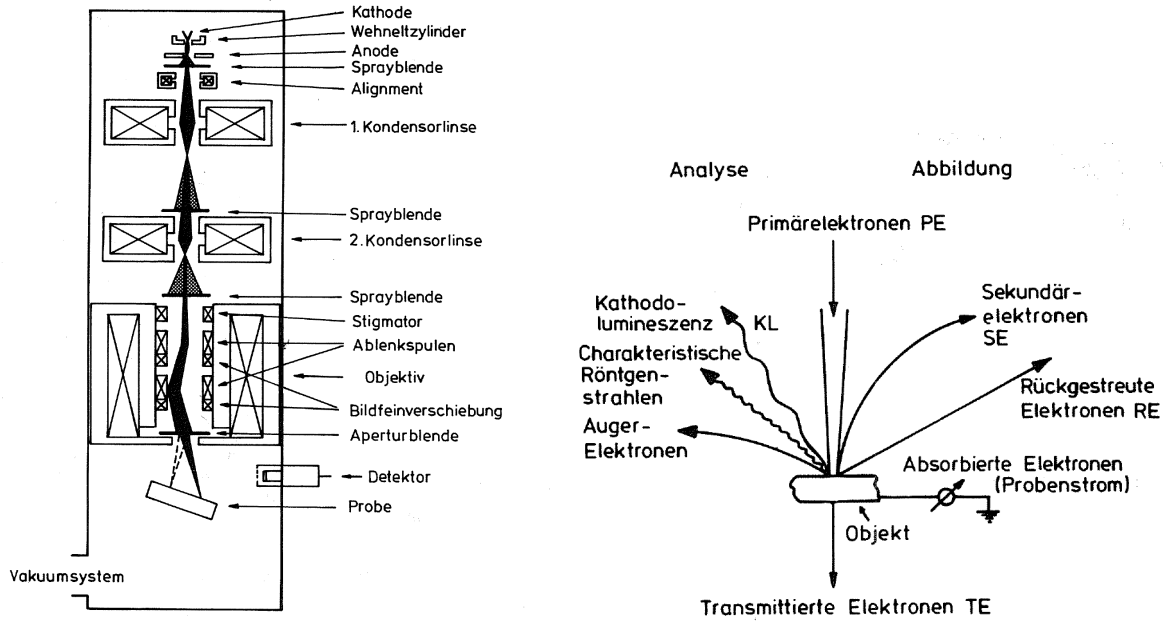
### 3.2.3 Rasterelektronenmikroskop

Für die Charakterisierung der Strukturen verwenden wir das Rasterelektronenmikroskop (REM) Gemini 1550VP von Zeiss. Hierbei wird der Ausschnitt einer Probe mit einem Elektronenstrahl abgerastert und die dabei entstehenden Wechselwirkungen der Elektronen mit der Oberfläche der Probe werden zur Erzeugung eines Bildes genutzt. Diese Bilder ermöglichen eine Darstellung von Oberflächenstrukturen mit einer 10fach bis 150000fachen Vergrößerung.

Der prinzipielle Aufbau eines Rasterelektronenmikroskops ist in (Abb. 3.8) dargestellt. Die benötigten Elektronen werden in einer Kathode erzeugt, über einen Wehneltzylinder fokussiert und über die Anode beschleunigt und gelangen so über mehrere Bündelungseinheiten bis an den Ort der Probe. Detektiert werden sowohl zurückgestreute Elektronen als auch Sekundärelektronen, die in der Probe von den Primärelektronen erzeugt werden.

Die auf die Probenoberfläche auftreffenden Elektronen (Primärelektronen (PE)) dringen in die Probe ein und werden dort elastisch und inelastisch gestreut. Elastische Streuung ist realisiert, wenn die Primärelektronen durch die positiv geladenen Atomkerne abgelenkt werden und ihre Bewegungsrichtung ändern, ohne dabei Energie zu verlieren. Durch Einfach- oder Mehrfachstreuung können die PE die Probe wieder verlassen und werden dann als Rückstreuelektronen (RE) bezeichnet. Ihre Energie liegt in der Nähe der Energie der PE.

Eine inelastische Streuung tritt auf, wenn die Primärelektronen an den Elektronen der Atomhülle (z.B. durch Ionisation der Hüllenelektronen) oder des Atomkernes (Abbremsung der PE durch das Coulombfeld des Atomkernes) des Probenmaterials gestreut werden und dabei ein Teil ihrer Energie abgeben. Durch die Wechselwirkung der PE mit den Hüllenelektronen können Sekundärelektronen entstehen. Diese werden nach Austritt aus der Probe zum Detektor beschleunigt und mit den rückgestreuten Elektronen detektiert. Erfolgt die inelastische Streuung durch Wechselwirkung mit dem Atomkern, so verlieren die PE im Coulombfeld der Kerne Energie und emittieren Röntgen-Bremsstrahlung, welche jetzt nicht für die unsere Bildgebung benötigt werden.



(a) Schema eines Rasterelektronenmikroskops (b) Wechselwirkungen von Elektronenstrahl und Materie

**Abbildung 3.8:** Rasterelektronenmikroskop (aus [25])

Der Kontrast (Helligkeitsunterschiede) auf der Aufnahme entsteht durch das unterschiedliche Reflexions-, Absorptionsvermögen der Materialien (bedingt durch ihren unterschiedlichen atomaren Potentiale) und durch verschieden geneigte Flächen zum Detektor. Signaländerungen entstehen durch lokal unterschiedliche SE-Ausbeuten bzw. unterschiedliche Rückstreuoeffizienten.

- **Topographiekontrast:** Eine der wichtigsten Abbildungsarten in einem REM ist die Abbildung von Objektoberflächen, die durch den Topographiekontrast möglich ist. Dieser Kontrasteffekt beruht auf der Abhängigkeit der SE-Ausbeute und des Rückstreuoeffizienten von der Neigung der abzubildenden Fläche zum Elektronenstrahl. Denn mit zunehmender Flächenneigung nimmt die Ausbeute der SE und RE zu, wodurch die Flächen heller dargestellt werden. Diese Abhängigkeit kommt daher, dass mit zunehmender Flächenneigung auch zunehmend mehr RE die Probe verlassen können. Diese lösen beim Durchtritt durch die Oberfläche wiederum SE aus.
- **Materialkontrast:** Materialunterschiede können abgebildet werden, weil mit zunehmender Ordnungszahl eines Stoffes auch der Rückstreuoeffizient zunimmt. Diese Kontrastvariation ist für diese Arbeit ein sehr wichtiges Werkzeug. Hiermit konnte überprüft werden, ob noch Lackreste auf den Stegen vorhanden sind, da Lack überwiegend aus Kohlen- und Wasserstoff besteht und somit einen geringeren Rückstreuoeffizienten besitzt als Eisen.

Die erzeugten Bilder ermöglichen eine Darstellung von Oberflächen mit einer großen Schärfentiefe und hoher Auflösung. Die große Schärfentiefe und der Effekt der flächenabhängigen SE-Emission führen zu dem dreidimensionalen Eindruck von REM-Bildern. Je nach Leitfähigkeit der Probe oder angelegter Spannung erreicht man eine Auflösung von 1 bis 3,5 nm, was für die in dieser Arbeit verwendeten Strukturen ausreichend ist.

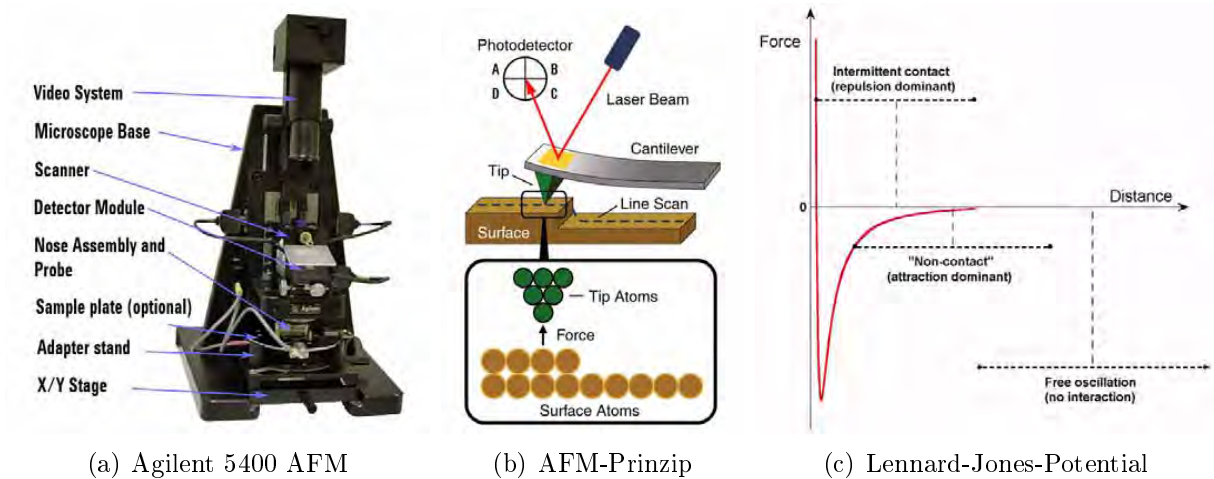


Abbildung 3.9: Rasterkraftmikroskop [1]

### 3.2.4 Rasterkraftmikroskop

Das Rasterkraftmikroskop (engl.: Atomic Force Microscope, AFM) 5400 Scanning Probe Microscope von Agilent Technologies wurde als ergänzende Methode zur Charakterisierung der Oberflächenstrukturen herangezogen (Abb. 3.9(a)). Im Gegensatz zum REM besitzt diese Methode die Möglichkeit, Höhenprofile aufzunehmen. Die Strukturgrößen aus dem REM können so nochmal unabhängig überprüft werden. Nachteilig zum REM ist die nicht vorhandene Materialelektivität.

Eine dünne Messspitze, die sich auf einem biegsamen Hebelarm, dem sogenannten Cantilever, befindet, wird als Messsonde der Probe angenähert. Dabei treten Wechselwirkungen zwischen Spitze und Oberfläche auf, die durch das sogenannte Lennard-Jones-Potential beschrieben wurden (Abb. 3.9(c)). In dieser Arbeit werden alle AFM Aufnahmen im sogenannten Nicht-Kontakt-Modus (AC-Modus) durchgeführt. Bei dieser Methode wird der Cantilever in Schwingungen nahe seiner Resonanzfrequenz angeregt und mit Hilfe eines piezoelektrischen Scanners die Spitze über die Probe bewegt, so dass die Probe abgetastet werden kann. Die Auslenkungen der Spitze, die aufgrund sich ändernder Wechselwirkung variieren können, werden mit einem auf dem Cantilever reflektierten Laserstrahl in einem Flächendetektor registriert (Abb. 3.9(b)). Die Amplitude der Schwingung des Cantilevers wird in diesem Modus über einen Regelkreis konstant gehalten, so dass der Abstand zwischen Nadel und Probe immer wieder nachgeregelt wird. Aus diesen Nachregelungen wird dann ein Höhenprofil erstellt. Aus der gemessenen Topographie kann anschließend z.B. die rms-Rauigkeit der Oberfläche berechnet werden. Außerdem wird während der Messung die Amplitude und die Phasendifferenz zwischen der Oszillation und der Anregung aufgenommen.

Die mögliche Auflösung des Bildes wird hauptsächlich durch den Krümmungsradius der Spitzen bestimmt, er beträgt in der Regel ca. 10 nm, was je nach Rauigkeit der Probenoberfläche laterale Auflösungen von 2 - 10 nm erlaubt. Bei tieferen Strukturen kann aufgrund der Verbreiterung der Spitze die messbare Kantensteilheit begrenzt sein.

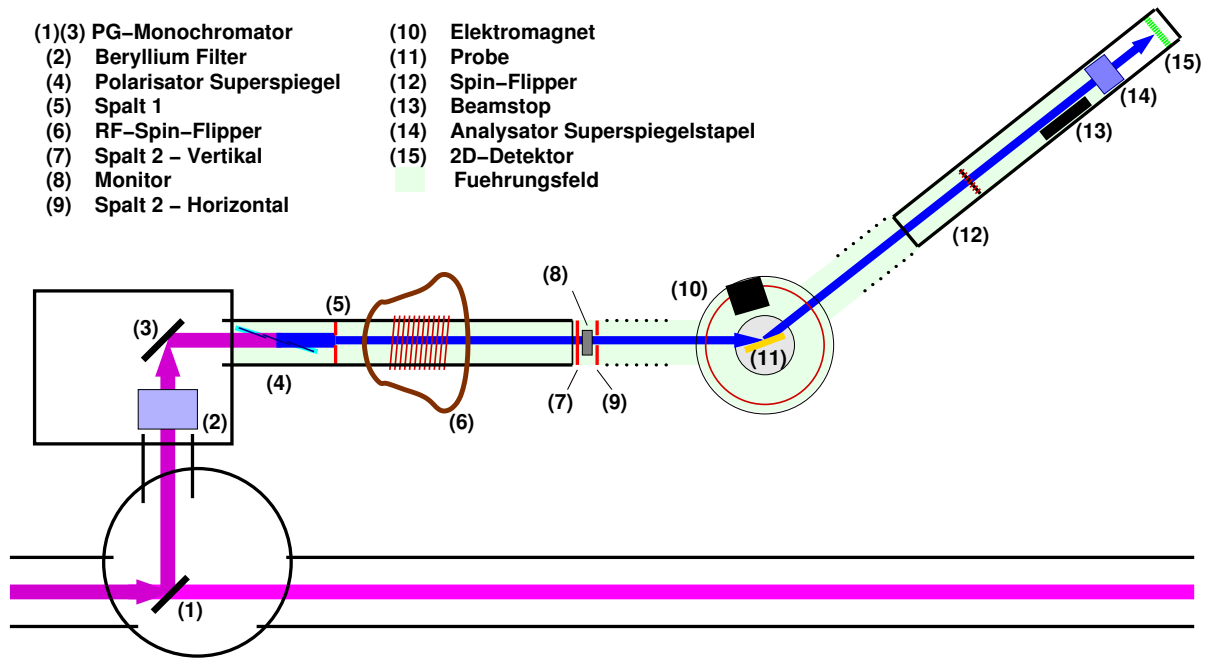


Abbildung 3.10: Aufbau des TREFF-Instruments

### 3.2.5 Neutronenreflektometer TREFF

Die Neutronenstreuexperimente dieser Arbeit wurden am Reflektometer TREFF (Temporary **RE**flectometer **F**acility) des Jülich Centre for Neutron Science (JCNS) durchgeführt. Dieses befindet sich am Forschungsreaktor FMR II in München, einer Neutronenquelle mit 20 MW thermischer Leistung. Die Neutronen werden im Kompaktkern aus hochangereichertem Uran durch Kernspaltung erzeugt. Durch das Einbringen von zusätzlichen Moderatoren wird das Energiespektrum der Neutronen zu höheren oder zu niedrigeren Energien verschoben. Zur Erzeugung der benötigten kalten Neutronen (Energie: 0,1-10 meV, Temperatur 10-120 K, Wellenlänge 3-30 Å) wird ein Moderator mit flüssigem Deuterium bei einer Temperatur von 25 K genutzt. Die Neutronen, die über ein Strahlrohr aus dem Reaktor austreten, werden über Neutronenleiter, die ähnlich wie Lichtleiter die Totalreflexion ausnutzen, in die Neutronenleiterhalle bis hin zum Instrument geführt.

Der TREFF-Aufbau ist in Abbildung 3.10 dargestellt. Die Neutronen aus der kalten Quelle besitzen eine breite Energie- und Wellenlängenverteilung entsprechend dem thermischen Gleichgewicht im Moderator. Zur Monochromatisierung wird ein Monochromatorkristall aus pyrolytischem Graphit unter einem Winkel von  $\Theta \approx 45^\circ$  in den Strahl gebracht. Nur die Wellenlänge, für die die Braggbedingung  $n\lambda = 2d \sin(\Theta)$  erfüllt ist, wird unter dem Winkel  $2\Theta$  reflektiert. Diese ausgekoppelte Wellenlänge beträgt beim TREFF  $4.73 \text{ \AA}/n$ . Anschließend durchqueren die Neutronen einen Berylliumfilter aus polykristallinem Beryllium. Die Kristallite sind beliebig angeordnet, so dass die Braggbedingung für alle Einfallswinkel von irgendeinem Kristallit erfüllt wird und alle Neutronen mit  $\lambda \leq 2d$  dadurch in alle Richtung gestreut werden. Nur die Neutronen mit der Grundwellenlänge  $4.73 \text{ \AA}$ , für die die Bragg-Bedingung im Filter wegen  $\lambda > 2d$  nie erfüllt werden kann, gehen ungehindert durch den Kristall durch. Um inkohärente Streuung durch die thermische Bewegung der Kristallatome zu unterdrücken, wird der Be-Filter gekühlt. Mit einem weiteren

Graphitkristall wird der Strahl nochmals umgelenkt. Mit diesem Doppelmonochromator erhält man eine Wellenlängenunschärfe von  $\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = 0,4\%$ .

Ein polarisierender Superspiegel wählt eine Polarisationsrichtung der Neutronen aus. Das Prinzip des polarisierten Superspiegels beruht auf der polarisationsabhängigen Streulängendichte magnetischer Materialien, die die Summe bzw. Differenz ihrer nuklearen und magnetischen Streulängendichte ist. Ein Superspiegel besteht aus zwei Materialien als Schichtsystem, wovon eines magnetisch ist. Die Materialien (bei TREFF: Fe und Si) haben die Eigenschaft, dass die Streulängendichte des magnetischen Materials für eine Polarisationsrichtung genau die gleiche ist, wie die des anderen Materials, so dass kein Kontrast existiert. Neutronen dieser Polarisationsrichtung werden durchgelassen, während die Reflektivität für die Neutronen mit der anderen Polarisation sehr hoch ist, so dass sie aus dem Strahl gestreut werden. Die erreichte Polarisation ist größer als 98%. Um eine Depolarisierung des Strahls zu vermeiden, wird ein magnetisches Führungsfeld über dem gesamten Strahlengang aufrecht erhalten. Zur Messung der anderen Polarisationsrichtung ist ein Radiofrequenz-Gradienten-Spin-Flipper eingebaut, so dass die Polarisationsrichtung der einfallenden Neutronen umgekehrt werden kann.

Die horizontale Divergenz und Strahlbreite, die durch zwei Schlitzblenden eingestellt wird, dominiert den Fehler des Streuwinkels. Kleine Spalte führen zu einer geringen Strahldivergenz, aber auch zu einem geringeren Neutronenfluß. Dies erhöht somit die Messzeit oder verschlechtert bei gleichbleibender Messzeit automatisch die Statistik. Die vertikale Strahlgröße wird durch eine 1D-Schlitzblende eingestellt. Bevor die Neutronen auf die Probe treffen, wird ihre Intensität in einem Monitorzähler gemessen, in dem ein kleiner Teil der Neutronen detektiert wird. Diese gemessene Größe wird später mit der reflektierten und am Detektor eingegangenen Intensität verglichen, um Schwankungen der Neutronenquelle auszugleichen.

Der Probenstisch kann zur Einstellung der richtigen Ausrichtung der Probe durch sechs verschiedene Motoren in allen Richtungen bewegt und gedreht werden. Die Streuwinkel werden durch die Ausrichtung der Probe eingestellt. Desweiteren besteht die Möglichkeit, magnetfeld- und temperaturabhängige Messungen durchzuführen, die durch einen Elektromagneten und einen flüssigen He-Durchflußkryostaten am Probenort ermöglicht werden.

Nach der Reflexion an der Probe tritt der Neutronenstrahl in den Detektorarm ein. Hier befindet sich ein weiterer Spin-Flipper, der aus einer Magnetspule mit einem konstanten senkrecht zur Polarisations- und Strahlrichtung stehenden Feld besteht, so dass eine Larmor-Präzession des Spins um  $\pi$  erzeugt wird. Somit können die Ausgangskanäle umgeschaltet werden. Dahinter ist ein Beamstop eingebaut der eine Beeinträchtigung der Messung durch den direkten Neutronenstrahl verhindern soll. Er kann zusammen mit dem Detektorarm verfahren werden, so dass der Primärstrahl an der richtigen Stelle im Strahlengang mit Hilfe seines stark neutronenabsorbierenden Materials abgeschnitten wird.

Die Spinpolarisationsrichtung wird danach auf die gleiche Art wie im Polarisator analysiert.

Am Ende werden die Neutronen in einem zweidimensionalen Szintillationsdetektor registriert, der uns dann die reflektierte Intensität liefert. Der komplette Detektorarm



Abbildung 3.11: Aufnahme vom TREFF

(Detektorwinkel=  $\alpha_i + \alpha_f$ ) kann um die Probenachse gedreht werden, so dass die gewünschten Winkelbereiche während der Reflektionsmessung abgefahren werden. Aufgrund des Flächendetektors wird ein großer Bereich in  $\alpha_f$  gleichzeitig gemessen.

# Kapitel 4

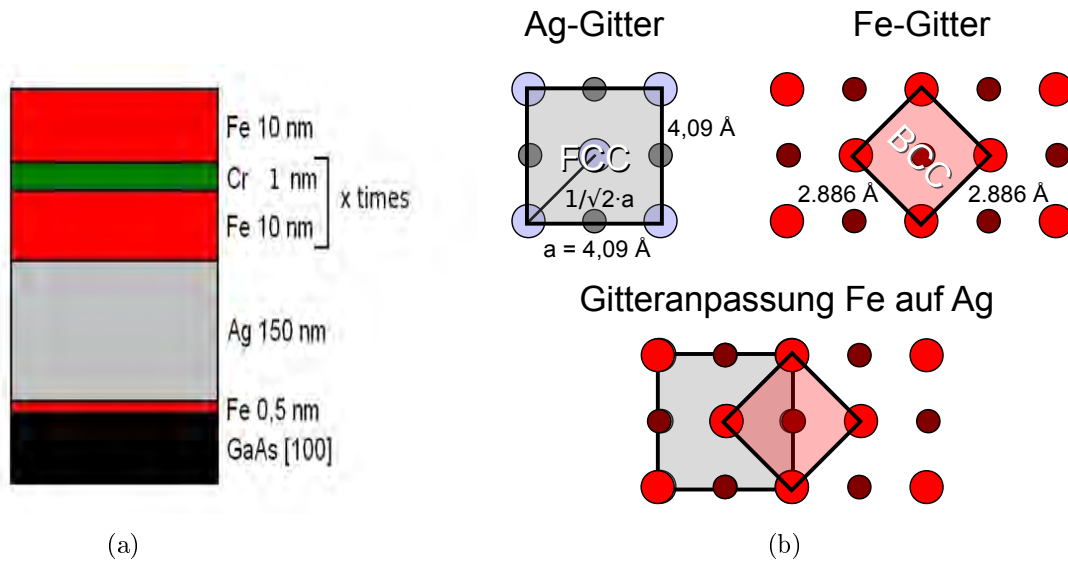
## Präparation und Strukturierung von Fe/Cr-Schichtsystemen

### 4.1 Probenherstellung mit Hilfe der Molekularstrahlepitaxie

Epitaktisch aufgedampfte Fe/Cr - Mehrschichten gelten aufgrund ihrer klaren Eigenschaften, ihrer Reproduzierbarkeit und ihrer starken antiferromagnetischen Kopplung als ein gutes Modellsystem zur Untersuchung magnetischer Korrelationen in lateral strukturierten Schichtsystemen. Da die magnetischen Eigenschaften der Fe-Schichten stark von äußeren Einflüssen wie der Schichtdicke und der Schichtqualität (z.B. Rauigkeit) abhängen, müssen möglichst einkristalline, defektarme und glatte Schichten erzeugt werden. Hierzu haben wir die MBE-Methode verwendet.

Um ein epitaktisches Wachstum zu gewährleisten, müssen die Gitterparameter des Substrats mit dem des aufzudampfenden Materials vergleichbar sein, andernfalls entstehen Verzerrungen beim Wachstum, die das geordnete Relaxieren der Schicht in die eigene Kristallstruktur verhindern. Das kubisch raumzentrierte (bcc) Eisen wächst in [100]-Orientierung um  $45^\circ$  in Schichtebene gedreht auf der (100)-Oberfläche des kubisch flächenzentrierten (fcc) Silbers auf (siehe Abbildung 4.1). In dieser Orientierung passen die Gitter gut zueinander, denn die halbe Flächendiagonale der Elementarzelle bei Silber (0.2889 nm) und die Gitterkonstante von Eisen (0.2866 nm) weichen weniger als 1% voneinander ab. Chrom ist ebenfalls kubisch raumzentriert, und die Abweichung seiner Gitterkonstanten von 0.2884 nm zu der von Eisen ist ebenfalls gering als 1%. Für die verwendeten Fe/Cr-Schichten wird aufgrund der passenden Gitterkonstanten ein GaAs (100)-Einkristall als Substrate benutzt. Nach einem standardisierten Verfahren [7, 8] kann das Schichtwachstum noch verfeinert werden, indem eine Silberpufferschicht, die mittels einer Eisenkeimschicht auf einem Galliumarsenid (GaAs)- Wafer aufgedampft wird, verwendet wird. Ohne die Keimschicht würde Silber in zwei Orientierungen aufwachsen.

Die vollständige und saubere Substratvorbereitung ist ein wichtiger Punkt in der Herstellung von epitaktisch aufgewachsenen Dünnschichten. Um ein solches Wachstum zu gewährleisten, verwenden wir für die aufzudampfenden Fe/Cr-Schichten ein GaAs [100]-Substrate. Ein  $1 \times 1 \text{ cm}^2$  großes Substrat wird erst entlang der gewünschten Richtung aus einem  $2''$ -Wafer herausgebrochen. Danach erfolgt eine Reinigung im Ultraschallbad mit 2-Propanol. Nach dem Einschleusen des Substrats in die Hauptkammer der MBE wird es



**Abbildung 4.1:** Modell des Schichtsystems (a) und Gitteranpassung bei der Fe-Ag-Epitaxie (b)

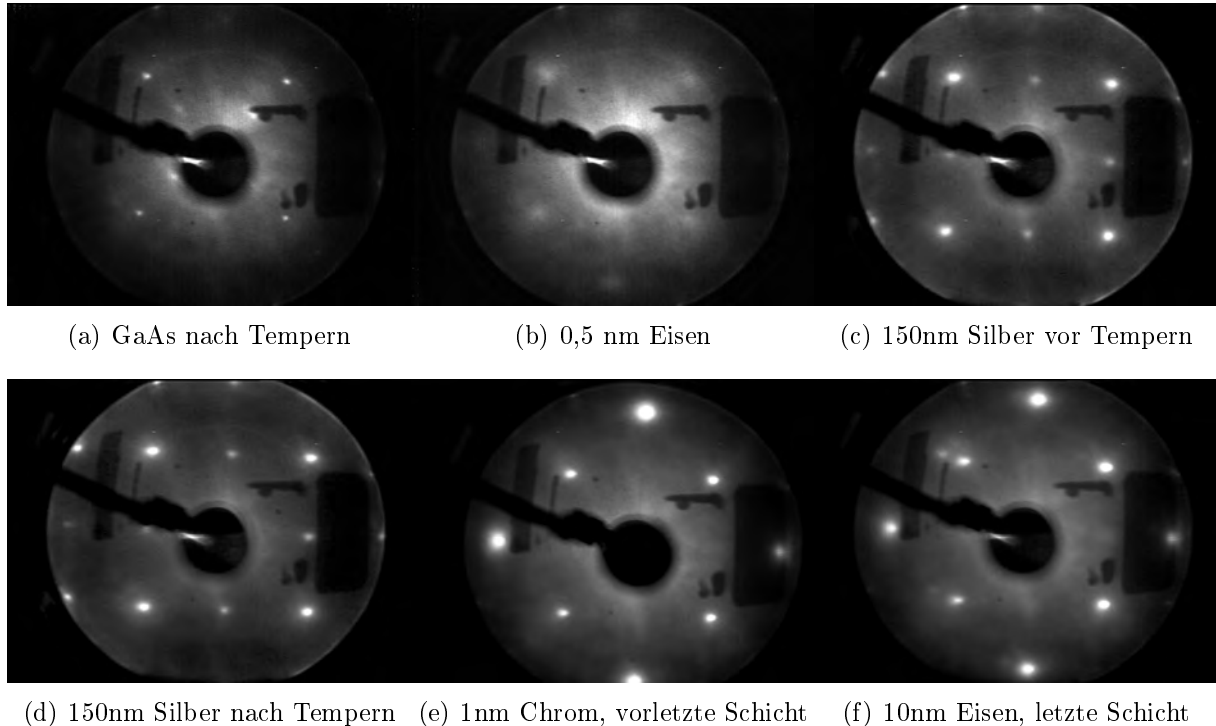
bei 670°C für eine Stunde getempert. Das Tempern dient der Entfernung jeglicher Verunreinigungen (Adatome) von der Oberfläche, im speziellen von Sauerstoffatomen. Zur strukturellen Charakterisierung wird das LEED benutzt. Ist ein klares LEED-Muster mit scharfen, intensitätsstarken Beugungsreflexen sichtbar, so kann man auf eine saubere, einkristalline Oberflächenschicht schließen, da die Eindringtiefe der Elektronen gering ist (siehe Abbildung 4.2 - a). Durch die Bewegung des Probenhalters kann die ganze Probe auf Fehler in der Struktur untersucht werden.

Auf dem gesäuberten GaAs-Substrat wird bei c.a. 130°C eine 0,5 nm dicke Eisen-Keimschicht mit einer Auftragungsrate von etwa 0,02 nm/s aufgetragen. Diese Schicht sorgt dafür, dass Silber nur in [100]-Richtung orientiert wird. Wenn man dies unterlässt, wächst Silber auf GaAs in einer Mischung aus [100]- und [111]- orientierten Kristalliten auf. Dann wird ein 150 nm dicker Silberpuffer mit ungefähr 0,17 nm/s aufgedampft. Während des Wachstums der Ag-Schicht relaxiert das Kristallgitter. Nach dem darauf folgenden Tempern des Silbers bei 330°C für eine Stunde werden die restlichen Fehlstellen beseitigt. Danach sind die auf der GaAs-Oberfläche noch vorhandenen Rauigkeiten durch den Silberpuffer weitestgehend geglättet, so dass ein gleichmäßiger Untergrund für die Eisenschicht vorliegt [7, 8]. Bei der Bedampfung ist die Temperatur des Substrates so gewählt, dass die bestmögliche Qualität der Schichten erreicht wird. Das bedeutet, dass genügend thermische Energie zur Oberflächendiffusion zur Verfügung steht, aber Interdiffusion/ Polykristallinität verhindert wird. Die LEED-Untersuchung der Schichten zeigen die Kristallinität (Abb. 4.2 b und c).

Auf die Silberoberfläche werden die Fe/Cr Multilaggen beginnend und endend mit einer Fe-Schicht präpariert. Die LEED-Bilder zeigen, dass beide Schichten epitaktisch aufwachsen (siehe Abbildung 4.2 d und e).

Die Dicke der Eisenschichten beträgt jeweils 10 nm und die der Chromschichten 1 nm.





**Abbildung 4.2:** LEED-Analyse nach den einzelnen Arbeitsschritten

Beide Materialien wurden mit einer Auftragungsrate von  $0,02 \text{ nm/s}$  nacheinander aufgetragen. Um Interdiffusion an den Grenzflächen und somit eine Schwächung der antiferromagnetischen Kopplung zu vermeiden, fand die Bedampfung bei Raumtemperatur statt. Die optimale Dicke der nicht magnetischen Zwischenschicht wurde experimentell bestimmt, um eine maximale antiferromagnetische Kopplung der Eisenschichten über die Chromschichten zu gewährleisten. Dieser Parameter wurde in einem Vorabversuch mit einer keilförmigen Chromschicht zwischen zwei Fe-Schichten bestimmt, indem die verschiedenen MOKE-Kurven für unterschiedliche Dicken verglichen und die mit der stärksten Kopplung ausgewählt wurde. Diese Angaben stimmen im Rahmen der Ungenauigkeiten des Schwingquarzes überein und sind reproduzierbar.

## 4.2 Strukturierung mittels Nanoimprint Lithografie und reaktivem Ionenätzen

Zur Untersuchung magnetischer Korrelation in lateral strukturierten Multilayern mittels Neutronenstreuung wird eine großflächige (in unserem Fall  $1 \text{ cm}^2$  - durch die MBE-Herstellung flächenmäßig begrenzt), regelmäßig strukturierte Probe benötigt. Die Strukturierung wird in dieser Arbeit durch die UV-basierte Nanoimprint Lithografie (UV-NIL), einem reaktiven und einem nicht reaktiven Ionenstrahlätzprozess durchgeführt (Kapitel 3.1.2 und 3.1.3).

Die Nanolimprint Lithographie ist geeignet zur Erzeugung von Strukturen von mehreren  $\mu\text{m}$  bis unter  $10 \text{ nm}$ . Dies stellt für unsere Untersuchungen eine Vielfalt an Strukturgrö-

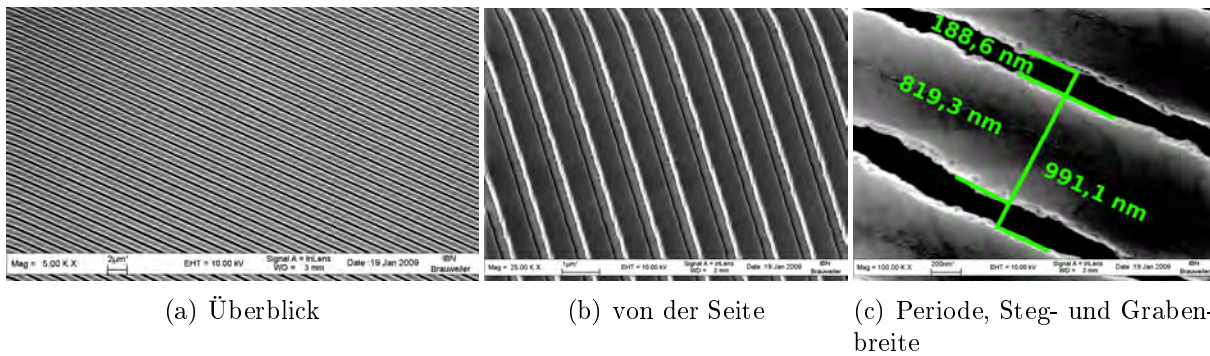


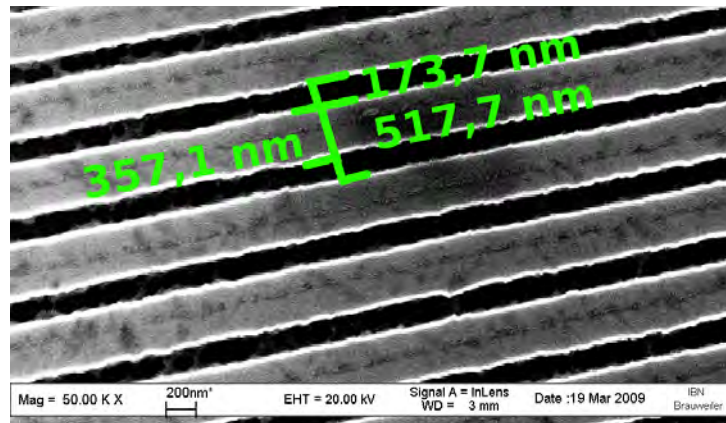
Abbildung 4.3: REM Bilder des Masters mit 1000 nm Periode

ßen zur Verfügung, die nur durch die Auflösung der Stempel begrenzt wird. Vergleichbare Verfahren wie die Elektronenstrahlithographie haben den Nachteil, dass mehrere Stunden bis Tage für eine Strukturierung benötigt werden und damit kostspielig sind. Bei der NIL muss nur ein Stempel, je nach Strukturgröße, aufwendig erzeugt werden, wovon dann viele Imprints gemacht werden können. Desweiteren erfordern sie meist einen hohen technischen Aufwand. Die herkömmliche UV-Lithographie hat den Nachteil, dass die Auflösung durch die Beugungsgrenze des Lichts limitiert ist und zusätzlich meist ein hoher technischer Aufwand nötig ist. Die Interferenzlithografie (IL) besitzt auch den Nachteil, dass die Auflösung durch die Beugungsgrenze des Lichts limitiert ist. Weiterhin ermöglicht es nur begrenzte Strukturformen (nur Streifen oder Inseln).

Im speziellen verwenden wir die UV-NIL, da sie bei Raumtemperatur und mit einem geringeren Imprintdruck durchführbar ist. Der geringe Druck ermöglicht uns, das leicht brüchige Standardsubstrat GaAs zu verwenden. Desweiteren kann Interdiffusion zwischen den Schichten bei Raumtemperatur ausgeschlossen werden, was bei thermischer NIL problematisch ist. Damit erscheint UV-NIL als ideales Verfahren zur Strukturierung der Fe/Cr-Vielfachschichtsysteme.

**Der Stempel** Für den Imprint wird ein sogenannter Soft-Mold benutzt. Er besteht in unserem Fall aus einem fluorierten Copolymer: Ethylen-Tetrafluorethylen (ETFE). Es wird von der Firma Asahi Glass Company serienmäßig unter dem Namen Fluon ETFE hergestellt. Folien dieses Kunststoffes besitzen eine hohe Licht- und UV-Durchlässigkeit, ein geringes Eigengewicht, eine niedrige Oberflächenenergie (Anti-Adhäsion) und eine hohe Festigkeit (Elastizitätsmodul 800 MPa [14]). Diese Eigenschaften machen dieses Material zu einem idealen Werkzeug, da ein UV-durchlässiges Material bei diesem Imprintverfahren erforderlich ist und eine geringe Haftreibung zum Lösen des Stempels von der Probe wichtig ist. Die relativ hohe Festigkeit des Materials ermöglicht eine gute Formstabilität und -genauigkeit.

Zur Strukturierung des Polymerstempels benötigt man einen sogenannten Master, dessen Negativabbild auf den Mold übertragen wird. In dieser Arbeit wurden Master aus Quarzglas benutzt, die von der Firma AMO GmbH mit Interferenzlithografie (IL) hergestellt wurden. Für den Anfang unserer Untersuchung sind Strukturen, in unserem Fall Linien-  
gitter, mit einer Periode von 1000 nm und 500 nm Periode ausreichend, so dass dieser Stempel auf einer Fläche von 1,7 cm x 1,7 cm mit Interferenzlithografie kostengünstig

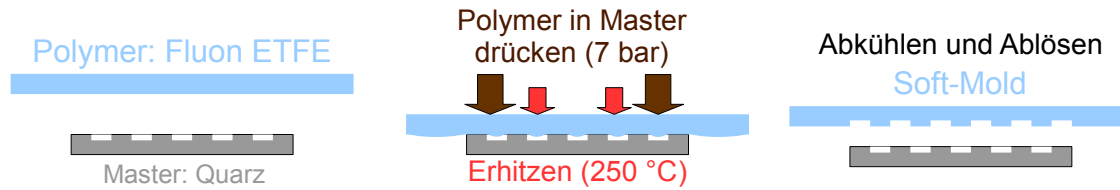


(a) Periode, Steg- und Grabenbreite

**Abbildung 4.4:** REM Bilder des Masters mit 500 nm Periode

hergestellt werden konnte. Zur Erzeugung von kleineren Strukturen (unterhalb der Beugungsgrenze von sichtbarem Licht) auf einem Master kann später die Elektronenstrahlithografie verwendet werden. Die Wahl einer so großen Gitterfläche war beabsichtigt, da man die Randeffekte, die bei der Herstellung mit der IL entstehen, beachten muß und wir für unsere Strukturen diesen Effekt ausschließen wollen. Das Liniengitter auf dem Quarzglas liegt parallel zu den Kanten, so dass ein Ausrichten der Streifen beim Imprint möglich ist. Die Ätztiefe der Gräben im Quarzglas beträgt bei 1000 nm Periode ungefähr  $300 \text{ nm} \pm 5 \%$  und bei 500 nm Periode mindestens  $200 \text{ nm} \pm 5 \%$ .

Die Charakterisierung der Masterstruktur erfolgte mit dem REM. Die elektronenmikroskopische Untersuchung gestaltet sich schwierig, da Quarzglas sehr schlecht elektrisch leitend ist und leicht Aufladungseffekte entstehen können, was sich besonders bei kleineren Strukturen auswirkt. Die Schärfe nimmt bei stärkerer Fokussierung weiter ab. Kanten sind nicht mehr so scharf darstellbar und es liegt ein leichtes Untergrundrauschen vor (vergleiche Abb. 4.3 und 4.4). Dieser Effekt nimmt bei kleineren Strukturen zu, da die Raumladungen an Kanten zu inhomogenen elektrischen Feldern in Probennähe führen, die den Elektronenstrahl ablenken und so das Bild verfälschen. Bei Strukturen  $< 1000 \text{ nm}$  Periode konnten nicht alle Richtungseinstellungen gemessen werden. Der Master mit 1000 nm Periode zeigt in der Überblicksaufnahme (Abb. 4.3 a)) eine gut definierte periodische Struktur. Bei den Aufnahmen mit höherer Auflösung ( $10^5$ -fach) erfolgte die Bestimmung der Perioden (Abb. 4.3 c)). Die Periode ist recht gut reproduziert, es zeigt sich eine Stegbreite von ungefähr 800 nm und eine Grabenbreite von ungefähr 200 nm. Die Messungenauigkeit wird hier durch die Kantenrauigkeit hervorgerufen. Diese Messungen wurden an verschiedenen Stellen wiederholt und bestätigten diese Werte. Die Ränder der Stege zeigen große Rauigkeiten, die vermutlich durch den Ätzprozess bei der Herstellung entstanden sind. Desweiteren fällt eine raue Linie in der Mitte der Stege auf (in Abb. 4.3 c) zu sehen), die durch den Ätzprozess entstanden sein kann, zu dem uns die Firma keine weiteren Angaben gegeben hat. Die REM-Aufnahmen für den Master mit 500 nm Periode sind von wesentlich schlechterer Bildqualität aufgrund des Zusammenspiels von kleinerer Periode und dem schlecht leitenden Material. Aber auch hier sind die Rauigkeiten auf und am Rand des Stegs erkennbar. Die Periode stimmt mit den Erwartungen überein und es



**Abbildung 4.5:** Schematische Darstellung der Erzeugung eines Molds mit Hot Embossing

liegt eine Grabenbreite von 200 nm und eine Stegbreite von ungefähr 300 nm vor.

Die Masterstrukturen definieren direkt das Moldgitter und diese wiederum die spätere Auflösung des Imprints. Wie zu erwarten ist, werden die Rauigkeiten des Masters auf den Mold übertragen (Abb. 4.6 b)).

Der Grund der Benutzung eines Masters und eines Soft-Molds ist, dass man mit dieser Methode einen teuren, großflächigen und aufwendig strukturierten Stempel (Master) nur einmal herstellen muss und hiervon eine große Anzahl von Negativabbildern in Fluon herstellen kann. Mit diesen Molds können dann einige Imprints vollzogen werden, der Master wird dabei geschont. Der Soft-Mold hat den Vorteil, dass er billig herzustellen ist und sich mehr an die Oberflächenbeschaffenheit der Probe angleichen kann, ohne an Formgenauigkeit zu verlieren.

Die Übertragung der Struktur des Quarz-Masters auf den Fluon-Mold findet durch einen Hot Embossing Prozess statt (siehe Abbildung 4.5). Vor der ersten Replizierung der Struktur muss der Master noch vorbehandelt werden. Um ein Haften des Masters an dem Mold zu verhindern und damit eine Ablösung der beiden Komponenten nach dem Hot Embossing zu gewährleisten, wird die Oberfläche mit einer Antihafschicht überzogen. Dies findet mit einem sogenannten Silanisierungsverfahren statt, bei dem eine Silanverbindung chemisch an die Oberfläche des Masters gebunden wird. In unserem Fall ist dies ein fluorhaltiger Kunststoff namens 1H,1H,2H,2H-Perfluorooctyltrichlorosilan. Er besitzt aufgrund seiner strukturellen Eigenschaften eine geringe Adhäsion. Das genaue Silanisierungsverfahren kann man in [13] nachlesen. Vor jedem NIL-Prozess werden die Komponenten in 2-Propanol und der Master auch in Aceton gereinigt. Beim Hot Embossing wird die Kunststoffolie über den Stempel gelegt. Bei einer Temperatur von 250 °C (welche über der Glasübergangstemperatur von Fluon liegt) und einem Druck von 7 bar wird innerhalb von 5 Minuten die Struktur im Imprinter in den nun weichen Mold übertragen. Nach dem Abkühlen kann der Mold vom Master vorsichtig getrennt werden. Hierzu wird das Schichtpaket in ein Isopropanolbad gelegt und danach mit einer Rasierklinge voneinander gelöst.

Abbildung 4.6 a) bis c) zeigen AFM-Aufnahmen von einem Mold mit 1000 nm Periode, Abbildung 4.7 a) bis e) von einem Mold mit 500 nm Periode. Die Struktur ist gut repliziert. Vorhandene Rauigkeiten an der Oberfläche und an den Seitenrändern des Steges sind wie erwartet übertragen worden. Da hier ein Negativabbild vorliegen soll, erwarten wir eine Stegbreite von 180 nm/ 170 nm und eine Grabenbreite von 810 nm/ 350 nm. Diese Werte entsprechen im Rahmen der Fehler unseren Messwerten. Desweiteren kann man hier auch eine Tiefenmessung durchführen, ohne den Stempel zu zerstören. Laut Firmenangabe

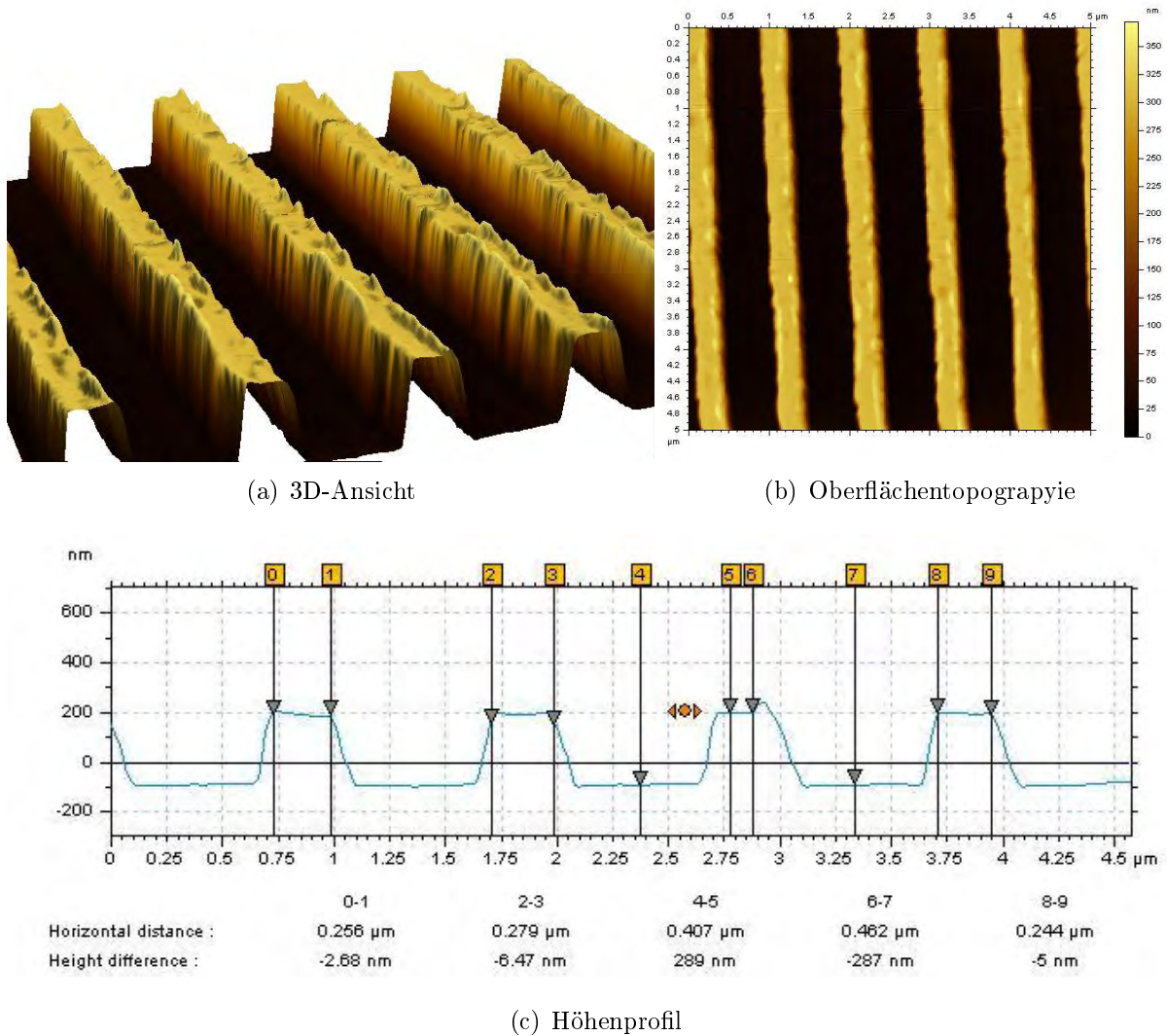


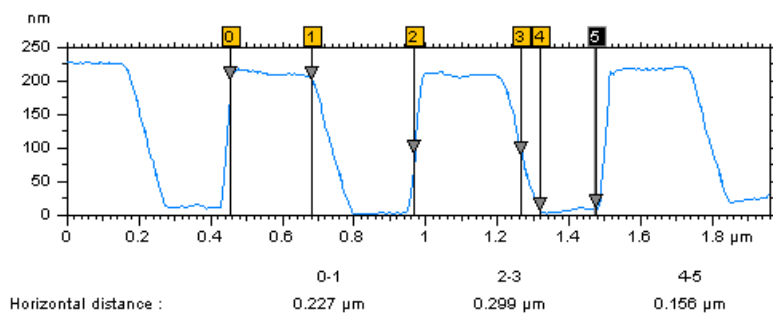
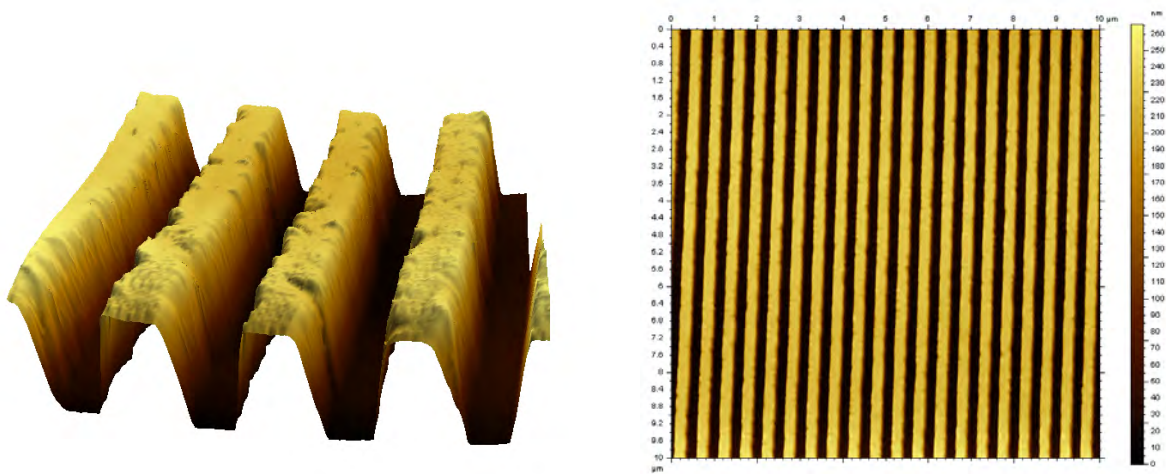
Abbildung 4.6: AFM Bilder des Molds mit 1000 nm Periode

beträgt die Ätztiefe der Gräben auf dem Master mindestens 300 nm/ 200nm. Die AFM-Messungen zeigen, dass diese Tiefe auf den Mold übertragen wurde.

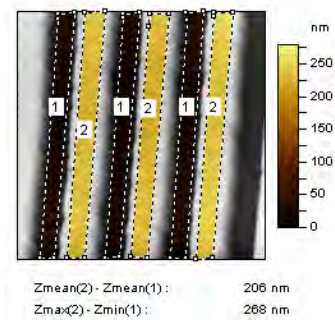
**Der Imprint** Die Strukturierung der Fe/Cr-Mehrschichten erfolgt durch die selbst hergestellten Soft-Molds mit Hilfe der UV-Nanoimprintlithografie.

Vor dem Imprint müssen Probe und Mold vorbehandelt werden. Die Reinigung der Probenoberfläche erfolgt mit Aceton und 2-Propanol im Ultraschallbad. Die zweistufige Probenreinigung säubert die Oberfläche von Partikeln und organischen Verunreinigungen mit Hilfe des Acetons und entfernt das anhaftende Aceton mit Isopropanol, so dass eine Verbesserung der Lackbenetzung und -haftung vorliegt. Der Mold wird nur in Isopropanol gesäubert. Nach dem Säubern werden die Proben bei 120°C für 2 min. ausgeheizt, der Mold wird mit Stickstoff trocken geblasen. Das Ausheizen sorgt für die Desorption von  $H_2O$ . Zur Vermeidung einer erneuten Ablagerung von Wasser sollte die Probe direkt nach dem Abkühlen belackt werden.

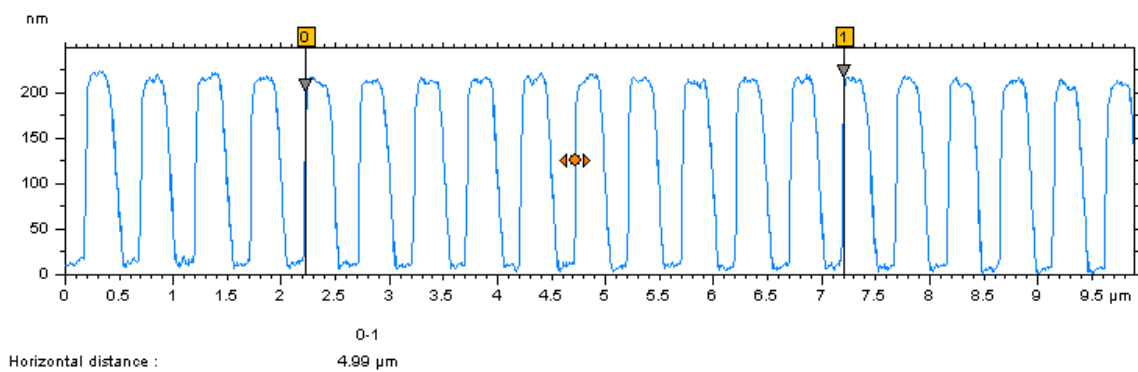
Um die Adhäsion zwischen Probe und UV-Lack zu verbessern, wird die Oberfläche mit



(c) Stufenbreiten

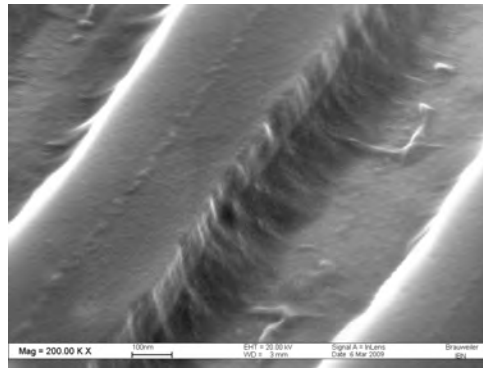


(d) Stufenhöhen



(e) Höhenprofil

Abbildung 4.7: AFM Bilder des Molds mit 500 nm Periode

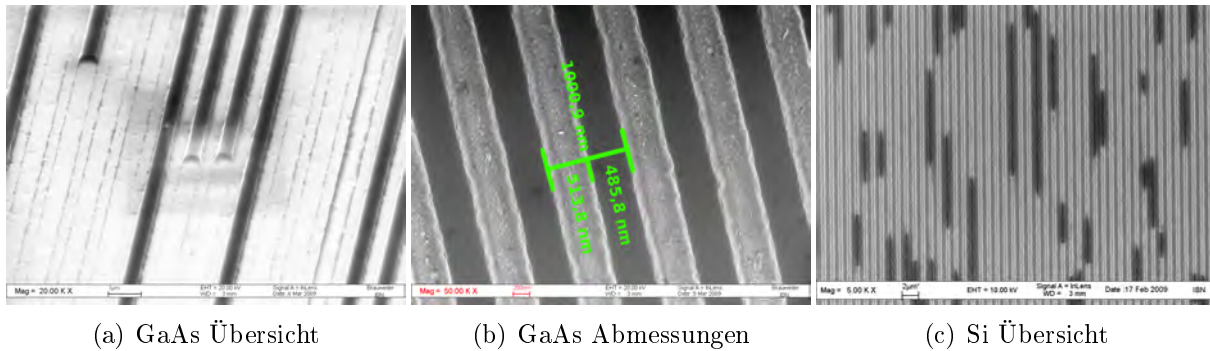


**Abbildung 4.8:** Übergang zwischen zwei Lackschichten

unpolaren Molekülen beschichtet, so dass die Fläche leicht eine Verbindung mit dem Lack eingeht und wasserabweisend ist. Dazu wird vor der Belackung ein TI Prime (beinhaltet Titan), hergestellt von der Firma MicroChemicals, mit 3000 Umdrehungen pro Minute (U/min) aufgeschleudert. Nach dem Aufschleudern ist ein Film von wenigen nm Dicke auf der Oberfläche entstanden. Durch das Ausheizen für 2 min. bei 120°C wird die Substanz mit der Oberfläche verbunden und wirkt dann als Haftvermittler.

Auf den TI-Prime wird der UV-Lack mr-UVCur06 von der Firma Micro Resist Technology mittels Spincoating gleichmäßig auf der Oberfläche verteilt. Die Schichtdicken werden durch die Drehgeschwindigkeit eingestellt. Form und Größe (Quadrat mit 1cm x 1cm Fläche) der Proben stellen hierbei eine Herausforderung dar. Aufgrund der Oberflächenspannung nimmt die Dicke des Lackes zum Rand hin zu. Gerade bei kleinen Proben führt dies schnell zu einer ungleichmäßigen Schichtdicke. Zu große Höhenunterschiede verhindern ein gleichmäßiges Aufsetzen des Stempels, was die Qualität der Strukturen am Rand verschlechtert. Hier wurde ein Kompromiß zwischen Dicke und Gleichmäßigkeit des Lackes gefunden, so dass bei einer gut verlaufenden Belackung ungefähr 85 bis 90 Prozent der Oberfläche gleichmäßig bedeckt wurde. Die besten Ergebnisse wurden zwischen 5000 U/min und 6000 U/min erzielt, was einer Schichtdicke zwischen 150 nm und 180 nm entspricht. Um doch noch eine ausreichende Dicke für den Imprint zu erhalten, der von der Eindringtiefe des Molds abhängig ist, wurde dieser Prozess zweimal hintereinander mit jeweiligem Ausheizen (30 s bei 100°C) des Lackes durchgeführt. Der Übergang zwischen den beiden Lackschichten ist gut in den Strukturen nach dem Imprint zu erkennen (Abb. 4.8). Nach dem Belacken muss die Probe möglichst schnell geprintet werden, da der flüssige Lack schnell altert und erfahrungsgemäß nach einer Stunde nicht mehr verwendbar ist.

Zum Imprintprozess wird der Soft-Mold und die Probe zusammengelegt. In die Mitte des Probenhalters der Imprintmaschine (Nanonex NX2000) wird der Mold mit der Struktur nach oben ausgerichtet. Die Probe wird mit der belackten Seite nach unten auf dem Stempel ausgerichtet und in den Mold gedrückt, wobei alle Hohlräume des Molds ausgefüllt sein sollten. Dieses untypische Verfahren wird angewandt, um das Schichtpaket mit dem umgebenden Halter sicher in einen anderen Reinraum transportieren zu können. Der Reinraumwechsel ist notwendig, da die Imprintmaschine in einem Reinraum steht, wo nur mit Silizium gearbeitet wird. Zur Vermeidung von Kontamination durch GaAs, wird die Belackung und das Packen in einem anderen Gebäude durchgeführt. Das ganze System



**Abbildung 4.9:** REM-Bilder des Imprints mit 1000 nm Periode auf GaAs ((a), (b)) und einer Siliziumtestprobe (c)

wird dann in die Imprintmaschine eingebaut und der Imprintprozess bei einem Druck von 7 bar, einer UV-Belichtungszeit von 4 bis 5 min. und Raumtemperatur durchgeführt. Durch das eingestrahlte UV-Licht wird der flüssige Lack vernetzt und dadurch fest. Am Ende werden beide Komponenten vorsichtig voneinander getrennt und der Lack besitzt das Negativabbild der Struktur des Molds.

Die erzeugten Liniengitter wurden nach dem Imprint mit dem REM charakterisiert. Der Test-Imprint im Lack auf einem Fe/Cr - Mehrschichtsystem mittels eines Stempels von 1000 nm Periode ist in 4.9 a) und b) zu sehen. Die Periode und die Strukturen sind hier recht gut wiedergegeben. Das Verhältnis von Steg- zu Grabenbreite ist jedoch nicht erhalten geblieben. Der Steg ist um 300nm schmaler als erwartet, dagegen ist die Grabenbreite um 300 nm erhöht. Dies kann eventuell auf den für diese Probe verwendeten höheren Druck von 34 bar zurückgeführt werden. Desweiteren haben sich auch die Rauigkeiten, die schon auf dem Master zu erkennen war, auf die Oberfläche des Steges übertragen. Da der Lack zum Ende des Prozesses auf den Stegen entfernt wird, spielt dieser keine Rolle mehr. Ein Ausschnitt der Probe, bei dem die Strukturierung nicht vollständig erfolgte, ist in 4.9 c) zu sehen. Eine Messung der Steghöhe an einem unvollständigen Steg ergab annähernd die erwarteten 300 nm.

Auch bei den Si-Testproben waren die Stege nicht alle vollständig gefüllt (4.9 c)). Dies ist wahrscheinlich auf eine zu geringe Lackdicke und zu geringe Verdrängung aufgrund der Elastizität des Soft-Molds zurück zu führen. Eine Erhöhung der Lackdicke durch langsames Spincoating war aufgrund der oben beschriebenen Randeffekte nicht möglich. Auch ein Auftragen von 2 Lackschichten hintereinander brachte nicht das gewünschte Resultat, daher sind im Folgenden Proben mit 500 nm Strukturierungsperiode gezeigt, bei denen der parallel entwickelte Prozess ohne diese Fehler verlief.

Die Aufnahmen von einer Silizium - Testprobe (Abb. 4.10), die mit einem 500 nm - Liniengitter gestempelt wurde, erfolgten mit einem anderen REM. Leider konnten hier keine Bilder mit so hohen Auflösungen wie bei dem verwendeten Standard-REM gemacht werden. Die Periode und die Strukturen sind hier sehr gut wiedergegeben (Abb. 4.10 b)), dies wurde stichprobenartig über die ganze Probe und bei anderen Testproben überprüft. Im Gegensatz zur 1000 nm Struktur musste hier ein kleineres Lackvolumen verdrängt werden (kleinere Stegbreite und Grabentiefe von 200 nm), daher kam es nicht zu den oben beschriebenen Problemen. Das Verhältnis von Steg- zu Grabenbreite ist auch erhalten geblieben, was auf den verwendeten geringeren Druck zurückzuführen ist. Somit konn-



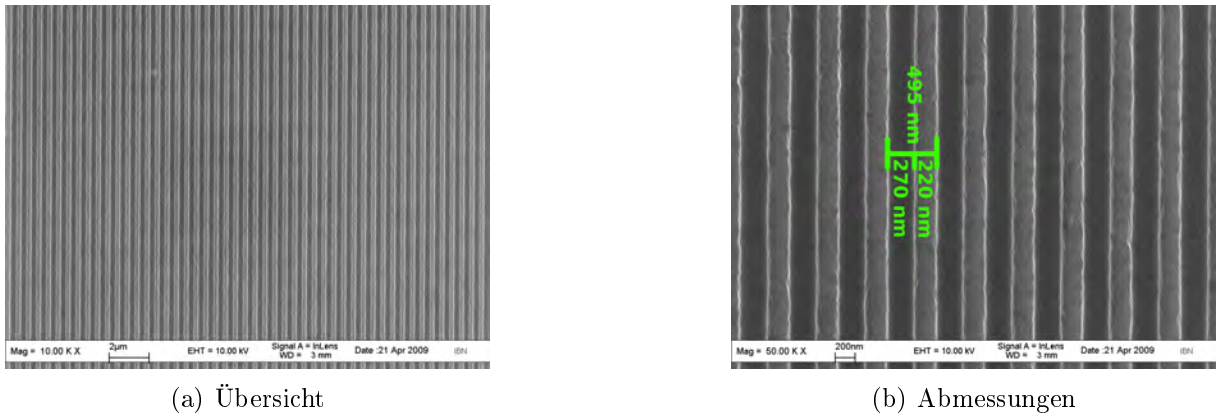


Abbildung 4.10: REM-Bilder des Imprints mit 500 nm Periode auf einer Siliziumtestprobe

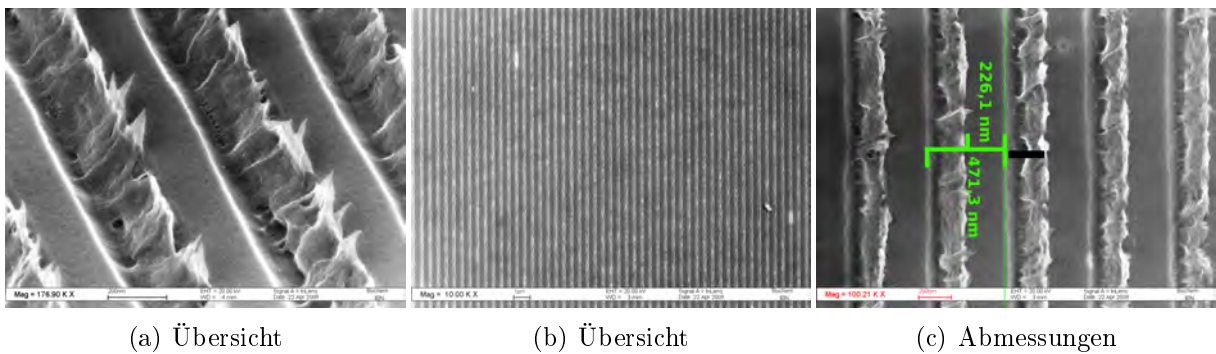


Abbildung 4.11: REM Bilder des Imprints mit 500 nm Periode auf einem Fe/Cr - Multilayer

te gezeigt werden, dass mit diesem Verfahren und bei dieser Streifenperiode Strukturen guter Qualität herstellbar sind. Leichte Rauigkeiten an den Rändern sind hier auch zu erkennen, jedoch keine Struktur auf der Lackoberfläche des Steges.

Die REM-Aufnahme des Fe/Cr-Schichtsystems, welches für die Neutronenstreuung strukturiert wurde, nach dem Imprint ist in Abbildung 4.11 gezeigt. Bei der Übersicht zeigt sich, dass das Liniengitter über die ganze Probe sauber reproduziert wurde. Bei stärkerer Vergrößerung ist zu erkennen, dass sich der Lack aus den Gräben, der eine dünne Schicht auf dem Boden der Gräben bilden sollte, aufgewölbt und über die Stege gelegt hat. Die Ursachen hierfür werden in zukünftigen Testreihen geklärt werden, da die REM Aufnahmen nur Spekulationen zulassen. Es ist zu vermuten, dass es aufgrund der Temperaturschwankungen beim Wechseln der Reinräume zu negativen Einflüssen auf den Lack gekommen ist, z.B. chemische Veränderungen oder Austrocknen. Diese Probe war die einzige, die so ein Verhalten zeigte. Aus zeitlichen Gründen musste sie in diesem Zustand für die Neutronenmessung verwendet werden, da der Imprint nicht mehr rückgängig gemacht werden konnte.

**Der Ätzprozess** Um die Lackstruktur auf die Eisenschicht abzubilden, ist ein Ätzverfahren notwendig. Durch die Wahl der richtigen Ätzparameter (z.B. Beschleunigungsspannung, Probenwinkel, Gasmischungen) ist es möglich eine hohe Materialelektivität und eine hohe Anisotropie zu erreichen. Die Substratätzraten für bestimmte Ätzgase mußten

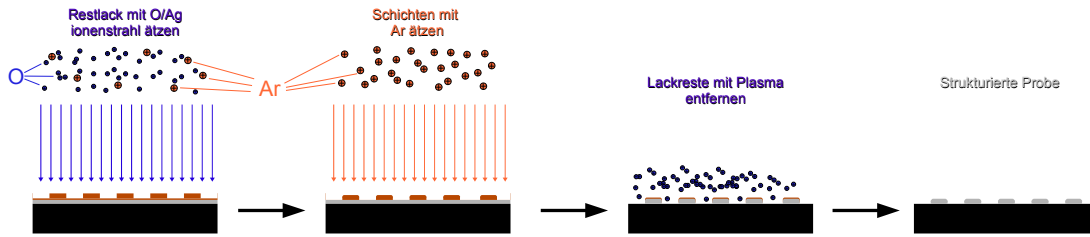


Abbildung 4.12: Schematische Darstellung des Ätzprozesses für unsere Strukturen

in Vorabversuchen bestimmt werden. Hierfür wurden Testproben, die aus mindestens 100 nm Schichten des jeweiligen zu ätzenden Materials bestanden, mit einer Maske teilweise bedeckt, um eine Stufe durch den nachfolgenden Ätzschritt im Material zu erzeugen. Die Ätzung greift dann nur die nicht bedeckte Schicht an. Aus dem Höhenunterschied, der mit einem Profilometer bestimmt wurde und der gemessenen Ätzzeit ergeben sich die materialspezifischen Ätzraten. Diese betragen für epitaktisch aufgewachsenes Eisen 0,15 nm/s für aufgeputtertes Chrom 0,21 nm/s und für die Lackschicht  $7,32 \cdot 10^3$  nm/s (Ar/O<sub>2</sub>).

Während des Prägevorgangs bleibt eine Restlackschicht (siehe 4.12) zwischen dem Substrat und den Erhebungen der Prägeform zurück. Diese muss vor der Substratstrukturierung entfernt werden, was mit Hilfe eines reaktiven Ionenstrahlätzprozesses erfolgt. Vom Lackhersteller wird als Ätzgas Sauerstoff empfohlen. Hier haben wir noch 20 Prozent an Argon beigemischt, um die Ätzung physikalisch zu unterstützen. Der Ätzprozess darf hierbei die Struktur der geprägten Lackstrukturen nicht verändern, weshalb die Dicke der Restlackschicht so gering wie möglich gehalten werden muß. Die sich ausbildende Dicke der Restlackschicht wird durch den Prägeprozess (Druck) und durch die Eigenschaften des Prägelacks (Viskosität) entscheidend beeinflusst.

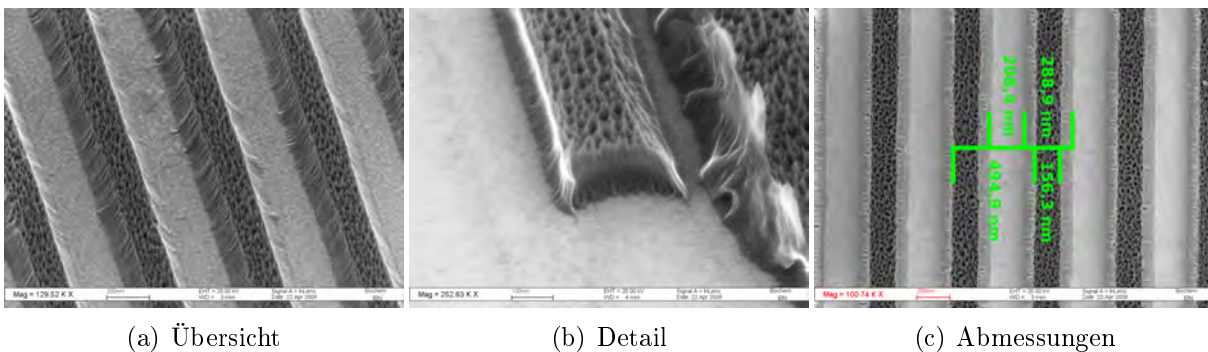
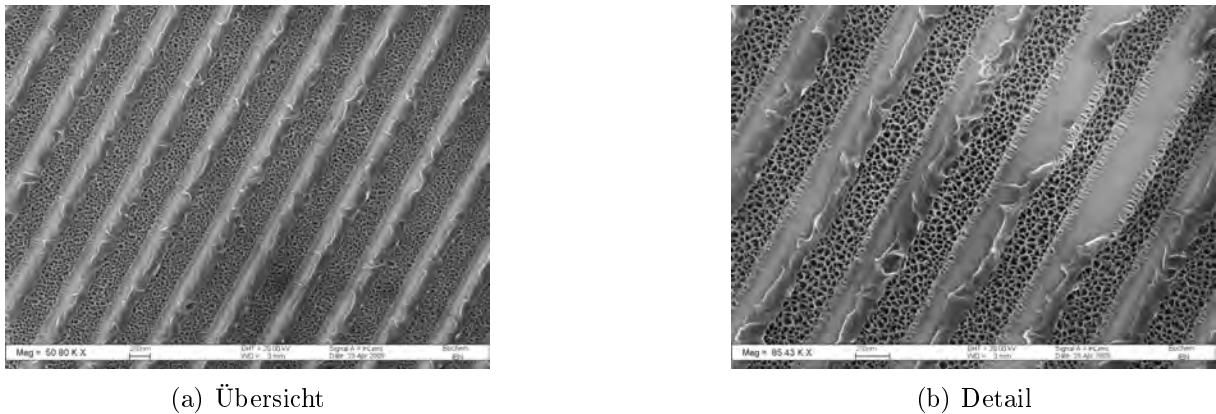
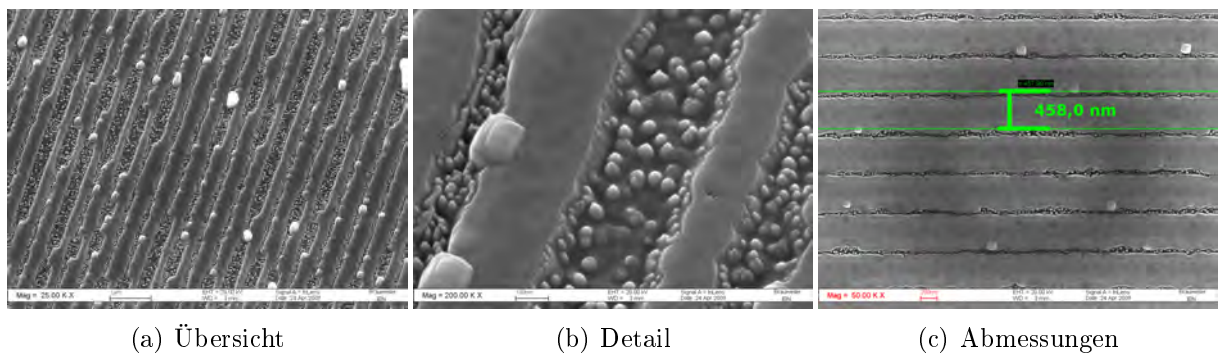


Abbildung 4.13: REM Bilder nach dem Sauerstoffätzprozess mit 500 nm Periode auf einem Si-Substrat

Der Testimprint auf einem Siliziumwafer zeigt, dass die Struktur auch nach dem reaktiven Sauerstoff - Ätzprozess (30 Sekunden) gut erhalten bleibt. Die Restlackschicht ist entfernt worden und das Silber ist in den Gräben erkennbar. Auch die AFM-Messung 4.16 bestätigt die gute Struktur. Die Tiefe der Strukturen von 160 nm zeigt, dass kaum



**Abbildung 4.14:** REM Bilder nach dem Sauerstoffätzprozess mit 500 nm Periode auf einem Fe/Cr - Multilayer



**Abbildung 4.15:** REM Bilder nach dem Argonätzprozess mit 500 nm Periode auf einem Fe/Cr - Multilayer

Lack von den Stegen entfernt wurde. Diese Lackhöhe müsste ausreichen, um später bei den Multilayern 100 nm tief zu ätzen. Periode und Stegbreite haben sich nur durch den zu erwarteten ätzprozessbedingtem Flankenabtrag der Stege verändert. Der Lack wurde zwar oberflächlich durch die reaktiven Ionen angegriffen und es sind Krater auf den Stegen erkennbar, die aber nicht zu tief in den Lack hineinreichen, so dass auch bei einem weiteren Ätzprozess die Erhaltung der Struktur gewährleistet ist.

Bild 4.14 zeigt den strukturierten Fe/Cr-Multilayer nach dieser Behandlung (45 s reaktives Ätzen). Hier fand ein nicht perfekter Prägeprozess statt, aus dem eine inhomogene Restlackschichtdicke resultierte (siehe Abb. 4.15). Um die Restlackschicht weitestgehend aus allen Bereichen der Gräben zu entfernen, wurde eine relativ lange Überätzung benötigt. Auch die verlängerte Ätzdauer war noch zu kurz, um die störenden Lackteile in den Gräben vollständig zu entfernen, hatte aber die Stege schon stark angegriffen. Aus diesem Grund war eine gute Übertragung der Struktur nicht mehr möglich.

Um die Struktur in das Eisen zu übertragen wurde ein unreaktiver Ätzschritt mit Argon-Ionen gewählt. Die Abtragsrate der Metallschichten ist etwa 100 mal höher als die des Imprintlackes, so dass dieser Prozess gut für die Strukturierung des freigelegten Eisens geeignet ist. Die Ergebnisse sind in Abb. 4.15 zu sehen. Wie zu erwarten, führten

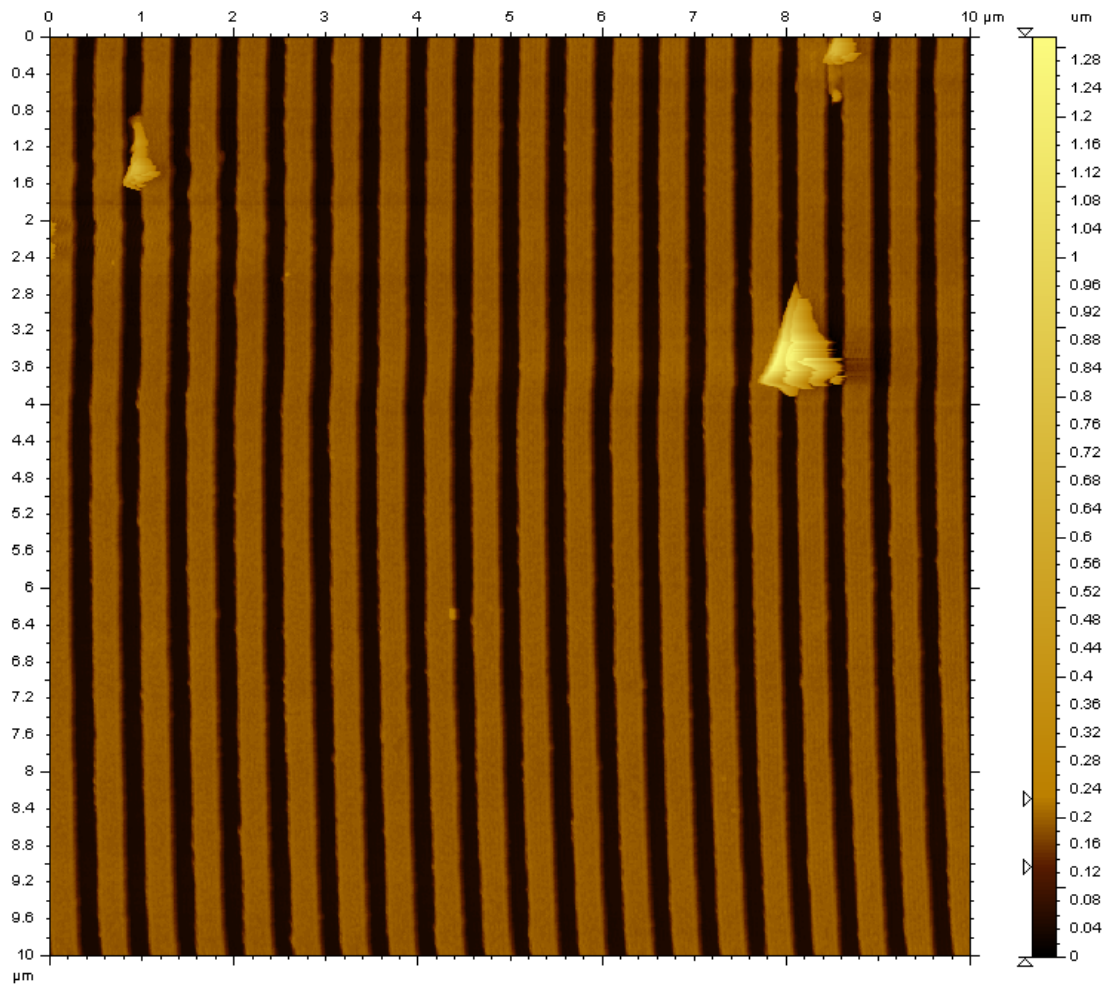
die Lackreste zu ungleichmäßigen Strukturen. Desweiteren liegt in den Gräben eine hohe Rauigkeit vor, was mit AFM bestätigt wurde. Außerdem zeigen sie auch, dass die Höhe der Stege nicht dem erwarteten Wert entsprechen. Aus diesen Aufnahmen kann man daraus schließen, dass Metallschichten weggeätzt wurden. Dies ist auf die zu hohe Sauerstoffätzzeit, die wegen der inhomogenen Restlackschicht gewählt werden mußte, zurück zu führen.

Nach diesem Prozess hätten die Überreste des Lackes auf den Stegen mit Hilfe eines Wasserstoffplasmas entfernt werden müssen, um somit eine zu hohe diffuse Streuung am Wasserstoff im Lack und damit eine Intensitätsverlust bei den anstehenden Streuexperimenten zu verhindern. Bei dieser Probe waren allerdings keine Lackreste mehr vorhanden.

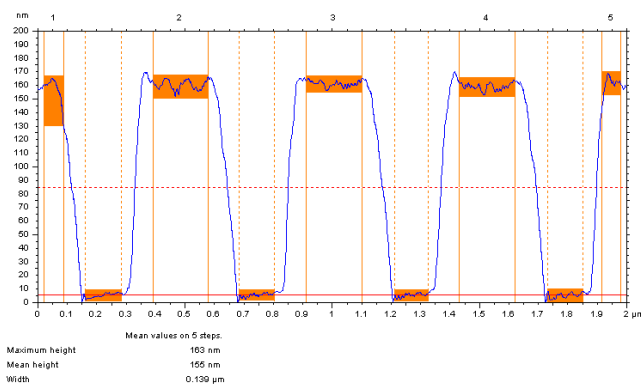
Zusammenfassend kann man sagen, dass mit diesem Teil der Arbeit ein Ansatz einer erfolgreichen Weiterentwicklung des UV-NIL-Prozesses für großflächige Strukturen auf  $1 \times 1 \text{ cm}^2$  großen Proben stattgefunden hat. Die Prozessparameter zur Strukturierung können weiter optimiert werden. Der Belackungsprozess kann durch eine Verbesserung der Spincoatingparameter und eventuell andere Lackwahl zu höheren Schichtdicken führen. Der Imprintdruck kann noch verbessert werden. Desweiteren kann davon ausgegangen werden, dass bei einer besseren Qualität des Masters, auch der Mold weniger Rauigkeiten aufweisen wird.

Es wurde gezeigt, dass GaAs dem Druck beim Imprint standhalten kann und das eine Belackung mit dem UV-aushärtbaren Lack möglich ist. Auch wenn die zur Neutronenstreuung verwendete Probe nicht optimal war, gab es eine Anzahl von Testproben bei denen der Imprint, zumindest mit 500 nm Strukturen, gut verlaufen ist. Bei 1000 nm Streifen gabe es sowohl bei GaAs- als auch bei Si-Testproben andere Probleme, die bis jetzt noch nicht behoben werden konnten (unausgefüllte Gräben).

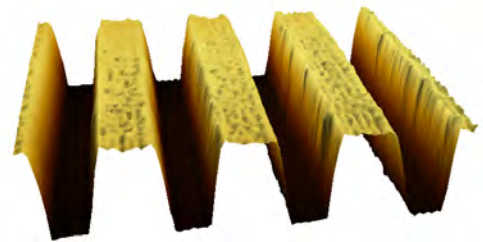
Auch die Strukturierung durch Ionenätzen muß weiter optimiert werden, insbesondere die Entfernung des Restlackes, ohne die Stege zu verändern. Aufgrund der zeitnahen Meßzeitvergabe konnten nicht alle Parameter ausgetestet werden (z.B. Optimierung der Ar/O<sub>2</sub> Mischung, Kippwinkel, Strahlintensität).



(a) Oberflächentopographie

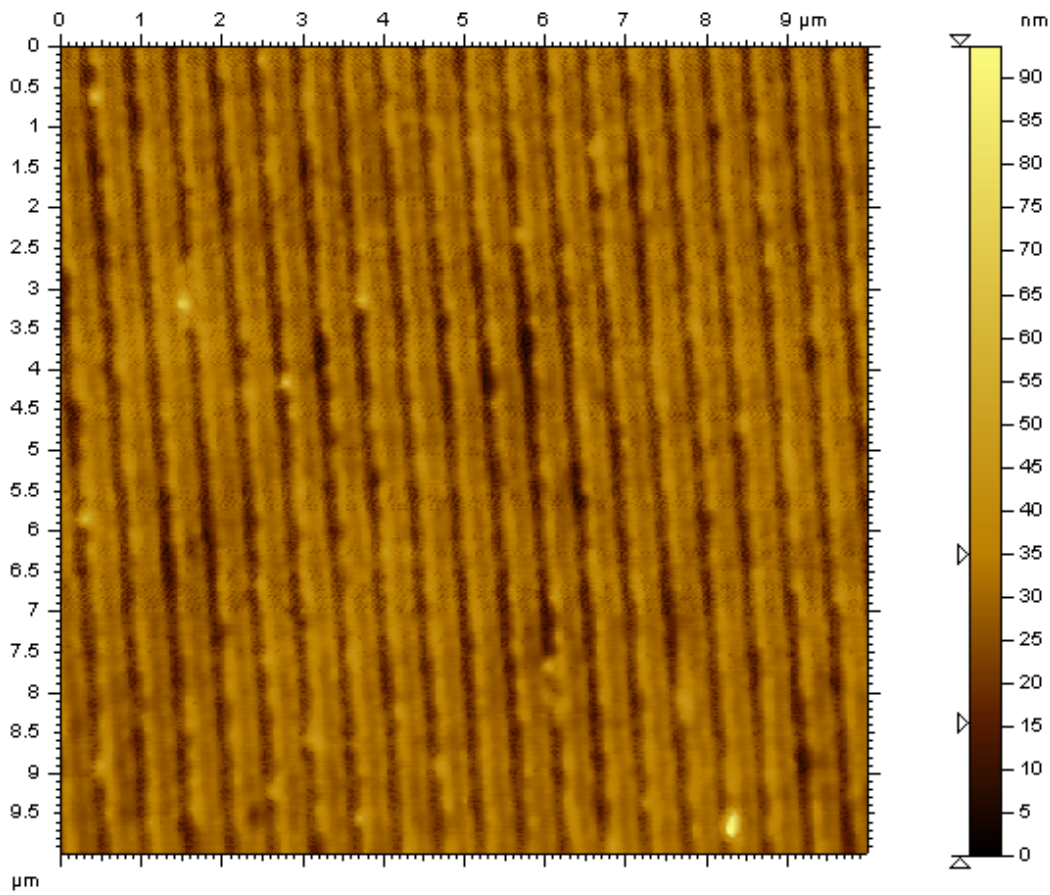


(b) Stufenhöhe

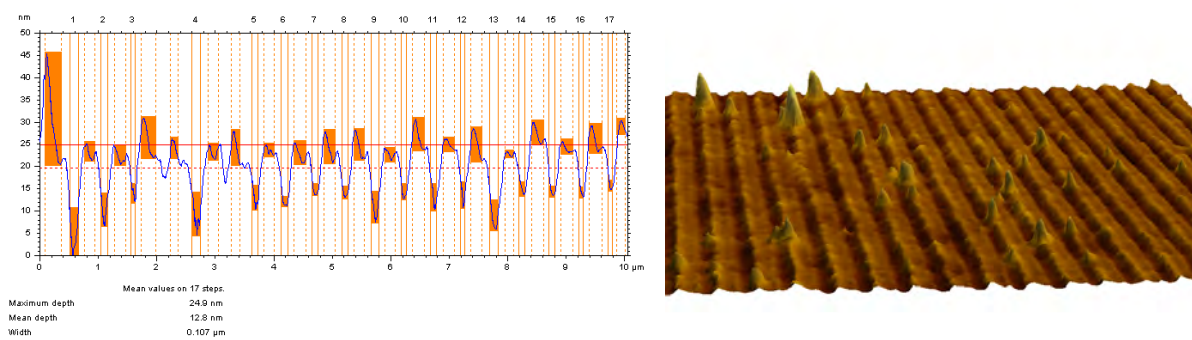


(c) 3d-Ansicht

**Abbildung 4.16:** AFM Bilder nach dem Sauerstoffätzprozess mit 500 nm Periode auf einem Si-Substrat



(a) Oberflächentopographie



(b) Stufenhöhe

(c) 3d-Ansicht

**Abbildung 4.17:** AFM Bilder nach dem Sauerstoffätzprozess mit 1000 nm Periode in Fe/Cr/Fe-Schichtsystem

# Kapitel 5

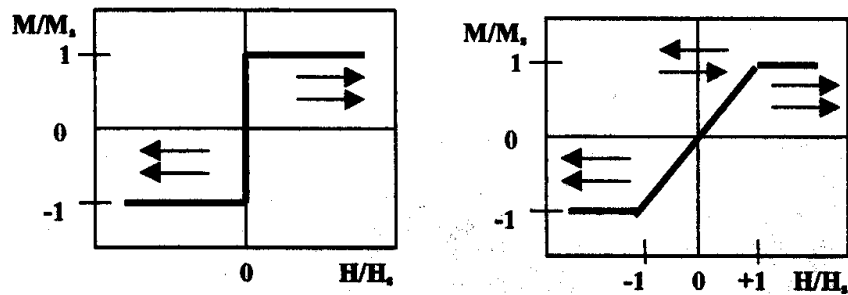
## Magnetische Eigenschaften von Fe/Cr-Schichtsystemen

### 5.1 Abhängigkeit der Eigenschaften von der Anzahl der Fe-Schichten

Zur Untersuchung des Einflusses einer lateralen Strukturierung auf die magnetischen Eigenschaften eines Fe/Cr-Vielfachschichtsystems werden zunächst unstrukturierte Proben auf ihre magnetischen Eigenschaften hin untersucht. Diese dienen später als Vergleichsproben zu den strukturierten Schichtsystemen, die unter gleichen Prozessbedingungen hergestellt werden und die gleiche Schichtkombination und -qualität besitzen.

Als passendes Modellsystem wählt man Schichten mit einem ausreichenden, nicht kompensierten magnetischen Moment im Remanenzbereich, welches zur besseren Untersuchung von Umklappprozessen dient. Bei der Neutronenmessung sollte außerdem genügend Intensität von der Probe gestreut werden, dass Messungen der diffusen Streuung auch noch bei höheren Winkeln möglich sind. Um ein nicht kompensiertes Moment bei antiferromagnetisch gekoppelten Fe-Schichten zu erhalten, wird eine ungerade Anzahl von Schichten gewählt. Die Intensität der Reflektivität nimmt mit der Anzahl der kohärent streuenden Schichten  $n$  quadratisch zu ( $I \propto n^2$ ), eine Erhöhung der Schichtanzahl hat also einen großen Einfluß.

Für diese Messungen sind Schichtsysteme mit 7 Eisenschichten und 6 Chromzwischen-schichten (7er-Fe-Schichtsystem) und mit 19 Eisenschichten und 18 Chromzwischen-schichten (19er-Fe-Schichtsystem) hergestellt worden. Zum Vergleich wurde noch ein einfaches 2er-Fe-Schichtsystem Fe/Cr/Fe aufgedampft, um einen einfacheren Ansatz bei der Simulation der MOKE-Daten zu haben. Die Nomenklatur in den Klammern der einzelnen Schichtsysteme wird zur Referenzierung in den folgenden Teilen dieser Arbeit verwendet. Alle Schichtsysteme sind mit der gleichen MBE (siehe Kapitel 3.1.1) nach der gleichen, in Kapitel 4.1 vorgestellten, Vorgehensweise hergestellt worden. Auf einem GaAs(100)-Substrat mit aufgedampfter Keim- und Pufferschicht, sind die Eisen- und Chromschichten epitaktisch aufgewachsen, was mit dem LEED überprüft wurde (siehe 4.1). Aufgrund des einkristallinen Wachstums sind die leichten Richtungen der Magnetisierungen bekannt. Das Substrat ist so entlang der [100]-Richtungen aus einem Wafer herausgebrochen worden, dass die 4 leichten Achsen parallel zu den Kanten liegen (Kristallanisotropie). Die Formanisotropie der dünnen Schichten erlaubt nur die leichten Achsen in der Ebene. Die Kenntnis der leichten Achsen ist für die in diesem Kapitel durchgeführten Messungen von



**Abbildung 5.1:** Idealisierte Ummagnetisierungskurven (magnetische Hysteresen) für ferromagnetisch (links) und antiferromagnetisch (rechts) gekoppelte Fe/Cr/Fe-Schichten. (aus [12])

Bedeutung, da sie ein Ausrichten des Magnetfeldes entlang der leichten Richtungen ermöglichen und somit eine Messung unter kontrollierten Bedingungen stattfinden kann.

### 5.1.1 Untersuchung der makroskopischen magnetischen Eigenschaften

Zur makroskopischen Charakterisierung der magnetischen Eigenschaften wird der Magnetooptische Kerr-Effekt verwendet. Mit dieser Methode wird durch qualitative Messung der Feldabhängigkeit des magnetischen Momentes, die Art und Stärke der Kopplung der Eisenschichten über die Chromzwischenschichten überprüft, hier im speziellen, ob eine ausreichend starke antiferromagnetische Kopplung vorliegt.

Die Fe-Schichten können ferro- oder antiferromagnetisch über eine Chromzwischenschicht wechselwirken. Welche Kopplungsart vorliegt, erkennt man an dem Verlauf der Ummagnetisierungskurve (Abb. 5.1). In dieser Graphik ist die auf die Sättigungsmagnetisierung normierte Magnetisierung eines Systems mit zwei magnetischen Schichten gegen das auf das Sättigungsfeld normierte externe Feld aufgetragen. Die Pfeile geben die jeweiligen Magnetisierungsvektoren in der oberen und unteren Fe-Schicht wieder. Charakteristische Größen einer Hystereseschleife sind die remanente Magnetisierung, die Koerzitivfeldstärke und die Sättigungsmagnetisierung. Die hier vorliegenden Kurven zeigen das magnetische Verhalten eines idealisierten Systems, in dem Eindomänen-Zustände in der Eisenschicht angenommen und Hystereseeffekten vernachlässigt werden. Für die ferromagnetisch gekoppelten Schichten ist die remanente Magnetisierung identisch mit der Sättigungsmagnetisierung. Bei antiferromagnetischer Kopplung ist in Remanenz die Magnetisierung null, sie steigt mit zunehmendem Feld an und geht bei der Überwindung der Austauschkopplungsenergie in die Sättigung über.

Die Art der Kopplung hängt von der Dicke der Chromzwischenschicht (siehe Kapitel 2.1) und der Wachstumstemperatur ab [26]. Rauigkeiten und Interdiffusion an den Grenzflächen der Schichten, die die Kopplungsstärken verändern, werden durch die Wachstumstemperatur beeinflusst. Liegt eine zu hohe Rauigkeit vor oder eine starke Durchmischung an den Grenzflächen, so kann eine  $90^\circ$ -Kopplung oder auch gar keine Kopplung existieren.

In Abbildung 5.2 ist die MOKE-Messung eines unstrukturierten 2er-Fe-Schichtsystems



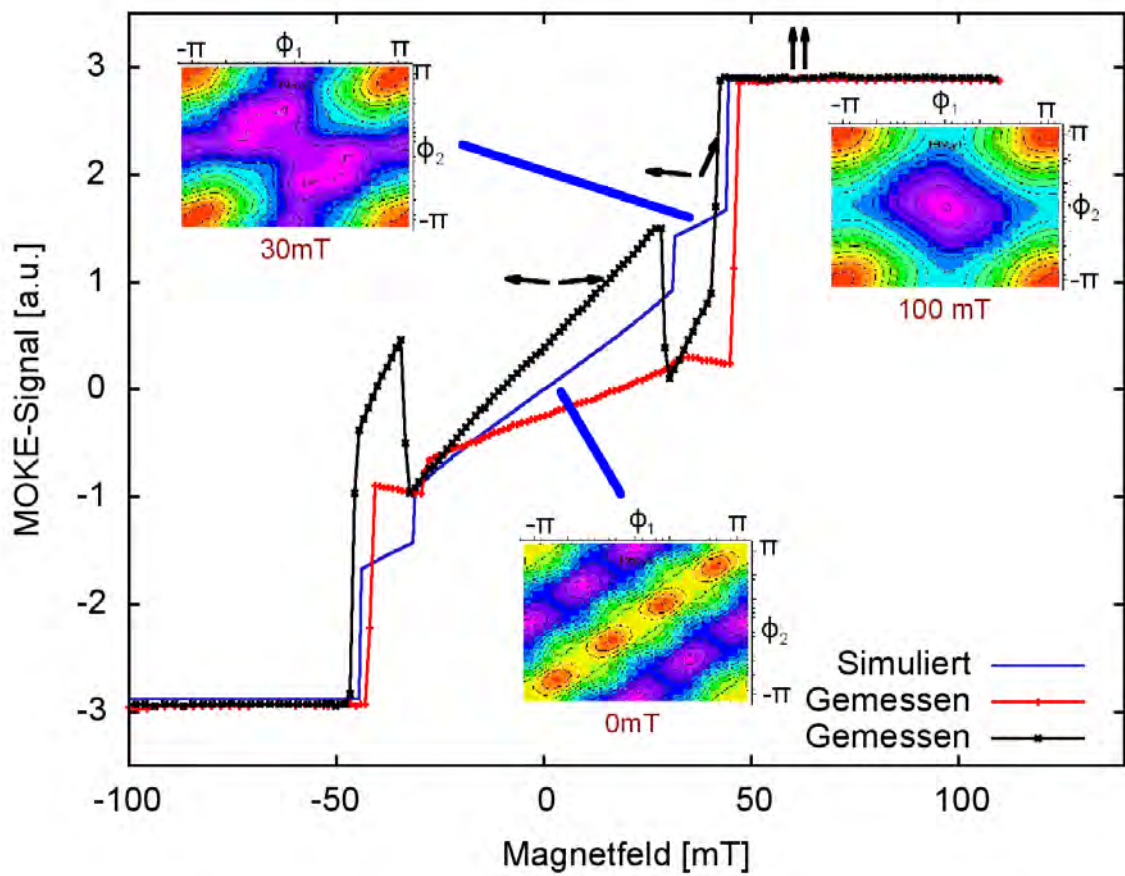


Abbildung 5.2: 2 AF-gekoppelte Fe-Schichten: MOKE-Messung, Simulation der Daten und Simulation von  $E(\varphi_1, \varphi_2, H)$

dargestellt, bei der das Magnetfeld entlang einer der leichten Achsen angelegt wurde. Man erkennt deutlich die antiferromagnetische Kopplung (AF-Kopplung). Die nicht erwarteten Sprünge im Bereich der 90°-Ausrichtung (z.B. bei 30 mT) sind Folge der Störung des Signals durch den transversalen Effekt, der in den anderen Bereichen entweder kompensiert (antiparallele senkrechte Ausrichtung bei kleinem Feld) oder nicht vorhanden ist (siehe Kap.3.2.2). Desweiteren ist das Signal der longitudinalen Magnetisierung mit einem Rauschen und einer thermischen Drift überlagert.

Diese MOKE-Daten können mit einem einfachen Modell simuliert werden. Die Minima der Gesamtenergie  $E_G$  (siehe Kapitel 2.1 Formel 2.3) können bezüglich der Winkel  $\varphi_1$  und  $\varphi_2$  numerisch mit einem Newton-Verfahren bestimmt werden. Aus den Winkeln ist dann die Berechnung der Magnetisierung möglich. Die Gesamtenergie  $E_G$  hängt von der AF-Kopplung, der Zeeman-Energie und der kubischen Kristallanisotropie ab. Diese drei Faktoren bestimmen die Ausrichtung der magnetischen Momente in den Schichten und damit die Magnetisierung. Dieses Modell beruht auf der Annahme einer homogenen Magnetisierung (Eindomänen-Zustand in jeder Schicht) und vernachlässigt thermische Effekte und vorhandene Potentialwälle, so dass keine Hystereseeffekte modelliert werden. Die Werte der Kopplungskonstante der bilinearen Kopplung  $J_1$  und der biquadratischen Kopplung  $J_2$  lassen sich durch eine Anpassung der Simulation an die Messkurve finden. Die Simulation liegt dann zwischen den gemessenen, hysteretischen Kurvenverläufen.

Der Unterschied zwischen den gemessenen und simulierten Daten ist die Aufspaltung bei den gemessenen Daten zwischen der hin- und rücklaufenden Kurve (entspricht der Koerzitivfeldstärke). Im realen System müssen bei Umklapprozessen Domänenwände verschoben und Potentialwälle überwunden werden, so dass die Sprünge bei höheren Feldern stattfinden, da mehr Energie aufgewandt werden muß. Diese Effekte werden bei dem verwendeten Modell nicht mit einberechnet, da nur das globale energetische Minimum gesucht wird.

Zur Verdeutlichung der Lage der Energieminima als Funktion der Winkeleinstellungen ist in Abb. 5.2 zu der MOKE-Kurve und der Simulation des 2er-Fe-Schichtsystems die Gesamtenergie  $E_G$  als Funktion der beiden Winkel für unterschiedliche Feldstärken dargestellt. Bei einem 2er-Fe-Schichtsystem sind die Minima der Winkeleinstellung noch darstellbar und zeigen das Verhalten des Schichtsystems gut. Ab 3 Fe-Schichten ist die Energie eine Funktion von Feld und 3 variablen Winkeln, so dass man sie in dieser anschaulichen Darstellung nicht mehr plotten kann.

Im Sättigungsfeld sind alle Winkel in Richtung der Quantisierungsachse, also parallel zueinander ausgerichtet. Die Kopplung zwischen den Ferromagneten ist durch die dominierende Zeeman-Energie aufgebrochen. Für die Gesamtenergie existiert ein globales Minimum. Bei einem Feld knapp unterhalb des Sättigungsbereiches verkanten sich die Magnetisierungen der Eisenschicht leicht zur Magnetfeldrichtung, bis hinab zu einem Magnetfeld, das klein genug ist, dass die AF-Kopplung stark an Einfluss gewinnt und einer der beiden Magnetisierungsvektoren über die schwere Achse springen kann. Bei 30 mT sind global gleichwertige Minima zu sehen, die ungefähr eine 90°-Ausrichtung widerspiegeln. Bei immer geringerer Feldstärke überwiegt die AF-Kopplung immer mehr und die Winkeleinstellungen bewegen sich immer mehr zur antiparallelen Ausrichtung unter Berücksichtigung der Anisotropie. Bei 0 mT sind die Magnetisierungen antiparallel zueinander entlang der leichten Achse ausgerichtet und es gibt 4 physikalisch gleichwertige Lösungen. Die kleinen, nicht so tief liegenden, Punkte stellen lokale Minima dar, bei denen die Austauschkopplungs- oder AF-Kopplungsenergie minimal sind.

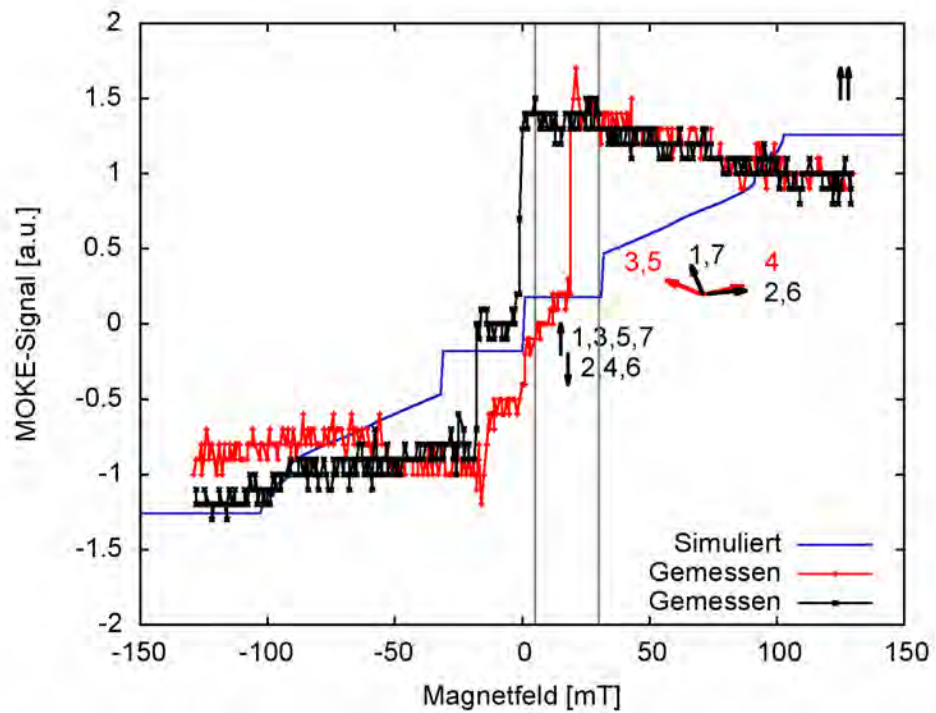


Abbildung 5.3: MOKE-Messung und Simulation von 7 AF-gekoppelten Fe-Schichten

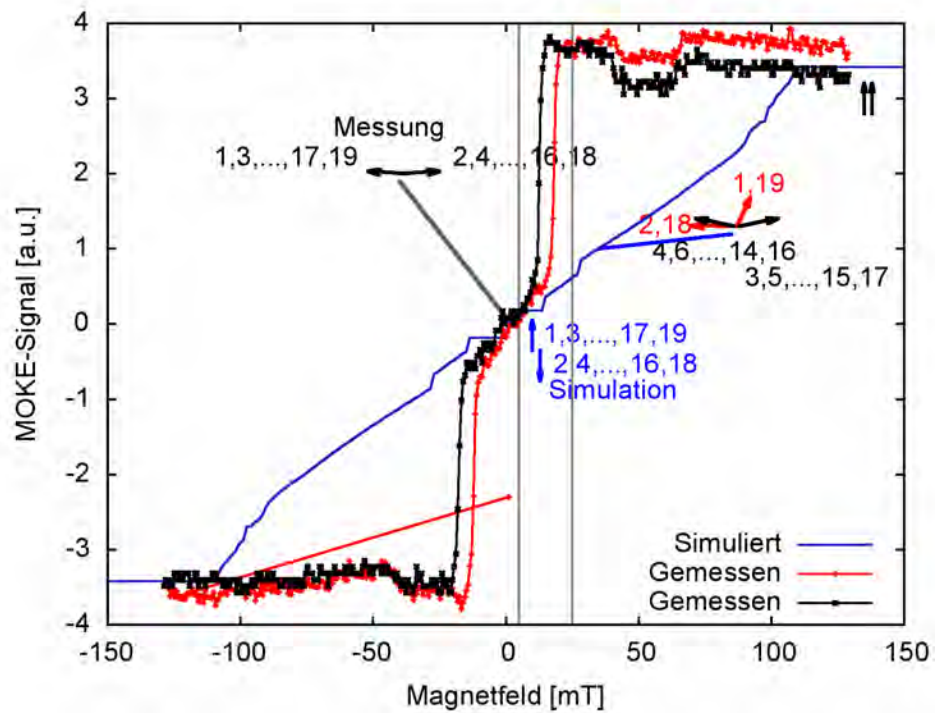


Abbildung 5.4: MOKE-Messung und Simulation von 19 AF-gekoppelten Fe-Schichten

In Abbildung 5.3 und 5.4 sind die MOKE-Messungen eines unstrukturierten 7er-Fe-Schichtsystems und eines 19er-Fe-Schichtsystems mit den dazugehörigen Simulationen dargestellt. Diese Simulationen wurden auf die gleiche Weise wie bei dem 2er-Fe-Schichtsystem erzeugt. Diese beiden MOKE-Messungen sind verrauschter als die des 2er-Fe-Schichtsystems. Daher führt die Anpassung der J-Parameter an die Messung zu keinen sinnvollen Werten und es wurden die gleichen Kopplungsstärken wie für zwei Schichten angenommen. Daher liegen die Sprünge nicht genau auf den Feldern der Messkurve, trotzdem ist das qualitative Verhalten gut erkennbar.

Das 7er-Fe-Schichtsystem zeigt das typische Verhalten, das für eine ungerade Anzahl von Fe-Schichten erwartet wird. In Remanenz liegt ein nicht kompensiertes magnetisches Moment vor, welches in Richtung des Feldes ausgerichtet ist. Bei zunehmendem Feld nimmt der Einfluß der AF-Kopplungsenergie ab und die Magnetisierungen verkanten sich immer mehr über die 90°-Ausrichtung bis zur Sättigung, bei der alle magnetischen Momente parallel ausgerichtet sind. Diese Kurve stimmt mit dem Verhalten der Simulation gut überein.

Das 19er-Fe-Schichtsystem zeigt nicht das erwartete Verhalten bei der Remanenz eines Schichtsystems mit ungerader Anzahl von Fe-Schichten und stimmt auch nicht mit der Simulation im Remanenzbereich überein. Es scheint so, als ob alle magnetischen Momente kompensiert wären. Offenbar ist im Remanenzfeld die verkantete Einstellung aller magnetischen Momente energetisch günstiger als eine antiparallele Ausrichtung. Dies lässt sich wie folgt erklären: Beim Richtungswechsel des äußeren Magnetfeldes müssen bei dem 7er-Fe-Schichtsystem sieben Schichten umklappen, um von der verkanteten Stellung in die parallele Ausrichtung zur Quantisierungsachse zu gelangen. Hierbei gewinnt nur eine Schicht an Energie. Beim 19er-Fe-Schichtsystem müssen 19 Schichten umklappen und nur eine gewinnt an Energie. Somit ist der Energiegewinn im Gegensatz zum Energieaufwand zur Überwindung der Anisotropiebarriere für jede Schicht so gering, dass die magnetischen Momente in der verkanteten Einstellung bleiben und nur die leichte Verkippung der Schichtmagnetisierung dem Feld folgt. Anders gesagt müsste man zum Umklappen ein so großes Feld anlegen, dass dann schon die senkrechte Ausrichtung aller Magnetisierungen zum Feld mit leichter Verkippung energetisch günstiger ist.

Die MOKE-Messungen wurden auch zur Festlegung der später bei der Neutronenmessung verwendeten Feldstärken verwendet. Die ausgewählten Magnetfelder sind in den MOKE-Kurven als senkrechte Linie gekennzeichnet.

### 5.1.2 Neutronenstreuung mit Polarisationsanalyse

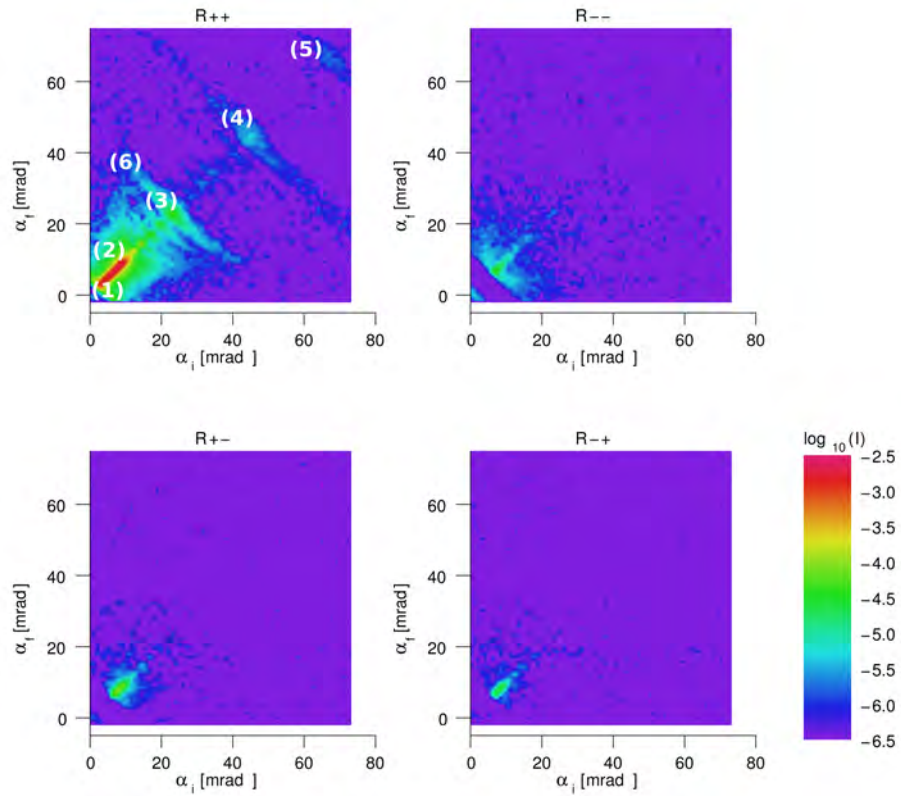
Um Erkenntnisse über die genaue Einstellung der Magnetisierungen in den einzelnen Schichten zu erlangen, wird das Magnetisierungsverhalten der 7er- und 19er-Fe-Schichten zusätzlich noch tiefenaufgelöst gemessen. Hierzu verwenden wir die Neutronenreflektometrie mit Polarisationsanalyse (siehe Kapitel 2.2). Sie ermöglicht uns die Messung des Magnetisierungsvektors der einzelnen Schichten und zusätzlich noch die Auflösung der lateralen Strukturen, wie Grenzflächenrauhigkeit und magnetische Domänen.

Nach der Justage der Probe im Neutronenreflektometer, werden unter kleinem Einfallswinkel bei einigen aus den MOKE Daten interessant erscheinenden Magnetfeldern Intensi-

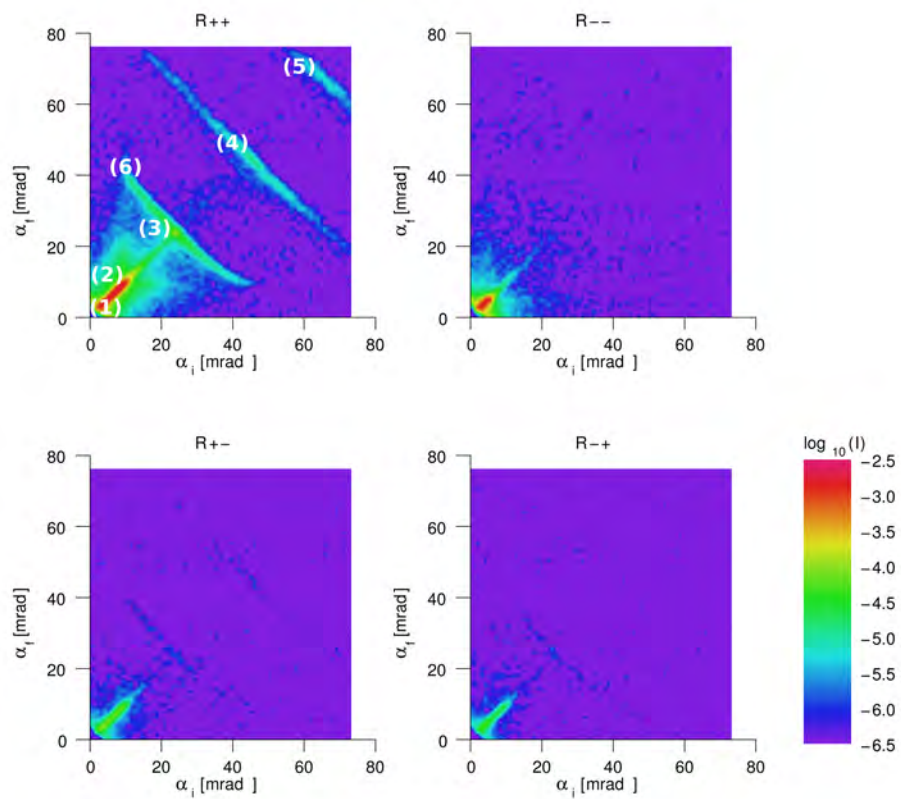
tätskarten aufgenommen. Diese werden meist dargestellt als dreidimensionale farbcodierte Intensitätsverteilungen, auf denen jedem Paar aus Ein- und Ausfallwinkel ein Punkt in einer Farbe zugewiesen wird, welche die gemessene Intensität widerspiegelt (siehe z.B. Abb. 5.5). Für ein festes  $\alpha_f = 1^\circ$  bzw. wurden die  $\alpha_i$  (von  $0^\circ$  bis  $4,2^\circ$ ) durchgeföhren, so dass ein Streifen (wegen des Flächendetektors) von links nach rechts auf der Intensitätskarte entsteht. Dies wird noch für ein zweites  $\alpha_f = 3^\circ$  wiederholt. Die beiden Streifen werden mit Hilfe eines Programmes zusammengefügt, so dass sich eine komplette Intensitätskarte mit spekulärer Reflektivität und diffuser Streuung bis zu höheren Winkeln ( $4,2^\circ$ ) ergibt.

Zuerst wird eine qualitative Betrachtung der Neutronendaten vorgenommen, da sich schon hieraus viele Informationen ergeben. Betrachtet man zuerst die Sättigungsfelder (Abb. 5.5) für beide Proben, so ist die schon in Kapitel 2.2 vorgestellte spekuläre und off-spekuläre Streuung erkennbar. Der durch den Beamstop verdeckte Primärstrahl (1) und die Totalreflektion (2) sind im unteren linken Bereich der Graphik sichtbar. Die Intensität auf der Diagonalen (erster (3), zweiter (4) und dritter (5) Bragg-Peak), entspricht der spekulären Reflexion, welche Informationen über die Struktur in der Tiefe (vertikal) liefert. Die diffuse Streuung ist in den Bragg-sheets (z.B. (6)) am stärksten, die senkrecht zur Hauptdiagonalen des Bildes liegen. Aufgrund korrelierter Rauigkeiten der Grenzflächen ist dieser Streuanteil nicht über das ganze Bild verteilt, sondern konzentrisch auf Linien auf der Höhe der Bragg-Peaks. Diese geben Auskunft über laterale Korrelationen innerhalb einer Grenzfläche und die vertikale Korrelation dieser Strukturen von Grenzfläche zu Grenzfläche. Die Konzentration auf die Linien durch die Bragg-Peaks zeigt, dass die Grenzflächenrauigkeit in der Vertikalen die Selbe Periodizität wie die Schichtfolge hat, d.h. sie wiederholt sich von Grenzfläche zu Grenzfläche mit der gleichen, korrelierten Abfolge von Bergen und Tälern. Aufgrund des magnetischen Anteils zur Streulänge liegen im  $(++)$ - und  $(--)$ -Kanal andere Kontrastverhältnisse und daher andere Intensitäten vor. Im  $(--)$ -Kanal ist die nukleare Streulängendichte von Chrom gleich der nuklearen und der magnetischen Streulängendichte von Eisen (siehe Tabelle 7.1 im Anhang), somit ist Kontrast zwischen den beiden Materialien vorhanden. Desweiteren sind, wie zu erwarten war, keine Spinflip-Reflektivitäten  $(-+)$ -Kanal und  $(+-)$ -Kanal sichtbar, da alle magnetischen Momente entlang des äußeren Feldes ausgerichtet sind. Ein Vergleich zwischen den beiden Proben zeigt, dass das 19er-Fe-Schichtsystem eine viele größere Intensität der Reflektivitäten hervorruft als des 7er-Fe-Schichtsystem. Dies folgt aus der Tatsache, dass die Intensität der Reflektivität mit der Anzahl der Schichten quadratisch zunimmt. Ein leichtes Durchscheinen der Nicht-Spinflip-Intensitäten ist, aufgrund der begrenzten Polarisierung des Strahls, in den Spinflip-Kanälen sichtbar.

Bei einem mittleren Magnetfeld von 30 mT bzw. 25 mT (Abb. 5.6), sieht man Intensität im Spinflip-Kanal (Bragg-Peaks der Ordnung  $\frac{1}{2}$  (1) und  $1\frac{1}{2}$  (2) ). Dies deutet darauf hin, dass jetzt auch eine magnetische Komponente senkrecht zum Feld steht. Die magnetischen Momente haben sich aufgrund des größer werdenden Einflusses der AF-Kopplung bei dem niedriger werdenden Magnetfeld aus der parallelen Stellung gelöst. Es ist ein magnetischer Kontrast zwischen jeweils benachbarten Eisenschichten entstanden, so dass eine Überstruktur erkennbar wird. An diesen Daten ist auch gut sichtbar, dass die Bragg-sheets in den Nicht-Spinflip-Kanälen symmetrisch und in den Spinflip asymmetrisch, aber zwischen  $(+-)$  und  $(-+)$  antisymmetrisch zur Diagonalen sind. Dies folgt aus der Umkehrbarkeit der Strahlenwege (Nicht-Spinflip) und dem unterschiedlichen Kontrastverhältnis

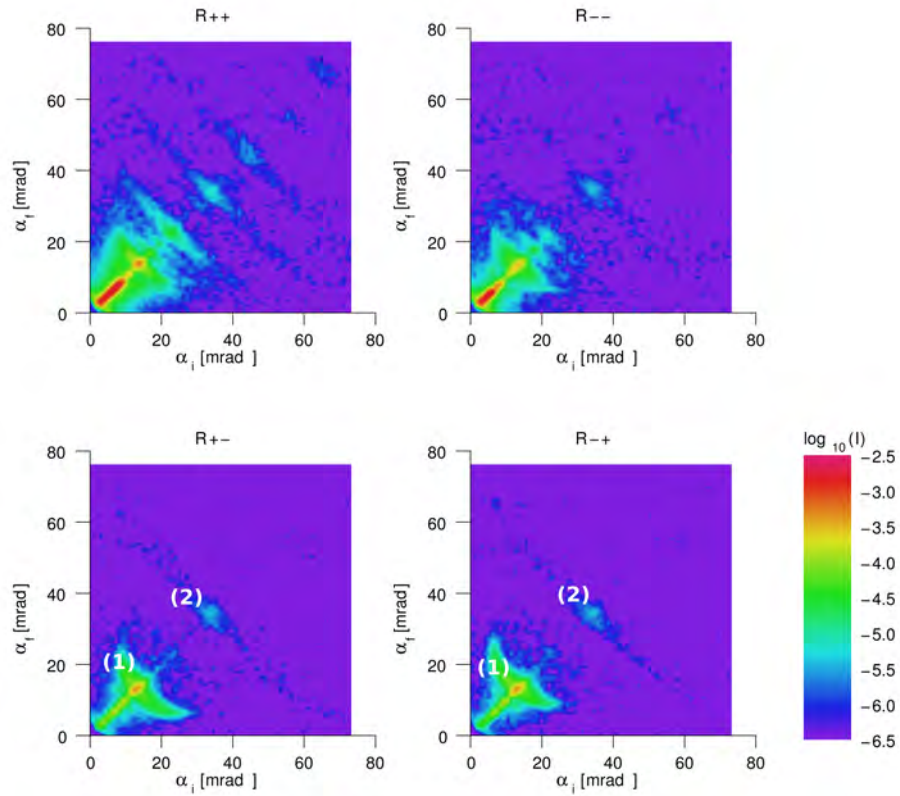


(a) 7er-Fe-Schichtsystem, 300mT

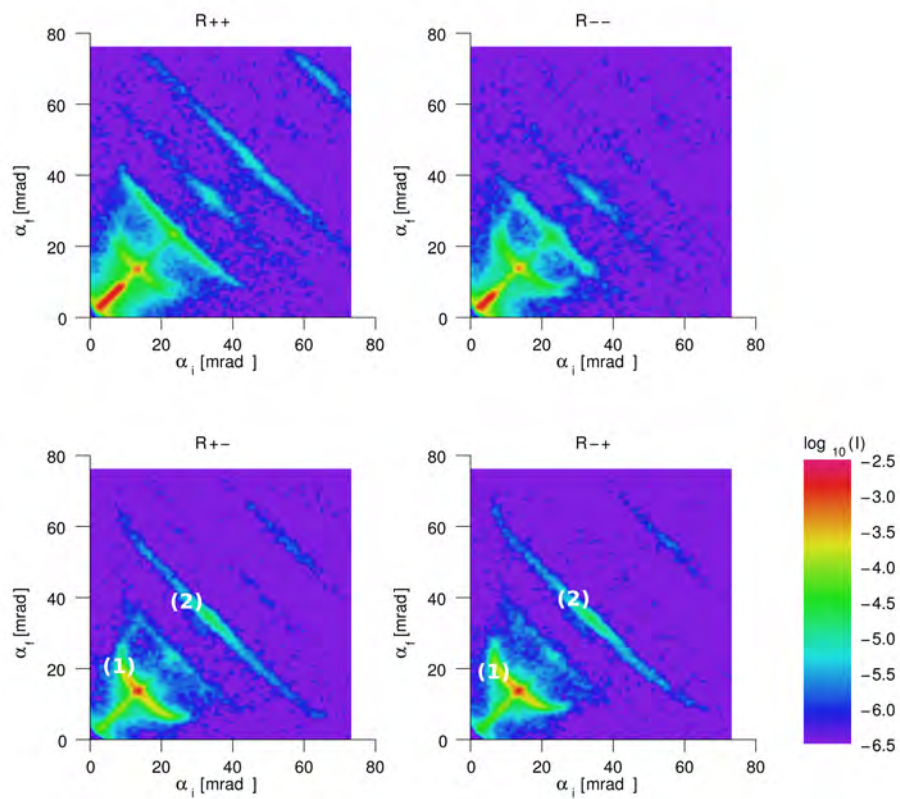


(b) 19er-Fe-Schichtsystem, 300mT

Abbildung 5.5: Neutronenstreuung bei 300 mT Sättigungsfeld



(a) 7er-Fe-Schichtsystem, 30 mT



(b) 19er-Fe-Schichtsystem, 25 mT

Abbildung 5.6: Neutronenstreuung bei mittlerem Feld

für einfallenden und reflektierten Strahl (Spinflip), das beim Wechsel der Spinflip-Kanäle für vertauschte Winkel identisch ist ( $I_{+-}(\alpha_i, \alpha_f) = I_{-+}(\alpha_f, \alpha_i)$ ).

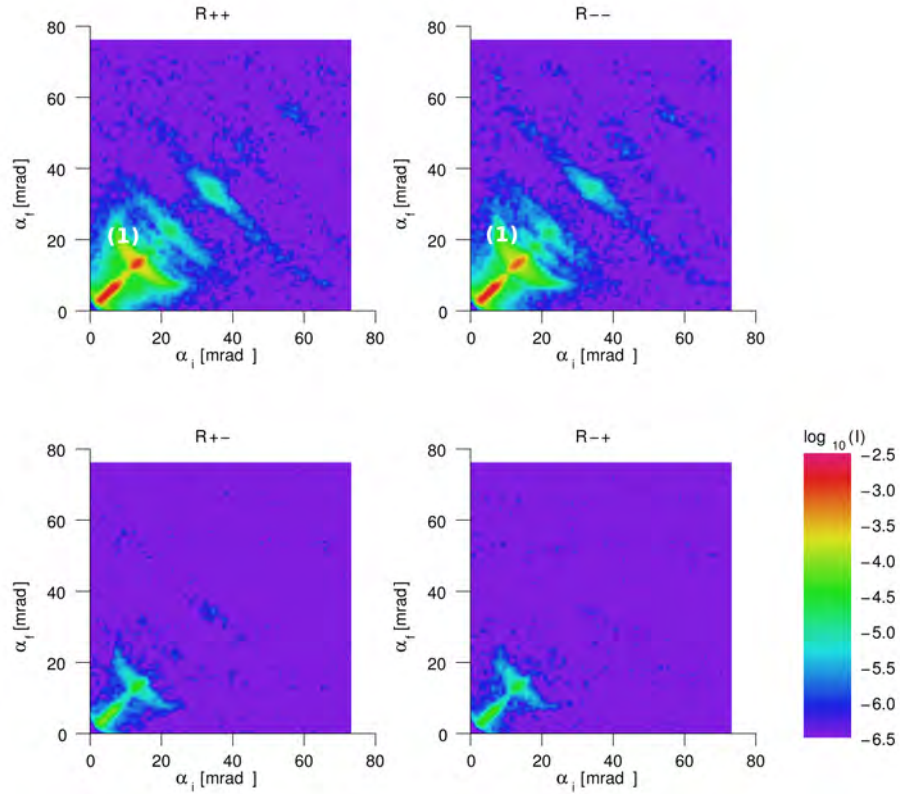
Im Remanenzfeld (Abb. 5.7) ist ein Unterschied zwischen beiden Schichtsystemen erkennbar. Beim 7er-Fe-Schichtsystem ist magnetische Information nur im Nicht-Spinflip-Kanal (1) erkennbar, d.h. dass die magnetischen Momente parallel zur Quantisierungsachse stehen und ein resultierendes magnetisches Moment entlang der Feldrichtung vorhanden ist. Diese Aussage stimmt mit den MOKE-Daten und der Simulation überein. Außerdem lässt sich erkennen, dass die Asymmetrien in den Spinflip-Kanälen bei kleineren äußeren Feldern ebenfalls kleiner werden, bei  $M_{\parallel} = 0$  sollten sie ganz verschwinden. Das 19er-Fe-Schichtsystem zeigt alle magnetischen Informationen nur im Spinflip-Kanal (2), so dass darauf zu schließen ist, dass alle Momente senkrecht zum äußeren Feld stehen. Es ist auch hier ein resultierendes magnetisches Moment in der Größenordnung einer Schicht vorhanden, das senkrecht zum Feld ausgerichtet ist. Diese Aussage deckt sich mit der MOKE-Messung, jedoch nicht mit der Simulation. Die Begründung ist die gleiche wie im vorigen Kapitel, dass die Simulation keine Koerzitiveffekte wiedergeben kann und wegen der Anisotropiebarriere die Magnetisierung senkrecht zur Feldrichtung verbleibt.

Zusammenfassend kann man aus der qualitativen Betrachtung der MOKE- und Neutronen-Daten ableiten, dass die benötigte Koerzitivfeldstärke mit Anzahl der Schichten steigt, jedoch die gewonnene Zeeman Energie in der Größenordnung einer Schicht konstant bleibt. So ist es für das 19er-Fe-Schichtsystem am günstigsten, die magnetischen Momente senkrecht, leicht verkantet zum Magnetfeld auszurichten.

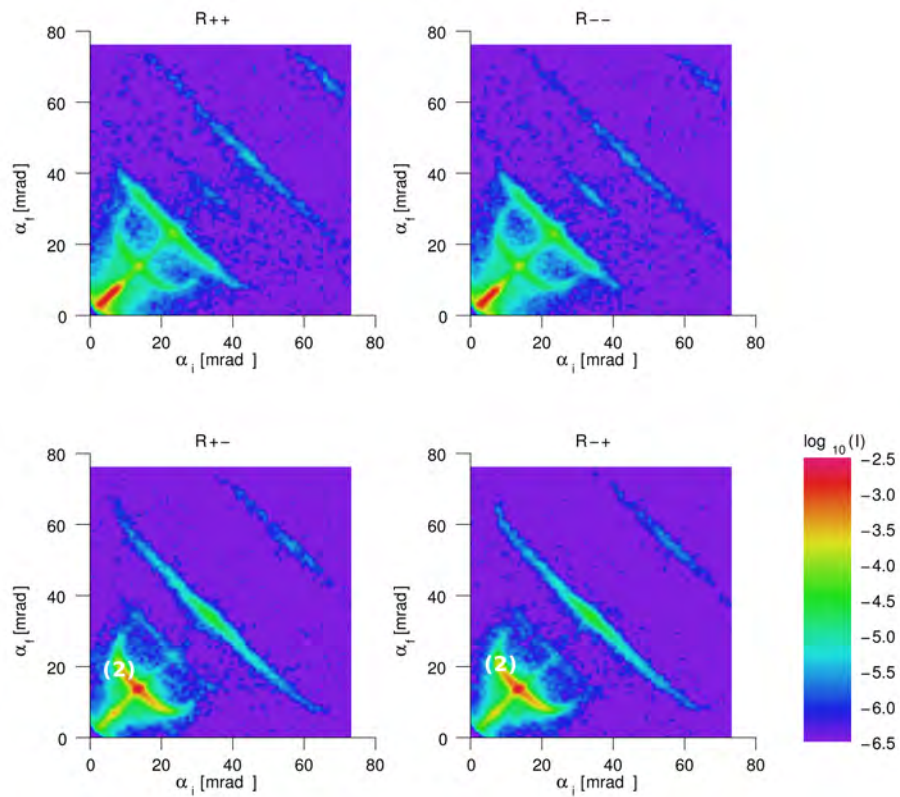
Um die Daten noch quantitativ auszuwerten, wird ein Programm zum Anpassen der spekulären Reflektivitätskurve benutzt. Da bei der Messung der Intensitäten die Phaseninformation verloren geht, kann aus den Messdaten nicht direkt auf das Probenpotential geschlossen werden. Stattdessen gibt man einem Simulationsprogramm die zur Verfügung stehenden Anfangswerte der physikalischen Parameter. Das Programm simuliert aus diesen Parametern die resultierende Reflektionskurve, vergleicht sie mit den Messwerten und passt ausgewählte Parameter an (Chi-Quadrat Anpassung mit dem Levenberg-Marquardt-Algorithmus). So ist es möglich die Magnetisierung in den Schichten der Probe quantitativ zu erhalten. Die Parameter, die der Simulation übergeben werden, sind für jede einzelne Schicht der Real- und Imaginärteil der nuklearen und der magnetische Teil der Streulängendichte des Materials, die einzelnen Schichtdicken und Rauigkeiten der oberen Grenzflächen. Außerdem können noch die Winkel angepasst werden, die die Richtung der Magnetisierung festlegen. Aus der Winkelanpassung erhält man einen Einblick in das magnetische Verhalten der Proben. Hinzu kommen noch die Systemparameter wie Untergrund, Effizienz des Polarisators und des Analysators sowie der Spinflipper.

Als Anfangswerte wurden die Daten aus der Probenherstellung, den Einstellungen des TREFF und die Winkeleinstellungen in die Simulationen eingefügt. Aufgrund der großen Anzahl an Parametern, die teilweise ähnliche Einflüsse besitzen, ist die Konvergenz eines kompletten Fits nicht gegeben und eine gezielte Auswahl der Freiheitsgrade ist notwendig. Je mehr Schichten vorhanden sind, desto mehr freie Parameter stehen zur Verfügung. Nach jedem Durchlauf muss darauf geachtet werden, dass die ermittelten Parameter physikalisch sinnvoll sind.



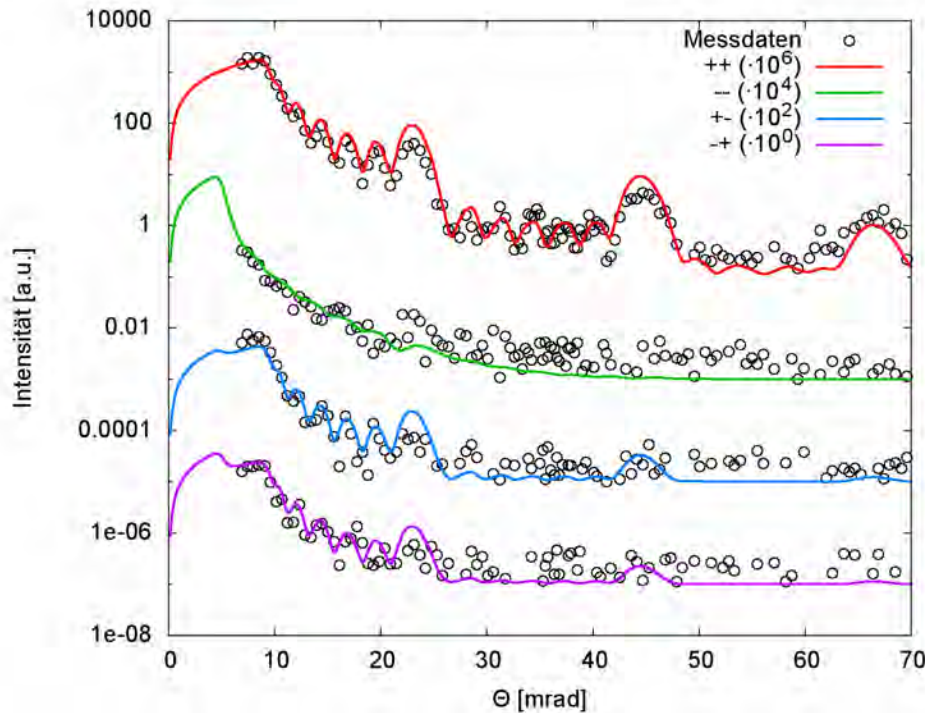


(a) 7er-Fe-Schichtsystem, 5mT



(b) 19er-Fe-Schichtsystem, 5mT

Abbildung 5.7: Neutronenstreuung in Remanenz (5 mT)

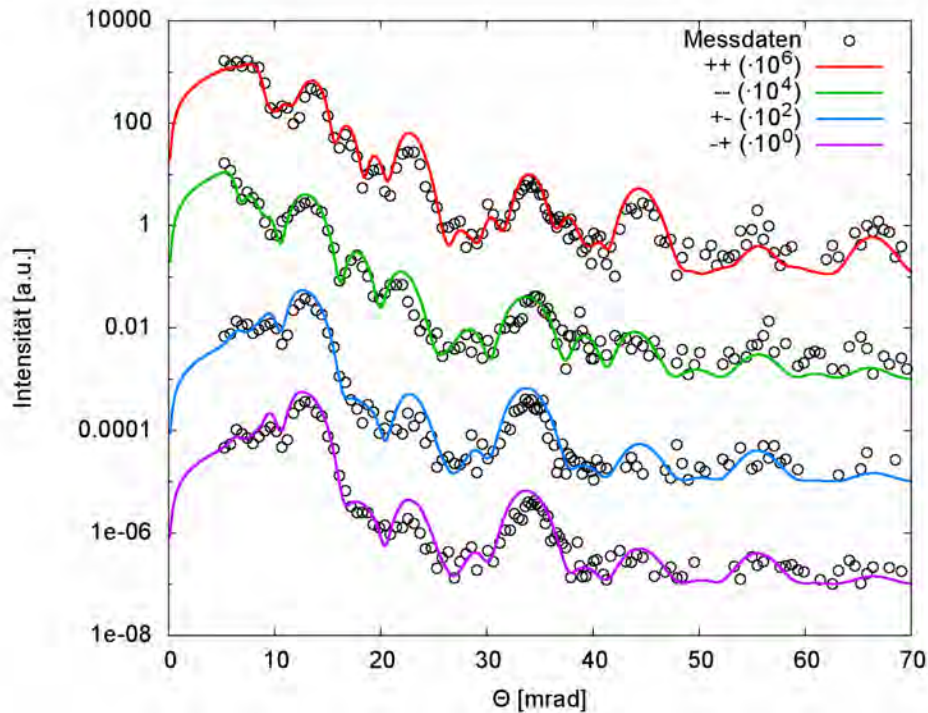


**Abbildung 5.8:** Messdaten der spekulären Reflektivitätsmessung (300 mT) und deren Simulation von 7 AF-gekoppelten Fe-Schichten

**Spekuläre Reflektivität von 7 AF-gekoppelten Fe-Schichten** Die Fits des unstrukturierten 7er-Fe-Schichtsystems im Sättigungs-, 30 mT und im Remanenzfeld (5 mT) sind in den Abbildungen 5.8, 5.9 und 5.11 gezeigt. Hier sind die gemessenen Reflektivitätsdaten der vier Polarisationskanäle ( $++$ ,  $--$ ,  $+-$ ,  $-+$ ) und die dazugehörigen Anpassungen dargestellt.  $\theta$  ist hier, wegen der Betrachtung der spekulären Reflektivität, gleich  $\alpha_i = \alpha_f$  und in mrad gegen die Intensität logarithmisch aufgetragen. Die schwarzen Punkte stellen die Messwerte zu den jeweiligen Kanäle dar, deren Simulationen jeweils in unterschiedlichen Farben aufgetragen sind. Zur besseren Unterscheidung der Kanäle sind diese gegeneinander verschoben gezeichnet (wegen logarithmischer Skala mit  $10^n$  multipliziert).

Zuerst werden die Reflektivitätsdaten der Sättigungsmessung betrachtet. Im ( $++$ )-Kanal sind der erste, zweite und dritte Bragg-Peak und dazwischen Laue-Oszillationen erkennbar. Der ( $--$ )-Kanal zeigt aufgrund des fehlenden Kontrates zwischen Eisen und Chrom kein Signal. Die Spinflip-Kanäle geben Magnetisierungen senkrecht zum äußeren Feld wieder und sollten daher im Sättigungsfeld verschwinden. Aus technischen Gründen (nicht perfekte Polarisierung) scheint ein geringer Anteil der Nicht-Spinflip-Intensitäten in den Spinflip-Intensitäten durch. Die Anpassung stimmt mit den Aussagen der qualitativen Betrachtung der Intensitätskarten überein:

Für das 7er-Fe-Schichtsystem wurden alle Parameter der Schichten angepasst. Die Ergebnisse aller Proben, Felder und Vergleiche mit der MOKE-Simulation sind in Tabelle 7.3 im Anhang dargestellt. Hier nur ein Überblick über die gefundenen Parameter: Aus Konsistenzgründen sind alle Streulängen und Schichtdicken für die Schichten desselben Materials gekoppelt worden. Die Schichten sind dünner als angenommen, die Fe-Schichten weichen um 2,2%, die Cr-Schicht um 4,5% von der Angabe des Schwingquarzes bei der

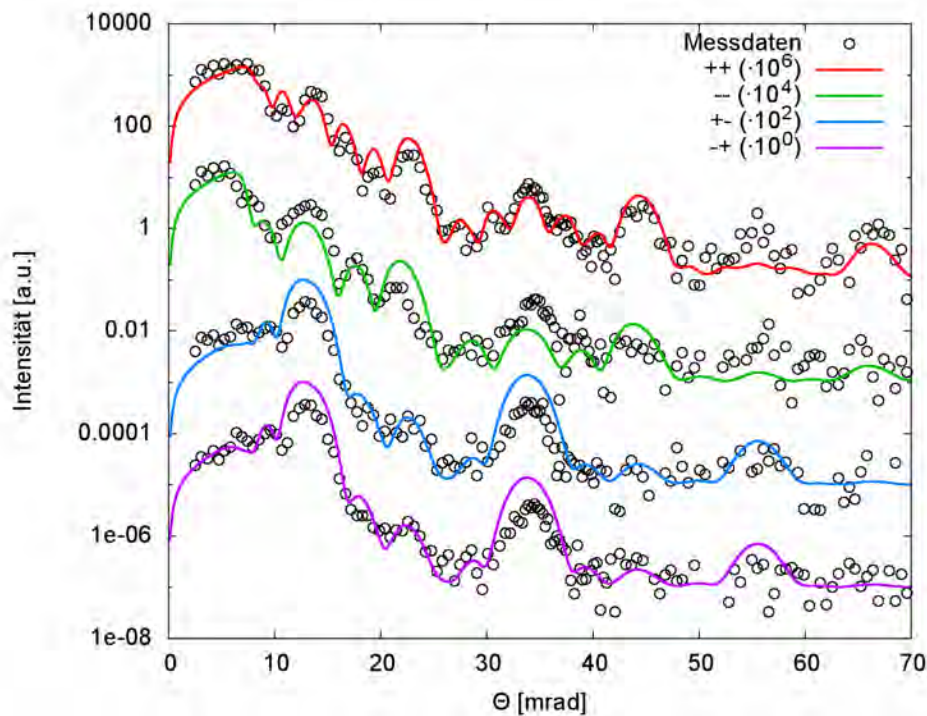


**Abbildung 5.9:** Messdaten der spekulären Reflektivitätsmessung (30 mT) und deren Simulation von 7 AF-gekoppelten Fe-Schichten

Präparation nach unten ab. Ein Hinzufügen einer Oxidationsschicht brachte keine Verbesserung des Fits und wurde daher wieder entfernt. Alle Winkel der Magnetisierungsrichtungen sind, in Übereinstimmung mit der MOKE-Simulation, parallel zum Feld ausgerichtet. Die Werte der nuklearen und magnetische Streulängendichten bei Eisen sind niedriger als die Literaturwerte angeben. Außerdem wurde im Totalreflexionsbereich die Effizienz von Analysator und Polarisator angepasst, welche für alle weiteren Anpassungen der Messung bei anderen Magnetfeldern übernommen wurde. Auch die Schichtparameter (Dicke, Rauigkeit und Streulängendichten) wurden für die anderen Messungen übernommen. Lediglich die Magnetisierungsrichtungen relativ zum äußeren Feld wurden verändert.

Die Kurve für die 30 mT Messung (Abb. 5.9), zeigt eine Veränderung gegenüber dem Sättigungsfeld. Es gibt magnetische Momente, die senkrecht zum Quantisierungsachse ausgerichtet sind und Überstruktureflexe. Ein direkter Vergleich mit der Sättigungsfeldmessung zeigt die neu hinzugekommenen halbzahlichen magnetischen Reflexe. Der Anpassung gemäß ergibt sich eine komplexe magnetische Struktur, bei der die Momente von der mittleren Schicht ausgehend in Paaren gleich sind. Die 3., 4. und 5. Schicht zeigen eine 90°-Drehung zueinander, die zwei äußeren Schichten liegen im Bereich von 120° zu ihren jeweiligen Nachbarschichten was auf ein Zusammenspiel von antiferromagnetischer Kopplung und Kristallanisotropie schließen lässt.

Der Vergleich mit den Werten der Magnetisierungswinkel aus der MOKE-Simulation zeigt, dass die Momente stärker zum Feld ausgerichtet und nur geringe Korrelationen zwischen den Ausrichtungen des Fits und der MOKE-Simulation zu erkennen sind (vergleiche Tabelle 7.3). Zum Überblick ist eine Simulation mit Winkeln aus der MOKE-Simulation ohne weitere Anpassung in Abb. 5.10 dargestellt, wobei keine großen Abweichungen zum



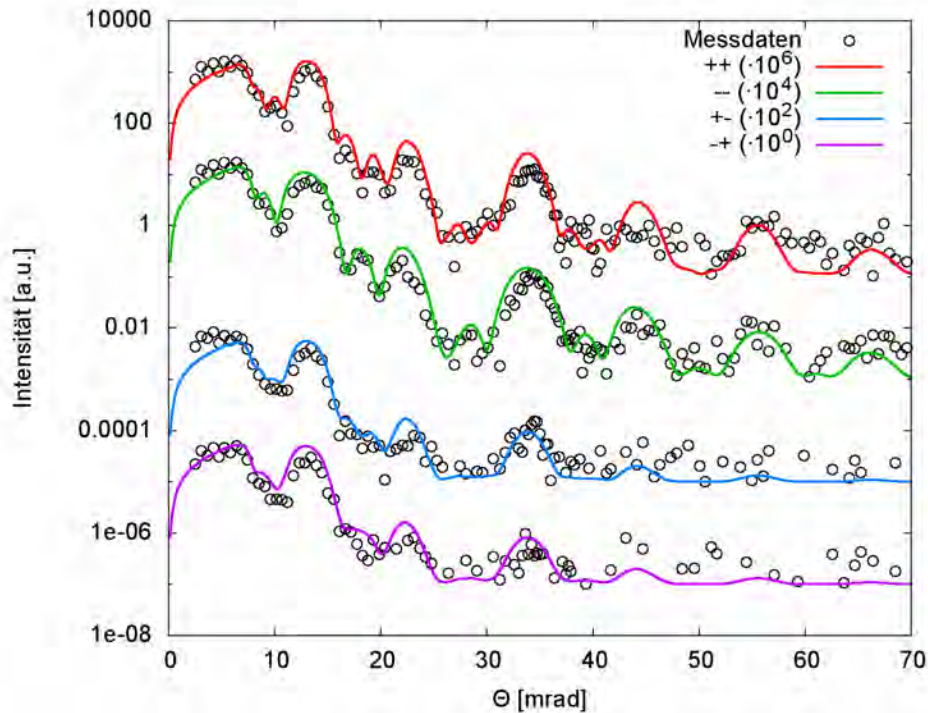
**Abbildung 5.10:** Messdaten der spekulären Reflektivitätsmessung (30 mT) und deren Simulation von 7 AF-gekoppelten Fe-Schichten mit Winkeln aus der MOKE-Simulation

Fit erkennbar sind. Manche Merkmale der Messkurve sind vom Fit besser wiedergegeben, andere von der Simulation mit den MOKE-Winkeln, so dass keine sichere Aussage über die tatsächliche Winkelverteilung getroffen werden kann. Eine weitere Optimierung der Anpassung im Sättigungsfeld könnte hierüber eventuell Aufschluss geben. Die symmetrische Ausrichtung bezüglich der mittleren Schicht, die in beiden Modellen vorhanden ist, gibt die Messkurve allerdings gut wieder.

Das Simulationsprogramm weist der gesamten Schicht eine Magnetisierungsrichtung zu, obwohl die magnetischen Schichten, sofern sie sich nicht im Sättigungsfeld befinden, in Domänen mit unterschiedlichen Magnetisierungsrichtungen zerfallen (off-spekuläre Streuung). Dieses Verhalten ist in der spekulären Streuung nicht messbar und kann hier daher nicht simuliert werden.

Die Messung in Remanenz (5 mT) (Abb. 5.11) zeigt, dass die magnetischen Information im Nicht-Spinflip-Kanal stehen. Für ein äußeres Feld nahe Null erwartet man wegen der antiferromagnetischen Kopplung eine antiparallele Ausrichtung der Magnetisierungsrichtungen benachbarter Eisenschichten. Die Eisenschichten schließen jetzt einen Winkel von  $180^\circ$  ein und stehen parallel bzw. antiparallel zum Magnetfeld. Sonstige Parameter wurden hier nicht verändert. Dieses Ergebnis ist konsistent mit den Werten aus der Simulation der Magnetisierungskurven.

**Spekuläre Reflektivität von 19 AF-gekoppelten Fe-Schichten** Die Fits des unstrukturierten 19er-Fe-Schichtsystems im Sättigungs-, 25 mT- und Remanenzfeld (5 mT) sind in Abbildung 5.12, 5.13 und 5.15 zu sehen. Die Anpassung der Simulation ist mit



**Abbildung 5.11:** Messdaten der spekulären Reflektivitätsmessung (5 mT) und deren Simulation von 7 AF-gekoppelten Fe-Schichten

mehr Schichten wesentlich komplexer, da mehr Parameter zur Verfügung stehen. Nur für das Sättigungsfeld wurden wie für das 7er-Fe-Schichtsystem alle Parameter der Schichten angepasst und aus Konsistenzgründen sind gleiche Parameter für die verschiedenen gleichartigen Schichten wieder gleich gelassen. Bei den Feldern, die kleiner als die Sättigung sind, wurden die Winkel der beiden äußeren Schichten, der zweiten und vorletzten sowie von jeder zweiten Schicht in der Mitte (AF-Kopplung) aneinander gekoppelt (Schicht 1 und 19, Schicht 2 und 18 und alle geraden bzw. ungeraden Schichten dazwischen). Die gleichen Werte für die Winkeleinstellung für die beiden äußeren Bereiche wurden aufgrund der MOKE-Simulationen gewählt und sind auch physikalisch sinnvoll, da eine symmetrische Ausrichtung, die im inneren Bereich ein anderes Verhalten als im Äußeren zeigt, zu erwarten ist. Die Ergebnisse für die Felder und Vergleiche mit der MOKE-Simulation sind in Tabelle 7.6 im Anhang dargestellt. Hier nur ein Überblick über die Ergebnisse:

Die Eisenschichten sind dünner als erwartet und weichen wie bei dem 7er-Fe-Schichtsystem um 2,5% nach unten ab. Chrom wurde mit 10 Å Schichtdicke angenommen und nicht weiter angepasst. Ein Einbau einer Oxidationsschicht brachte auch hier keine Änderung des Fits, so dass diese weggelassen wurde. Die Werte der nuklearen und magnetische Streulängendichten bei Eisen und Chrom wurden aus der Literatur übernommen. Beim Sättigungsfeld sind alle Winkel der Magnetisierungsrichtungen parallel zum Feld ausgerichtet. Dies ist auch in Übereinstimmung mit der MOKE Simulation. Die Schichtparameter wurden für alle anderen Felder übernommen und nur die Magnetisierungsrichtung verändert.

Die Kurve für die 25 mT Messung (Abb. 5.13), zeigt eine Veränderung gegenüber dem Sättigungsfeld. Es gibt magnetische Momente, die Komponenten senkrecht zur Quanti-

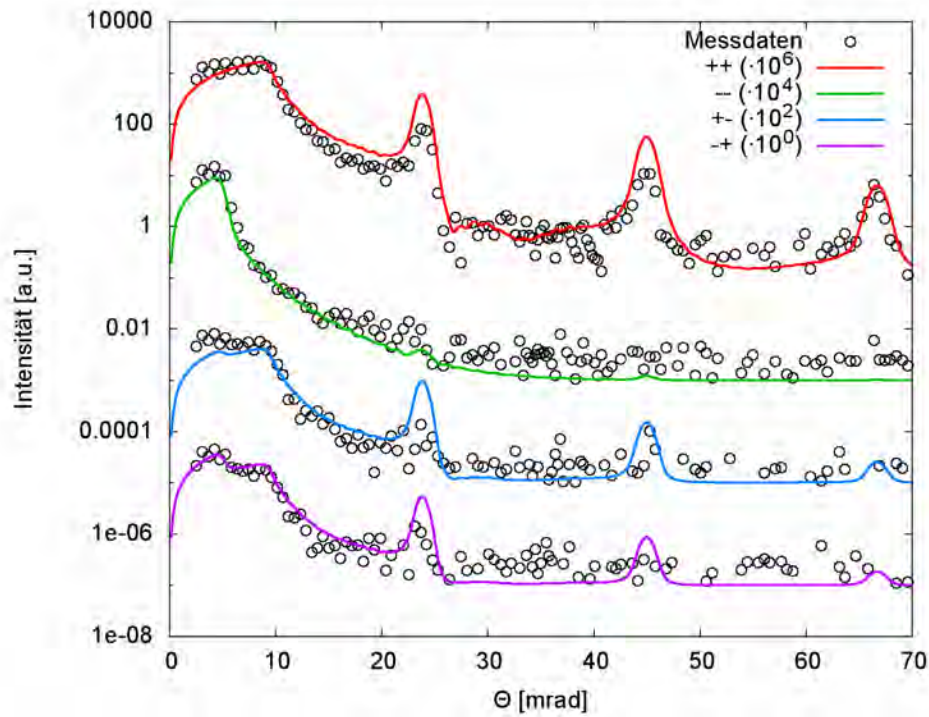


Abbildung 5.12: Messdaten der spekulären Reflektivitätsmessung (300 mT) und deren Simulation von 19 AF-gekoppelten Fe-Schichten

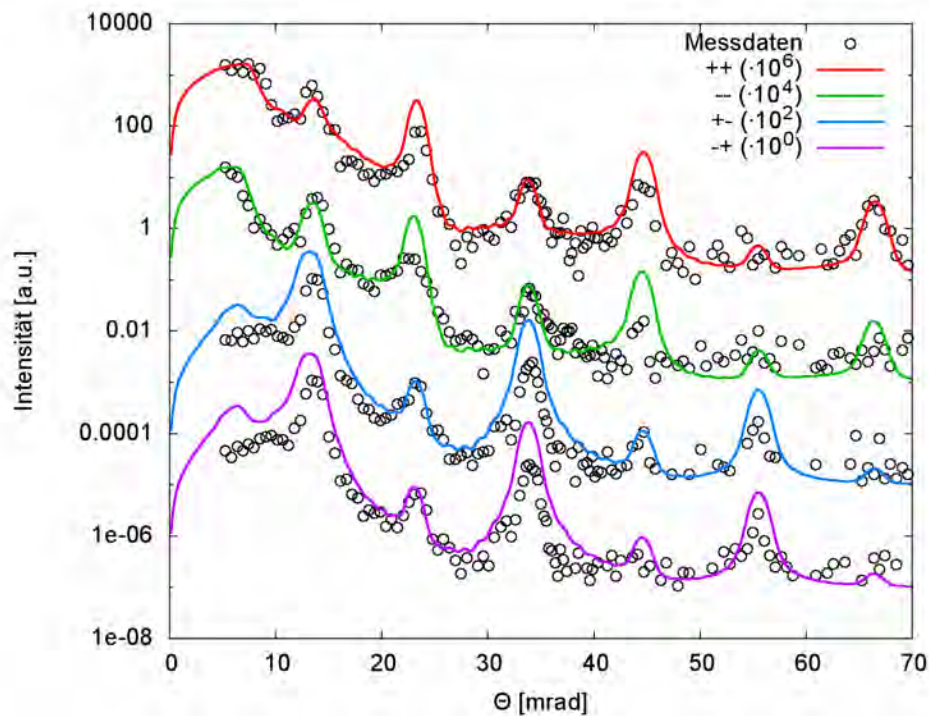
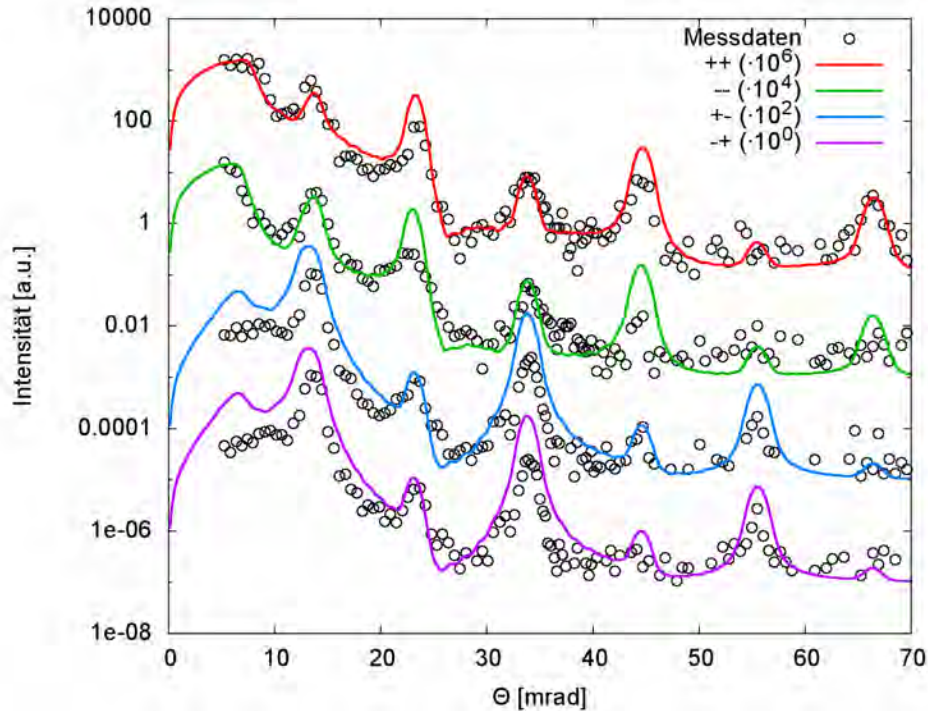


Abbildung 5.13: Messdaten der spekulären Reflektivitätsmessung (25 mT) und deren Simulation von 19 AF-gekoppelten Fe-Schichten

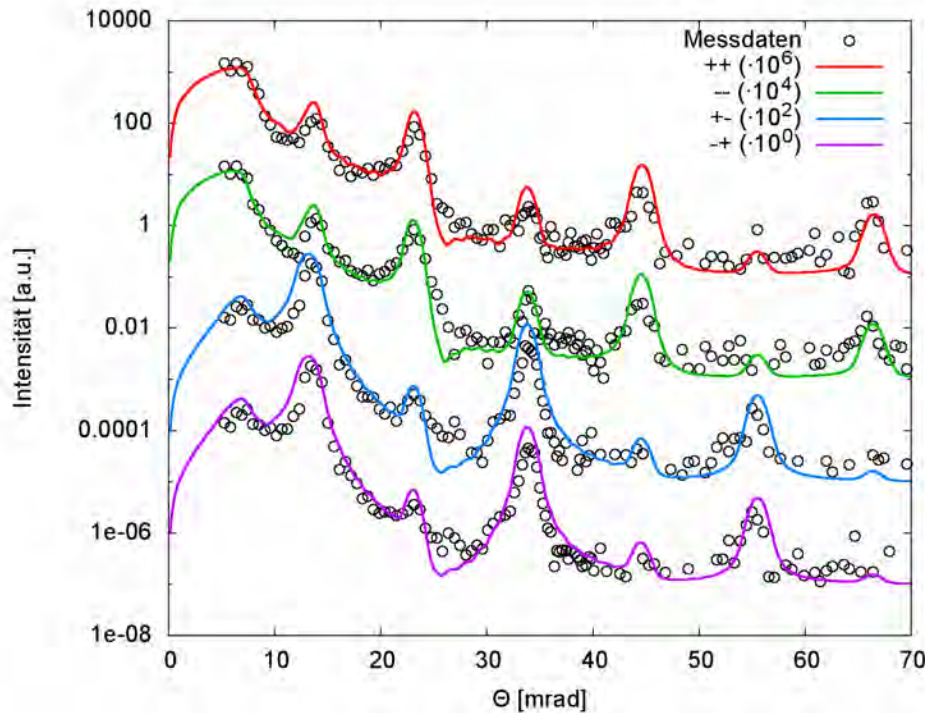


**Abbildung 5.14:** Messdaten der spekulären Reflektivitätsmessung (25 mT) und deren Simulation von 19 AF-gekoppelten Fe-Schichten mit Winkeln aus der MOKE-Simulation

sierungsachse besitzen. Ein direkter Vergleich mit der Sättigungsfeldmessung zeigt die neu hinzugekommenen halbzahligen magnetischen Reflexe. Der Anpassung gemäß nehmen die inneren (3.-17.) Eischichten abwechselnd einen Winkel von  $81,5^\circ$  und  $-76,3^\circ$  zum Quantisierungsfeld ein. Die unterste und die oberste Schicht haben die Ausrichtung  $-54,5^\circ$  und die zweitäußersten  $87,9^\circ$ . Diese Ausrichtung kann durch Konkurrenzeffekte zwischen Zeeman-Energie, Anisotropie und AF-Kopplung erklärt werden, wobei die äußeren Schichten nicht so stark gekoppelt sind und daher stärker durch das äußere Feld beeinflusst werden und von der durch die Anisotropie bevorzugten  $-90^\circ/90^\circ$ -Ausrichtung abweichen.

Die entsprechende MOKE-Simulation, die eine Winkelausrichtung zum Quantisierungsfeld von  $-80^\circ$  und  $80^\circ$  innen und  $-70^\circ$  für die äußersten Schichten zeigt, bildet das asymmetrische Verhalten der Probe nicht ab. Dies kann man auf die J-Parameter zurück führen, die anscheinend einen zu kleinen Anteil an  $90^\circ$ -Kopplung enthalten. Die Größenordnung der Winkel ist mit dem Fit vergleichbar und auch das veränderte Verhalten der äußersten Schichten wird wiedergegeben. Zum Überblick ist eine Simulation mit den MOKE-Winkeln ohne Anpassung der Parameter in Abb. 5.14 dargestellt. Die Abweichungen der beiden Simulationen sind noch subtiler als bei dem 7er-Fe-Schichtsystem und daher ist davon auszugehen, dass die Simulation des Magnetisierungsverhaltens mit den richtigen Parametern das System gut beschreiben kann.

Die Messung im Remanenzbereich (5 mT) (Abb. 5.15) zeigt, dass die magnetische Information im Spinflip-Kanal überwiegt. Für ein äußeres Feld nahe Null erwartet man wegen der antiferromagnetischen Kopplung eine antiparallele Ausrichtung der Magnetisierungsrichtungen benachbarter Eischichten entlang des Feldes. Sowohl die MOKE-Messung,



**Abbildung 5.15:** Messdaten der spekulären Reflektivitätsmessung (5 mT) und deren Simulation von 19 AF-gekoppelten Fe-Schichten

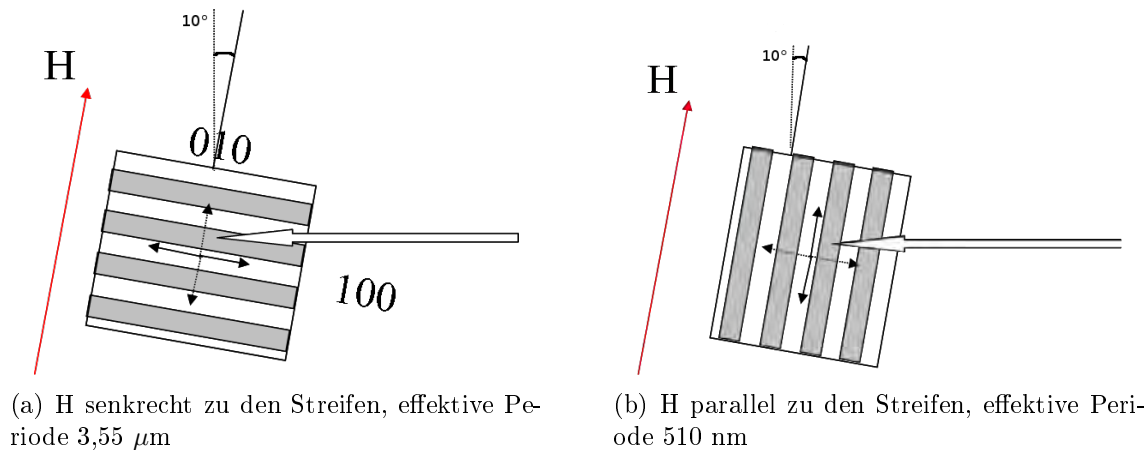
als auch die qualitative Auswertung der Intensitätskarten der Neutronenstreuung ergab ein anderes Bild. Auch die Anpassung an die Reflektivitätsdaten zeigt eine Ausrichtung der Momente fast senkrecht zum Feld ( $-63,8^\circ(1$  und  $19)$ ,  $86,5(2$  und  $18)$  und  $\pm 83,5$ ), die Schichten gehen also von einer verkanteten Stellung bei negativem Feld direkt zur verkanteten Stellung im positiven Feld über.

Zusammenfassend kann man sagen, dass sowohl die MOKE-Kurven und die Simulation der MOKE-Daten (unter Einbeziehung der Modellbeschränkungen), als auch die Anpassung der Neutronendaten konsistent sind. Der Verlauf des magnetischen Verhaltens der verschiedenen Schichten konnte aus den Daten extrahiert werden, indem die polarisierten Neutronenreflektivitäten mit den Startwerten aus der Vorcharakterisierung und der MOKE Simulation angepasst wurden. Die Auswertung könnte durch eine SQUID-Messung zur Verbesserung der J-Parameter und eine weitere Verfeinerung der Neutronensimulation ergänzt werden, um einen genaueren Einblick in die Ummagnetisierungsvorgänge zu erhalten. Weiterhin wäre eine Untersuchung aller ungeraden Fe-Schichtsysteme zwischen 7 und 19 Lagen von Interesse, um den Übergang zwischen paralleler/antiparalleler und senkrechter Ausrichtung im Remanenzfeld zu studieren.

## 5.2 Einfluß der lateralen Strukturierung

Für den Vergleich von strukturierten und unstrukturierten Fe/Cr-Mehrschichtsystemen sind mit den optimierten Parametern zwei 13er-Fe-Schichtsysteme hergestellt worden.



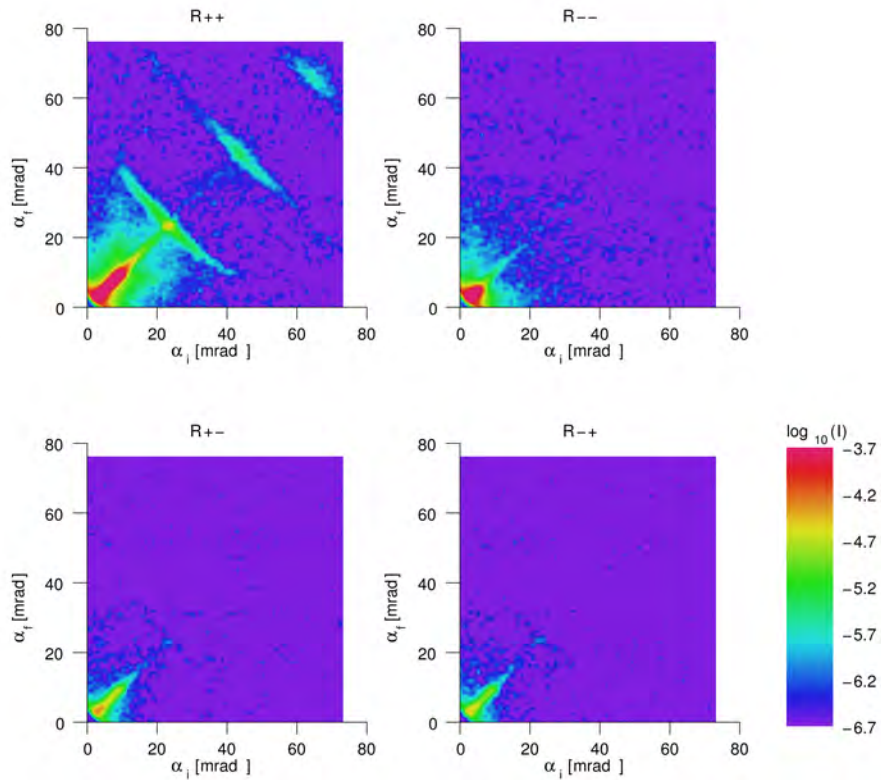


**Abbildung 5.16:** Schemazeichnung der Geometrie für die Neutronenstreuung an strukturierten Proben

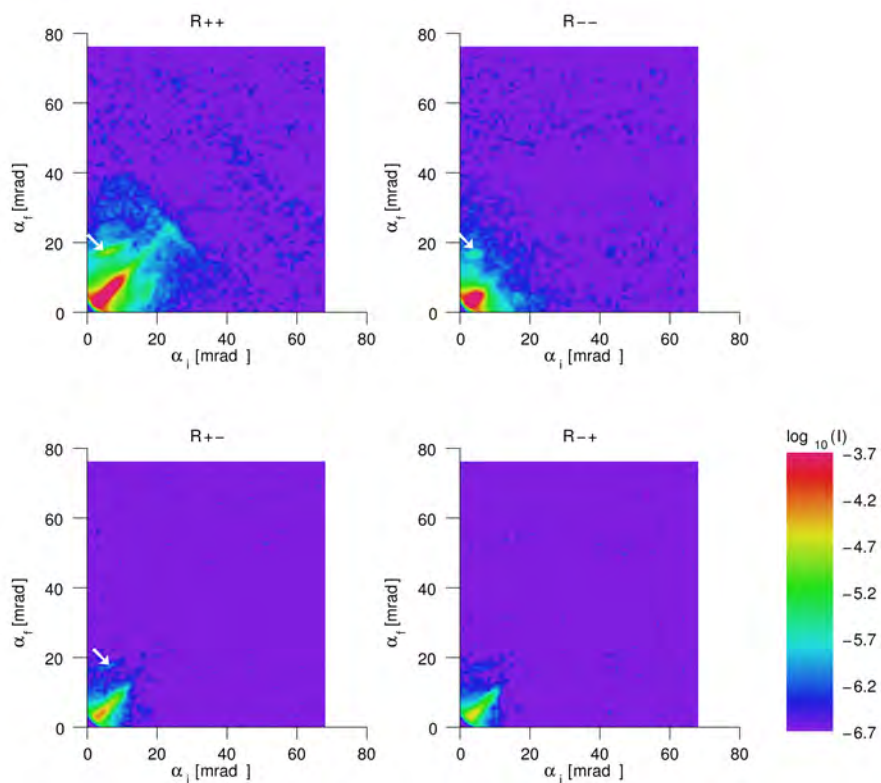
Eine dient als Referenzprobe, während die andere mit Hilfe der NIL auf ein Streifenmuster mit  $500 \text{ nm}$  Periode bis zum Silberpuffer strukturiert wurde. Wie in Kapitel 4.2 deutlich wurde, ist die Strukturierung durch noch nicht ganz geklärte Umstände nicht optimal verlaufen.

Zur Vorcharakterisierung wurde MOKE angewendet, um die Felder zu bestimmen, bei denen die Messungen mit Neutronen durchgeführt wurden. Die Referenzprobe wurde normal in den Strahl justiert, die gestreifte Probe dagegen in zwei verschiedenen Geometrien zum Strahl und zum Magnetfeld gemessen (Abb. 5.16). Die verschiedenen Einstellungen sind von Interesse, da eine unterschiedliche Orientierung von Streifen und Magnetfeld verschiedene Auswirkungen auf das magnetische Verhalten des Systems haben kann (im besonderen auf die Domänenbildung). Hierzu wurde der Probenhalter zusammen mit dem Elektromagneten um  $10^\circ$  zum Strahl gekippt, so dass die Streifen in beiden Richtungen eine Periodizität in der Streuebene aufwiesen. Die Anordnung „H senkrecht zu den Streifen, Neutronenstrahl parallel zu den Streifen“ (Abbildung 5.16(a)) führt zu einer effektiven Periode von  $3,55 \mu\text{m}$ . Diese Periode ist groß genug, um bei  $4,73 \text{ \AA}$  Neutronenwellenlänge Strukturpeaks nahe an der spekulären Linie zu erzeugen, so dass ihre Intensitäten am TREFF messbar sind (Pfeile im Bild). Die andere Orientierung mit „H parallel zu den Streifen, Neutronenstrahl  $80^\circ$  zu den Streifen“ (Abbildung 5.16(b)) führt zu einer effektiven Periode von  $510 \text{ nm}$ , was die Messung erschwert. Hierbei liegt die 1. Ordnung der Strukturpeaks weit außerhalb und man erwartet von diesen kaum Intensität. Leider konnte der Magnet aufgrund seiner Konstruktion nicht weiter gekippt werden, so dass für die parallele Feldanordnung keine größeren effektiven Perioden gewählt werden konnten.

In Abbildung 5.17 sind die Intensitätskarten der Referenzprobe und des lateral strukturierten Schichtsystems, jeweils gemessen im Sättigungsfeld, zum Vergleich gegenübergestellt. Die Messung der strukturierten Probe, die in der Einstellung „H senkrecht zu den Streifen“ durchgeführt wurde, zeigt neben den angedeuteten Reflexen, die auch bei der unstrukturierten Probe zu sehen sind, den Einfluß der lateralen Struktur. Ein Reflex, der von den Streifen herrührt, ist dort erkennbar (1), wo der Yoneda-peak mit den von der Beugung am Gitter herrührenden Reflexen konstruktiv interferiert. Hier ist daher nur ein Reflex 1. Ordnung zu sehen, der im Totalreflexionsbereich liegt. Wieso der Peak unterhalb der Diagonalen so viel schwächer ist als der oberhalb ist nicht klar. Grundsätzlich soll-

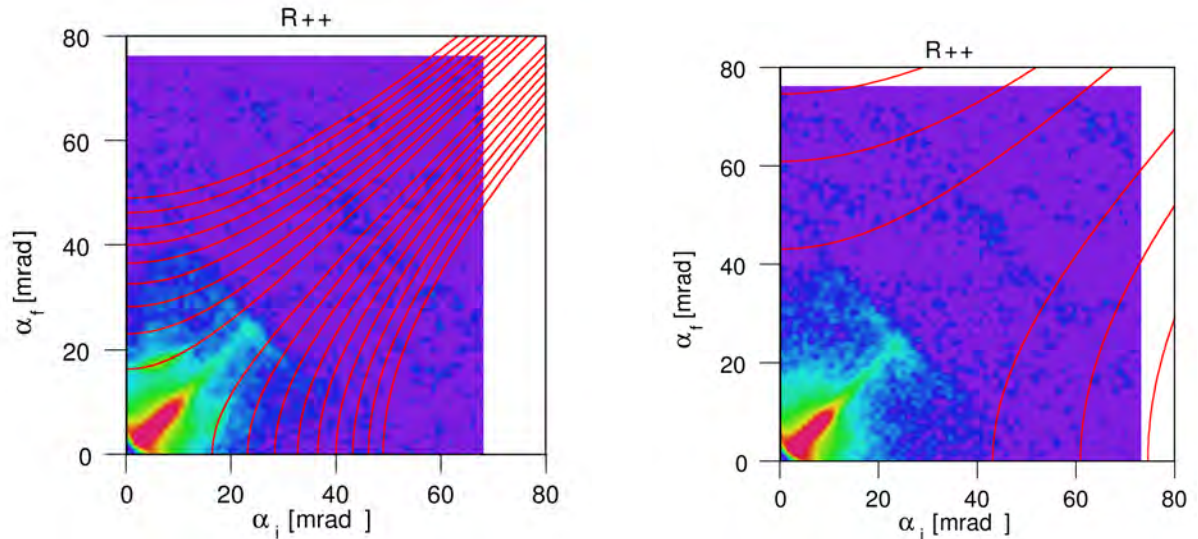


(a) unstrukturiertes Schichtsystem



(b) strukturiertes Schichtsystem - Pfeil zeigt die 1. Ordnung der lateralen Strukturpeaks

Abbildung 5.17: Vergleich der unstrukturierten und strukturierten Probe im Sättigungsfeld



(a) Schichtsystem im Sättigungsfeld mit der Orientierung „H senkrecht zu den Streifen“

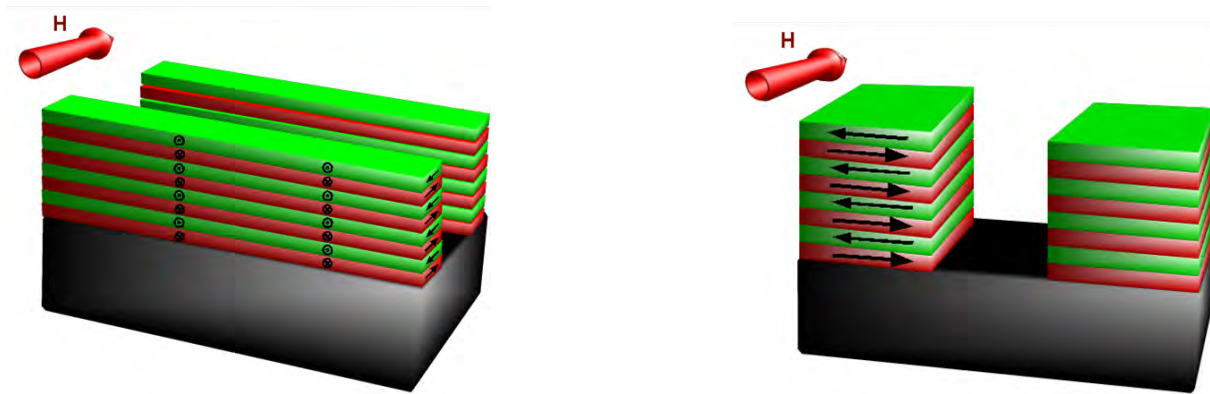
(b) Schichtsystem im Sättigungsfeld mit der Orientierung „H parallel zu den Streifen“

**Abbildung 5.18:** Vergleich der beiden Orientierungen der strukturierten Probe im Sättigungsfeld

ten sie die gleiche Intensität besitzen, da sie nur vom Neutronenfluß abhängen und die Umkehrbarkeit der Strahlwege gilt. Auch eine Verbesserung der Justage konnte dies nicht beheben.

Vergleicht man die beiden Messungen, so sieht man, wie stark die Intensität nicht nur bei den durch die laterale Strukturierung hervorgerufenen Peaks, sondern auch bei der spekulären Streuung bei höheren Winkeln abnimmt. Dies scheint kein Problem der für die Messmethode zu kleinen Struktur zu sein, sondern eher ein strukturelles Problem der Probe. Zum einen können die hohen Rauigkeiten, die in Kapitel 4.2 in den REM-Bildern (Abb. 4.15) zu erkennen sind, zu großen Intensitätsverlusten führen. Speziell die für uns interessanten Bereiche bei höheren Winkeln sind davon betroffen, denn je weiter man sich bei der Messung vom Totalreflexionsbereich entfernt, desto geringer wird die reflektierte Intensität. Desweiteren ist in Kapitel 4.2 in den AFM-Bildern (Abb. 4.17) nicht mehr viel Struktur erkennbar, was darauf schließen lässt, dass ein Teil der Metallschichten weggeätzt wurde. Weniger zur Verfügung stehendes Material führt auch zu allgemein geringeren Rückstreuintensitäten. Dies wird durch die stark geschwächten Bragg-Peaks bestätigt.

Als nächstes werden die beiden Messungen für die verschiedenen Orientierungen im Sättigungsfeld betrachtet (Abb. 5.18). Wie zu erwarten war, ist die laterale Struktur bei einer Periode von 510 nm nicht zu erkennen. Bei beiden Messungen ist die schwache Intensität auch der spekulären Reflektivität offensichtlich. Um zu überprüfen, ob die angezeigten Reflexe wirklich von den strukturellen Peaks kommen, wurde eine Simulation der Winkelpositionen der Streuung von den lateralen Strukturen vorgenommen. Mit Hilfe von  $Q_x$  aus Abb. 2.1 wurden die Werte für  $\alpha_i$  und  $\alpha_f$  berechnet und in die Intensitätskarte eingetragen. Bei der Einstellung „H senkrecht zu den Streifen“ (Abb. 5.18(b)) liegt die Simulation genau über dem Reflex. Die 2. Ordnung der Strukturpeaks oberhalb der Hauptdiagonalen ist in dieser Darstellung als leichte Erhöhung der Intensität erkennbar. Was man weiterhin sehen kann ist, dass sich bei kleineren Strukturen die Peaks immer weiter nach außen, zu



(a) Ergebnis für ein Schichtsystem im Remanenzfeld mit der Orientierung „H senkrecht zu den Streifen“

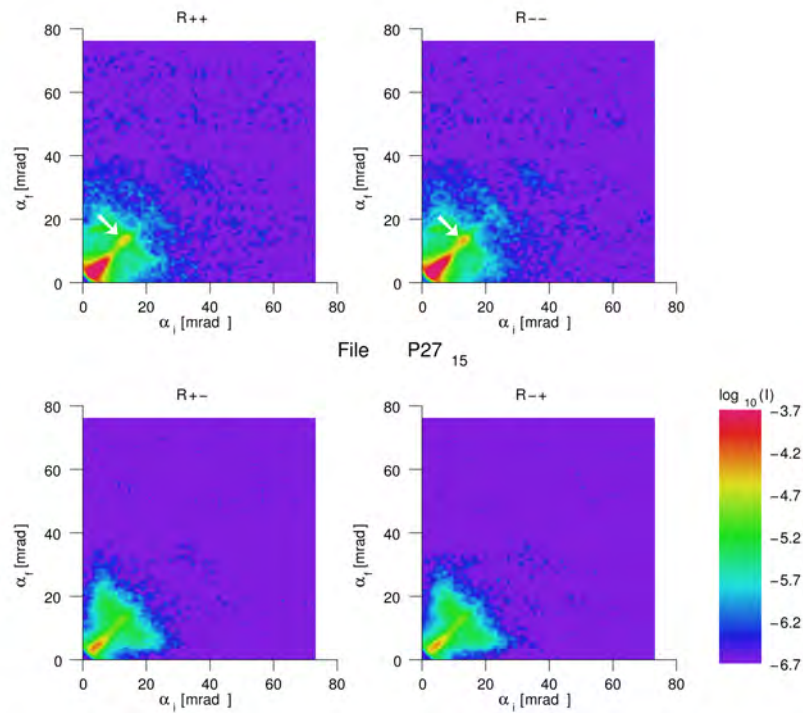
(b) Ergebnis für ein Schichtsystem im Remanenzfeld mit der Orientierung „H parallel zu den Streifen“

**Abbildung 5.19:** Vergleich der unstrukturierten und strukturierten Probe im Remanenzfeld

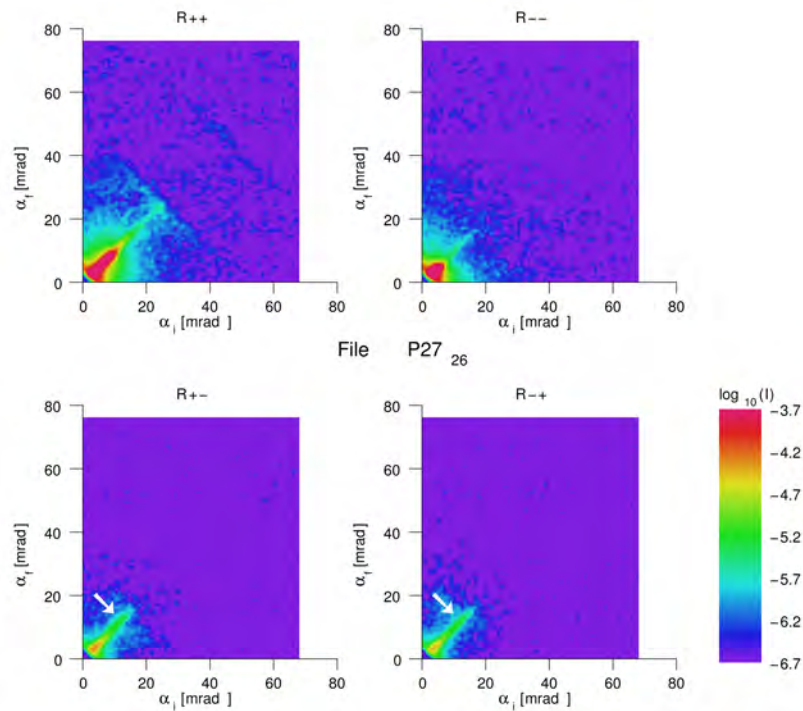
höheren Winkeln verschieben.

Die Messungen im Remanenzfeld (Abb. 5.20) haben gezeigt, dass die Orientierung einen Einfluß auf das magnetische Verhalten des strukturierten Schichtsystems hat. In der Orientierung „H senkrecht zu den Streifen“ ist die magnetische Information mehr im Nicht-Spinflip-Kanal vorhanden (Pfeile in Abb. 5.20(a)). Hieraus kann man schließen, dass die magnetischen Momente in den einzelnen Schichten parallel zum Feld und somit senkrecht zu den Streifen ausgerichtet sind. Bei der anderen Orientierung sind die magnetischen Informationen mehr im Spinflip-Kanal (Pfeile in 5.20(b)). Daraus folgt, dass die Magnetisierung stärker senkrecht zum äußeren Feld steht und senkrecht zu den Streifen. Dies ist in Abbildung 5.19 skizziert. Aufgrund der Formanisotropie würde man eher erwarten, dass sie sich entlang der Streifen ausrichten würden. In wieweit dies mit der Domänenbildung zu tun hat, kann man erst mit der quantitativen Auswertung der offspekulären Daten sagen. Die Domänenbildung ist jedenfalls an der Verbreiterung der offspekulären Streuung sichtbar.

Abschließend kann man sagen, dass, obwohl die Probe nicht optimal strukturiert war, doch noch ein interessantes Ergebnis abzuleiten ist. Es konnte gezeigt werden, dass die laterale Strukturierung einen Einfluß auf das magnetische Verhalten der Probe hat. Im speziellen wird vermutet, dass die unterschiedlichen Domänenbildungen in den einzelnen Strukturen ausschlaggebend sind. Bei einer optimal strukturierten Probe, ist es voraussichtlich möglich mehr reflektierte Intensität zu erhalten und somit nicht nur besser die durch die Strukturen hervorgerufenen Peaks zu sehen, sondern auch zusätzlich Informationen über die magnetische Domänenverteilung in den strukturierten Streifen zu erhalten.



(a) Schichtsystem im Remanenzfeld mit der Orientierung „H senkrecht zu den Streifen“



(b) Schichtsystem im Remanenzfeld mit der Orientierung „H parallel zu den Streifen“

**Abbildung 5.20:** Vergleich der unstrukturierten und strukturierten Probe im Remanenzfeld



# Kapitel 6

## Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit wurden strukturierte und unstrukturierte Fe/Cr/Fe-Vielfachschichtsysteme mit MOKE und Neutronenreflektometrie mit Polarisationsanalyse auf ihre magnetischen Eigenschaften hin untersucht. Es wurde eine Abhängigkeit des magnetischen Verhaltens der Schichtsysteme von der Anzahl der Fe-Schichten gefunden. Im Vergleich zwischen einem Schichtsystem mit 7 antiferromagnetisch gekoppelten Fe-Schichten und einem 19er-Fe-Schichtsystem zeigte sich, dass bei Remanenz im 7er-Schichtsystem die Ausrichtung im Magnetfeld von der nicht kompensierten Magnetisierung bestimmt wird. Im Gegensatz dazu ist der remanente Zustand im 19er-Schichtsystem von Koerzitiveffekten dominiert, die Magnetisierung aller Schichten verbleibt senkrecht zum angelegten Feld und verkantet übergangslos beim Nulldurchgang der Magnetfeldstärke. Ein bereits vorhandenes Programm zur Simulation von Ummagnetisierungskurven wurde weiterentwickelt und für höhere Schichtanzahlen erweitert. Somit konnten Simulationen vom magnetischen Verhalten dieser Schichtsysteme erzeugt werden, die mit den Ergebnissen der MOKE- und der Neutronenmessungen (unter Einbeziehung der Modellbeschränkungen) konsistent sind.

Ein Einfluss von Domänen auf das magnetische Verhalten ist in der off-spekulären Neutronenstreuung an den unstrukturierten Proben insbesondere im mittleren Feldbereich sichtbar. Es ist für die Zukunft von Interesse, die vorhandenen Daten auch off-spekulär auszuwerten, um über die Domänenbildung in diesen Proben quantitative Aussagen treffen zu können.

Eine Untersuchung aller ungeraden Fe-Schichtsysteme zwischen 7 und 19 Lagen könnte von Interesse sein, um den Übergang des Remanenzverhaltens genauer zu charakterisieren.

Die Strukturierung der epitaktisch aufgedampften Schichten erfolgt durch Nanoimprintlithografie, ein relativ junges, aber vielversprechendes Verfahren in Bezug auf die Miniaturisierung von Strukturen. Es wurde eine erfolgreiche Weiterentwicklung des NIL-Prozesses für kleinflächige Proben und  $1 \times 1 \text{ cm}^2$  große Strukturierungsflächen erreicht. Die Strukturierung von Fe/Cr-Multilagen auf einem GaAs Substrat ist möglich. Die Prozessparameter zur Strukturierung sollten jedoch noch weiter in Bezug auf den Belackungsprozess und die Ätzprozesse optimiert werden.

Bei der Untersuchung der lateral strukturierten Probe konnte ein Einfluß der Strukturierung auf das magnetische Verhalten der Probe gezeigt werden. Es zeigt sich, dass die Magnetisierung der Schichten in Remanenz vorzugsweise senkrecht zu den Streifenstrukturen orientiert ist, was der Formanisotropie widerspricht. Die offspekuläre Streuung zeigt deutliche Domänenbildung, inwieweit diese zur Vorzugsorientierung der Magnetisierung

beiträgt, kann man erst mit der quantitativen Auswertung der offspekulären Daten herausbekommen.

Mit dem neuen Reflektometer MARIA des JCNS-FRM II kann diese Untersuchung in Zukunft mit einem erheblich besseren Signal-Rausch-Verhältnis wiederholt werden und eröffnet somit die Chance auf wesentlich detailliertere Einblicke in die lateralen Magnetisierungsstrukturen. So wird es auch möglich sein, noch kleinere Strukturen zu untersuchen.

Diese Diplomarbeit zeigt, dass sich auch bei einfachen Modellsystemen noch interessante Effekte finden lassen und wir mit den uns zur Verfügung stehenden Methoden bei fortschreitender Miniaturisierung noch viele interessante Phänomene aufklären können. Die Untersuchung solcher Modellsysteme ist eine Voraussetzung für die künftige Forschung an komplexeren Mehrschichtsystemen, die näher an den Anwendungen sind.



# Danksagung

Ganz zum Schluß möchte ich mich ganz herzlich bei allen Leuten bedanken, die diese Arbeit ermöglicht und mich in jeder Hinsicht tatkräftig unterstützt haben:

- **Prof. Thomas Brückel** danke ich sehr herzlich, dass er mir diese Arbeit am Institut für Streumethoden ermöglicht hat. Seine interessanten Anregungen, speziell nach jeder Messreise, haben diese Arbeit positiv beeinflusst und die Auswertung vorangetrieben. Ganz besonders möchte ich mich bei ihm bedanken, dass er offen für neue Methoden ist und mir die Möglichkeit gegeben und das Vertrauen geschenkt hat, diese neue Strukturierungsmöglichkeit auszuprobieren und weiterzuentwickeln.
- **Prof. Karl Maier** möchte ich mich auch ganz herzlich für die Übernahme der Betreuung dieser externen Diplomarbeit und der Zweitkorrektur bedanken. Dadurch ist diese Arbeit erst ermöglicht worden.
- **Ulrich Rücker** danke ich für die Betreuung und Unterstützung in allem, was mit dieser Arbeit zu tun hatte. Zu ihm konnte ich mit allen Fragen kommen. Unsere regelmäßigen Diskussionsrunden Dienstags morgens, haben mir sehr geholfen. Danke auch für die abendlichen „Kontrollanrufe“, wenn ich auf Messzeit war (Big Brother is watching you).

**Mein Dank gilt weiterhin:**

- **René Borowski** für die Durchführung des Ätzprozesses an meinen Proben und die stetige Diskussionsbereitschaft. Danke auch für die schnellen Korrekturen.
- **Elke Brauweiler-Reuters und Hans Peter Bochem** für die stetige Unterstützung bei den REM-Aufnahmen.
- **Sandra Gilles und Matthias Meier** für die Einführung in die Nanoimprint Lithografie und die stetige Hilfs- und Diskussionsbereitschaft. Desweiteren danke ich Sandra für das Korrekturlesen der Imprint Kapitel.
- **Holger John** für die Hilfe bei allen Fragen im Bezug auf den Reinraum. Durch die tolle Kooperation wurde der Imprintprozess erst ermöglicht.
- **Carsten Kügeler** für die Unterstützung bei dem Imprint-Prozess.
- **Stefan Mattauch und Denis Korolkov** danke ich für die Betreuung und Hilfe bei der Durchführung der Neutronenstreuexperimente am TREFF.
- **Alfred Steffens und Michael Prömpers** für die tolle Kooperation im Bezug auf den IBN Reinraum.
- **Reinert Schreiber** für die interessanten Tipps und Unterstützung bei der Schichtherstellung.

- **Artur Glavic, Rainer Link, Jörg Perßon, Daniel Schumacher und mein Betreuer Ulrich Rücker** für das unermüdliche Kontrolllesen dieser Diplomarbeit.

Ich möchte mich bei allen Mitarbeitern des Instituts für Streumethoden für die freundschaftliche Aufnahme, die angenehme Arbeitsatmosphäre und große Hilfsbereitschaft bedanken, die mir im letzten Jahr entgegen gekommen ist, insbesondere bei Barbara Köppchen für die große Hilfe bei allem Organisatorischen und bei dem IT-Team und Christel Horriar-Esser für die stets prompte Erfüllung aller meiner Sonderwünsche bezüglich des PCs. Meinen Zimmerkollegen auch den besten Dank, für die vielen netten und aufheitenden Stunden, die wir gemeinsam im Büro verbracht haben. Zudem möchte ich noch Rainer Link danken, der mich im gesamten Studium moralisch unterstützt hat und viele gute Anregungen eingebracht hat. Zu guter Letzt möchte ich meinen Eltern danken, die mich nicht nur finanziell, sondern auch moralisch immer unterstützt und mir den Rücken gestärkt haben.

# Kapitel 7

## Literaturverzeichnis

- [1] *Users Manual - Agilent 5400 AFM*. Agilent Technology.
- [2] Michael D. Austin, Haixiong Ge, Wei Wu, Mingtao Li, Zhaoning Yu, D. Wasserman, S. A. Lyon, and Stephen Y. Chou. Fabrication of 5 nm linewidth and 14 nm pitch features by nanoimprint lithography. *Applied Physics Letters*, 84(26):5299–5301, 2004.
- [3] Michael D Austin, Wei Zhang, Haixiong Ge, D. Wasserman, S. A. Lyon, and Stephen Y Chou. 6 nm half-pitch lines and  $0.04 \mu\text{m}^2$  static random access memory patterns by nanoimprint lithography. *Nanotechnology*, 16:1058–1061, 2005.
- [4] M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Reuzet, and A. Friedrich und J. Chazelas. Giant magnetoresistance of (001)fe/(001)cr magnetic superlattices. *Phys. Rev. Lett.*, 61:2472–5, 1988.
- [5] T. Brückel, G. Heger, and D. Richter. *Neutron Scattering - Laboratory Course - Lectures*. FZJ-Verlag, Jülich, 1999.
- [6] P. Bruno. *Physical origins and theoretical models of magnetic anisotropy in IFF-Ferienkurs 24: Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen*. Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [7] D. Bürgler. Ag films on Fe/GaAs(001): From clean surfaces to atomic Ga structures. *Surface Science*, 366:295–305, 1996.
- [8] D. E. Bürgler, C. M. Schmidt, D. M. Schaller, F. Meisinger, R. Hofer, and H.-J. Güntherodt. Optimized epitaxial growth of Fe on Ag(001). *Phys. Rev. B*, 56(7):4149–4158, 1997.
- [9] Stephen Y. Chou, Peter R. Krauss, and Preston J. Renstrom. Imprint of sub-25 nm vias and trenches in polymers. *Applied Physics Letters*, 67(21):3114–3116, 1995.
- [10] Stephen Y. Chou, Peter R. Krauss, Wei Zhang, Lingjie Guo, and Lei Zhuang. Sub-10 nm imprint lithography and applications. *Journal of Vacuum Science and Technology B*, 15(6):2897–2904, 1997.
- [11] G.H.O. Daalderop, P.J. Kelly, and M.F.M. Schuurmans. *Magnetic Anisotropy from first principles - Vol. I*. Springer , New York, 1994.
- [12] Diverse. *Magnetische Schichtsysteme - 30. Ferienkurs des Instituts für Festkörperforschung*. Forschungszentrum Jülich GmbH, Jülich, 1999.

- [13] Sandra Gilles. Chemical Modification of Silicon Surfaces for the Application in Soft Lithography. *Berichte des Forschungszentrums Jülich*, JUEL-4249, 2007.
- [14] Sandra Gilles, Matthias Meier, Michael Prömpers, Andre van der Hart, Carsten Kügelger, Andreas Offenhäusser, and Dirk Mayer. Uv nanoimprint lithography with rigid polymer molds. *Microelectronic Engineering*, 86:661–664, 2009.
- [15] Artur Glavic. Interferenzlithographie zur Erzeugung magnetischer Nanostrukturen: Von der lateralen Strukturierung bis zur Untersuchung der magnetischen Eigenschaften, Diplomarbeit RWTH-Aachen 2008.
- [16] P. Grünberg. Magnetische schichtstrukturen: Zwischenschichtaustauschkopplung und riesenmagnetowiderstandseffekt. *Sonderdruck aus IFF-Bulletin*, 47, 1995.
- [17] P. Grünberg, R. Schreiber, Y. Pang, M. B. Brodsky, and H. Sowers. Layered Magnetic Structures: Evidence for Antiferromagnetic Coupling of Fe Layers across Cr Interlayers. *Phys. Rev. Lett.*, 57(19):2442–2445, 1986.
- [18] M. A. Herman and H. Sitter. *Molecular Beam Epitaxy*. Springer Series in Materials Science. Springer Verlag Berlin, 2. edition, 1996.
- [19] M. A. van Hove, W. H. Weinberg, and C.-M. Chan. *Low-energy electron diffraction*. Springer Verlag Berlin, 1986.
- [20] Namil Koo, Markus Bender, Ulrich Plachetka, Andreas Fuchs, Thorsten Wahlbrink, Jens Bolten, and Heinrich Kurz. Improved mold fabrication for the definition of high quality nanopatterns by soft UV-nanoimprint lithography using diluted PDMS material. *Microelectronic Engineering*, 84(5-8):904–908, 2007.
- [21] J. Kranz and A. Hubert. Die Möglichkeiten der Kerr-Technik zur Beobachtung magnetischer Bereiche. *Z. angew. Phys.*, 15:220, 1963.
- [22] J. Lekner. *Theory of reflection*. Dordrecht Boston, 1987.
- [23] Ulrich Rücker. Schichtsysteme aus ferromagnetischen Metallen und magnetischen Halbleitern, Diplomarbeit Universität zu Köln 1994.
- [24] HC Scheer, N Bogdanski, M Wissen, T Konishi, and Y Hirai. Profile evolution during thermal nanoimprint. *Microelectronic Engineering*, 83(4-9):843–846, 2006.
- [25] P.F. Schmidt. *Praxis der Rasterelektronenmikroskopie und Mikrobereichsanalyse*. Expert Verlag, Renningen-Malmsheim, 1994.
- [26] J. A. Wolf, Q. Leng, R. Schreiber, P. A. Grünberg, W. Zinn, and I.K. Schuller. Interlayer coupling of Fe-films accross Cr-interlayers and it's relation to growth and structure. *J. Mag. Mat.*, 121:253, 1993.

# Anhang A: Daten der Simulation zur Neutronenreflektometrie

## 7er-Fe-Schichtsystem

	Streulängendichten [ $\text{\AA}^{-2}$ ]		
	Nuklear		Magnetisch
	Realteil (Nb')	Imaginärteil (Nb'')	(Np)
Fe-Literatur	$8,02 \cdot 10^6$	$5,5 \cdot 10^2$	$5,12 \cdot 10^6$
Fe-Verwendet	$7,94 \cdot 10^6$	$5,5 \cdot 10^2$	$4,62 \cdot 10^6$
Cr-Literatur	$2,99 \cdot 10^6$	$6,85 \cdot 10^2$	0.0
Cr-Verwendet	$3,45 \cdot 10^6$	$6,85 \cdot 10^2$	0.0
Ag-Schicht	$3,5 \cdot 10^6$	$9,77 \cdot 10^2$	0.0

**Tabelle 7.1:** tablele der für die Simulation verwendeten Streulängendichten

	Rauigkeiten [ $\text{\AA}$ ]		Schichtdicken [ $\text{\AA}$ ]
	Minimal	Maximal	
Fe-Schichten	7,5	14,2	97,8
Cr-Schichten	14,0	17,8	9,55
Ag-Schicht		14,2	1500

**Tabelle 7.2:** tablele der für die Simulation verwendeten Rauigkeiten und Schichtdicken

Fe-Schicht	Winkel zum Feld [ $^\circ$ ]			
	5 mT	30 mT	MOKE-Sim. (30 mT)	300 mT
1 und 7	0	8,1	21	0
2 und 6	180	-104,3	-90	0
3 und 5	0	16,5	73	0
4	180	-76,5	-79	0

**Tabelle 7.3:** tablele der Ausrichtungen der magnetischen Momente zum Quantisierungsfeld

## 19er-Fe-Schichtsystem

	Streulängendichten [ $\text{\AA}^{-2}$ ]		
	Nuklear		Magnetisch
	Realteil (Nb')	Imaginärteil (Nb'')	(Np)
Fe-Schichten	$8,02 \cdot 10^6$	$5,5 \cdot 10^2$	$5,12 \cdot 10^6$
Cr-Schichten	$2,99 \cdot 10^6$	$6,85 \cdot 10^2$	0.0
Ag-Schicht	$3,5 \cdot 10^6$	$9,77 \cdot 10^2$	0.0

**Tabelle 7.4:** tablele der für die Simulation verwendeten Streulängendichten

	Rauigkeiten [ $\text{\AA}$ ]		Schichtdicken [ $\text{\AA}$ ]
	Minimal	Maximal	
Fe-Schichten	7,0	20,0	97,48
Cr-Schichten	12,0	19,0	10,0
Ag-Schicht	16,0		1500

**Tabelle 7.5:** tablele der für die Simulation verwendeten Rauigkeiten und Schichtdicken

Fe-Schicht	Winkel zum Feld [ $^\circ$ ]			
	5 mT	25 mT	MOKE-Sim. (25 mT)	300 mT
1 und 19	-83,86	-54,5	-70	0
2 und 18	86,55	87,9	80	0
3,5,7,...,15,17	-83,86	-76,3	-80	0
4,6,8,...,14,16	86,55	81,5	80	0

**Tabelle 7.6:** tablele der Ausrichtungen der magnetischen Momente zum Quantisierungsfeld