

Masterarbeit

Hall-Magnetometrie an ferromagnetischen Mikro-Teilchen

Martin Lonsky

August 2013



Goethe-Universität Frankfurt am Main
Fachbereich Physik
Physikalisches Institut

Abgabedatum

21.08.2013

Gutachter

Prof. Dr. Jens Müller

Prof. Dr. Michael Huth

„Fantasie ist wichtiger als Wissen,
denn Wissen ist begrenzt.“
Albert Einstein

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Grundlagen des Mikromagnetismus	3
1.1 Allgemeine Grundlagen des Magnetismus	4
1.2 Ferromagnetismus	5
1.2.1 Austauschwechselwirkung	5
1.2.2 Magnetische Anisotropie	6
1.2.3 Magnetische Domänen und Domänenwände	6
1.2.4 Ummagnetisierung und Hysterese	9
1.2.5 Barkhausen-Sprünge und Dynamik von Domänenwänden	11
1.2.6 Das Streufeld einer magnetischen Probe	13
2 Mikro-Hall-Magnetometrie	15
2.1 Grundlagen	15
2.1.1 Hall-Effekt	16
2.1.2 Halbleiter-Heterostrukturen und zweidimensionales Elektronengas (2DEG)	17
2.1.3 Transporteigenschaften	20
2.2 Messtechniken	22
2.3 Kryostatentechnik	25
3 Herstellung und Charakterisierung der Sensoren	27
3.1 Strukturierung mittels Fotolithografie	27
3.2 Planare Kontakte	31
3.3 Charakterisierung eines Sensors	41
3.3.1 Messungen bei Raumtemperatur	41
3.3.2 Messungen im Kryostaten	42
4 Positionierung magnetischer Mikro-Proben	49
4.1 Der Mikromanipulator	49
4.2 Positionierung von Proben	50
5 Magnetische Messungen an CrO₂	53
5.1 Allgemeines und vergangene Messungen	53
5.2 Messungen an einem einzelnen CrO ₂ Mikro-Teilchen	55
5.3 Messungen an zwei CrO ₂ Mikro-Teilchen	57
6 Magnetische Messungen an Lu₂MnCoO₆	61
6.1 Multiferroizität	61

6.1.1	Von der magnetischen Ordnung zur elektrischen Polarisation	62
6.1.2	Grundlagen und vergangene Messungen zu $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$	65
6.1.3	Spindynamik in $\text{Ca}_3\text{CoMnO}_6$ und $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$	69
6.2	Magnetische Messungen an einzelnen $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ Mikro-Teilchen	71
6.2.1	Aufwärmessungen nach Zero Field Cooling (ZFC) und Field Cooling (FC)	72
6.2.2	Temperaturabhängige Magnetfeld-Sweeps	76
6.2.3	Diskussion und Einordnung der Messergebnisse	88
Zusammenfassung und Ausblick		91
Danksagung		95
Literaturverzeichnis		97

Einleitung

Magnetismus ist einerseits ein seit Jahrtausenden bekanntes physikalisches Phänomen mit vielen technischen Anwendungen, andererseits konnte für diese Erscheinung erst Anfang des 20. Jahrhunderts eine theoretische Beschreibung mit Hilfe der Quantenmechanik aufgestellt werden. Heute sind die Anwendungen des Magnetismus so weitreichend, dass dieser aus unserem Alltag nicht mehr wegzudenken ist. An erster Stelle ist hierbei die Informationstechnologie zu nennen. Jede Computer-Festplatte basiert auf dem Prinzip der Speicherung von Information durch magnetische Materialien. Dabei können die magnetischen Momente eines kleinen Bereiches des Speichermediums in zwei entgegengesetzte Richtungen ausgerichtet werden. Die zwei möglichen Zustände werden als „0“ oder „1“ bezeichnet. Diese kleinste Informationseinheit wird gemeinhin als „Bit“ bezeichnet. Weitere Anwendungsgebiete magnetischer Werkstoffe sind vor allem die Sensorik und Messtechnik.

Eine Besonderheit dieses Teilgebietes der Festkörperphysik ist die enge Verknüpfung von physikalischer Grundlagenforschung und technischen Anwendungen. So wurden beispielsweise im Jahre 2007 Peter Grünberg und Albert Fert für ihre Entdeckung des Riesenmagnetowiderstandes (auch: GMR-Effekt, englisch: giant magnetoresistance) mit dem Nobelpreis ausgezeichnet. Es dauerte nicht lange, bis dieser Effekt die Festplattentechnologie revolutionierte und deutlich höhere Speicherkapazitäten ermöglichte. Diese enorme Bedeutung für alltägliche Technologien macht die Forschung an magnetischen Phänomenen umso interessanter.

Die Untersuchung kleinster magnetischer Teilchen ist für das Verständnis und weitere potentielle Anwendungen des Magnetismus unerlässlich. Eine mächtige Methode hierfür ist die sogenannte Mikro-Hall-Magnetometrie, die es ermöglicht, Streufelder einzelner magnetischer Proben basierend auf dem Hall-Effekt im zweidimensionalen Elektronengas (kurz: 2DEG) in Halbleiter-Heterostrukturen sehr genau auszumessen. Im Gegensatz zu Mikro-SQUIDs (SQUID: superconducting quantum interference device) können die Messungen in einem großen Temperatur- und Magnetfeldbereich zuverlässig durchgeführt werden. Diese höchst sensitive Messmethode erlaubt beispielsweise die Beobachtung der Domänenwanddynamik in magnetischen Mikro-Teilchen und ermöglicht insbesondere die Messung von sogenannten Barkhausen-Sprüngen aufgrund des Pinnings an magnetischen Störstellen.

Diese Arbeit soll die bisherigen Arbeiten an der Mikro-Hall-Magnetometrie in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. J. Müller an der Universität Frankfurt fortführen und einen Einblick in die zahlreichen Anwendungen dieser Messtechnik geben. Zum einen ist dabei das ferromagnetische Material Chromdioxid (CrO_2) von besonderem Interesse, welches als Kandidat für zukünftige Anwendungen in der Spintronik gilt. Zum anderen steht das multiferroische Material $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ im Vordergrund. Weiterhin war es ein wichtiges Ziel dieser Arbeit, die Etablierung planarer Kontakte im Gegensatz zu den bisher manuell aufgetragenen In/Sn-Kontakten voranzutreiben, um eine Kompatibilität mit den üblichen Fabrikationsmethoden der Nanotechnologie zu erreichen.

Im ersten Kapitel wird zunächst ein kurzer Überblick über das Gebiet des Magnetismus gegeben. Nach einer allgemeinen Diskussion des Ferromagnetismus liegt der Schwerpunkt auf Themen wie Magnetisierungsdynamik, magnetischen Domänen und der Dynamik von Domänenwänden. Das zweite Kapitel beinhaltet eine Vorstellung der Mikro-Hall-Magnetometrie. Zunächst werden die relevanten physikalischen Effekte aufgezählt, um im Anschluss das Funktionsprinzip sowie die verwendeten Messtechniken beschreiben zu können. Abgerundet wird das Kapitel mit einem Überblick über die verwendete Kryostatentechnik. Die Herstellung der Hall-Sensoren wird im dritten Kapitel beschrieben. Dabei wird zum einen auf die aus vergangenen Arbeiten bekannten Herstellungsschritte eingegangen, zum anderen aber auch auf neue Aspekte wie die planare Geometrie der Sensoren. Ein vollständig charakterisierter Sensor wird vorgestellt und Vergleiche der Eigenschaften planarer Kontakte zu denen der In/Sn-Kontakte werden gezogen. Zusätzlich wird im vierten Kapitel die Positionierung von Proben auf Sensoren mit Hilfe eines Mikromanipulators erläutert.

Konkrete Messungen an zwei verschiedenen Materialien werden in den Kapiteln 5 und 6 aufgezeigt. Das fünfte Kapitel beschäftigt sich mit dem ferromagnetischen Material CrO_2 , wohingegen sich das sechste Kapitel mit dem Multiferroikum $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ auseinandersetzt. Zuletzt werden eine Zusammenfassung und ein Ausblick gegeben.

Zusammenfassung und Ausblick

Abschließend werden die wichtigsten Ergebnisse dieser Arbeit zusammengefasst und ein Ausblick auf kommende mögliche Forschungsarbeiten gegeben.

Zusammenfassung

Diese Arbeit besteht im Wesentlichen aus drei Teilen. Der erste Teil beinhaltet die Herstellung von Mikro-Hall-Magnetometern und die Etablierung planarer Kontakte in der Gruppe von Prof. Dr. J. Müller an der Universität Frankfurt. Mikro-Hall-Magnetometer ermöglichen Messungen magnetischer Streufelder über einen weiten Temperatur- und Magnetfeldbereich basierend auf dem Hall-Effekt im 2DEG in Halbleiter-Heterostrukturen. Die im Gegensatz zu den manuell aufgebrachtten InSn-Kontakten planare Geometrie der AuGe/Ni-Kontakte hat die Kompatibilität mit Fabrikationstechniken der Nanotechnologie als großen Vorteil. Beispielsweise können auch nach der Strukturierung und Kontaktierung weitere Lithografieschritte durchgeführt werden. In Kombination mit den Vorarbeiten von Merlin Pohlit [Poh12] und den vorangegangenen Arbeiten der Gruppe von Prof. Dr. K. von Klitzing [Gök09, Gra98] wurde in dieser Arbeit ein Verfahren zur Herstellung planarer AuGe/Ni Kontakte auf die in Frankfurt hergestellten Sensoren angepasst und optimiert. Neben dem beschriebenen und charakterisierten GEN221_5 Sensor konnten bereits weitere Magnetometer mit planarer Geometrie hergestellt werden.

In den weiteren Teilen dieser Arbeit wurden unterschiedliche Anwendungen der Mikro-Hall-Magnetometrie vorgestellt. Dabei wurden im zweiten Teil magnetische Messungen am ferromagnetischen Material CrO_2 vorgestellt. Zunächst wurden Messungen aus der Veröffentlichung von P. Das et al. [DPW⁺10] reproduziert. Dabei wurde die Dynamik einer einzelnen Domänenwand in einem Mikroteilchen untersucht, da mikromagnetische Simulationen in [DPW⁺10] eine Konfiguration aus zwei Domänen mit antiparallel orientierter Magnetisierung ergaben. Weiterhin wurde die magnetische Anisotropie untersucht. Zusätzlich wurde der in [Hei12] errichtete Aufbau zur Mikromanipulation erfolgreich zur Platzierung mehrerer CrO_2 Proben angewandt. Nach der Messung einer weiteren individuellen Probe erfolgte eine Untersuchung von zwei benachbarten Mikroteilchen. Diese wurden abschließend so auf dem Sensor platziert, dass in einer zukünftigen Arbeit beide Proben individuell gemessen können, um die Interpretation der bereits erfolgten Messungen zu erleichtern.

Das letzte Kapitel dieser Arbeit beschäftigt sich mit einigen aktuellen physikalischen Konzepten. Im Detail wurden der aktuelle Stand der Forschung zum multiferroischen Material $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ beschrieben und magnetische Messungen mittels Hall-Magnetometrie an einem Mikroteilchen vorgestellt. Dabei konnten einerseits Forschungsergebnisse von S. Yáñez-Vilar et al. [YVMZ⁺11] bestätigt werden, andererseits aber auch einige neue wichtige Erkenntnisse bezüglich der Anisotropie und dem temperaturabhängigen Verhalten des

Materials gewonnen werden. Das Material $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ ist ein Typ-II Multiferroikum, bei dem eine mit der magnetischen Ordnung einhergehende Brechung der räumlichen Inversio-
nssymmetrie in den aus magnetischen Mn^{4+} - und Co^{2+} -Ionen bestehenden Spinketten zu
einer elektrischen Polarisierung führt. Ebenso wie in [YVMZ⁺11] wurden in dieser Arbeit
für Temperaturen unterhalb von 35 K magnetische Hysteresekurven gemessen.

Ähnlich wie bei dem verwandten Material $\text{Ca}_3\text{CoMnO}_6$ [LBB⁺09] wurde in $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$
eine weitere, bisher nicht beschriebene Übergangstemperatur T_{SF} von ca. 12 K festgestellt,
bei der ein Einfrieren bzw. eine Änderung der Spindynamik vermutet wird. Dies manifes-
tiert sich in drei Beobachtungen: Ein Peak tritt in der Ableitung der Aufwärmessung
nach ZFC auf, es erfolgt eine Abnahme des Koerzitivfeldes in senkrechter Einbaurichtung
unterhalb von 12 K und eine Sättigungsabhängigkeit wird unterhalb dieser Temperatur
beobachtet. Diese Beobachtungen wurden nur für die senkrechte Einbaurichtung gemacht
und sind ein Beleg für die starke Anisotropie des Systems. Als Ursache dieser Beobach-
tungen kann zum Beispiel eine Änderung der Kristallstruktur bei T_{SF} vermutet werden.
Eine Änderung der Kristallstruktur könnte das Auftreten der beschriebenen richtungsab-
hängigen Phänomene erklären.

Dagegen wurden in der parallelen Einbaurichtung bei sehr tiefen Temperaturen schar-
fe Sprünge beobachtet. Außerdem deuten sich plateauartige Strukturen in der Nähe der
Sprünge an. Im Gegensatz zu [YVMZ⁺11] wurden die Sprünge nicht bei 2 K gemessen,
sondern erst bei $T = 300$ mK. Schließlich wurde eine Verschiebung der Hysteresen entlang
der x-Achse beobachtet. In der senkrechten Einbaurichtung wurden stattdessen symme-
trische Hysteresen beobachtet.

Die beschriebenen Messungen zeigen die Stärken und die Vielfältigkeit der Mikro-Hall-
Magnetometrie. Neben Mikro-Teilchen können mit dieser Methode beispielsweise auch
makroskopische Proben, dünne Filme oder Nanostrukturen untersucht werden. Im folgen-
den Ausblick werden einige weitere Anwendungen vorgestellt.

Ausblick

Bezogen auf die drei Hauptteile dieser Arbeit wird im Folgenden ein Ausblick auf weitere
Forschungsmöglichkeiten gegeben.

Aufgrund der etablierten planaren Kontakte besteht in Zukunft eine Kompatibilität mit
Fabrikationstechniken der Nanotechnologie. Zur Untersuchung von Nanoteilchen mittels
Mikro-Hall-Magnetometrie muss jedoch zusätzlich die Größe der Kreuze reduziert werden.
Dazu bietet sich die Strukturierung mit Hilfe der Elektronenstrahlithografie an. Das
Integrieren dieser Methode in den bisher bestehenden Herstellungsprozess stellt einen
wichtigen Teil der Doktorarbeit von Merlin Pohlitz dar. In Kooperation mit Dr. Torsten
Henning von der Justus-Liebig-Universität in Gießen konnten bereits erste Strukturen mit
(1×1) μm^2 kleinen Kreuzen geschrieben werden, siehe Abb. 6.29.

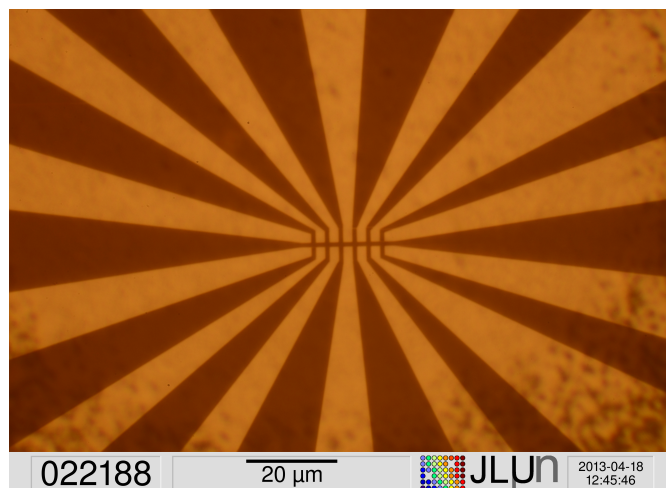


Abbildung 6.29: Optische Aufnahme einer Hall-Kreuz Struktur mit $(1 \times 1) \mu\text{m}^2$ kleinen Kreuzen. Die Strukturierung erfolgte mit einer Elektronenstrahlithografie-Anlage der Justus-Liebig-Universität in Gießen.

Bezogen auf das Material CrO_2 gibt es ebenfalls einige Ideen für zukünftige Arbeiten. Zum einen bietet es sich an, die in dieser Arbeit gemessenen benachbarten CrO_2 Teilchen zusätzlich individuell zu messen, um eine detailliertere Interpretation zu ermöglichen. Außerdem könnte parallel dazu eine neue magnetische Messmethode in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Müller etabliert werden. Dabei handelt es sich um die sogenannte FORC-Methode (FORC: first order reversal curve). Diese Methode wurde beispielsweise zu der Untersuchung von Wechselwirkungen zwischen magnetischen Teilchen [PRV99], der Analyse der Mechanismen bei der Hysterese mehrdomäniger Teilchen [PRDV01] oder der Messung der Ummagnetisierung in Co/Pt Nanostrukturen mit senkrechter Anisotropie verwendet [RDE⁺09] und würde in Kombination mit der Mikro-Hall-Magnetometrie eine mächtige Messtechnik darstellen. Eine Zusammenfassung der Messtechnik mit Bezug auf geophysikalische Problemstellungen findet sich in [RPV00].

Eine weitere Erweiterung der Mikro-Hall-Magnetometrie stellen Messungen der Suszeptibilität eines magnetischen Teilchens dar [Mih06]. Dabei wird eine Wechselfeldspule im Kryostaten mit einem Funktionsgenerator betrieben, der eine Wechselspannung mit Frequenz f ausgibt. Diese Frequenz f dient gleichzeitig als Referenzfrequenz für einen Lock-in. Zusätzlich kann ein DC-Magnetfeld bis zu 12 T gesweept werden. Dieser Aufbau erlaubt es, mit einer ortsabhängigen Streufeldmessung die Suszeptibilität einer Probe zu messen. In [Mih06] wurden beispielsweise Suszeptibilitätsmessungen an superparamagnetischen Teilchen durchgeführt. Erste vielversprechende Probemessungen in der Gruppe von Prof. Dr. J. Müller wurden bereits an einer CrO_2 Probe im Janis-Kryostaten durchgeführt.

Bei $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ handelt es sich um ein interessantes multiferroisches Material, dessen physikalische Eigenschaften bisher noch nicht vollständig verstanden sind. Weitere Messungen mittels Mikro-Hall-Magnetometrie könnten zu einem tieferen Verständnis beitragen. Zwar existieren bisher keine Einkristalle dieses Materials, allerdings lassen sich dünne Filme herstellen und könnten in weiteren Arbeiten untersucht werden. Weiterhin wäre es interessant, die Kristallstruktur bei unterschiedlichen Temperaturen mittels Röntgenstreuung zu bestimmen. Bisher wurden nur Messungen bei Raumtemperatur durchgeführt

[YVMZ⁺11]. Jedoch wäre die Änderung der Kristallstruktur bei 12 K eine plausible Erklärung für das ungewöhnliche, anisotrope magnetische Verhalten der in dieser Arbeit gemessenen Probe.

Da die kleinere der beiden platzierten $\text{Lu}_2\text{MnCoO}_6$ Proben im Rahmen dieser Arbeit nicht gemessen werden konnte, könnte eine ebenso kleine Probe auf einem Sensor mit kleineren Hall-Kreuzen platziert und gemessen werden. Das Signal der etwa $2\ \mu\text{m}$ kleinen Probe auf dem $(10 \times 10)\ \mu\text{m}^2$ großen Hall-Kreuz war aufgrund des geringen Füllfaktors deutlich zu schwach.

Systematische Untersuchungen zu der Verschiebung der Hysteresekurven in paralleler Einbaurichtung sind ebenfalls von Interesse. Dabei sollte die Probe in unterschiedlichen magnetischen Feldern abgekühlt werden. Zusätzliche Beobachtungen könnten einen Erklärungsansatz für diese Verschiebung entlang der Magnetfeldachse liefern.

Schließlich existieren viele weitere Ideen, die zum Teil bereits in laufenden Arbeiten angegangen werden. Beispielsweise ist eine gleichzeitige Messung des elektrischen Transports in einer Probe und des erzeugten magnetischen Streufeldes denkbar. Dafür sind als Proben unter anderem diverse Supraleiter oder Systeme, in denen sogenannte Skyrmionen, eine Art „magnetische Wirbel“, zu beobachten sind, von Interesse. Außerdem kann die Mikro-Hall-Magnetometrie mit einer weiteren Messmethode, die in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Müller verwendet wird, kombiniert werden: Mit Hilfe der sogenannten Fluktuationsspektroskopie kann beispielsweise magnetisches Rauschen¹ gemessen werden.

¹Interessante Aspekte zum magnetischen Rauschen finden sich zum Beispiel in der Veröffentlichung von Z. Diao et al. [DNFC10].