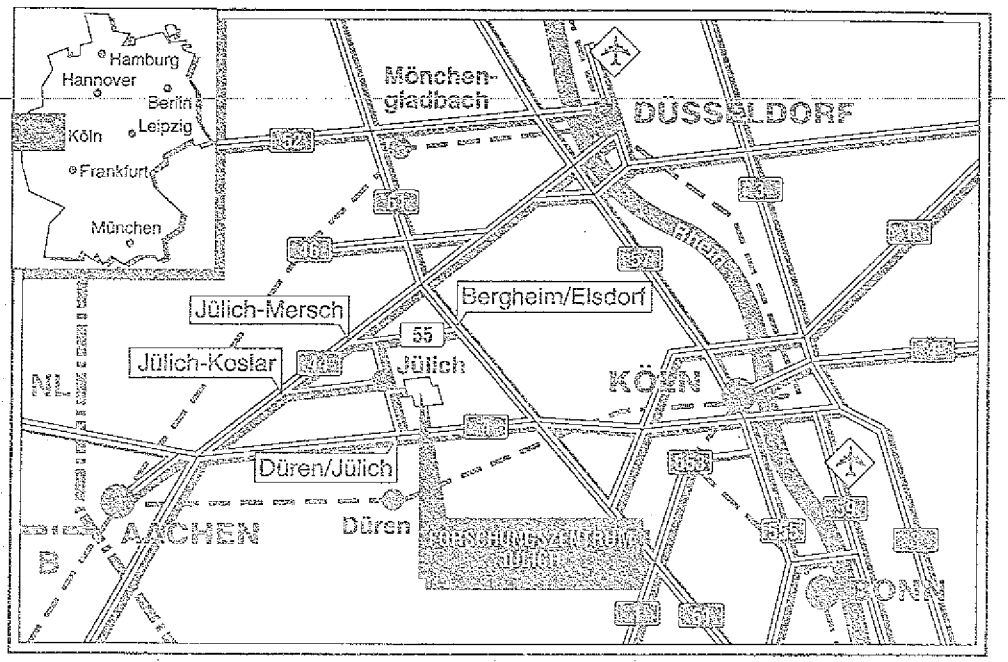
FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GmbH KFA

Institut für Festkörperforschung

CEMS-Untersuchungen an Grenzflächen in antiferromagnetisch koppelnden Schichtsystemen

Jochen Landes



Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 2489
ISSN 0366-0885
Institut für Festkörperforschung Jül-2489
D 38 (Diss. Universität Köln)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek
Postfach 1913 · D-5170 Jülich · Bundesrepublik Deutschland
Telefon: 02461/61-6102 · Telefax: 02461/61-6103 · Telex: 833556-70 kfa d

CEMS-Untersuchungen an Grenzflächen in antiferromagnetisch koppelnden Schichtsystemen

Jochen Landes

Abstract

In this thesis interface effects in antiferromagnetic coupling films were investigated. In the first part the ^{57}Fe Conversion Electron Mössbauer Spectroscopy (CEMS) method was used to analyze films of the structure Fe/X (X=Cr,Gd,Y), i.e. with only one interface. The second part describes measurements of the technically important system X/Fe/X.

The distance dependence of the magnetic hyperfine fields near the interfaces in epitaxial Fe/Cr and partly epitaxial Fe/Gd and Fe/Y bilayers were measured using the ^{57}Fe -CEMS method. It was found that the Fe-Cr magnetic interaction extends only up to the second Fe-neighbour at the Fe/Cr interface, whereas the interaction range at the Fe/Gd interface is four times larger. The Fe/Y system behaves very similar to the free Fe-surface. The results for the Fe/Cr system are in good agreement with LMTO band structure calculations. The Néel temperature of a thin Cr interlayer in a Fe/Cr/Fe sandwich structure was determined in dependence of the Cr layer thickness.

In the second part of the thesis the film growth of Gd/Fe and Y/Fe layered structures was investigated by means of ^{57}Fe -CEMS measurements and High Resolution Transmission Electron Microscopy (HRTEM). The Fe-layer grows on the Gd (Y) sublayer in an amorphous structure up to a critical thickness of $d_c = 2.3 \pm 0.1$ nm. On further increasing the Fe-thickness a rapid transformation to a nanocrystalline structure throughout the total Fe-layer occurs. The origin of this effect is suggested to be due mainly to the extreme misfit between the structural parameters of Fe and Gd (Y). The magnetism can be related to the structure of the films. Nanocrystalline Fe/Gd samples show a ferrimagnetic coupling with a compensation temperature of the sublattice magnetizations ("Giant Ferrimagnet"). In films with amorphous Fe such a compensation point could not be observed.

Inhalt

1. Einleitung

Der derzeitige Trend in der Datentechnik, mehr Rechenleistung auf noch kleinerem Raum anzubieten, erfordert magnetische Datenspeicher immer größerer Speicherdichte. Primäres Ziel der Entwicklung ist es, sowohl die Zugriffszeit auf einzelne Daten als auch die erforderliche Größe des Speichermediums zu reduzieren und gleichzeitig die Kapazität zu erhöhen. Eine weitere Anhebung der Speicherdichte ist jedoch zwangsläufig mit einem Übergang zu Strukturen im Nanometerbereich verbunden, deren Verständnis ohne die Quantenmechanik nicht möglich ist. Beim Übergang in den Nanometerbereich müssen u.a. Effekte beachtet werden, die auf prinzipielle Eigenschaften der Elektronen im Festkörper zurückgehen.

Sowohl technisch als auch von der Seite der Grundlagenforschung her sehr interessant ist das Fe/Cr/Fe-Schichtsystem. Dabei ist zwischen zwei jeweils etwa $10 - 40$ nm dicken Lagen aus Fe eine dünne Zwischenschicht aus $1 - 20$ Atomlagen Cr (ca. $0.2 - 4$ nm) eingebaut. In [1] wurde erstmalig über die antiferromagnetische Kopplung zweier 40 nm dicker epitaktischer Fe-Schichten über eine dünne Chrom-Zwischenschicht hinweg berichtet, wobei diese Kopplung analog zur Austauschkopplung zwischen zwei Spins definiert wird. Sowohl der Betrag als auch das Vorzeichen hängen u.a. von der Dicke der Cr-Zwischenschicht ab und zeigen oszillierendes Verhalten [2], [3], [4]. Technisch besonders wichtig ist die Korrelation dieses Effektes mit einem starken Anstieg des Magnetowiderstandes (MR) [3], [5], [6], [7]. Damit wird es möglich, Leseköpfe für magnetische Datenspeicher aus relativ einfach herzustellenden Schichtsystemen zu bilden. Abb. 1.1 zeigt die Aufnahme eines derartigen MR-Kopfes [8].

Wie Bandstrukturberechnungen am Fe/Cr-System zeigen, gibt es neben der Oszillation der Kopplung *zwischen* zwei Fe-Schichten auch ein oszillierendes Verhalten sowohl des magnetischen Momentes als auch des Hyperfeinfeldes, ausgehend von der Fe/Cr Grenzfläche, *in* die Fe-Schicht *hinein* [9], [10], [11]. Eine mikroskopische Meßmethode mit Monolagenauflösung, die in der Lage ist, diese theoretischen Aussagen zu überprüfen, ist die ^{57}Fe -Konversions-Elektronen-Mößbauer-Spektroskopie (CEMS). Ein wesentliches Ziel der vorliegenden Arbeit bestand in einer detaillierten Untersuchung dieser Fragen am Fe/Cr-System mittels ^{57}Fe -CEMS.

Eine neue Möglichkeit der magnetischen Datenspeicherung bietet die *Magnetooptik*. Werden magnetisch orientierte Bereiche in einer Schicht mittels Laser abgetastet, so vermittelt die Kerrdrehung des Lichtes einen eindeutigen Zusammenhang zwischen Polarisations- und Magnetisierungsrichtung. Amorphe Mischungen aus Fe

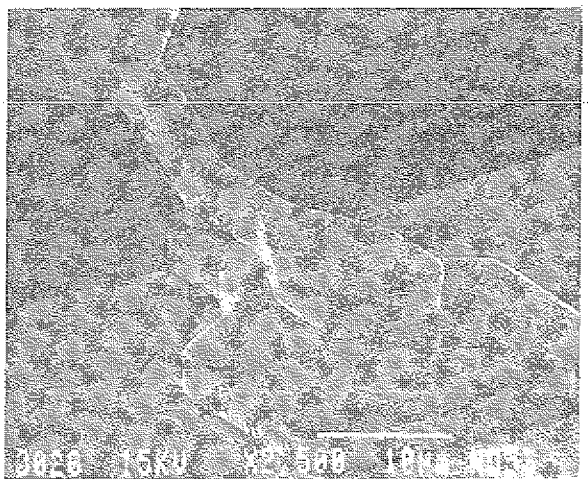


Abbildung 1.1: *Elektronenmikroskopische Aufnahme eines Lesekopfes für magnetische Datenspeicher nach der magnetoresistiven Methode (aus* [8]*).*

und den Selten-Erd Metallen Gd und Tb weisen eine starke Tendenz zur Senkrechtmagnetisierung auf, was für die Anwendung des transversalen Kerreffektes besonders wichtig ist. Gadolinium ist darüberhinaus wegen seines großen 4 f-Spinmomentes von $7\,\mu_B$ als starker *lokaler* Ferromagnet sehr interessant. Das zweite Ziel dieser Arbeit bestand in einem Vergleich der beiden antiferromagnetisch zum Fe koppelnden, jedoch vom Magnetismus her sehr verschiedenen Metalle Cr und Gd. Völlig analog zum Fe/Cr-System wurden daher tiefenabhängig selektiv magnetische Kopplung und Hyperfeinfeld untersucht. In einer dritten Meßreihe wurde die Fe/Gd- mit der Fe/Y-Grenzfläche verglichen. Yttrium ist chemisch dem Gadolinium verwandt, zeigt jedoch infolge der fehlenden 4 f-Schale keine magnetische Ordnung. Dadurch kann der Einfluss der Gd 4 f-Schale separiert werden.

Alle bisher beschriebenen Experimente fanden an Schichtsystemen mit nur einer Grenzfläche statt. Vom technischen Standpunkt her betrachtet, ist ein Schichtpaket mit mehreren Grenzflächen interessanter, da z.B. die magnetooptische Kerrdrehung additiv in der Schichtfolge ist. Insbesondere in Selten-Erd/Eisen Systemen besteht ein Zusammenhang zwischen magnetischen und strukturellen Eigenschaften. So hängt bei Fe die Größe des magnetischen Momentes von der Gitterstruktur ab, wie die Unterschiede zwischen bcc-, fcc- und hcp-Fe zeigen. Ein weiteres Ziel der vorliegenden Arbeit bestand daher darin, die Struktur und den Magnetismus in X/Fe/X (X=Cr,Gd,Y) Dreifachschichten zu untersuchen. Die erforderlichen Messungen wurden mit CEMS, Faraday-Waage, VSM (Vibrationsmagnetometrie), HRTEM (Hochaufgelöste Elektronenmikroskopie) und MOKE (Magnetooptischer Kerreffekt) durchgeführt.

2. Mößbauereffekt

2.1. Prinzip

Emittiert ein ungebundener, ruhender Atomkern der Masse M ein γ-Quant der Energie $E_\gamma = \hbar\omega$, so erfährt der Kern einen Rückstoßimpuls $\vec{p}_\gamma = \hbar\vec{k}$ und eine Rückstoßenergie $E_R = \hbar^2 k^2/2M$, wobei $E_\gamma \gg E_R$ gilt. Eine analoge Verschiebung der Energie tritt auch bei der Absorption eines Quants auf. Ist der Kern in einem Festkörper eingebaut, so ist diese Energieverschiebung wegen der großen Masse des Kristallgitters vernachlässigbar. Das Emissionsspektrum ist jedoch verbreitert, da durch die Wechselwirkung der Atome mit Phononen das Gitter durch thermische Bewegung den γ-Quanten Energie entziehen bzw. erteilen kann. Gemittelt über viele Anregungen gibt es jedoch einen merklichen Anteil rückstoßenergiefreier Absorptionen. Dieser Kernresonanzvorgang wird als *Mößbauer-Effekt* [12] bezeichnet. Zur Durchstimmung der Resonanzabsorption bedient man sich des Doppler-Effektes, d.h. die Quelle wird relativ zum Absorber mit einer Geschwindigkeit v bewegt. Dabei erfahren die γ-Quanten eine definierte Zusatzenergie von

$$E_{Doppler} = \hbar\omega_0\left(1 + \frac{v}{c}\right) \quad .$$

Der Anteil der rückstoßenergiefrei absorbierten γ-Quanten relativ zur Gesamtzahl aller Absorptionen heißt *Debye-Waller-Faktor* f_D

$$f_D(T) = \exp\left\{\frac{-\vec{k}_\gamma^2 < u^2 >}{3}\right\} \quad ,$$

wobei $< u^2 >$ das mittlere Auslenkungsquadrat eines harmonischen Oszillators darstellt und $\vec{k}_\gamma$ der Wellenzahlvektor der γ-Strahlung ist. Im Debye-Modell kann $< u^2 >$ zur charakteristischen Debye-Temperatur Θ_D in Beziehung gesetzt werden. Der Debye-Waller Faktor f_D ist temperaturabhängig und stets kleiner als 1.

Bei rückstoßfreier Emission und Absorption ist die Energieunschärfe nur durch die natürliche Linienbreite begrenzt, die um viele Größenordnungen kleiner ist als E_R. Für die Messungen dieser Arbeit wurde das Mößbauerisotop ^{57}Fe eingesetzt. Dessen Kernniveauschema weist zwei Resonanzübergänge auf, von denen jedoch nur der $I = 3/2 \rightarrow 1/2$ Übergang mit einer Energie $E_\gamma = 14.4\,\text{keV}$ und einer Lebensdauer des angeregten Zustands von $\tau_N = 1.41 \cdot 10^{-7}\,\text{s}$ gemessen wurde. Damit

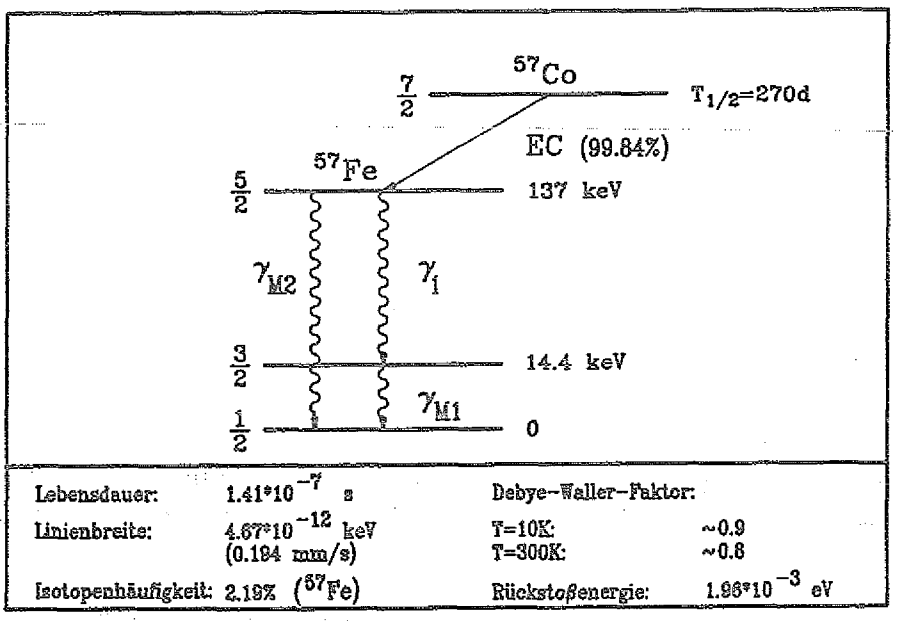


Abbildung 2.1: *Zerfallsschema von* ^{57}Co *und wichtige Daten nach* [13] *(EC = Electron Capture).*

ergibt sich eine natürliche Linienbreite von $\Gamma = \hbar/\tau_N = 4.7 \cdot 10^{-9}$eV und eine relative Energieunschärfe $\Delta E/E_\gamma = \Gamma/E_\gamma = 3.3 \cdot 10^{-13}$. Der Mößbauereffekt gestattet relative Energiemessungen, deren Genauigkeit durch die natürliche Linienbreite begrenzt wird.

Als γ-Quelle fand das Isotop ^{57}Co , eingebettet in eine Rh-Metall Matrix, Verwendung. Der Zerfall erfolgt hier überwiegend durch den Einfang eines Elektrons aus der K-Schale (Electron Capture). Die Halbwertszeit der ^{57}Co Quelle liegt bei 270 Tagen, so daß eine ausreichend lange Experimentierzeit zur Verfügung steht. Der Debye-Waller-Faktor für ^{57}Fe in Fe-Metall beträgt bei Raumtemperatur $f_D(T = 300\,\mathrm{K}) \approx 0.8$. Abb. 2.1 zeigt das Zerfallsschema und wichtige Daten (nach [13]).

2.2. Wechselwirkungen

Die Energie der Kernniveaus wird beeinflußt, wenn man den Atomkern in einen Festkörper einbaut. Ursache hierfür bilden Wechselwirkungen des Kerns mit seiner Umgebung, die sowohl aus der Elektronenhülle des eigenen Atoms als auch aus den Nachbaratomen besteht. Die im Rahmen dieser Arbeit relevanten Wechselwirkungen sollen i.f. beschrieben werden, da ihre Auswertung unmittelbare Rückschlüsse auf den untersuchten Kristall zulassen. Sie sind in Abb. 2.2 (Bildidee aus [14]) graphisch zusammengefaßt.

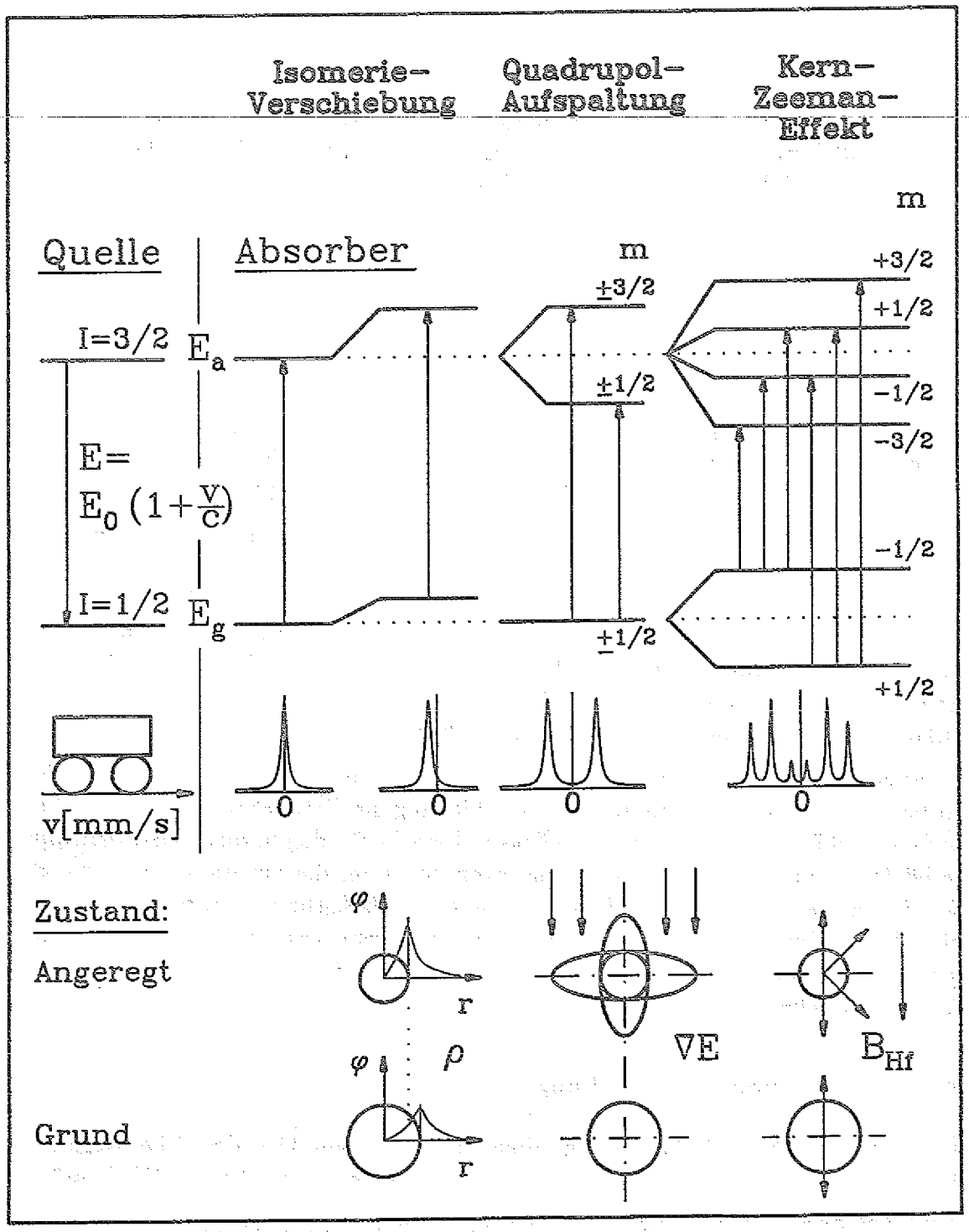


Abbildung 2.2: *Zusammenstellung der wichtigsten Wechselwirkungen. Ebenfalls dargestellt ihre mikroskopischen Ursachen und Auswirkungen auf die Form der Mößbauerspektren (Bildidee nach* [14]*).*

2.2.1. Isomerieverschiebung

Der ^{57}Fe Kern weist im Grund- (angeregten) Zustand den mittleren Radius $< r_g >$ ($< r_a >$) auf, wobei gilt $< r_a > < < r_g >$. Beide Kernvolumina beinhalten dieselbe Kernladung $Z\,e$, besitzen jedoch wegen der unterschiedlichen Radien ein unterschiedliches elektrostatisches Potential. Befindet sich am Ort des ^{57}Fe Kerns eine Ladungsdichte ρ, so verschiebt ihre Wechselwirkung mit dem Kernpotential beide Zustände unterschiedlich. In einem Mößbauerexperiment mißt man die damit verbundene Energieverschiebung $E_0 = E_a - E_g$ *relativ* zwischen Quelle Q und Absorber A. Für die Energie gilt dann

$$\Delta E_{Iso} \propto (\rho_A - \rho_Q)(< r_a^2 > - < r_g^2 >) \quad .$$

An dieser Gleichung ist zu ersehen, daß die Isomerieverschiebung eine Relativgröße ist, die stets die Angabe einer Bezugssubstanz erfordert. Für die Messungen der vorliegenden Arbeit wurde eine ^{57}Co -Quelle in einer Rh-Matrix verwendet.

Da im wesentlichen nur s-Elektronen eine von Null verschiedene Aufenthaltswahrscheinlichkeit am Kernort aufweisen, ist für die Ladungsdichte ρ die Summe der Aufenthaltswahrscheinlichkeitsdichten für *beide* Spinrichtungen der s-Elektronen maßgebend, so daß gilt $\rho = e(|\ \psi_\uparrow\ |^2 + |\ \psi_\downarrow\ |^2)$. Auf Grund ihrer Abschirmwirkung auf weiter außen liegende s-Elektronen beeinflussen jedoch auch die p-, d- und f-Elektronen die Isomerieverschiebung. Durch diesen Zusammenhang ist eine Bestimmung der chemischen Wertigkeit möglich.

Auch bei identischem Aufbau bezüglich der Kernumgebung von Quelle und Absorber gibt es zusätzlich eine weitere Verschiebung der Resonanzenergie, wenn beide auf unterschiedlichen Temperaturen liegen. Ursache für diesen *quadratischen Dopplereffekt* ist eine relativistische Frequenzverschiebung, die auf die unterschiedliche Zeitdilatation der im Gitter der Quelle und des Absorbers schwingenden Atome zurückzuführen ist. Für ^{57}Fe beträgt die damit verbundene Verschiebung der Resonanzlinie etwa 0.1 mm/s bei einer Temperaturdifferenz von $\Delta T = 200$ K zwischen Quelle und Absorber.

2.2.2. Quadrupolwechselwirkung

Gibt es einen elektrischen Feldgradienten (EFG) am Ort des ^{57}Fe -Kerns, so kommt es zu einer teilweisen Aufhebung der Energieentartung bezüglich der m-Unterzustände und damit zu einer Aufspaltung der Mößbauerlinie in zwei Linien. Zum EFG am Kernort trägt jede nicht kugelsymmetrische Ladungsverteilung um den Kern bei, die entweder von den eigenen Elektronen (z.B. 3d-Schale) oder von Nachbaratomen (z.B. in nichtkubischen Gittern oder an Grenzflächen) stammen kann. Bei einkristallinen Proben hängt die relative Intensität der beiden Linien vom Winkel Θ zwischen γ-Richtung und der Symmetrieachse des Kristalls (EFG) ab:

Übergang	Δm	Intensität
$\pm 3/2 \rightarrow \pm 1/2$	1	$\propto 3/2\,(1+\cos^2\Theta)$
$\pm 1/2 \rightarrow \pm 1/2$	0	$1+3/2\sin^2\Theta$

Mit dem Quadrupolmoment $e\,Q$ des angeregten Kerns ergibt sich für einen auf Hauptachsen transformierten Feldgradiententensor mit den Komponenten

$$V_{x_i x_i} = \frac{\partial^2 V}{\partial x_i^2} \quad , \quad i = 1, 2, 3$$

und dem Asymmetrieparameter

$$\eta = \frac{V_{xx} - V_{yy}}{V_{zz}}$$

die Wechselwirkungsenergie und damit die Aufspaltung der beiden Linien

$$E_Q \propto e\,q\,Q\,\sqrt{1+\eta^2/3} \quad .$$

2.2.3. Kern-Zeeman-Effekt

Befindet sich der ^{57}Fe -Kern in einem Magnetfeld B, so kommt es zu einer Wechselwirkung mit dem Kernmoment μ, die zu einer Aufspaltung der Mößbauerlinie in sechs äquidistante Linien führt: *Die magnetische Hyperfeinfeldaufspaltung.* Da angeregter und Grundzustand unterschiedliche Momente besitzen, ergibt sich für die Wechselwirkungsenergie

$$E_{HF} = -B\left(\frac{\mu_a\,m_a}{I_a} - \frac{\mu_g\,m_g}{I_g}\right) \quad ,$$

wobei für die erlaubten Übergänge die Auswahlregel gilt $\Delta\,m = 0, \pm 1$. Die Größe der Aufspaltung ist damit ein Maß für die Stärke des Magnetfeldes am Kernort. Aus dem Verhältnis der relativen Intensitäten der sechs Linien läßt sich der Winkel Θ zwischen der einfallenden γ-Strahlung und der Richtung des Magnetfeldes ablesen und damit die Orientierung der Magnetisierung in der Probe bestimmen. Es gilt für die Intensität der Linien im 6-Linien Spektrum:

Übergang	Δm	Intensität
$\pm 3/2 \rightarrow \pm 1/2$	± 1	$\propto 3/4\,(1+\cos^2\Theta)$
$\pm 1/2 \rightarrow \pm 1/2$	0	$\sin^2\Theta$
$\mp 1/2 \rightarrow \pm 1/2$	∓ 1	$\propto 1/4\,(1+\cos^2\Theta)$

Liegen z.B. Einstrahlrichtung und Magnetisierung im rechten Winkel zueinander, d.h. $\Theta = \pi/2$, so ergibt sich ein Intensitätsverhältnis von 3:4:1:1:4:3.

Die vom Festkörper am Kernort erzeugten Einflüsse fluktuieren zeitlich auf unterschiedlichen Zeitskalen. Liegt die Fluktuationsfrequenz des Magnetfeldes in der Größenordnung der Larmorfrequenz des Kernmomentes, so erhält man sog. *Relaxationsspektren*, deren Beschreibung kompliziert ist [15]. In magnetischen Legierungen und somit auch an Grenzflächen dagegen werden die Änderungen des Magnetfeldes am Kernort durch sehr schnelle lokale Schwankungen der Momente der Elektronenhülle bewirkt [15]. Ein ^{57}Fe -Kern „sieht"daher auf seiner Zeitskala ein statisches Feld. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen an Grenzflächen ist daher stets der zuletzt beschriebene Fall schneller Relaxation gültig.

Das magnetische Hyperfeinfeld setzt sich aus mehreren Teilbeiträgen zusammen, die i.f. kurz beschrieben werden sollen

$$B_{Hf} = B_{cp} + B_{ce} + B_{trans} + B_{dip} + B_{ext} \quad .$$

Das magnetische Hyperfeinfeld weist i.a. ein negatives Vorzeichen auf. Zur Vereinfachung der Darstellung wird für die vorliegende Arbeit jedoch vereinbart, daß alle Hyperfeinfeldwerte nur als *Betrag* angegeben werden. Alle Mößbauerexperimente dieser Arbeit wurden ohne äußeres Magnetfeld B_{ext} durchgeführt. Die Dipolbeiträge B_{dip} beschreiben das von einem magnetischen Moment erzeugte Dipolfeld, das vom Bahn- (Spin-) Drehimpuls und dem damit verknüpften Bahn- (Spin-) Moment herrühren kann. In vollständig kubischer Umgebung wird auf Grund der Kristallsymmetrie der Bahndrehimpuls ausgelöscht (*Quenching of orbital momentum*). An Grenzflächen ist diese Symmetrie gestört, weshalb dort Beiträge zu erwarten sind. Typische Werte für B_{dip} liegen im Bereich bis 0.2 T.

Das *Fermi-Kontakt-Feld* ist Ursache für die bei ^{57}Fe dominierenden Beiträge der kernnahen Elektronen *(Core Polarisation)* B_{cp} sowie der Leitungselektronen *(Conduction Electrons)* B_{ce}. Es beruht auf der Wechselwirkung der magnetischen Momente der s-Elektronen mit dem magnetischen Moment des Kerns. Das magnetische Netto-Moment der 3d-Schale übt über das Fermi-Austauschloch eine attraktive Wechselwirkung auf s-Elektronen der *gleichen* Spinrichtung aus [16]. Die inneren s-Elektronen parallel zur 3d-Spinrichtung erfahren eine Anziehung auf das 3d-Orbital zu, so daß am Kernort ein resultierender Beitrag entsteht, der umgekehrt zum Moment der 3d-Schale gerichtet ist. Die äußeren 4s-Leitungselektronen werden analog beeinflußt. Sie befinden sich im Mittel jedoch außerhalb der 3d-Schale, so daß dieser Beitrag i.a. das *gleiche* Vorzeichen besitzt. Ausnahmen können auftreten, wenn sich in einem Metall eine magnetische Störung (z.B. ein Atom mit großem mag. Moment) befindet. Um die Störungsstelle herum kommt es zu einer spinabhängigen *Spindichteoszillation*. Je nach Entfernung von der Störungsstelle kann der Beitrag zum Hyperfeinfeld positiv oder negativ sein (RKKY-Wechselwirkung) [16]. Ein ähnlicher Effekt tritt auf, wenn in einen Kristall eine Ladungsstörung eingebaut wird. Um die Störstelle bilden sich Ladungsdichteoszillationen, die die Fehlladung vollständig kompensieren, die sog. *Friedel-Oszillationen* [17]. Der Ladungsdichteoszillation

$$\rho(r) = e(|\,\psi(r)_{\uparrow}\,|^2 + |\,\psi(r)_{\downarrow}\,|^2)$$

entspricht eine Spindichteoszillation

$$\vec{\sigma}(r) = m\vec{u}_{El}(|\ \psi(r)_{\uparrow}\ |^2 - |\ \psi(r)_{\downarrow}\ |^2) \quad .$$

Die Größenordnung für den Leitungselektronenanteil beträgt $B_{ce} \approx 10 - 20\,\mathrm{T}$, typische Werte des Kernpolarisationsfeldes liegen bei $B_{cp} \approx 30\,\mathrm{T}$.

Die direkte Umgebung eines Mössbauerkerns wirkt sich über das transferierte Hyperfeinfeld B_{trans} aus. Ein benachbartes Atom beeinflußt sowohl über den direkten d-Überlapp als auch über die Leitungselektronen das Hyperfeinfeld am Kernort. Transferierte Felder tragen mit $B_{trans} \approx 2\,\mathrm{T}$ zum gesamten Feld bei.

In Volumenproben verläuft das magnetische Hyperfeinfeld B_{Hf} als Funktion der Temperatur T i.a. proportional zur makroskopischen Magnetisierung $M(T)$ [18]. Durch die Messung von $B_{Hf}(T)$ lassen sich daher sowohl Aussagen über den Temperaturverlauf der Magnetisierung als auch über magnetische Ordnungstemperaturen (Curiepunkt) gewinnen.

Die Messung von Magnetfeldern am Kernort liefert also eine Fülle lokaler Informationen über die unmittelbare Nachbarschaft eines betrachteten Atoms. Ihre Auswertung gestattet somit weitreichende Aussagen über magnetische Eigenschaften des zu untersuchenden Festkörpers. Die meisten Resultate dieser Arbeit stammen daher aus der Auswertung des magnetischen Hyperfeinfeldes.

2.3. Meßmethode

Der Mößbauereffekt ist ein Kernresonanzeffekt. Zur Durchstimmung der Resonanzabsorption bedient man sich des Doppler-Effektes, d.h. die Quelle wird relativ zum Absorber mit einer Geschwindigkeit v von einigen mm/s bewegt. Dabei erfahren die γ-Quanten eine Zusatzenergie von

$$E_{Doppler} = \hbar\,\omega_0 \left(1 + \frac{v}{c}\right) \quad .$$

Alle Mößbauer-Spektren dieser Arbeit sind, wie allgemein üblich, auf der Abszisse mit in Geschwindigkeit umgerechneten Doppler-Energien dargestellt.

Zur Erzeugung der Quellenbewegung wird ein elektromagnetischer Antrieb benutzt (Lautsprecherprinzip), der von einem Sinusgenerator gesteuert wird. Ein von einem Mikroprozessor gesteuerter Vielkanalanalysator zählt die ankommenden Impulse. Er ist mit dem Antrieb der Quelle synchronisiert [19]. Abb. 2.3 zeigt den prinzipiellen Aufbau der Mößbauer-Apparatur. Grundsätzlich sind zwei verschiedene Anordnungen möglich. Bei der üblicherweise eingesetzten *Transmissionsgeometrie* wird die Schwächung der durchgehenden γ-Strahlung gemessen, was zu einem *Absorptionsspektrum* führt. Im zweiten Fall (CEMS) erhält man die *Streugeometrie*, bei der entweder die Fluoreszenzstrahlung oder die *Konversionselektronen* nachgewiesen werden können. Das Meßprinzip ist in Abb. 2.4 dargestellt.

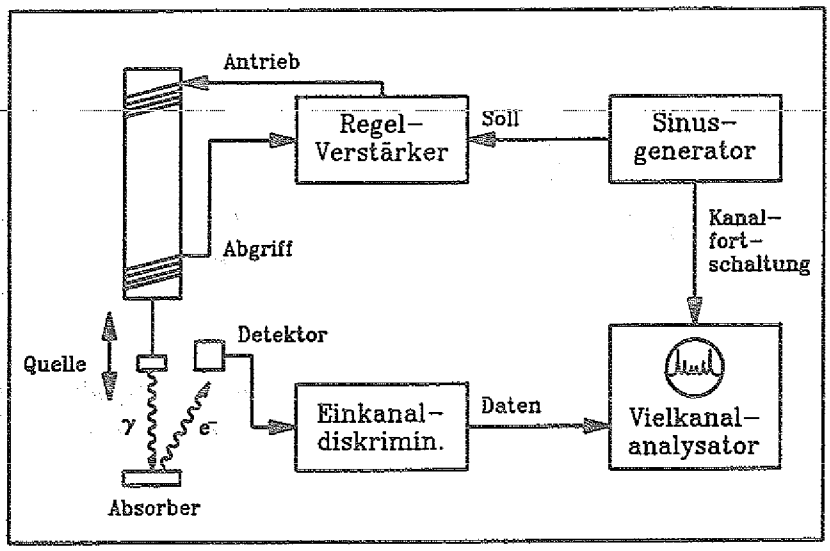


Abbildung 2.3: *Blockschaltbild der Mößbauer-Apparatur.*

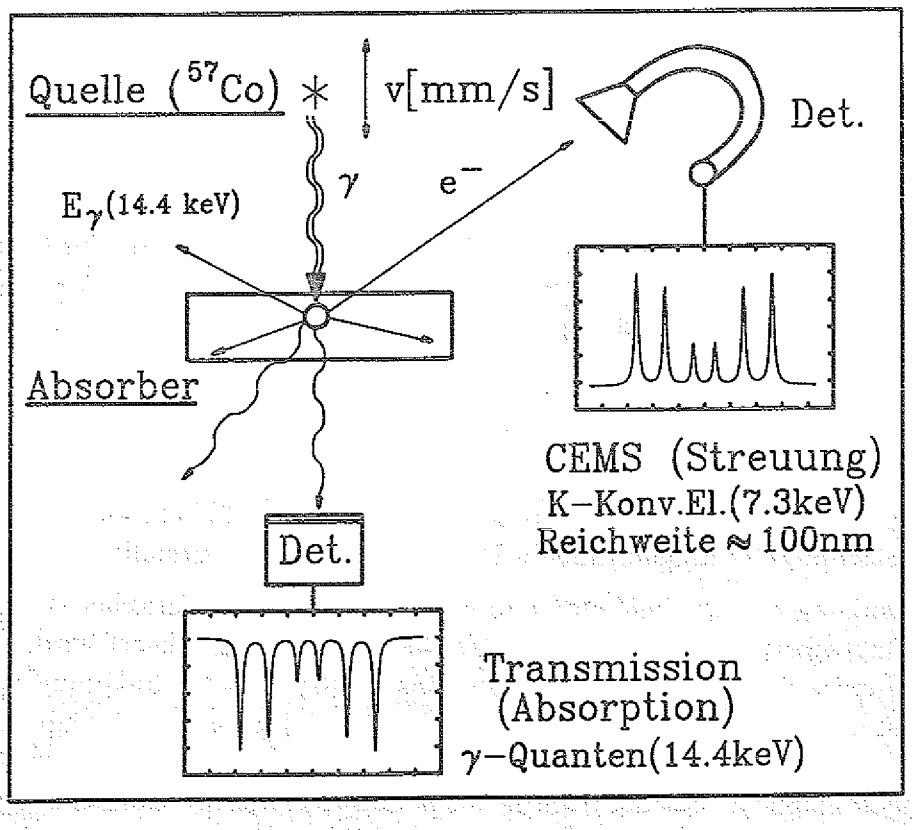


Abbildung 2.4: *Die möglichen Meßgeometrien und die Form der Mößbauer-Spektren.*

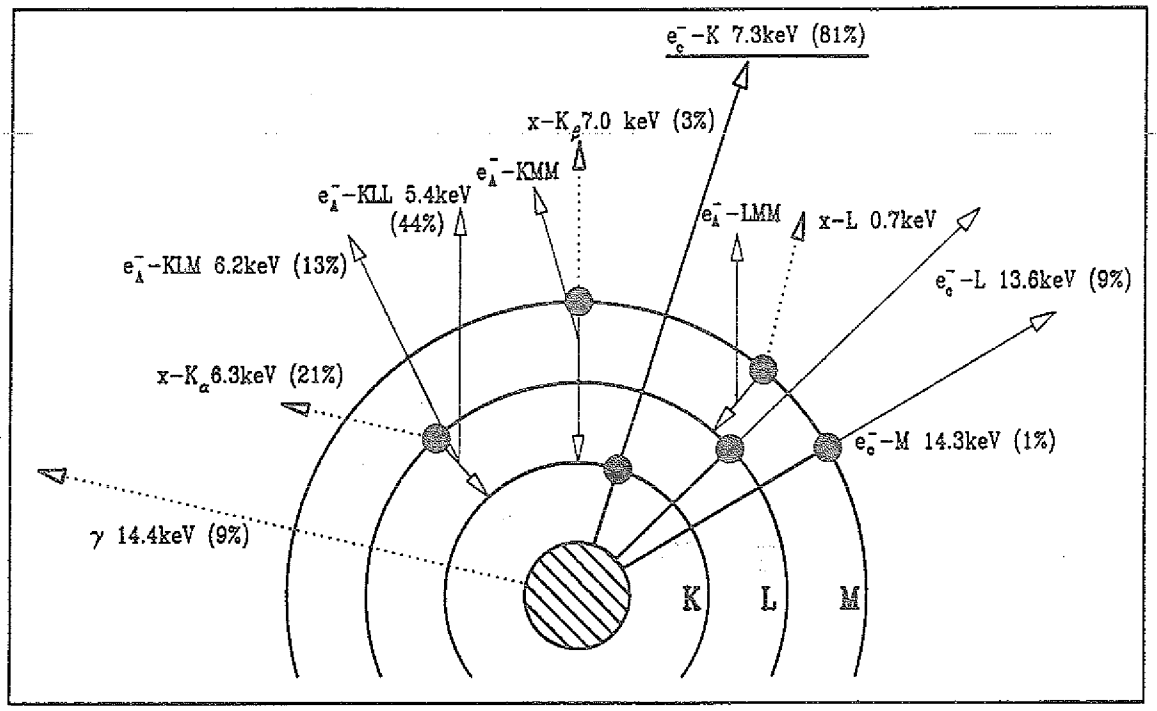


Abbildung 2.5: *Emissionsschema von* ^{57}Co *mit relativen Intensitäten nach* [23]. *(Gesamtintensität größer als 100 %, da neben der Primäremission auch sekundäre Hüllenprozesse zum Spektrum beitragen.)*

2.4. CEMS-Prinzip

Ein angeregter ^{57}Fe -Kern kann nicht nur durch die Emission eines γ-Quants in den Grundzustand zurückkehren, sondern auch durch Übertragung (*Konversion*) der Energie an ein Elektron der eigenen Elektronenhülle. Dieses Elektron wird als sog. *Konversionselektron* aus der Hülle herausgeschlagen. Die damit verbundene Meßmethode heißt CEMS (*Conversion Electron Mößbauer Spectroscopy*). Die größte Emissionswahrscheinlichkeit weisen dabei Konversionselektronen aus der K-Schale auf, deren kinetische Energie sich aus der Differenz von Anregungs- (14.4 keV) und Bindungsenergie (7.1 keV) an den Kern ergibt, was bei ^{57}Fe zu einem Wert von $E_{Konv} = 7.3$ keV für K-Elektronen führt. Mit der Emission dieser Elektronen sind Umordnungsprozesse der Hülle verbunden, die vor allem zur Abstrahlung von K-Röntgenquanten (6.4 keV) und Augerelektronen (5.4 keV für K-LL El.) [20] führen. Genaue Messungen des gesamten Spektrums zeigen, daß in weiterer Folge auch niederenergetische Sekundärelektronen mit $E \leq 15$ eV emittiert werden [21], [22]. Eine graphische Zusammenstellung der emittierten elektronischen und elektromagnetischen Beiträge gibt Abb. 2.5 (aus [23]). Die Messung des gesamten Konversions- und Augerspektrums von ^{57}Co zeigt Abb. 2.6 (nach [24]).

Eine Aussage über den Anteil von K- Konversionselektronen am Spektrum macht der *Konversionskoeffizient* α. Für ^{57}Fe beträgt er $\alpha = n_K/n_\gamma = 9.0$ [13], d.h. der

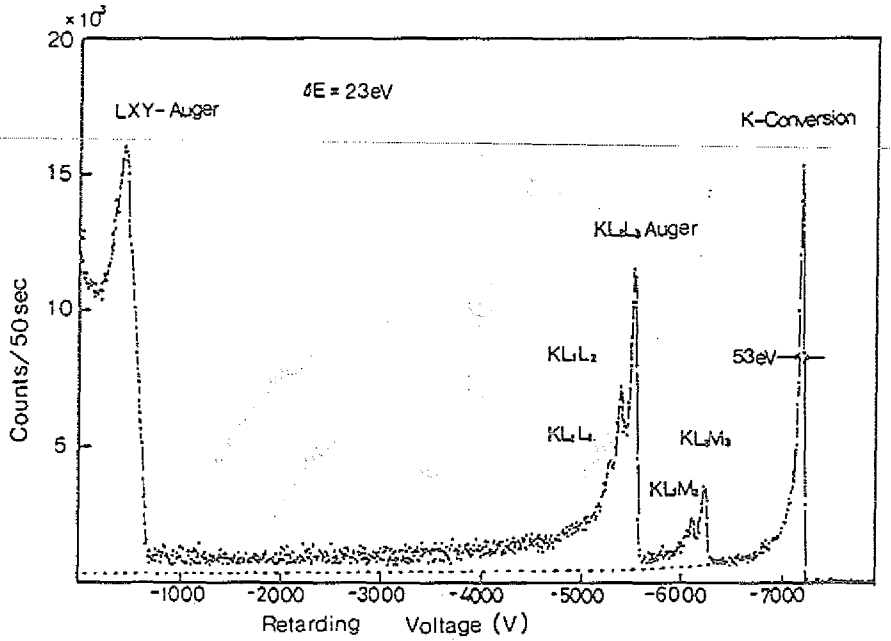


Abbildung 2.6: *Konversions- und Augerspektrum von* ^{57}Co *nach* [24], *gemessen mit einem Retarding-Grid Spektrometer (- - - = niederenergetischer Anteil der K-Linie).*

größte Teil aller Zerfälle n kommt durch K- Konversionselektronen zustande. Steht nur eine begrenzte Zahl resonanter Kerne zur Verfügung, wie z.B. in dünnen Schichten, bietet sich daher die Anwendung der CEMS-Methode an. Auch aus meßtechnischer Sicht ist in diesem Fall die Transmissionsgeometrie nachteilig. Absorbieren nur sehr wenige Kerne die einfallende γ-Strahlung, so erhält man in diesem Fall die sehr hohe Zählrate der Primärstrahlung, der eine kleine Absorption überlagert ist. Zusätzlich ist das für Schichten erforderliche Substrat bei Transmissions-Experimenten nachteilig. Im CEMS-Experiment ist die Grundzählrate nur durch Streustrahlungsrauschen (Photoelektronen, Röntgenquanten, etc.) und das Rauschen des Detektors gegeben (Dunkelzählrate, elektron. Rauschen), der das eigentliche Meßsignal überlagert ist. Das Signal/Rausch-Verhältnis ist in diesem Fall also wesentlich günstiger. Ein Kriterium für den Einsatz von CEMS ist das Verhältnis der auf den Untergrund N_∞ normierten Zählraten für CEMS- bzw. Transmissionsexperimente [25]. Der relative Meßeffekt ist definiert als

$$\eta = \frac{N(0) - N(\infty)}{N(\infty)} \quad ,$$

wobei $N(v)$ die absolute Zählrate bei der Doppler-Geschwindigkeit v ist. In Streuexperimenten hängt $N(\infty)$ vom Streuquerschnitt der nicht resonanten Strahlungsanteile ab. Mit dem Streuquerschnitt für photoelektronische Absorption σ_{ph}, der Zahl der resonanten Atome je Flächeneinheit n und dem Konversionskoeffizient α gilt

$$\frac{\eta_{CEMS}}{\eta_{Trans}} = \frac{1}{n \cdot \sigma_{ph}} \frac{\alpha}{\alpha + 1} \quad .$$

Aus den beschriebenen Gründen wurden die Mößbauer-Messungen an dünnen Schichten in der hier vorliegenden Arbeit ausschließlich mittels CEMS durchgeführt.

2.4.1. Tiefenselektive Messungen

Beim Durchgang durch Materie wird die Energie der Konversionselektronen durch Streuprozesse vermindert. Dieser Energieverlust steigt mit wachsender Entstehungstiefe der Elektronen unterhalb der Probenoberfläche an und führt dazu, daß diese Elektronen überhaupt nur aus einer Tiefe von maximal ca. 100 nm bis zur Oberfläche vordringen. Es sind zwei Versionen für CEMS-Messungen möglich: Das energieintegrale (*ICEMS*) und das energie-differentielle (*DCEMS= Depth-Selective-CEMS*) Verfahren. ICEMS mißt sowohl *alle* Konversions-, als auch die in Folgeprozessen ausgelösten Auger- und Sekundärelektronen ohne Energieauflösung. Bei DCEMS weist man mit einem geeigneten Energie-Analysator nur Elektronen mit *bestimmter* Energie nach und hat so die Möglichkeit, tiefenselektiv zu messen. Theoretisch wird die Tiefenselektivität in [26] behandelt. Dort wird mit Hilfe der Monte-Carlo Methode für Elektronen aus unterschiedlicher Absorbertiefe sowohl die totale als auch die winkelaufgelöste Transmission berechnet. Der Aufbau der verwendeten DCEMS-Apparatur wird in [27], [28] ausführlich beschrieben. Aus den dort erläuterten technischen Gründen ist die Tiefenauflösung dieser Anlage auf etwa 10 – 40 nm begrenzt. In der hier vorliegenden Arbeit sollten jedoch Messungen im Monolagen-(ML) Bereich durchgeführt werden, die eine andere Technik erforderlich machten.

Natürliches Eisen besteht zu etwa 98 % aus dem für die Mößbauer-Quelle ^{57}Co *nicht* resonanten ^{56}Fe und nur zu 2 % aus ^{57}Fe [18]. Beide Fe-Isotope sind chemisch und magnetisch völlig gleichwertig und unterscheiden sich ausschließlich durch ihr unterschiedliches Kernniveauschema. Befindet sich in einer Probe aus ^{56}Fe an definierter Stelle z.B. eine Monolage (ML) reines ^{57}Fe , stammt auch die Meßinformation *nur* aus dieser einen Lage, und man erhält so eine Tiefenauflösung im ML-Bereich. Die Tiefenselektivität wird so ausschließlich durch die Genauigkeit beim Herstellungsprozess der Probe begrenzt. Daher war es möglich, zur Untersuchung der Proben sowohl eine ICEMS- als auch die oben erwähnte DCEMS-Apparatur einzusetzen.

Die geringe Zahl der ^{57}Fe -Atome in einer ML bedingt meist eine längere Meßzeit als in Transmissionsgeometrie an Volumenproben üblich. Für ein Spektrum mit guter Statistik war je nach Schichtaufbau eine Zeit von 1 Stunde bis zu 3 Wochen erforderlich. Die Meßdauer richtet sich u.a. neben der Dicke der ^{57}Fe -Schicht auch nach der Form der Spektren. Besteht das Spektrum aus einer Überlagerung diverser Teilspektren, ist eine längere Meßzeit als bei einem scharf definierten Spektrum erforderlich. Ebenso beeinflußt eine auf der Probe angebrachte dicke Deckschicht mit $d \geq 8$ nm (z.B. als Oxidationsschutz) sowie die Aktivität der Quelle die Meßzeit. Für die untersuchten Proben lagen die Meßzeiten durchschnittlich bei 3 Tagen. Die Nachweisgrenze der CEMS-Methode liegt typisch bei etwa 0.2 ML.

2.5. Auswertung der Spektren

Ein Mößbauer-Spektrum ist je nach Kernumgebung unterschiedlich strukturiert. In den Proben der vorliegenden Arbeit war die magnetische Hyperfeinaufspaltung die vorherrschende Wechselwirkung. Befindet sich ein ^{57}Fe -Atom in einer definierten magnetischen Nachbarschaft aus anderen Fe- oder Fremdatomen, so entspricht dieser Konfiguration *genau ein* Spektrum aus sechs Lorentzlinien. Die Annahme dieser Linienform ist gerechtfertigt, da die Schichtsysteme neben dem in Kap. 2.2.3 erwähnten Fall der schnellen Relaxation die Idealforderung des unendlich dünnen Absorbers gut erfüllen. Unterschiedliche Umgebungen der ^{57}Fe -Atome in der Probe erzeugen diskrete Teilspektren, die sich zum Gesamtspektrum addieren.

Die überwiegende Zahl der Spektren dieser Arbeit ließ sich aus diskreten Teilspektren zusammensetzen, d.h. es gab i.a. nur wenige unterschiedliche Fe-Umgebungen. Wie in diesem Fall üblich, wurden zur Anpassung (Fit) eines gemessenen Spektrums für jedes Teilspektrum die Parameter: Mag. Hyperfeinaufspaltung, Verhältnis der relativen Linienintensitäten, Isomerieverschiebung, Linienbreite und relativer Flächenanteil angepaßt. Der Flächenanteil gibt die relative Zahl von ^{57}Fe -Atomen an, die ein Subspektrum erzeugen. Mit Hilfe dieses Parameters ist unter der Annahme guten Schichtwachstums die Angabe einer relativen Schichtdicke für das korrespondierende Spektrum möglich. Mit hoher Genauigkeit lassen sich so Spektren mit schmalen Linien anpassen. Der Meßfehler eines Spektrums für α-Volumen Fe mit $B_{Hf} = 33\,\mathrm{T}$ liegt im Bereich von $\Delta B = \pm 0.05\,\mathrm{T}$. Etwas größer ist der Fehler bei Teilspektren anzusetzen, die aus einer Zahl ähnlicher Konfiguration zusammengesetzt sind, und damit breite Linien aufweisen. Je nach statistischer Qualität und Flächenanteil liegt er in der Größenordnung von $\Delta B = \pm(0.1 - 1)\,\mathrm{T}$ (z.B. bei den gemessenen Zusatzspektren an der Fe/Cr-Grenzfläche). Eine Quadrupolaufspaltung konnte nur für ^{57}Fe -Lagen beobachtet werden, die sich *unmittelbar* an Grenzflächen befanden. Die gemessenen Werte waren jedoch mit $\Delta E_Q \leq 0.05\,\mathrm{mm/s}$ stets sehr klein und streuten zudem, so daß kein signifikanter Trend erkennbar war.

Gibt es in einer Probe sehr viele verschiedene Möglichkeiten von Umgebungskonfigurationen, wie z.B. in einer Volumen-Legierung, so führt dies zu einer kontinuierlichen magnetischen Hyperfeinfeldverteilung, die mit den in [29] oder [30] angegebenen Verfahren analysiert werden können und hier nicht näher erläutert werden sollen. Prinzipiell funktioniert diese Form der Auswertung jedoch analog wie die oben beschriebene Methode. Abb. 2.7 zeigt als Beispiel das Spektrum einer 2.5 nm dicken, zwischen Y eingebauten Schicht aus ^{57}Fe . Der Fit wurde mit drei Subspektren durchgeführt. Aufgetragen ist die relativ zum Untergrund (100 %) gemessene Intensität in [%] über der Geschwindigkeit der Mößbauerquelle in [mm/s]. Eine detaillierte Zusammenfassung verschiedener mathematischer Methoden, sowie Angaben zum Fit bei Linien, die von der Lorentzform abweichen, gibt [31].

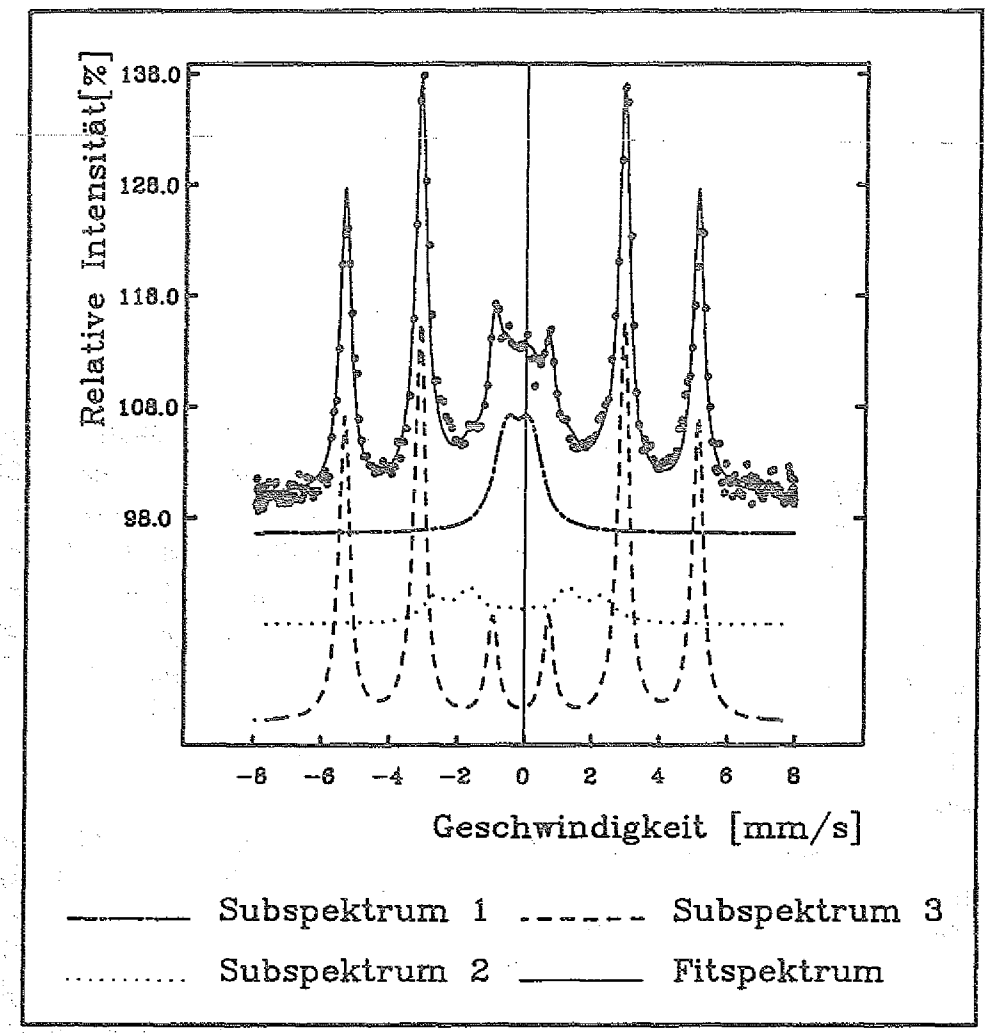


Abbildung 2.7: *Beispiel eines aus 3 Teilspektren zusammengesetzten Mößbauerspektrums (Schichtaufbau: Y/2.5nm* ^{57}Fe */Y). Die Teilspektren sind zur Verdeutlichung herausgezeichnet.*

3. Apparatur

3.1. Aufbau im Überblick

Hauptziel dieser Arbeit waren Messungen der magnetischen Eigenschaften dünner Schichten mit Hilfe des Mößbauereffektes. Um Oxidationseffekte an den Proben auszuschließen, sollte die Schichtherstellung und -messung in *einer* Apparatur unter UHV-Bedingungen „in-situ"durchführbar sein. Der Aufbau dieser kombinierten Aufdampf- und DCEMS-Anlage wird in [28] beschrieben. Um die Eigenschaften der benutzten Apparatur noch zu verbessern, bestand ein wichtiger Teil dieser Arbeit im Umbau der Aufdampfkammer. So konnte neben einer Verbesserung der Probenhandhabung insbesondere die Genauigkeit der Schichtdickenbestimmung erhöht werden. Eine kurze Beschreibung der Apparatur sowie der neu konstruierten Teile soll i.f. gegeben werden.

Die Anlage ist im graphischen Überblick in Abb. 3.1 dargestellt. Der Gesamtaufbau besteht aus der DCEMS- und der Aufdampfkammer, die durch einen Mechanismus für den Probentransfer miteinander verbunden sind. Eine Substratscheibe wird zunächst auf einen Cu-Halter montiert, der dann in der Schleuse auf die verschiebbare Transferstange aufgesetzt werden kann. Nach der Evakuierung der Schleuse läßt sich der Cu-Halter im Vakuum in die Aufdampfkammer einführen, in der die Substrate unter Ultrahochvakuum-Bedingungen (UHV) bedampft werden können. Nach Beendigung des Herstellungsprozesses kann die Probe mit der Transferstange *im* UHV in das Spektrometer gebracht und dort gemessen werden.

Das DCEMS-Spektrometer ist mit einem Zylinderspiegelanalysator *(CMA = Cylindrical Mirror Analyzer)* ausgestattet, der bei einfachem mechanischen Aufbau eine Energieauflösung von 4 % und eine hohe Transmission von 6.5 %/4π ermöglicht. Diese Daten wurden als optimaler Kompromiß für eine Probengröße von 11 mm Durchmesser gewählt [27]. Zur Detektion der ^{57}Fe -Konversionselektronen findet ein für diese Anwendung speziell konstruierter Szintillationszähler Verwendung. Er soll eine möglichst hohe Effizienz für die mittels CMA separierten Elektronen als auch einen geringen Rauschanteil aufweisen. Beide Forderungen konnten durch die Kombination einer dünnen Szintillationsschicht (1.5 μm) aus P-47 Phosphor mit nachgesetztem Photomultiplier (Hamamatsu R 2557 PM) erfüllt werden [32], [33]. Die eingezählten Impulse werden nach der Verstärkung auf einen Diskriminator gegeben, der die niederenergetischen Rauschanteile ausfiltert. Als γ-Quelle wird ^{57}Co in

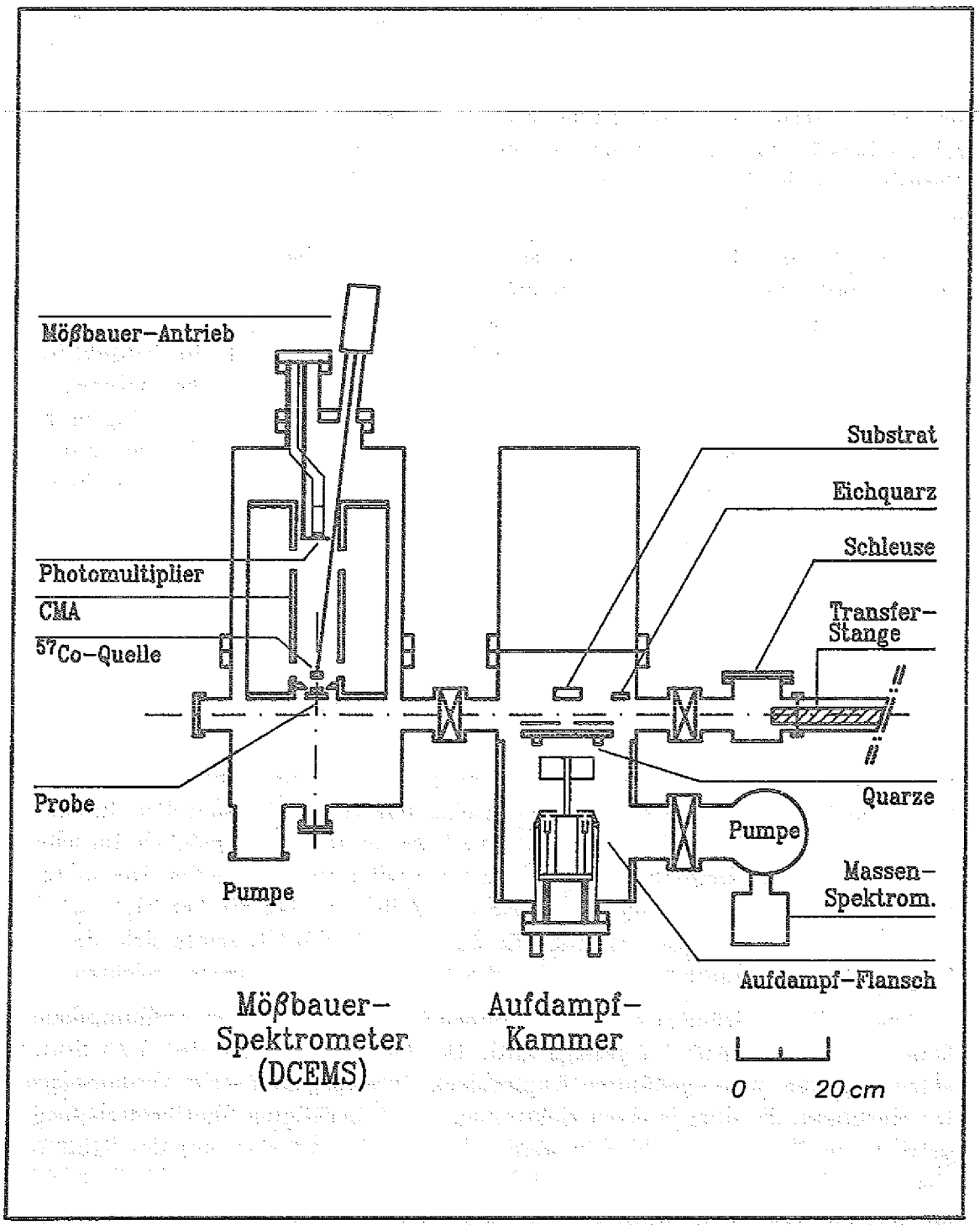


Abbildung 3.1: *Prinzipskizze der benutzten In-Situ Aufdampf- und DCEMS- Apparatur. (Zum Größenvergleich siehe Maßangabe unten rechts).*

einer Rh-Matrix mit einer Anfangsaktivität von ca. 100 mCi eingesetzt. Der aktive Durchmesser der Quelle beträgt 3 mm und erfüllt damit die Forderung nach einer punktförmigen Quelle recht gut. Die Dopplergeschwindigkeit der Quelle wird mit einem zweispuligen Lautsprechersystem erzeugt, das zur Vermeidung mechanischer Oberschwingungen mit sinusförmiger Wechselspannung betrieben wird. Der Basisdruck in der Meßkammer liegt bei $p \approx 8 \cdot 10^{-7}$ Pa und wird durch eine Ionengetterpumpe erreicht.

In der Aufdampfkammer der Anlage wurden die Proben hergestellt. Der Aufdampfflansch trägt kleine Tiegel, die mit Verdampfergut befüllt und erhitzt werden können. Je nach verwendetem Material wurden Tiegel aus Al_2O_3, die mittels einer W-Draht Wicklung *direkt* beheizt oder solche aus W eingesetzt, die *indirekt* über einen Elektronenstrahl durch Anlegen einer Hochspannung zwischen Glühwendel und Tiegel erhitzt wurden. Die Wahl des Tiegels ergibt sich aus den Eigenschaften des zu verdampfenden Materials, so oxidiert z.B. Gd sehr leicht und muß daher aus einem W-Tiegel verdampft werden. Zur Messung des Druckes steht eine Ionisations-Meßröhre zur Verfügung. Ein Massenspektrometer gestattet die Restgasanalyse bis in den Partialdruckbereich $p \approx 2 \cdot 10^{-9}$ Pa hinein. Der Basisdruck von $p \approx 1 \cdot 10^{-8}$ Pa wird über eine Turbomolekular-, eine Ti-Getterpumpe und eine mit flüssigem N_2 gekühlte Kryofläche erzielt.

3.2. Verbesserungen der Aufdampfkammer

Der zu Beginn der vorliegenden Arbeit benutzte Aufdampfflansch zeigte im Betrieb Schwächen. So konnte keine der vier eingebauten Verdampferzellen durch eine Blende (Shutter) abgedeckt werden. Dadurch war es auch nicht möglich, im schnellen Wechsel oder gleichzeitig verschiedene Materialien zu verdampfen. Des weiteren befanden sich keine Strahlungsschilde in den Zellen, so daß die benötigte Heizleistung höher als theoretisch erforderlich war. Darüberhinaus zeigte sich, daß vier Tiegel für einen Dauerbetrieb und eine flexible Präparation nicht ausreichten.

Aus all diesen Gründen wurde im Rahmen der Arbeit ein neuer Aufdampfflansch konstruiert, der in Abb. 3.2 gezeigt wird. Der Flansch trägt auf drei V2A-Stützen einen massiven, wassergekühlten Kupferblock. In diesen sind sechs Verdampferzellen eingebaut, die über je einen elektromagnetisch betätigten Shuttermechanismus getrennt geöffnet und geschlossen werden können. Die Übertragung der Kraft vom Eisenkern des Magneten auf das Blendenblech wird durch dünne Stahlseile bewerkstelligt, die über eine Umlenkrolle geführt werden. Sie sind mittels einer Justiereinrichtung in der Länge einstellbar. Für den Einschaltzeitpunkt wird eine große Zugkraft benötigt, wohingegen nach Überwindung des Magnetluftspaltes eine kleine Haltekraft ausreicht. Zu diesem Zweck wurde eine Ansteuerelektronik entwickelt, die mit zwei verschiedenen Spannungen arbeitet. Nach Einschalten liegt für die Dauer von $t \approx 3$ s eine Spannung von $U_1 = 18$ V an, die danach auf $U_2 = 5$ V

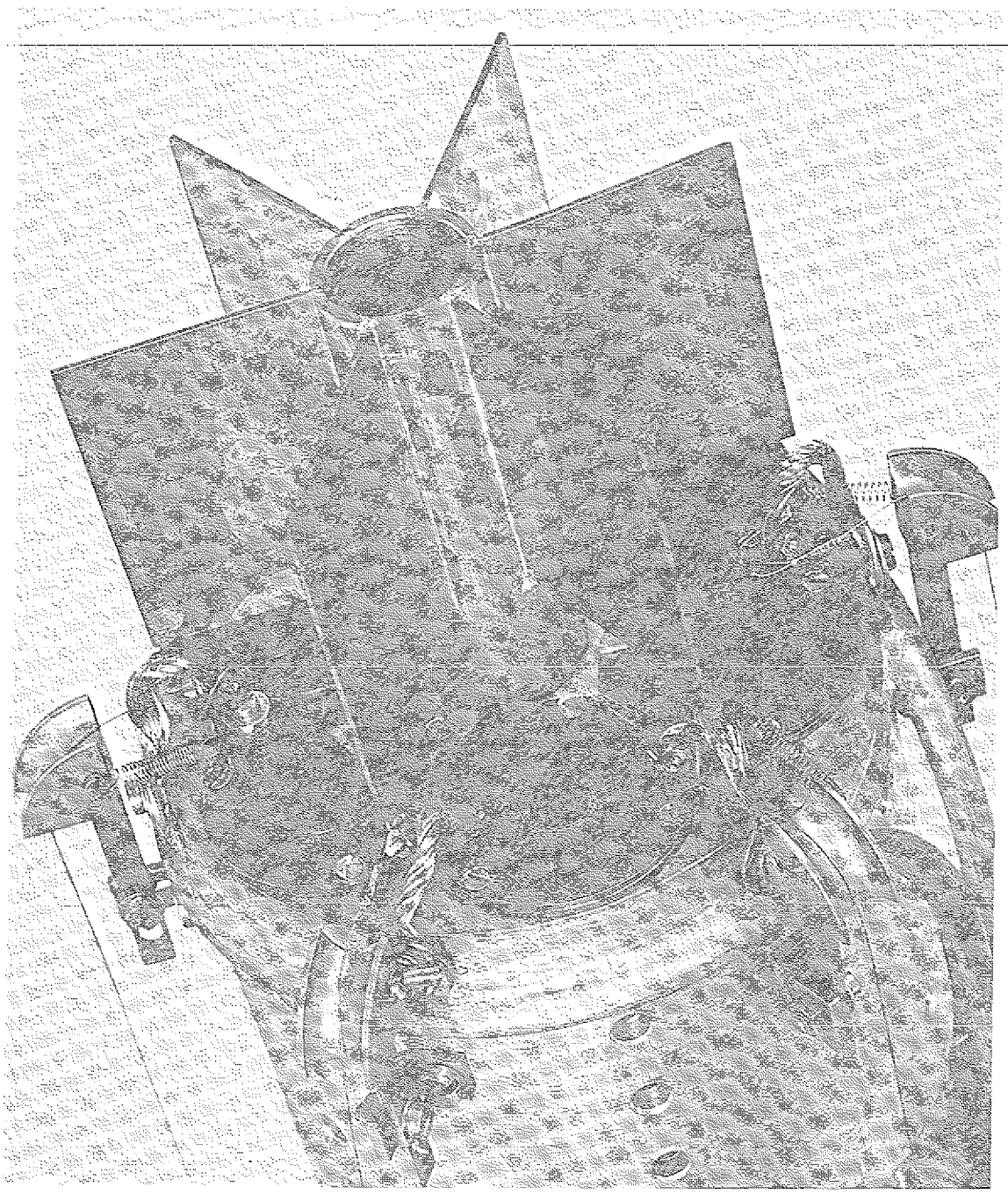


Abbildung 3.2: *Neu konstruierter Aufdampfflansch mit sechs Tiegeln (Flanschkopf von oben betrachtet). Gut sichtbar ist die Sechsfachblende zur gegenseitigen Abschirmung der Abstrahlkegel, sowie der Seilzugmechanismus zur Betätigung der einzelnen Blenden (Shutter).*

reduziert wird. Die elektrischen Zuführungen bestehen aus versilbertem Cu-Draht. An der Oberseite ist eine Sechsfachblende zur Separation der Abstrahlkegel der einzelnen Tiegel angebracht. Im Bild nicht sichtbar, sind die Tiegel auf Ta-Stangen aufgesteckt und so leicht demontierbar. Zur Verminderung der erforderlichen Heizleistung befinden sich um die Tiegel herum je drei Strahlungsschilde aus Mo-Blech. Die nötigen Heizleistungen liegen so, je nach Schmelzpunkt des Verdampfergutes, im Bereich $P_{el} \approx 80 - 160\,\mathrm{W}$.

Auch der Substrathalter wies Mängel auf. In der ursprünglichen Version konnte er über einen Verstellmechanismus in die zwei Positionen *Aufdampfen* (Halter unten) und *Transfer* (Halter oben) gebracht werden. Die Bewegung wurde dabei über eine Drehdurchführung vermittelt, deren Achse über einen Draht mit dem Halter verbunden war. Diese Mimik erwies sich als unzuverlässig, da weder eine exakte Einstellung des Substrates in die Aufdampfposition noch eine gute thermische Ankopplung des Halters an die Wasserkühlung zur Erzielung schneller Abkühlraten möglich war. Gelöst wurden diese Probleme durch die Neukonstruktion des Substrathalters. Abb. 3.3 zeigt dieses Teil der Anlage. In der neuen Version ist er als *fest* eingebaute Schublade ausgeführt, in die der Cu-Halter mit dem Substrat zum Aufdampfen eingeführt werden kann. Ein Zapfen, der über eine Schiebedurchführung betätigt wird, hält den Halter in der Schublade fest und ermöglicht so das einfache Abziehen der Transferstange. Darüberhinaus wird über Cu-Litzen ein guter thermischer Kontakt mit wassergekühlten Cu-Manschetten im Inneren des Topfes hergestellt. Die Temperaturmessung erfolgt über ein NiCr/Ni-Thermoelement, das in ein Loch in den Substrathalter eingeführt und dort angeschraubt ist. Durch die Einfachheit der Konstruktion ergab sich ein störungsfreier Betrieb über mehrere Monate, ohne daß nachjustiert werden mußte. Eine Temperatur von $T \approx 600°\,\mathrm{C}$ zur thermischen Vorbehandlung der Substrate kann so innerhalb einer Zeit von $t \approx 30\,\mathrm{min}$ auf die zumeist eingestellte Aufdampftemperatur von $T = 170°\,\mathrm{C}$ reduziert werden.

Zur Bestimmung der aufgedampften Schichtdicke wird in der Apparatur ein Schwingquarz eingesetzt. Bewährt haben sich Ag-bedampfte Quarzscheibchen der Fa. Leybold-Inficon (Typ IPN 008-009) mit einer Grundfrequenz (ohne Bedampfung) von $f = 6\,\mathrm{MHz}$. Im bisherigen Aufbau wurde ein kommerzieller wassergekühlter Quarzhalter der Fa. Leybold-Inficon (Typ *Bakeable*, IPN 007-219) verwendet. Seine Kühlungseigenschaften erwiesen sich als unzureichend, was sich in einer relativ großen Frequenzdrift beim Aufdampfen äußerte. Darüberhinaus konnte er wegen der ungünstigen Zuführung von Wasser- und elektrischer Zuleitung mechanisch nicht völlig schwingungsfrei gehalten werden. Dieser Konstruktionsfehler führte zu einer mangelhaften Frequenzstabilität. Die Neukonstruktion des Quarzhalters ergab durch verbesserte thermische Ankopplung an die Wasserkühlung sowie durch eine höhere mechanische Festigkeit eine erhebliche Steigerung der Stabilität der Schwingungsfrequenz. Der neue Halter besteht aus einer wassergekühlten, massiven Cu-Platte, an deren Rand sechs mit Gold bedampfte Quarzfassungen eingesetzt sind. Sie sind symmetrisch um die zentrale Achse des Aufdampftopfes angeord-

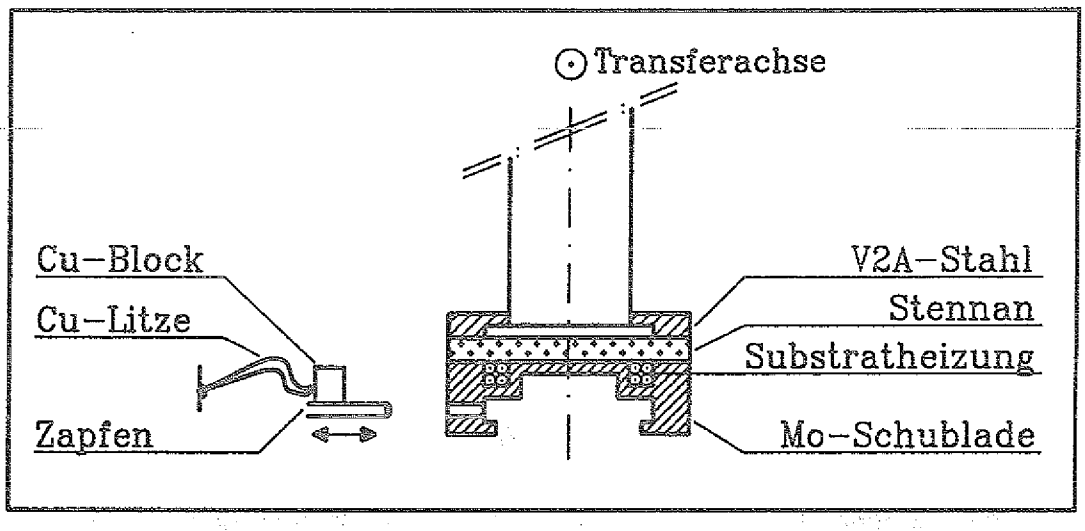


Abbildung 3.3: *Neu konstruierter Substrathalter für die Aufdampfkammer. Die Substratheizung besteht aus in* Al_2O_3*-Röhrchen gefaßtem W-Draht (Zeichnung nicht maßstabsgerecht).*

net. Die Zuleitung jedes einzelnen Quarzes besteht aus einer koaxialen Leitung, deren äußeres Geflecht zentral mit der Gehäusemasse verbunden ist. Außerhalb des Aufdampftopfes ist ein Gehäuse mit den zugehörigen Oszillatoren angebracht, so daß mehrere Quarze gleichzeitig und unabhängig voneinander benutzt werden können. Auch die Oszillatoren wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit neu konstruiert und aufgebaut. Sie entsprechen im wesentlichen dem Typ IPN 007-251 der Fa. Inficon-Leybold, sind jedoch zur Impedanzanpassung modifiziert worden. Der Schaltplan hierzu befindet sich im Anhang dieser Arbeit. Die Frequenz wird mit einem Frequenzzähler Typ Hameg 8122 gemessen, der durch den eingebauten Quarzofen eine relative Meßgenauigkeit von $\Delta f/f \approx 10^{-9}$ ermöglicht. Die Umrechnung von Frequenz in Aufdampfrate und Schichtdicke erfolgt via IEC-Bus mittels eines IBM PS/2-Rechners. Die Software dazu wurde im Rahmen dieser Arbeit selbst geschrieben.

Zur weiteren Verbesserung der Dickenbestimmung trägt ein zusätzlich eingebauter Eichquarz bei, der an die Stelle des Substrates geschoben werden kann. Wird er einmal mit großer Präzision kalibriert, so lassen sich danach sehr einfach in regelmäßigen Abständen Nachjustierungen der eigentlichen Meßquarze durchführen. Auf die insgesamt erreichte Genauigkeit der Schichtdickenmessung wird in Kap. 4.4 eingegangen.

4. Schichten

4.1. Substrate

Zur Bestimmung der magnetischen Eigenschaften in den zu untersuchenden Schichten ist die Herstellung guter epitaktischer Fe-Filme in beiden Orientierungen (110), bzw. (100) notwendig. Ein geeignetes Substrat dafür ist einkristallines GaAs, dessen Gitter eine Zinkblendestruktur aufweist. Dieses Halbleitermaterial wurde mit Erfolg in [34], [35] eingesetzt, um Fe epitaktisch aufwachsen zu lassen. Obwohl die fcc-ähnliche GaAs-Oberfläche („Zickzackanordnung") von der bcc-Fe Struktur abweicht, läßt sich gutes Wachstum infolge der fast gleichen Gitterkonstante erzielen (GaAs: $a_0/2 = 0.2827\,\mathrm{nm}$, Fe: $a_0 = 0.2866\,\mathrm{nm}$). Abb. 4.1 zeigt die Anordnung der Fe-Atome auf einer GaAs(110) Oberfläche [35]. Auch Cr mit einer Gitterkonstante von $a_0 = 0.287\,\mathrm{nm}$ läßt sich epitaktisch aufdampfen.

Die von der Fa. HEK (Lübeck) bezogenen, undotierten (110), (100) GaAs-Wafer waren einseitig optisch poliert. Die Dicke wurde mit $400 - 500\,\mu\mathrm{m}$ angegeben, Ober- und Unterseite waren mit einem Winkel von $\pm 0.5°$ nahezu parallel zueinander. Vor der weiteren Behandlung wurden die Wafer in kleine quadratische Plättchen von 12 mm Kantenlänge zerschnitten. Wie auch andere Halbleitermaterialien kontaminiert GaAs sehr schnell an der Oberfläche; epitaktisches Wachstum ist dann unmöglich. Im ersten Schritt der in [36] beschriebenen Reinigungsprozedur wird die Oberfläche mit stark ätzendem Brom-Methanol geschliffen. Die Rauhigkeit der GaAs-Oberfläche hängt dabei stark von der Schleifprozedur (Schleifpapier, Schleifbewegung, Dauer, etc.) ab. Da dieser Vorgang darüberhinaus einen großen Aufwand an Sicherheitsmaßnahmen erfordert, wurde auf ihn im Rahmen dieser Arbeit verzichtet. Im weiteren Verlauf der Reinigungsprozedur muß dieser Umstand berücksicht werden, da beim Bromieren bevorzugt Ga-Atome zur Oberfläche migrieren. Die modifizierte Reinigungsprozedur läuft wie folgt ab.

<u>Entfetten:</u> Reinigung mit kochendem Trichlorethylen (10 min), Abwaschen in heißem Isopropylalkohol (5 min). Danach Substrat im Ultraschallbad in dreifach dest. kaltem Wasser waschen (5 min).

<u>Ätzen:</u> Ätzen der Oberfläche mit kaltem KOH (10 %), um Kontaminationen zu beseitigen (3 min).

<u>Oxidieren:</u> Substrat mit angeätzter Oberfläche in dreifach dest. kaltes Wasser ins Ultraschallbad stellen. Dabei mehrere Behälter mit frischem Wasser verwenden.

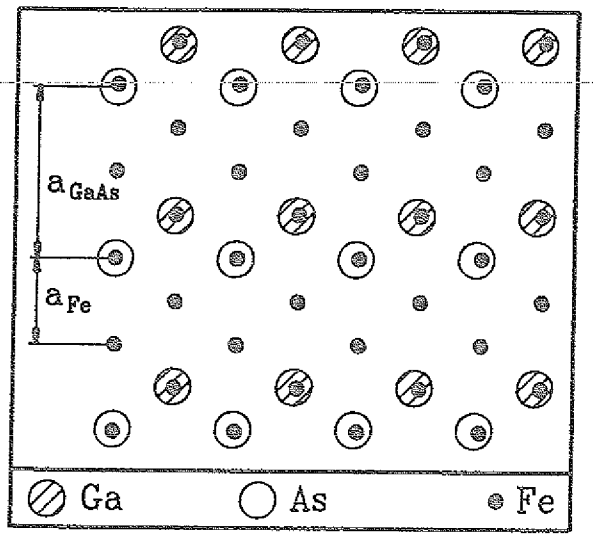


Abbildung 4.1: *Maßstabsgerechte Zeichnung der Anordnung von Fe-Atomen auf einer GaAs (110)-Oberfläche (nach* [35]*).*

Achtung! Oberfläche so kurz wie möglich der Luft aussetzen, da *nur im* Wasser eine definierte, ca. 100 nm dicke Oxid-Schutzschicht aufgebracht wird.

<u>**Waschen:**</u> Substrate in heißem Isopropanol baden, um Restspuren von Wasser zu beseitigen, danach trocknen. Die Probe ist jetzt gut geschützt.

Nach dem Einbau eines Substrates in die Aufdampfanlage wurde durch Temperung (1 h bei max. 615° C) die Oxidschicht wieder entfernt. Dabei ist unbedingt darauf zu achten, daß die kritische Temperatur von 627° C, bei der die Oberfläche in Ga und As zersetzt wird, nicht überschritten werden darf [36]. Die derart behandelten GaAs-Substrate zeigten anschließend scharfe LEED-Spots, wie Messungen in einer vergleichbaren Anlage zeigten. Wie in [37] berichtet wird, stört die noch vorhandene Restkontamination mit Kohlenstoff auf der Oberfläche nicht das epitaktische Wachstum der Schichten. Die Bedampfung der Schichten erfolgte bei einer Substrattemperatur von $T \approx 175°$ C und einem Basisdruck in der Aufdampfkammer von typisch $4 \cdot 10^{-8}$ Pa.

Die nicht-epitaktischen Gd/Fe/Gd- bzw. Y/Fe/Y- Schichten wurden z.T. auf GaAs und teilweise auf Quarzglassubstrate aufgedampft. Das hierbei verwendete Material *Herasil* benötigte wegen seiner nicht kristallinen Struktur keine vergleichbare Reinigungsprozedur. Zur Ablösung von Fettspuren wurden die Glasplättchen in heißem Isopropanol gebadet. Ein Temperprozess war ebenfalls nicht erforderlich.

Der epitaktische Wachstumsvorgang einer Schicht wird i.a. durch diverse äußere Einflüsse behindert. Insbesondere kann der Einfluß des Substrates meist nicht vernachlässigt werden. Von den möglichen Mechanismen haben sich zwei als besonders kritisch herausgestellt.

- Ga- oder As-Atome können in die Schicht eindringen und stören.

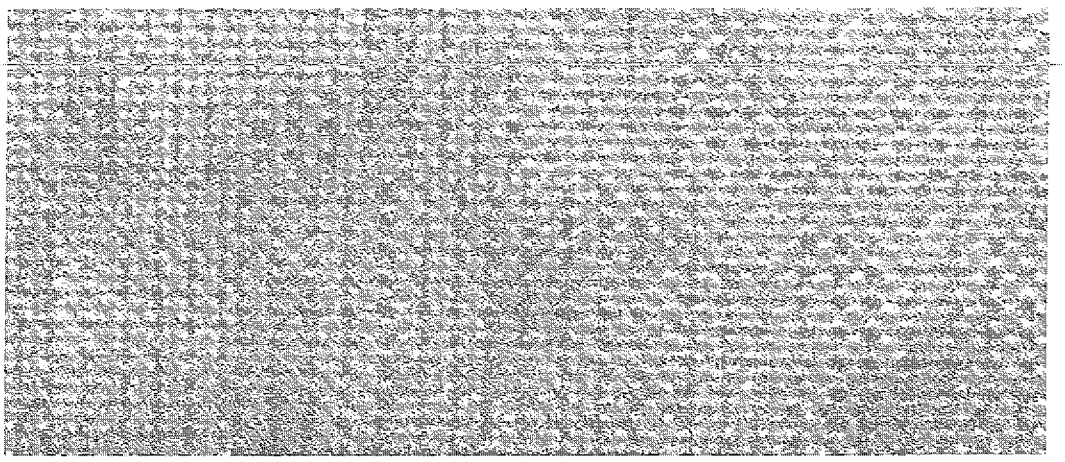


Abbildung 4.2: *Hochaufgelöste Elektronenmikroskopie (HRTEM) eines GaAs(110) Substrates.*

Dieser Einfluß läßt sich mit dem Mößbauereffekt untersuchen. Dazu wurden bei verschiedenen Temperaturen Schichten aus ^{56}Fe präpariert, in die in definiertem Abstand von der Substratoberfläche eine ^{57}Fe -Sondenlage eingebaut war. Interdiffusionseffekte zwischen GaAs-Substrat und Fe-Schicht traten bei der Aufdampftemperatur $T = 175°$ C bis zu einer Dicke von ca. 3 nm auf. Sonden, die oberhalb dieser Dicke lagen, zeigten völlig normale Spektren mit bcc-Fe typischen Werten für Isomerieverschiebung (Chemie) und magnetischer Hyperfeinfeldaufspaltung. Diese Interdiffusion nahm bei Temperaturen $T \geq 200°$ C stark zu.

- Die Substrate selbst sind nur polykristallin.
  Die Einkristall-Qualität der Substrate läßt sich durch Laue-Aufnahmen oder RBS-Channeling Spektren kontrollieren. Die meisten der untersuchten Plättchen wiesen demnach eine gute Einkristallinität auf. „Ausreißer" konnten zudem durch Mehrfachpräparation und genaue Analyse der Mößbauerspektren gefunden werden. Die geringe Interdiffusion an Grenzflächen war dabei ein Maß für gute Epitaxie. Abb. 4.2 zeigt in einer Aufnahme mit hochaufgelöster Elektronenmikroskopie den Ausschnitt eines einkristallinen GaAs(110)-Substrates.

4.2. Präparation

Bedingt durch die Aufgabenstellung wurden zum Verdampfen die Materialien ^{56}Fe , ^{57}Fe , Cr, Gd und Y eingesetzt. Aufgrund ihrer unterschiedlichen Eigenschaften muß sowohl die Vorbehandlung als auch die Aufdampfprozedur unterschiedlich ablaufen. Als Aufdampfrate wurde einheitlich ein Wert von 10^{-2} nm/s gewählt. Die

Bedampfung der Schichten erfolgte bei einer Substrattemperatur von $T \approx 175°\,C$ und einem Basisdruck in der Aufdampfkammer von typisch $4 \cdot 10^{-8}$ Pa.

^{56}Fe , ^{57}Fe : Beide Fe-Isotope sind chemisch gleich und können daher analog behandelt werden. Fe wurde aus kleinen Al_2O_3 Tiegeln (4 mm Innendurchmesser) mit umwickeltem W-Draht beheizt. Der Druck während des Aufdampfens betrug typisch $p = 9 \cdot 10^{-8}$ Pa (Bezugsquelle: Fa. Medgenix, Düsseldorf). ^{56}Fe -Pulver wurde zur Beseitigung von Oberflächenoxidation bei 800° C im H_2-Strom reduziert und anschließend im Hochfrequenzofen kugelgeschmolzen; ^{57}Fe lag als reine Metallfolie vor.

Cr: Um Reaktionen mit einem Tiegelmaterial auszuschließen, wurde Chrom *direkt*, d.h. ohne Tiegel verdampft. Eine Cr-Kugel wurde auf eine kleine Stange aus W-Draht gesteckt und durch Elektronenbeschuß erhitzt. Der Druck lag bei $p = 3 \cdot 10^{-7}$ Pa, während des Aufdampfens. (Bezugsquelle: Fa. Balzers, Wiesbaden; Reinheit 99,99 %).

Gd, Y: Selten-Erd Metalle sind wegen ihres hohen Oxidationsvermögens in der Handhabung kritisch. Sowohl Gd als auch Y wurden aus W-Tiegeln über Elektronenbeschuß verdampft. Da beide Stoffe vor allem Sauerstoff und Wasserstoff gettern, wurde ca. 1 h vorher und *direkt* vor Aufdampfbeginn durch Heizen über den Schmelzpunkt hinaus die kontaminierte Materialoberfläche gereinigt. In [38] wird von der Präparation epitaktischer und polykristalliner Gd-Lagen auf W berichtet, die in vergleichbarem Vakuum stattfand. Die Oxidationstiefe der aufgedampften Gd-Schicht lag hier bei ca. 1 Monolage, d.h. Volumenoxidation der aufgedampften Schicht trat nicht ein. Im Rahmen der hier vorliegenden Arbeit durchgeführte RBS-Channeling Messungen zeigen keinen Einfluß von Sauerstoff bei erst kurz zuvor präparierten Schichten. Erst bei Proben, die älter sind als ca. 4 Wochen, kann Oxidation auftreten. Der Druck während des Aufdampfens lag im Mittel bei $p = 1 \cdot 10^{-7}$ Pa (Bezugsquelle: Fa. Johnson & Matthey, Reinheit 99,99 %).

4.3. Charakterisierung

Zur Kontrolle der epitaktischen Qualität der aufgedampften Schichten wurde das RBS-Channeling (*Rutherford Back Scattering*) Verfahren eingesetzt. Bei der RBS-Analyse wird ein 2 MeV He^+-Ionenstrahl unter einem kleinen Winkel auf die Probe gerichtet. Treffen die Ionen auf einen Atomkern, so werden sie elastisch zurückgestreut und detektiert. Die Rückstoßenergie ist dabei proportional der Kernmasse, so daß eine Aussage über die chemische Elementzusammensetzung möglich ist. Zusätzlich zum elastischen erleiden die ein- und ausfallenden Ionen einen kontinuierlichen Energieverlust durch inelastische Stöße mit Targetelektronen, sowie Kleinwinkelstöße mit abgeschirmten Atomkernen. Dieser Energieverlust läßt Aussagen über die Tiefe des rückstreuenden Atoms zu. Die Tiefenauflösung ist beim RBS-Verfahren auf ca. 50 nm begrenzt.

Mit der gleichen Methode kann man Channeling Experimente durchführen. Experimentell unterscheidet es sich von RBS *nur* in der Verwendung einer einkristallinen Probe, die exakt auf eine kristallographische Richtung relativ gut zum kollimierten Ionenstrahl ausgerichtet ist. Die Ionen werden durch Kleinwinkelstöße an den Atomreihen des Gitters wie in einem Kanal geführt. Dabei wird die Rückstreuwahrscheinlichkeit an tieferliegenden Atomen stark reduziert. Eine Aussage über die epitaktische Qualität des Gitters erfordert zwei Spektren. Zunächst wird unter einem beliebigen Winkel eingestrahlt und das sog. *Random*-Spektrum erzeugt. Eine zweite Messung in Richtung einer kristallographischen Achse erzeugt das *Channeling*-Spektrum. Aus dem Verhältnis der beiden Rückstreuraten läßt sich ein relatives Maß der Gitterqualität ablesen. In regelmäßigen Abständen durchgeführte Messungen zeigen, daß bei den Schichten der hier vorliegenden Arbeit die epitaktische Qualität über den gesamten Zeitraum konstant blieb. Der charakteristische Parameter *Minimum Yield* der RBS-Channeling Analyse lag konstant bei einem Wert von $20 - 25\,\%$, d.h. die präparierten Schichten waren *gut* epitaktisch. Abweichungen von diesem Wert waren stets mit einem deutlichen Anteil zusätzlicher verbreiterter Teilspektren im Mößbauerspektrum korreliert und konnten daher auch ohne RBS-Analyse sofort erkannt werden. Der Minimum Yield Wert für das GaAs-Substrat selbst lag bei etwa $15\,\%$, d.h. die epitaktische Qualität der Schichten wird im wesentlichen durch das Substrat begrenzt. Abb. 4.3 zeigt das Ergebnis einer typischen Channeling-Analyse an Fe, hier im System Fe/Gd mit nicht-epitaktischem Gadolinium.

4.4. Schichtdickenbestimmung

4.4.1. Messung während des Aufdampfens

Die Untersuchung der Proben stellte hohe Anforderungen an die Genauigkeit der Schichtdickenbestimmung. Zur Kontrolle während des Aufdampfprozesses dienten im Dampfstrahl befindliche Schwingquarze, deren Frequenzversatz bei Massenbelegung ein Maß für die Dicke des aufgedampften Materials ist. Die Frequenz des mit dem Quarz gekoppelten Oszillators wurde mit einem Frequenzzähler gemessen, über IEC-Bus in einen IBM PS/2 Rechner ausgelesen und mit einem selbst entwickelten Auswertprogramm weiterverarbeitet. Dem Programm liegt der in [39], [40] beschriebene, empirisch ermittelte Zusammenhang zwischen Frequenz und Dicke zugrunde. Es nimmt die Umrechnung der Frequenz in die momentane Schichtdicke und Aufdampfrate vor und zeigt den zeitlichen Verlauf dieser Größen, sowie Druck, Substrattemperatur und verstrichene Aufdampfzeit graphisch auf dem Bildschirm an. Hierdurch ist eine ständige und übersichtliche Kontrolle der wesentlichen Aufdampfparameter gewährleistet.

Eine Abschätzung zeigt, daß für eine Meßgenauigkeit der Aufdampfrate von 0.001 nm/s eine relative Frequenzstabilität von $\Delta f/f \leq 1 \cdot 10^{-8}$ erforderlich ist. Der

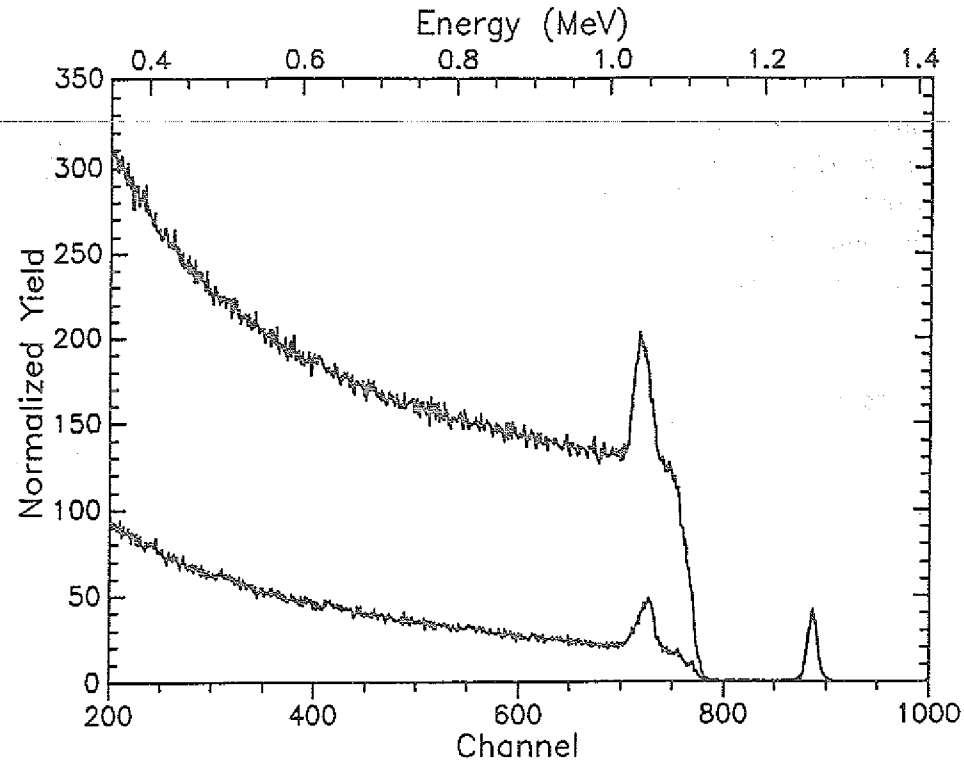


Abbildung 4.3: *RBS-Channeling an GaAs(110)/15 nm Fe/3 nm Gd/3 nm Fe, Minimum-Yield* $\approx 20-25\,\%$. *Oberes Spektrum: Random, unteres Spektrum: Channeling.*

mit einem ofengeregelten Referenzquarz ausgestattete Frequenzzähler Typ Hameg 8122 erfüllte mit einer Stabilität von $\Delta f/f \leq 5 \cdot 10^{-9}$ die angegebenen Spezifikationen. Bedingt durch Temperaturschwankungen der wassergekühlten Quarze treten jedoch zusätzliche Fehler auf, die diese maximale Genauigkeit beeinträchtigen können.

4.4.2. Kalibrierung der Quarze

Im Schichtdickenbereich ≥ 100 nm ist es sehr einfach, die Kalibrierung der Schwingquarze durchzuführen. Bei einer nach Quarzangabe z.B. 100 nm dicken Schicht kann mittels DEKTAK-Saphirstift (Fa. Veeco) mechanisch bis auf $\pm 10\,\%$ die wahre Dicke bestimmt werden. Der daraus ermittelte *Tooling-Faktor* gibt dann die Umrechnung an. Bei dünnen Schichten (≤ 40 nm) versagt diese Methode jedoch. Im Dickenbereich 2 nm bis 100 nm kann die absolute Schichtdicke mit Hilfe des RBS-Channeling Verfahrens bis auf $\pm 10\,\%$ genau bestimmt werden. Um bei sehr dünnen Schichten eine genaue Dicke angeben zu können, muß ein anderer Weg beschritten werden.

- Durch Messung der Magnetisierung einer ca. 20 nm dünnen ferromagnetischen Schicht kann die absolute *Zahl* der Atome in der Schicht bis auf $\pm 5\,\%$ genau

bestimmt werden. Diese Methode läßt sich jedoch nur in ferromagnetischen Schichten einsetzen.

- Ein relatives Maß für die Anzahl der beteiligten ^{57}Fe -Atome ist die Auswertung des Quotienten *Fläche/Untergrundzählrate* eines CEMS-Spektrums. Einmal mittels Bestimmung der magnetischen Momente kalibriert, läßt sich mit Submonolagengenauigkeit eine Zahl der ^{57}Fe -Atome angeben. Aufdampfgeometrie, Substrat, Schichtaufbau und Meßapparatur dürfen wegen der Vergleichbarkeit der Messungen jedoch nicht geändert werden.

Die Umrechnung von der Zahl der aufgedampften Atome in Schichtdicke erfordert die Parameter *Dichte* und *Z-Ratio* [39], [40]. Da diese Werte nur für Volumenmaterialien bekannt sind, ist eine absolute Aussage bei dünnen Schichten nicht ohne weiteres möglich. Messungen mit hochaufgelöster 400 keV-Elektronenmikroskopie (HRTEM) zeigen Abweichungen der Gitterkonstanten von $\pm 5\,\%$ an, d.h. auch die Dickenangabe kann nicht genauer sein. Eine wichtige Randbedingung ist darüberhinaus die Annahme guten Schichtwachstums. Bei Inselbildung ist die Zahl der Atome sicher nicht mehr proportional zur Dicke der Schicht.

Mit Hilfe aller beschriebenen Verfahren wurden vergleichende Messungen durchgeführt und der in die Apparatur eingebaute Eichquarz kalibriert. Durch Aufdampfen sehr dünner Schichten wurden daran anschließend in regelmäßigen Abständen die Parameter der eigentlichen Meßquarze eingestellt und ggf. korrigiert (z.B. bei Neubefüllung der Tiegel). Die insgesamt erreichte *absolute* Genauigkeit in der Messung der aufgedampften Schichtdicke liegt durch Einsatz aller geschilderten Methoden bei $\pm 5\,\%$. Die *relative* Dickenabweichung (von ^{57}Fe -Messungen extrapoliert auf die anderen Materialien) beträgt typisch ± 0.1 nm.

5. Experimente und Diskussion

5.1. Abstandsabhängige Wechselwirkungen

5.1.1. Problemstellung

In [1] wird erstmalig über die antiferromagnetische Kopplung zweier epitaktischer Fe-Schichten über eine dünne Chromschicht hinweg berichtet, die analog zur Austauschkopplung J_{12} zwischen zwei Spins $\vec{S}_1$, $\vec{S}_2$ im Heisenberg-Operator definiert wird. Aus

$$H = -2\, J_{12}\, \vec{S}_1\, \vec{S}_2$$

wird mit den Magnetisierungen der Teilschichten $\vec{M}_{1,2}$ die Wechselwirkungsenergie

$$E = -2\, A_{12}\, \frac{\vec{M}_1\, \vec{M}_2}{|M_1|\, |M_2|} \quad .$$

Sowohl der Betrag als auch das Vorzeichen dieser Kopplung hängt im Fe/Cr-System von der Dicke der Cr-Zwischenschicht [1] und der Kristallorientierung [41] ab. Kürzlich durchgeführte MOKE-Messungen an keilförmigen, (100)-orientierten Proben zeigen, daß bei einer Cr-Dicke von 0.6 nm der Bereich der stärksten antiferromagnetischen Kopplung liegt [3], [4]. Wie aus Abb. 5.1 zu ersehen, oszilliert die Kopplung zwischen ferro- und antiferromagnetischen Bereichen und zeigt bei 2.5 nm ein weiteres Minimum. Technisch besonders wichtig ist die Korrelation der antiferromagnetischen Kopplung mit einem starken Anstieg des Magnetowiderstandes $\Delta R/R \approx 1.5$ [3], [5], [6], [7]. Unter Ausnutzung dieses Effektes sind Magnetfeldsonden für sehr kleine Felder möglich, wie sie z.B. als Leseköpfe für magnetooptische Datenspeicher erforderlich sind. Die beschriebene antiferromagnetische Kopplung kann auch in Schichtsystemen ohne Fe oder Cr beobachtet werden. So zeigen gesputterte, also nicht epitaktische Vielfachschichten aus Co/Ru oder Co/Cr das gleiche oszillatorische Verhalten [2].

Die Oszillation der Austauschkopplung als Funktion der Zwischenschichtdicke in unterschiedlichen metallischen Systemen legt die Vermutung einer gemeinsamen Ursache nahe. Eine mögliche Erklärung der antiferromagnetischen Kopplung macht von der RKKY-Wechselwirkung Gebrauch. Zwei voneinander getrennte ferromagnetische Schichten beeinflussen sich in dem Modell von Wang et al. [42] durch die Polarisation von Leitungselektronen über eine paramagnetische Zwischenschicht hinweg.

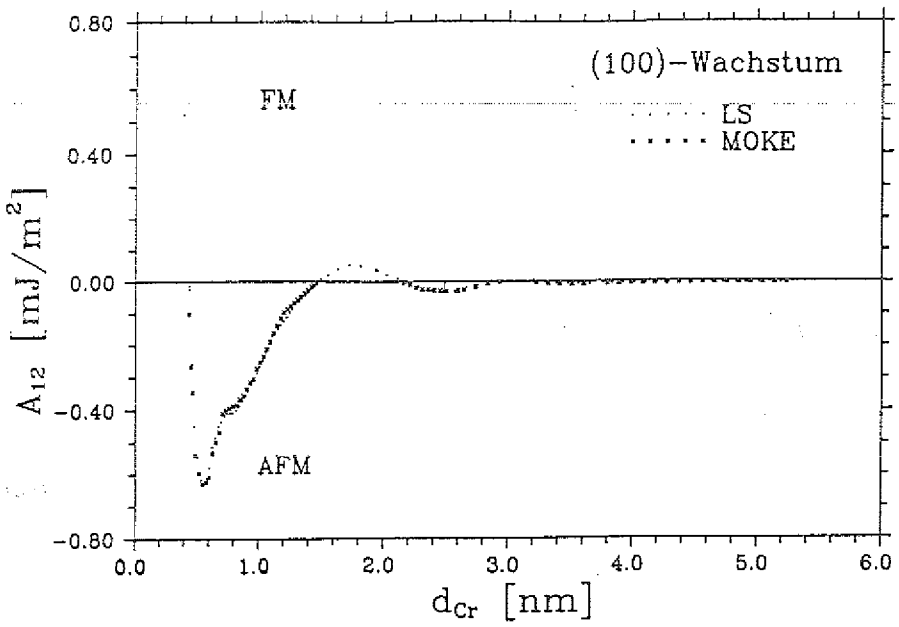


Abbildung 5.1: *Austauschkopplung an einer Fe/Cr/Fe Keilprobe in (100)-Orientierung, gemessen mit Lichtstreuung und MOKE-Methode (nach* [4]*).*

Die experimentell beobachteten großen Periodenlängen der RKKY-Oszillation werden im Fe/Cr/Fe-System durch die (Volumen-) Bandstruktur des Chroms erklärt. Die Fermioberfläche des Chroms soll durch ihre spezielle Form auch Fermivektoren $\vec{k}_F$ zulassen, deren Betrag kleiner ist als im Fall der Fermikugel freier Elektronen. Die RKKY-Wechselwirkung in zweidimensionalen Systemen oszilliert proportional zu $(\cos(2 \cdot \vec{k}_F\, \vec{r}))/r^2$, wobei $\vec{r}$ der Abstand zwischen den ferromagnetischen Schichten ist [43], [44]. Die Annahme einer Grenzflächenrauhigkeit modifiziert diesen Beitrag und führt zum theoretischen Verlauf der Kopplung, wie Abb. 5.2 nach [42] zeigt.

In allen theoretischen Ansätzen zur Beschreibung dieser Kopplung wird das Eisen als magnetisch und elektronisch „starr"angesehen, d.h. eine Modifizierung der Bandstruktur durch Grenzflächeneffekte wird nicht berücksichtigt. Als Folge wird nicht untersucht, wie weit sich die Kopplungsphänomene *in* die Fe-Schicht *hinein* fortsetzen. Aussagen zu diesem Problemkreis kommen aus einem anderen theoretischen Ansatz. Das Verhalten magnetischer Momente und magnetischer Hyperfeinfelder in sehr dünnen Schichten wird bereits seit einigen Jahren sowohl experimentell [45], [46], [47] als auch theoretisch mittels Bandstrukturrechnungen [48], [49] untersucht. Aussagen über Ladungs- und Spindichten, Hyperfeinfelder und magnetische Momente an Grenzflächen sind u.a. durch Anwendung der FLAPW-Methode (*Full Linear Augmented Plane Wave*) möglich. In diesen sog. *ab-initio* Bandstrukturrechnungen wird stets ein sehr dünner Film von ca. 5-10 ML betrachtet, der vom Vakuum umgeben ist. Iterativ werden die Gleichungen der lokalen Spindichte (LSD) für jedes

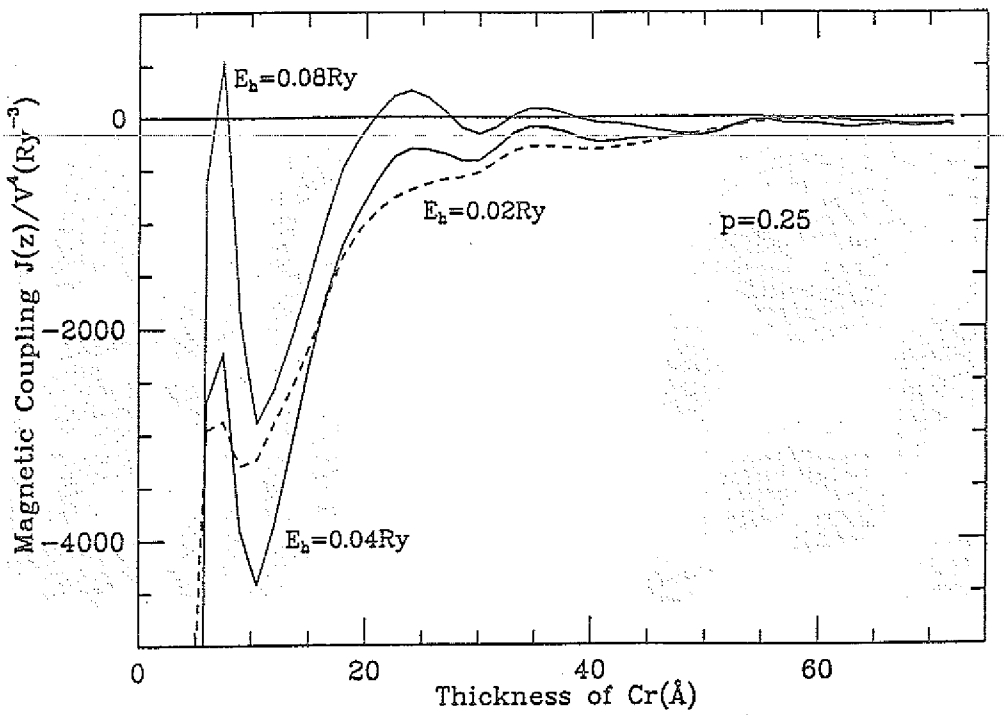


Abbildung 5.2: *Theoretisch berechnete Kurve der Austauschkopplung nach* [42] *im Fe/Cr/Fe System für verschiedene Elektronenenergien E_h, wobei $J(z)$ - Kopplung im Abstand z, p - Parameter der Oberflächenrauhigkeit (ideal glatt: $p = 0$).*

Atom einzeln gelöst. Die Grundidee dieser Methode der Variationsrechnung besteht in der Aufteilung der Schicht in drei separate Gebiete, deren LSD-Gleichungen stetig ineinander übergehen: Kugeln um die Kerne, Zwischenregionen und das angrenzende Vakuum. Abb. 5.3 stellt den prinzipiellen Aufbau einer derartigen Schicht dar. Ein typisches Resultat zeigt Abb. 5.4. In dieser Abbildung ist die lokale Spin- und Ladungsdichte dargestellt. Sehr gut ist zu sehen, daß in der obersten Lage die Ladungs- und Spindichteverteilungen in das Vakuum hineinragen, d.h. die Kugelsymmetrie

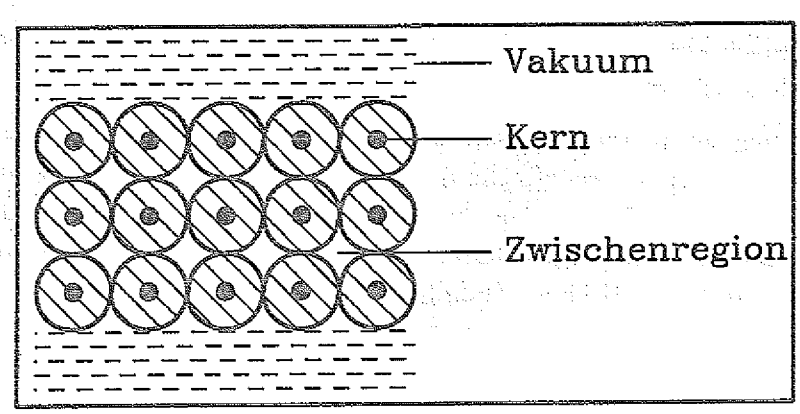


Abbildung 5.3: *Aufteilung der Schicht in drei Regionen zur Berechnung der Ladungs- und Spindichte nach der FLAPW-Methode. (Zeichnung nach* [49] *erstellt.)*

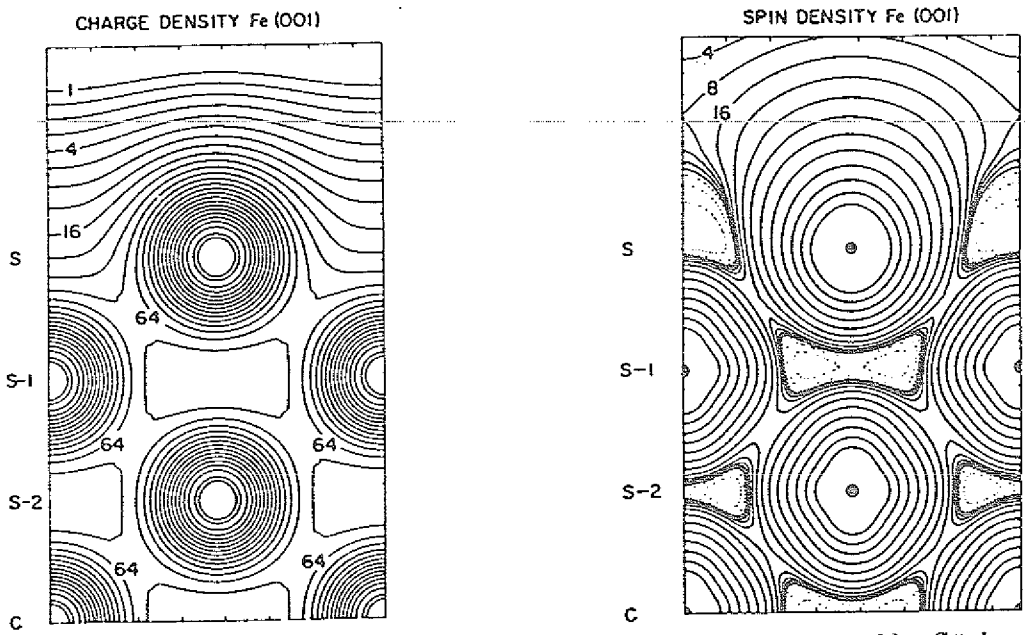


Abbildung 5.4: *Ladungs- und Spindichteverteilung der freien Fe-Oberfläche nach der FLAPW-Methode, berechnet an einer Schicht aus 7 Lagen (100)-orientiertes Fe (aus* [48]*) (C=Center, S=Surface).*

ist gestört. Diese Störung ist korreliert mit einer Änderung der Zustandsdichte in der Nähe der Fermikante für oberflächennahe Lagen, wie Abb. 5.5 zeigt. In den Oberflächenlagen treten 3d-Zustände auf (*Surface Peaks*), die es im Volumen nicht gibt. Diese zusätzlichen Zustände führen zu einem längerreichweitigen Anteil in das Material hinein, d.h. die Störung wird erst über einige Atomlagen hinweg abgebaut. Abb. 5.6 zeigt einige Beispiele der berechneten Werte für das magnetische Moment und das Hyperfeinfeld nach [50]. Eine weitere Methode, Bandstrukturrechnungen durchzuführen ist die KKR-Greensfunktionsmethode (*Korringa-Kohn-Rostoker*). In den Rechnungen von Drittler et al. [10] an Störatomen in einer Fe-Matrix (*Impurities*) ist z.B. ersichtlich, daß ein Chrom-Atom in einer Fe-Matrix eine oszillatorische Störung mit rasch abklingender Amplitude um die Chromposition an den 4 nächsten Nachbarschalen erzeugt.

In der vorliegenden Arbeit wurde die ^{57}Fe -CEMS Methode auf Fe/X-Schichten (X=Cr,Gd,Y) mit *einer* Grenzfläche angewandt, um tiefenselektiv magnetische Hyperfeinfelder innerhalb der Fe-Schicht zu messen und so eine Überprüfung der vorhergesagten Reichweiten durchzuführen. Neben der Darstellung der Ergebnisse und der Beschreibung theoretischer Modelle werden auch Diskussionen und Interpretationen der Resultate im folgenden Kapitel gegeben.

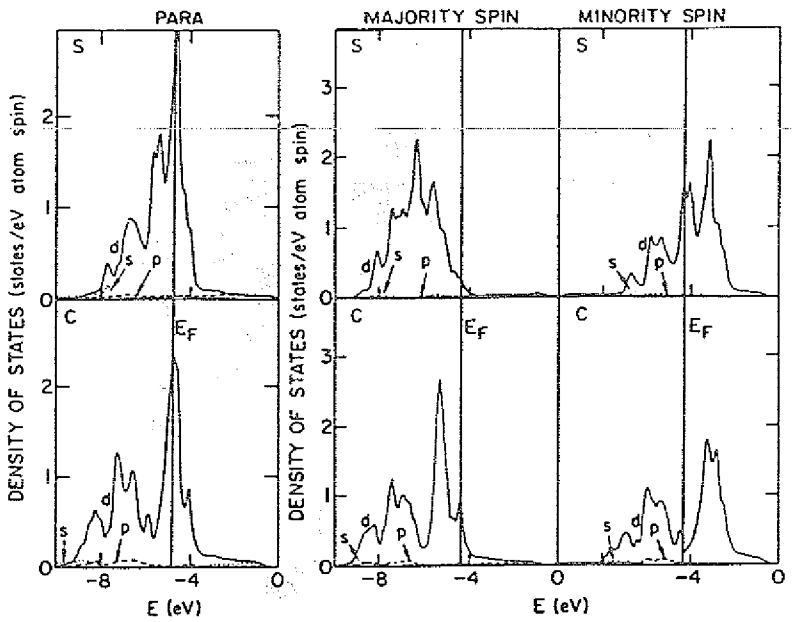


Abbildung 5.5: *Zustandsdichte für Oberflächen- (S=Surface) und Volumen (C=Center) Lagen* [48] *für para- und ferromagnetisches Eisen.*

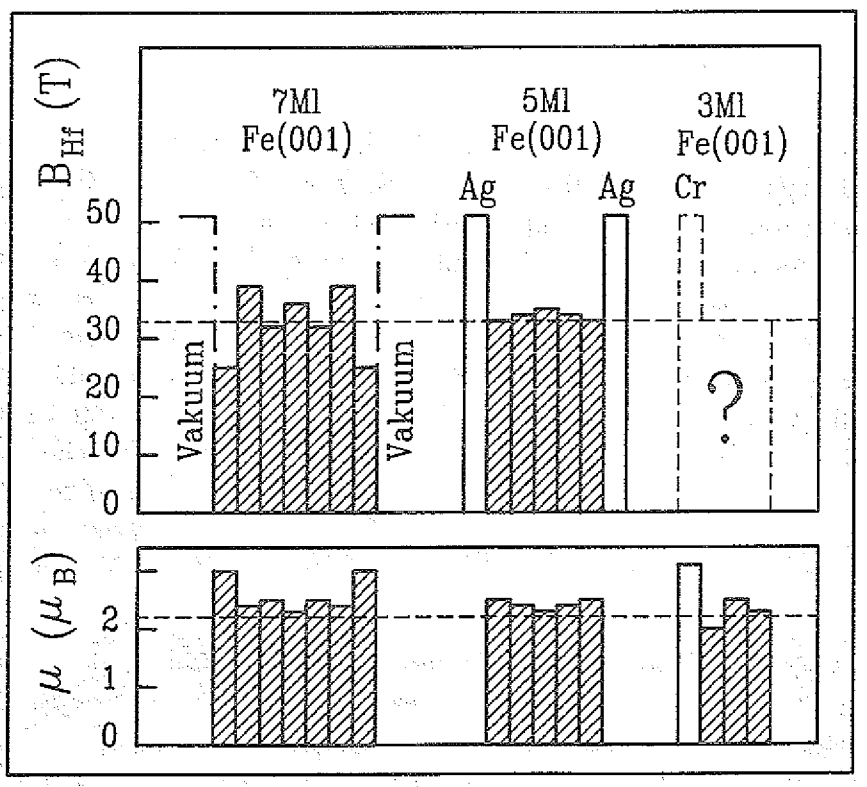


Abbildung 5.6: *Graphische Darstellung der magnetischen Momente und Hyperfeinfelder für Systeme aus einigen Lagen Fe im Kontakt mit Ag, Cr und dem Vakuum (nach* [50]*).*

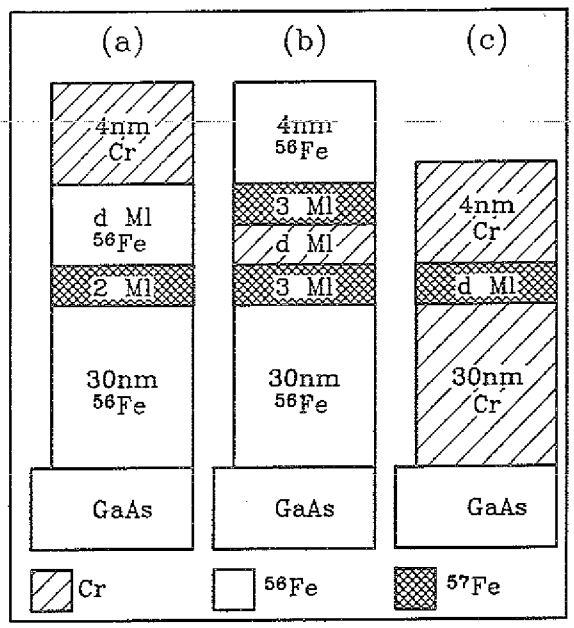


Abbildung 5.7: *Aufbau der Fe/Cr-Schichten. Alle drei Systeme wurden auf Substrate aus GaAs in (100)- und (110)- Orientierung aufgedampft.*

5.1.2. Fe/Cr-Grenzfläche

Sowohl Fe als auch Cr kristallisieren in der bcc-Gitterstruktur. Wegen der fast gleichen Gitterparameter von 0.2866 nm (Fe), bzw. 0.2879 nm (Cr), beträgt die Fehlanpassung nur 0.45 %. Ein gut epitaktisches Wachstum wird durch Verwendung von GaAs (100)- bzw. (110)-Substraten erzielt. Abb. 5.7 zeigt die verschiedenen Schichtstrukturen, die für die Untersuchung präpariert wurden. In (a) wurde eine Sondenschicht aus 2 Monolagen (ML) ^{57}Fe in einem Abstand von d ML ($d = 0 - 7$) ^{56}Fe von der Fe/Cr-Grenzfläche entfernt eingebaut. In (b) befanden sich d ML Cr ($d = 2 - 10$) zwischen Fe, wobei jeweils die an das Cr angrenzenden 3 ML aus ^{57}Fe bestanden. Für ergänzende Messungen wurde Schichtaufbau (c) mit 6 ML ^{57}Fe zwischen Chrom eingesetzt. Die Schichten wurden sofort nach der Herstellung in-situ mittels CEMS gemessen. Kontrollmessungen zeigten jedoch auch nach mehreren Monaten Lagerungsdauer in trockener Luft keine Veränderungen der Resultate.

Um die Größe des magnetischen Hyperfeinfeldes in Abhängigkeit von der Entfernung zur Grenzfläche zu messen, war ein Schichtaufbau (a) nach Abb. 5.7 erforderlich. In diesem System wurde eine Sondenschicht aus 2 ML ^{57}Fe lagenweise in unterschiedlichen Entfernungen von der Grenzfläche in das ^{56}Fe eingebaut. Die gemessenen Mößbauerspektren für verschiedene Abstände d werden in Abb. 5.8 gezeigt. Für einen Abstand von $d = 7$ ML ergibt sich ein Sechslinienspektrum, wie es für α-Fe typisch ist. Das Linienintensitätsverhältnis beträgt 3:4:1, d.h. die Magnetisierung liegt *in* der Schichtebene. Dieses Resultat ergibt sich sowohl für (100)- als

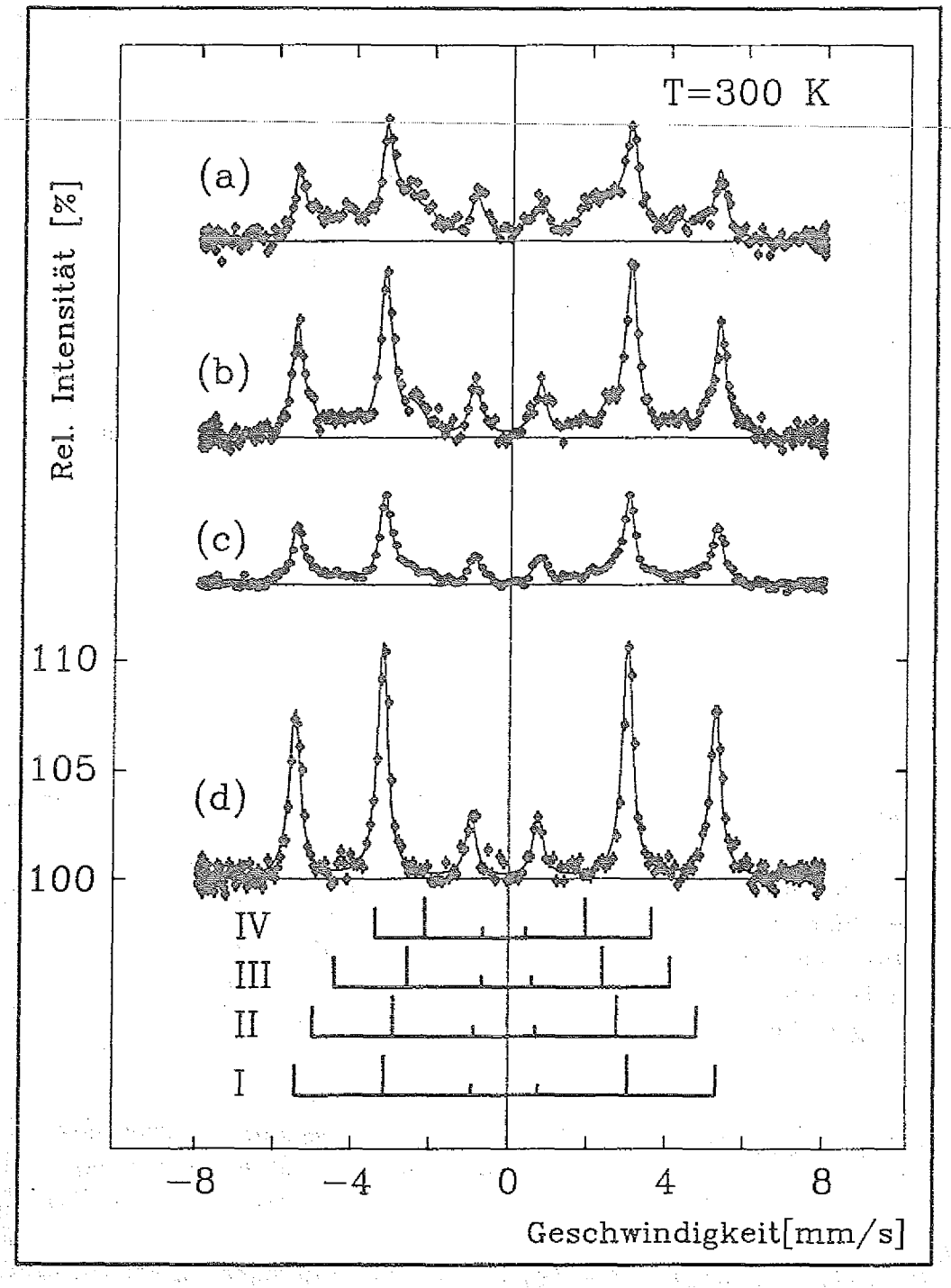


Abbildung 5.8: *Mößbauerspektren der (110)- orientierten Schichten mit einem Aufbau nach Abb. 5.7 (a). Der Abstand d zwischen Fe/Cr-Grenzfläche und* ^{57}Fe *-Sonde betrug (a) d=0 ML, (b) d=1 ML, (c) d=2 ML, (d) d=7 ML. Die Dicke der Sondenschicht lag bei 2 ML* ^{57}Fe *(Spektrum (c) nur 1.1 ML). Alle Spektren wurden bei* $T = 300\,K$ *gemessen. (Teilspektren I-IV nur als Balkendiagramm angedeutet.)*

auch für (110)- orientierte Proben. Liegt die ^{57}Fe -Sonde dichter an der Grenzfläche, wie in (a)-(c) gezeigt, so treten zusätzlich weitere Spektren auf, die den relativen Anteil des Hauptspektrums verringern. Der relative Anteil dieser Teilspektren steigt an, je dichter die Sondenschicht an der Grenzfläche liegt. Aus diesem Grund soll i.f. versucht werden, sie mit der Grenzfläche in Verbindung zu bringen. Es war möglich, alle Mößbauerspektren unabhängig von ihrer Struktur (Fe/Cr-Grenze, Fe/Cr/Fe-Aufbau) durch die Superposition von *vier* magnetisch aufgespaltenen Teilspektren (I)-(IV) anzupassen. Das Spektrum mit dem größten relativen Flächenanteil weist eine Hyperfeinaufspaltung von $B \approx 33\,\mathrm{T}$ auf und kann daher mit Fe-Atomen in einer Fe-Matrix wie im Falle von Volumen-Fe korreliert werden. Die Teilspektren (II)-(IV) zeigen für (110)-orientierte Proben Werte von 30.6, 26.4 und 22.0 T. Die Hyperfeinfeldaufspaltungen der (100)-orientierten Proben liegen abweichend davon bei 30.5, 25.8 und 20.9 T. Für diese Proben gab es noch ein weiteres Teilspektrum (V) mit sehr kleinem Flächenanteil und einer Aufspaltung von 16.5 T. Die Spektren (III) und (IV) zeigten als einzige eine kleine Quadrupolaufspaltung von etwa 0.05 mm/s. Bemerkenswert ist, daß der relative Anteil der Teilspektren (II)-(IV) in Schichten, deren Sonde direkt an der Fe/Cr-Grenze lag, in Dicke umgerechnet, zusammen (1.1 ± 0.1) ML entsprach. Diese Dicke ergab sich für beide Kristallorientierungen.

5.1.2.1. Grenzflächenspektren

Die erwähnten Teilspektren (II)-(IV) treten offenbar nur in *unmittelbarer* Nähe der Fe/Cr-Grenze in den obersten $1-2$ ML im Fe auf, wobei aus der Sondenschicht mit 2 ML ^{57}Fe nur die 1. ML reine Grenzflächeneffekte zeigt, die 2.Lage jedoch bereits Volumen-ähnliche Eigenschaften aufweist. Dieses Resultat zeigt, daß in Proben guter Epitaxie die Grenzfläche scharf definiert ist und nahezu keine Diffusion auftritt. Einzelne Fe-Atome, die in das Cr hinein diffundieren, würden paramagnetische Linien erzeugen, die im Gesamtspektrum klar erkennbar wären. Es muß jedoch betont werden, daß die Breite dieser Diffusionszone zunimmt, wenn die Epitaxie schlechter wird!

Die Deutung der Teilspektren ist mit Hilfe eines *Legierungsmodells* möglich. Im kubisch raumzentrierten Gitter ist jedes Atom von 8 nächsten, 6 zweit- und 12 drittnächsten Nachbaratomen umgeben, die jeweils über das transferierte Hyperfeinfeld ΔB_i zum gesamten Feld am Kernort beitragen. Da alle in Frage kommenden Wechselwirkungen zwischen den Atomen mit der Entfernung abnehmen, wird der Einfluß entfernter Nachbarn immer kleiner. In einer rein phänomenologischen Untersuchung [51] wurden die Hyperfeinfelder in Fe/Cr-Legierungen durch folgenden Ansatz interpretiert

$$B_{Hf} = B_{Vol} - n_1 \Delta B_1 - n_2 \Delta B_2,$$

wobei n_1, n_2 die Zahl der nächsten und übernächsten Cr-Nachbarn um ein Fe-Atom herum darstellen und $B_{Vol} = 33.4\,\mathrm{T}$ das Hyperfeinfeld für α-Eisen bei $T = 300\,\mathrm{K}$

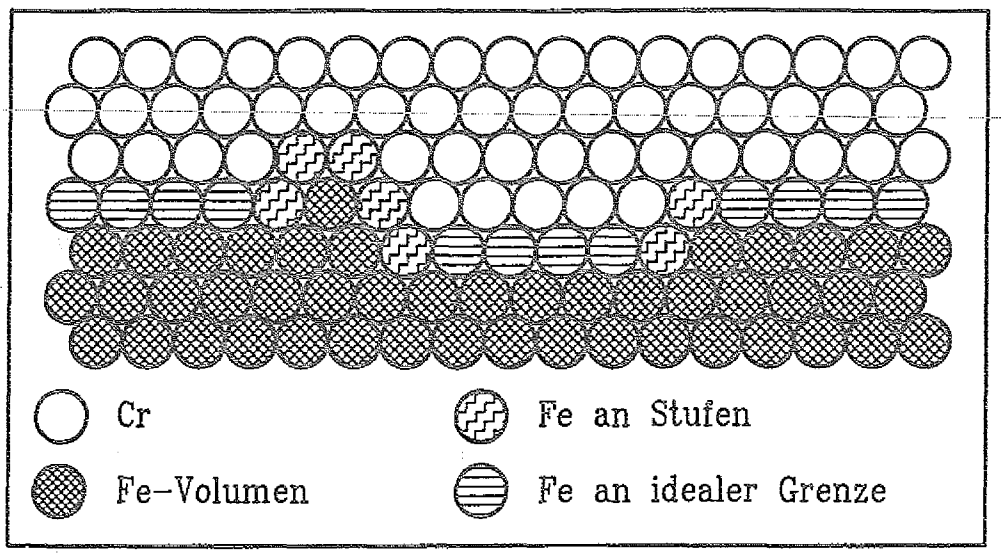


Abbildung 5.9: *Schematisches Modell der Fe/Cr-Grenzfläche. Die Interpretation kann im Rahmen eines Legierungsmodells gegeben werden, die exakte Kristallstruktur ist in dieser Zeichnung nicht dargestellt.*

ist. Die Felder ΔB_i, i=1,2 entsprechen den Beiträgen der transferierten Hyperfeinfelder der i-ten Nachbarn. Messungen mit dem Mößbauereffekt ergaben Werte von $\Delta B_1 = 3.19$ T und $\Delta B_2 = 2.15$ T, d.h. $\Delta B_2/\Delta B_1 = 0.67$. Der Einfluß weiter entfernt liegender Atome wie auch die Bandstruktur wurden in [51] zur Interpretation nicht herangezogen, die Daten beschreiben einzig den Legierungseinfluß auf das Fe-Hyperfeinfeld. Von Drittler et al. [10] durchgeführte Bandstrukturberechnungen an Fe/Cr-Legierungen (sog. *Impurity calculations*) ergeben folgende Resultate: $\Delta B_2/\Delta B_1 = 0.75$ und mit ewas größerer Abweichung vom experimentellen Wert $\Delta B_1 = 2.66$ T, bzw. $\Delta B_2 = 2.0$ T. Darüberhinaus wird in dieser Arbeit der Einfluß des drittnächsten Nachbarn mit $\Delta B_3 = 0.19$ T angegeben und $\Delta B_3/\Delta B_1 = 0.07$ berechnet. Diese Rechnung zeigt, daß die transferierten Felder der drittnächsten Nachbarn in erster Näherung vernachlässigt werden können. Unter Zuhilfenahme der Gleichung für B_{Hf} ist eine Analyse der Hyperfeinfelder an der Grenzfläche Fe/Cr gut möglich. Die verschiedenen Konfigurationen der Fe-Atome an der Grenzfläche sind in dem in Abb. 5.9 gezeigten einfachen Modell dargestellt. Für Positionen an Stufen und Kanten ist eine Vielzahl von Hyperfeinfeldern möglich, die den unterschiedlichen Cr-Umgebungen eines ^{57}Fe -Atoms entsprechen. Diese rein geometrische Berechnung soll anhand der idealen Grenzfläche kurz skizziert werden. Für diesen Fall ist genau ein Halbraum von Fe-Atomen durch Cr-Atome ersetzt, d.h. $B_{Hf} = B_{Vol} - 4 \cdot 3.19\,T - 3 \cdot 2.15\,T = 22.7\,T$. Es ist vom Experiment her nicht möglich, die Teilspektren aller möglichen Stufenkonfigurationen getrennt aufzulösen und zu messen, sondern nahe beieinanderliegende Hyperfeinfeldaufspaltungen werden sich

Konfig.	$B_{ex,(110)}$ (T)	$B_{lm,(110)}$ (T)	$B_{ex,(100)}$ (T)	$B_{lm,(100)}$ (T)
Stufen	30.6	30.8 (Mittelwert)	30.5	30.7 (Mittelwert)
Stufen	26.4	25.4 (Mittelwert)	25.8	25.9 (Mittelwert)
Id. Gr.	22.0	22.7	20.9	18.5

Tabelle 5.1: *Gemessene Werte (ex) und Daten aus dem Legierungsmodell (lm) für beide Orientierungen. Ähnliche Fe-Cr Konfigurationen erzeugen nahezu gleiche Hyperfeinfelder, die im Experiment nicht unterschieden werden können. Ihre exakten Werte sind durch Mittelwerte ersetzt (siehe Text).*

zu verbreiterten Linien mit einer *mittleren* Aufspaltung zusammenfinden. Die rechnerischen Werte sind 31.25, 30.21/25.91, 24.87/20.57, 19.53, 18.49 T für Stufenpositionen. Eine Einteilung in drei Gruppen mit den mittleren Hyperfeinfeldern von 30.7/25.4/19.5 T ist daher sinnvoll. Die Messungen an den Fe/Cr-Grenzschichten zeigen verbreiterte Linien mit einer Breite von $\Gamma = 0.4$ mm/s für die Teilspektren (II)-(IV). Spektrum (I) zeigt dagegen einen Wert von $\Gamma = 0.28$ mm/s und ist somit nur noch geringfügig gegenüber einem homogenen Fe-Film mit $\Gamma = 0.25$ mm/s verbreitert. Die mittleren berechneten Hyperfeinfelder von 30.7 T und 25.4 T aus dem Legierungsmodell stimmen recht gut mit den gemessenen Daten von 30.6 T und 26.4 T für Teilspektrum (II) bzw. (III) überein und können daher Fe-Atomen zugeordnet werden, die an *Stufen* positioniert sind. Teilspektrum (IV) mit 19.5 T wird von Atomen erzeugt, die sich ebenfalls an Stufen befinden. Da dieser Wert nahe bei dem Hyperfeinfeld 22.7 T der idealen Grenzfläche liegt, wird es experimentell zu einem Mittelwert zwischen beiden kommen, was mit 22.0 T offenbar der Fall ist. Das wahre Grenzflächenfeld wird daher sicher etwas höher anzusetzen sein.

Analog dazu ergeben sich in der (100)-Orientierung rechnerische Werte von $B_{Hf} = 18.5$ T für die ideale Grenzfläche und 31.35, 30.21/27.02, 24.87/22.6/16.3 T für unterschiedliche Stufenpositionen. Hier ist die Einteilung in vier Gruppen mit den mittleren Werten 30.7/25.9/22.6/16.3 T sinnvoll. Ein Vergleich mit den experimentellen Daten zeigt, daß auch hier die Übereinstimmung 30.5/25.8/16.5 T für Teilspektrum (II),(III),(V) recht gut ist. Das experimentell ermittelte Hyperfeinfeld $B_{Hf} = 20.9$ T für Teilspektrum (IV) kann als Feld der idealen Grenzfläche interpretiert werden. Die nicht so gute Übereinstimmung mit den rechnerischen Daten liegt u.U. an der schlechten Trennbarkeit der Felder mit 18.5 T für die theoretische, ideale Grenzfläche und 22.6 T für das Stufenfeld. In Analogie zur (110)-Orientierung läßt sich daher auch hier feststellen, daß der gemessene Wert von $B_{Hf} = 20.9$ T nur eine obere Grenze für das Grenzflächenfeld ist. Einen Vergleich aller experimentellen Daten mit den berechneten Werten aus dem Legierungsmodell gibt Tab. 5.1.

Eine weitere Bestätigung dieser Interpretation kann durch die Auswertung der Isomerieverschiebung S und der Quadrupolaufspaltung Δ gegeben werden. Die Isomerieverschiebung steigt zu negativen Werten an, wenn man von Teilspektrum (II)

Orientierung	T (K)	B_1 (T)	S_1 (mm/s)	Δ_1 (mm/s)	$B_{2,3}$ (T)	$S_{2,3}$ (mm/s)	$\Delta_{2,3}$ (mm/s)
(100)	300	$20.9^{+0.2}_{-1.0}$	-0.24(3)	0.05(2)	33.54(5)	-0.10(1)	0
	0	22.3			34.65		
(110)	300	$22.0^{+0.7}_{-0.3}$	-0.24(3)	0.03(2)	33.71(5)	-0.10(1)	0
	0	23.2			34.85		

Tabelle 5.2: *Experimentelle Daten der magnetischen Hyperfeinfelder B, der Isomerieverschiebung S und der Quadrupolaufspaltung Δ in der ersten und der zweiten/dritten Lage im Fe an der Fe/Cr-Grenzfläche. Die Hyperfeinfelddaten für $T = 0\,K$ wurden aus dem Temperaturbereich $90\,K \leq T \leq 350\,K$ extrapoliert.*

zu (IV) geht. Die damit verbundene s-Elektronendichte am Fe-Kernort wird größer, wenn die Zahl der Cr-Nachbarn erhöht wird. Dieses Verhalten wird ebenfalls durch die Messungen an Fe/Cr-Legierungen bestätigt und kann auch durch Vergleich mit den Elektrenegativitätsdaten für Fe und Cr erhalten werden. Das stärker elektronegative Fe zieht Elektronen auf die Fe-Seite der Grenzfläche und erhöht damit die s-Elektronendichte am Fe-Kernort. Eine Quadrupolaufspaltung kann erklärt werden, wenn man Störungen der Kristallsymmetrie durch die Gitterfehlanpassung sowie durch unterschiedliche Ladungen von Fe und Cr in Betracht zieht. Eine Zusammenfassung der experimentellen Daten für Isomerieverschiebung, Quadrupolaufspaltung und Hyperfeinfeld der ersten Lagen im Fe gibt Tab. 5.2.

Zusammengefaßt läßt sich die Fe/Cr-Grenzfläche als geordnete 50:50 Fe/Cr-Legierung ohne nennenswerte Interdiffusion beschreiben. Für die ideale Grenzfläche in (110) orientierten Proben ergibt sich für Spektrum (IV) ein Wert von $B_{Hf} = 22.0^{+0.7}_{-0.2}$ T, während (100)-Proben eine Hyperfeinfeld von $B_{Hf} = 20.9^{+0.2}_{-1.0}$ T zeigen (alle Werte bei $T = 300$ K gemessen). Teilspektren (II), (III) lassen sich Stufenpositionen in der Grenzfläche zuordnen.

5.1.2.2. Oszillation des Hyperfeinfeldes

Für eine Untersuchung der Abstandsabhängigkeit für Spektrum (I) ist es erforderlich, Sondenlagen aus ^{57}Fe an unterschiedlicher Stelle im Fe einzubauen. In Schicht (a) nach Abb. 5.7 wurde die ^{57}Fe -Sonde monolagenweise von der Grenzschicht entfernt aufgedampft und der Wert der Hyperfeinaufspaltung als Funktion des Abstandes gemessen. Befindet sich die Sondenlage *direkt* an der Grenzfläche zum Cr, so läßt sich das Gesamtspektrum in zwei Teile mit einem relativen Flächenanteil von umgerechnet jeweils 1 ML ^{57}Fe aufteilen (Abb. 5.8). Der erste Teil besteht aus den Spektren (II)-(IV), die mit ^{57}Fe -Atomen in Grenzflächenpositionen korreliert wer-

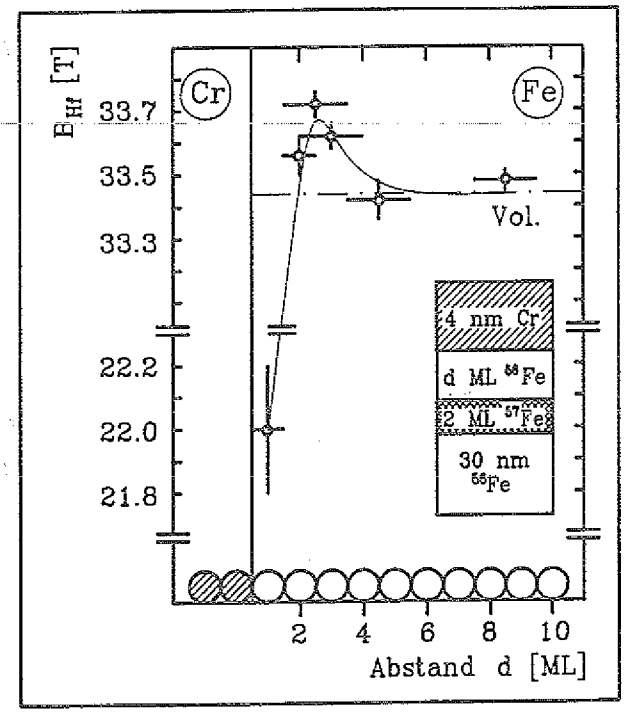


Abbildung 5.10: *Magnetische Hyperfeinfelder B_{Hf} in der Fe-Schicht als Funktion des Abstandes d von der Fe/Cr-Grenzfläche. Alle untersuchten Proben wurden in Schichtaufbau (a) nach Abb. 5.7 in (110)-Orientierung hergestellt. Die gestrichelte Linie zeigt den Volumenwert des Hyperfeinfeldes in epitaktischen (110)-Proben bei $T = 300\,K$.*

den können. Der zweite Teil besteht aus Spektrum (I), das mit seinem Hyperfeinfeld sehr nahe am Volumenwert für α-Eisen liegt und der *zweiten* Lage im Fe zugeordnet werden kann. Spektrum (b) in Abb. 5.8 (Seite 39, Sonde 1 ML von der Grenze entfernt) sollte demnach mit (I) identisch sein, wenn ideales Wachstum ohne jegliche Diffusion stattfinden würde. Der zwar reduzierte jedoch immer noch vorhandene Anteil zusätzlicher Spektren ist daher gleichbedeutend mit Stufen an der Fe/Cr-Grenzfläche von $1-2$ ML Höhe. Somit entspricht Teilspektrum (I) der Mittelung über die zweite bis vierte Lage. Die Abhängigkeit des magnetischen Hyperfeinfeldes vom Grenzflächenabstand ist in Abb. 5.10 dargestellt.

In polykristallinen, in der für Mößbauer-Untersuchungen sonst üblichen Transmissionsgeometrie gemessenen Fe-Proben ergibt sich ein Hyperfeinfeld von $B = 33.3$ T als Volumenwert bei Raumtemperatur [18]. In den epitaktischen, (110)-orientierten Filmen konnte im Rahmen der vorliegenden Arbeit ein Feld von 33.4 T gemessen werden. Mit guter Epitaxie sind u.a. eine geringe Anzahl von Korngrenzen, sowie eine nicht vernachlässigbare Oberflächenanisotropie verbunden. Darüberhinaus existieren in einer solchen Schicht nur sehr wenige magnetische Domänen, d.h. das resultierende Streufeld der Domänenwände und damit das Hyperfeinfeld besitzen sicher etwas andere Werte als in polykristallinem Eisen.

Neben dieser kleinen Modifikation des Volumenwertes ist jedoch die Variation des Hyperfeinfeldes mit dem Sondenabstand von der Grenzfläche das Hauptergebnis. Die erste Lage an der Fe/Cr-Grenze zeigt ein stark reduziertes Feld von 22.0 T, während in der zweiten, dritten Lage die magnetische Hyperfeinaufspaltung mit 33.7 T um etwa 1.5 % gegenüber dem Volumenwert erhöht ist, der erst in der vierten Lage wieder erreicht wird. In Proben mit (100)-Orientierung konnte die beschriebene Abhängigkeit ebenfalls festgestellt werden. Auch hier trat mit 33.6 T eine Erhöhung in der zweiten (dritten) Lage auf. Proben mit schlechter Epitaxie (d.h. RBS Minimum-Yield $\geq$ 38 %) zeigten dieses Verhalten jedoch nicht! Bedingt durch Diffusion an der Grenzfläche kommt es in diesen Proben zu einer Durchmischung an der Grenzfläche. Ist die ^{57}Fe -Sondenschicht jedoch über mehrere Lagen verteilt, kann nur noch ein Mittelwert gemessen werden, obwohl sicher auch hier eine Überhöhung des Feldes in der 2.-4. Lage auftritt. Interdiffusion von ^{56}Fe und ^{57}Fe tritt nicht auf, wie die gemessenen Spektren zeigen. Eine Variation des Abstandes von 1 ML erzeugt ein deutlich unterschiedliches Spektrum. Interdiffusion würde bei einer derartig geringen Veränderung des Sondenabstandes für verschiedene Entfernungen von der Grenzfläche gleiche Spektren erzeugen.

Zusammengefaßt ergibt sich ein oszillierendes Verhalten des Hyperfeinfeldes (I) in Abhängigkeit des Abstandes von der Fe/Cr-Grenzfläche. Diese Oszillation tritt sowohl in (110)- als auch in (100)-orientierten Proben auf. Das Feld in der ersten Fe-Lage an der Grenzfläche ist demgegenüber stark reduziert.

5.1.2.3. Austauschkopplung

Die Magnetisierung einer Volumenprobe verläuft i.a. proportional zum magnetischen Hyperfeinfeld (siehe Kap. 2.2.3). Sowohl der Beitrag der Leitungselektronen B_{ce} als auch der Rumpf-Elektronen B_{cp} zeigen dieses Verhalten. Experimentelle Daten [47] und Bandstrukturrechnungen [49] machen deutlich, daß an Grenzflächen das Hyperfeinfeld der Leitungselektronen B_{ce} von diesem Verhalten abweicht. Dieser Effekt rührt aus der unterschiedlichen Polarisation der Leitungselektronen an Grenzflächen im Vergleich zum Volumen her. Da aber die Leitungselektronen-Polarisation i.a. wenig zum magnetischen Moment, dagegen stark zum Hyperfeinfeld beiträgt, besteht kein direkter Zusammenhang zwischen magnetischem Moment und Hyperfeinfeld der obersten Fe-Lagen mehr. Das Bloch'sche Spinwellengesetz stellt zwischen Magnetisierung M und Temperatur T in Volumenproben nach [52] folgenden Zusammenhang her

$$M = M_0 - 0.117\mu_B \cdot N^3 \left(\frac{k_B}{2JS}\right)^{3/2} T^{3/2} \quad ,$$

wobei M_0 die Magnetisierung bei $T = 0\,\mathrm{K}$, μ_B das Bohr'sche Magneton, k_B die Boltzmannkonstante, N die Zahl der Spins, S den Spin und J die Austauschkopplung repräsentiert. Trotz der eben erwähnten Einschränkung kann man für die

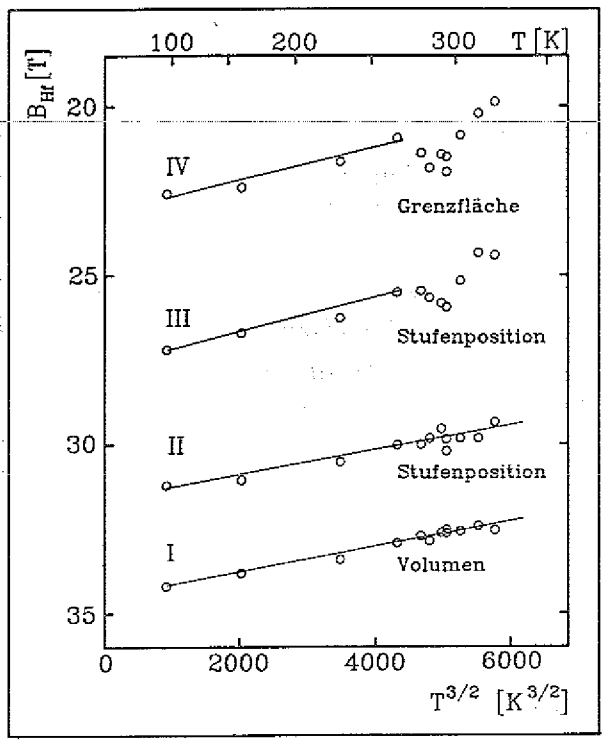


Abbildung 5.11: *Messung der Temperaturabhängigkeit des magnetischen Hyperfeinfeldes in einer Schicht mit* 30 *nm Cr* / 6 *ML* ^{57}Fe / 4 *nm Cr (Aufbau (c) aus Abb.* 5.7*).*

Magnetisierung das magnetische Hyperfeinfeld B einsetzen, da die Messung der Temperaturabhängigkeit eine *Relativ*messung darstellt. Dementsprechend wird das Spinwellengesetz auch für Hyperfeinfelder dünner Schichten in den meisten Fällen experimentell bestätigt. Mißt man dagegen $B_{Hf}(T)$ in einem Temperaturbereich von $T \approx 80 - 300$ K für Proben mit unterschiedlicher Tiefe der ^{57}Fe -Sonde, so erhält man eine Aussage über die mit dem Spinwellenparameter b korrelierte Austauschkopplung J aus dem vereinfachten Spinwellengesetz

$$\Delta B(T)/B(0) = b \cdot T^{3/2}$$

mit $b \propto 1/J^{3/2}$ unter der Annahme eines konstanten Spins S. Mit dem beschriebenen Experiment sind somit Aussagen über grenzflächeninduzierte Abweichungen der Kopplung vom Volumenverhalten möglich. Abb. 5.11 zeigt die experimentellen Resultate. Aufgetragen ist die Temperaturabhängigkeit des magnetischen Hyperfeinfeldes über $T^{3/2}$ in einer Schicht, die etwas vom bisher beschriebenen Aufbau abweicht, magnetisch aber dieselben Resultate zeigt. In dieser Schicht sind 6 ML ^{57}Fe zwischen Chrom ((110)-Orientierung) eingebaut, was durch den größeren Anteil ^{57}Fe eine deutliche Reduktion der Meßzeit bedeutete. Alle vier Teilspektren (I)-(IV) zeigen deutlich ein $T^{3/2}$-Verhalten, die Steigung der Kurven variiert jedoch.

Schichtaufbau	Orient.	b_1	$b_{2,3}$
30 nm Cr/6 ML ^{57}Fe /4 nm Cr	(100)	14.6	6.3
	(110)	21.5	10.7

Tabelle 5.3: *Spinwellenparameter b der ersten (b_1) und zweiten/dritten ($b_{2,3}$) Lage in Schichten mit dem angegeben Aufbau. (b in $10^{-6}K^{-3/2}$).*

Schichtaufbau (110)	b_1	$b_{2,3}$	$b_1/b_{2,3}$
Fe-Volumen	-	5.5	-
Fe/4 ML Cr/Fe	17.4	6.8	2.56
Fe/6 ML Cr/Fe	15.8	6.7	2.36
Fe/10 ML Cr/Fe	19.8	7.2	2.75

Tabelle 5.4: *Spinwellenparameter b der ersten (b_1) und zweiten/dritten ($b_{2,3}$) Lage sowie deren Quotient in Schichten mit dem angegeben Aufbau (b in $10^{-6}K^{-3/2}$). Zu beiden Seiten der Chrom- Zwischenschicht befand sich eine ^{57}Fe -Sonde von jeweils 3 ML Dicke.*

Teilspektrum (IV) der idealen Grenzfläche zeigt dabei die größte Steigung. Spektrum (I) weist einen b-Wert auf, der deutlich kleiner und nahe am Volumenwert liegt. Die Spinwellenparameter der Spektren (II) und (III) liegen dabei zwischen den Werten für (I) und (IV). Auf die in der Messung ersichtliche Diskontinuität in der Nähe der Raumtemperatur soll an dieser Stelle nicht eingegangen werden, sie wird im nächsten Kapitel ausführlich diskutiert. Die Auswertung der Messung zeigt, daß in unmittelbarer Nachbarschaft der Fe/Cr-Grenze die Austauschkopplung J gegenüber dem Volumenwert stark reduziert ist, wie die Daten in Tab. 5.3 zeigen.

Auch in den Schichten nach Abb. 5.7 (Seite 38) wurde der Spinwellenparameter der idealen Grenzfläche und der angrenzenden Lagen in Abhängigkeit der Chrom-Zwischenschichtdicke gemessen. Wiederum ergibt sich, daß in der ersten Lage die b-Werte stark erhöht sind, während in der 2.,3. Lage der Volumenwert fast erreicht wird. Der Spinwellenparameter b ist abhängig von der Chrom-Dicke (Tab. 5.4) und somit keine Materialkonstante.

In einem weiteren Experiment sollte untersucht werden, bis zu welcher Tiefe in das Fe hinein eine Abweichung der magnetischen Kopplung vom Volumenwert besteht. Dazu wurde die Temperaturabhängigkeit des Spektrums (I) in Schichten mit unterschiedlichem Abstand der Sonde von der Grenzfläche untersucht. Abb. 5.12 zeigt das Resultat dieser Messungen. Die halblogarithmische Darstellung zeigt einen exponentiellen Verlauf des Spinwellenparameters in Abhängigkeit vom Abstand d.

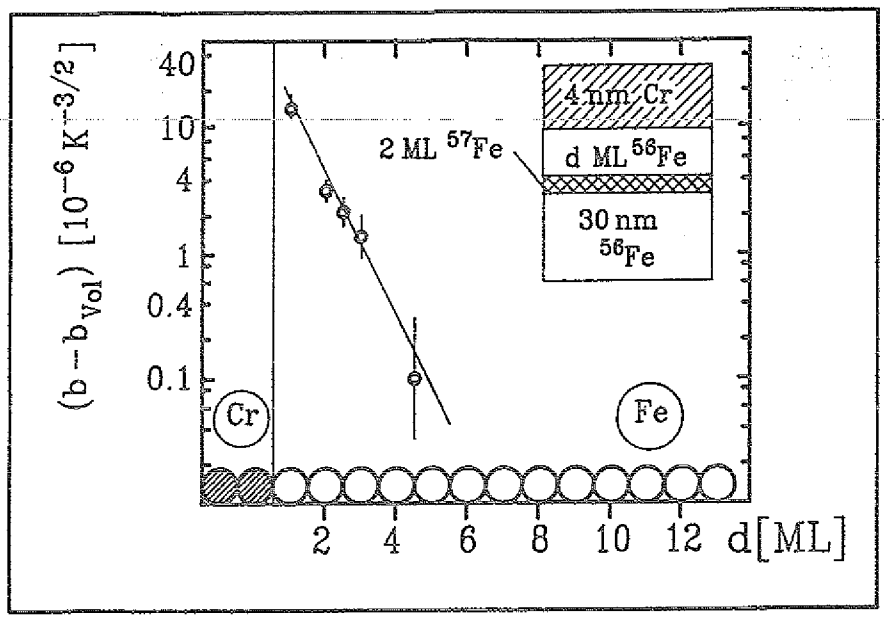


Abbildung 5.12: *Halblogarithmische Darstellung des Spinwellenparameters b in Abhängigkeit der Sondentiefe d in dem dargestellten Aufbau (Orientierung (110)).*

Definiert man als Kopplungslänge δ_{Cr} die Distanz d im Eisen, über die die Erhöhung des Spinwellenparameters b auf den $1/e$-ten Teil abgeklungen ist, so ergibt die Auswertung der Daten

$$\Delta b = b(d) - b_{Vol} = 14.0 \cdot \exp(-d/\delta_{Cr})$$

mit $\delta_{Cr} = 0.69\,\mathrm{ML}$, d.h. die oben definierte Kopplungslänge liegt innerhalb der ersten Monolage. Somit ist die Reichweite der Fe-Cr Kopplung auf 1. und 2. Nachbaratome beschränkt. Als Kopplungsmechanismus kommt daher wohl hauptsächlich der direkte Überlapp der 3d-Orbitale von Fe und Cr an der Grenzfläche in Frage, während eine Kopplung über Leitungselektronenpolarisation eine untergeordnete Rolle spielen dürfte.

Im Modell von J.Mathon [53] wird dieses Verhalten der Reduktion der Austauschkopplung an Grenzflächen untersucht. In diesem Modell wird ein halbunendlicher Kristall aus gestapelten Monolagen betrachtet. Dieser Kristall wird sukzessive mit Oberflächenlagen eines weiteren Materials belegt. Der beschriebene rekursive Formalismus zur Berechnung der Zustandsdichte der Oberflächenspinwellenzustände führt zu einer Verringerung (*Softening*) der Austauschkopplung $J^{\perp}$ *zwischen* benachbarten Lagen an der Grenzfläche. Die Kopplung zwischen Atomen *innerhalb* einer Ebene wird in diesem Modell als konstant angenommen. Abb. 5.13 zeigt die theoretischen Resultate der Magnetisierung für ein einfach-kubisches Gitter mit verschiedenen Werten der Austauschkopplung. Ein quantitativer Vergleich mit den gemessenen Daten war leider nicht möglich, da die Berechnung Werte für Kopplung *und* Spins jeder einzelnen Oberflächenlage erfordert. Diese Daten konnten im Rah-

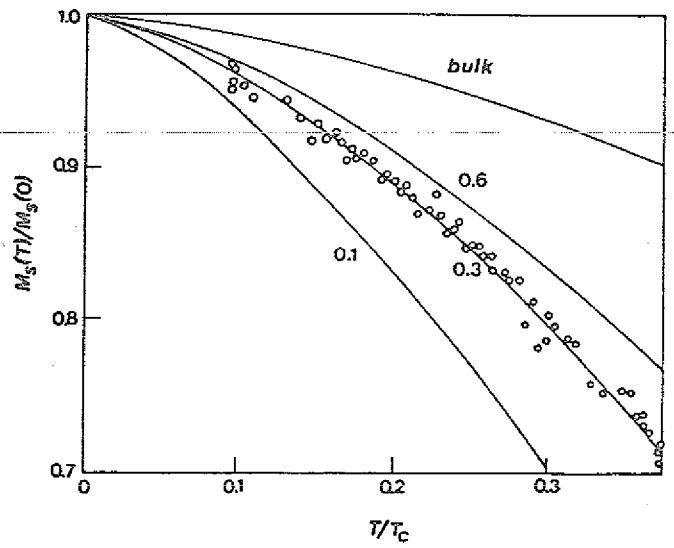


Abbildung 5.13: *Berechneter Temperaturverlauf der Oberflächenmagnetisierung für einen halbunendlichen Kristall mit einer Oberflächenlage und verringerter Austauschkopplung J/J_{Vol} nach* [53]. *Die Messpunkte entstammen einer SPLEED- Untersuchung am amorphen System* $Ni_{30}Fe_{40}B_{20}$ [54].

men der vorliegenden Arbeit nicht ermittelt werden. Ein qualitativer Vergleich ist jedoch gut möglich. Ein System, das nächste Nachbarn bevorzugt *in* einer Ebene besitzt sollte sich anders verhalten als eine Schicht, dessen nächste Nachbarn sich überwiegend in dazu parallelen Ebenen befinden. Die untersuchten Schichten in (110)-Orientierung sind Systeme mit großer *In*-Ebenen Kopplung, d.h. mehr erste Nachbarn liegen in derselben Ebene. Systeme in (100)- Orientierung zeigen dagegen bevorzugt *Inter*-Ebenen Kopplung, d.h. hier findet die Kopplung überwiegend zwischen den Ebenen statt. Zusätzlich weisen beide Orientierungen mit $a = 0.143\,\mathrm{nm}$ (100), bzw. $0.200\,\mathrm{nm}$ (110) unterschiedliche Netzebenen-Abstände auf. Schichten mit (110)- Orientierung sollten also den Effekt des Softening an Grenzflächen in stärkerem Maße zeigen als solche in (100)-Orientierung. Diese Annahme konnte im Rahmen der vorliegenden Arbeit bestätigt werden (Tab. 5.3). Die prinzipiellen Unterschiede der beiden Kristallorientierungen sind in Abb. 5.14 dargestellt. Die wahre Kristallstruktur wurde der Übersichtlichkeit halber durch eine schematische Darstellung ersetzt.

Zusammengefaßt ergibt sich eine starke Reduktion der Austauschkopplung an der Fe/Cr-Grenzfläche, die qualitativ gut mit dem Modell von Mathon übereinstimmt und etwa bis zur 4.Lage in das Fe hinein zu beobachten ist. Aus der Abstandsabhängigkeit läßt sich schließen, daß ein direkter Überlapp der 3d-Orbitale zwischen Fe- und Cr-Atomen als dominierende Ursache gesehen werden kann.

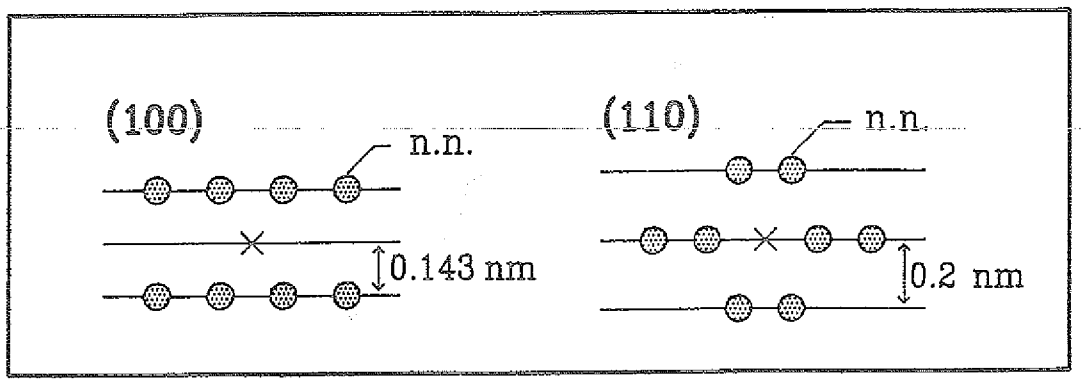


Abbildung 5.14: *Schematische Darstellung der ersten Nachbarn in bcc-Gittern mit (110)- und (100)-Orientierung zur Erklärung der Resultate von Tab. 5.3 im Modell von Mathon* [53]. *Die wahre Kristallstruktur wurde der Übersicht halber weggelassen (n.n.=Nächste Nachbarn).*

5.1.3. Fe/Gd-Grenzfläche

5.1.3.1. Grenzfläche und Oszillation des Hyperfeinfeldes

Gadolinium kristallisiert in der hcp-Struktur mit einer Gitterkonstanten in der hexagonalen Ebene $a_0 = 0.362\,\mathrm{nm}$ und senkrecht dazu mit $c_0 = 0.575\,\mathrm{nm}$. Ein epitaktisches Wachstum von Gd auf bcc-orientiertem Fe kann daher nicht erwartet werden. Messungen mit HRTEM in Gd/Fe/Gd-Schichten auf GaAs(110) zeigen, daß Gd weder auf dem GaAs-Substrat noch auf dem bcc-Fe (dort nanokristallin) geordnet aufwächst, sondern erst nach ca. 4 nm seine eigene hcp-Struktur ausbildet. Dieses Wachstumsverhalten muß auch in den hier vorliegenden Schichten angenommen werden, d.h. auf epitaktischem Fe befindet sich sehr wahrscheinlich amorphes Gd. Abb. 5.15 zeigt den Aufbau der präparierten Schichten. Völlig analog zum Fe/Cr-System wurde auch hier eine Sondenschicht aus 2 ML ^{57}Fe in unterschiedlichem Abstand von der Fe/Gd-Grenzfläche entfernt bei einer Substrattemperatur von $T = 170°\,\mathrm{C}$ aufgedampft. Auch die Fe/Gd-Schichten wurden sofort nach der Herstellung in-situ mittels CEMS gemessen. Die magnetischen Hyperfeinfelder als Funktion des Abstandes von der Grenzfläche sind in Abb. 5.16 dargestellt. Das Ergebnis läßt sich ähnlich der Fe/Cr- Grenzfläche beschreiben. In unmittelbarer Nähe zur Grenze treten zusätzliche Teilspektren mit vergrößerter Linienbreite auf, die die Intensität des Volumen-ähnlichen Hauptspektrums schwächen und mit steigender Entfernung der Sonde von der Grenzfläche nicht mehr zu beobachten sind. Auch hier kann man daher ihr Vorhandensein mit der Grenzfläche korrelieren. Die erwähnten Grenzflächenspektren treten bis zu einer Tiefe von 3 ML auf, d.h. auch an der Fe/Gd-Grenzfläche gibt es bei den angegebenen Präparationsbedingungen keine nennenswerte Diffusion. Die Interpretation dieser Zusatzspektren verläuft ähnlich der Deutung der Grenzflächenspektren beim Fe/Cr über das transferierte Hyperfeinfeld der Gd-Nachbarn. Da Fe- und Gd-Atome jedoch entsprechend dem Phasen-

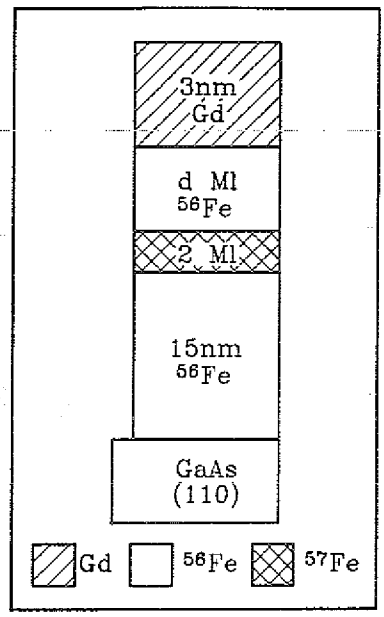


Abbildung 5.15: *Schichtaufbau der Fe/Gd-Schichten. Als Substrat wurde GaAs(110) eingesetzt. Auf epitaktischem Fe (Kontrolle mit RBS-Channeling) befand sich amorphes Gd (siehe Text). Aufbau und Präparationsbedingungen ansonsten identisch zum Fe/Cr-System. Abdeckung aus* 3 *nm* ^{56}Fe *oder* 5 *nm Al.*

diagramm nicht legieren und bei niedrigen Substrattemperaturen $T < 1000\,\mathrm{K}$ keine intermetallischen Verbindungen wie z.B. $GdFe_2$ gebildet werden [55], kann das Legierungsmodell hier nicht angewandt werden, da die transferierten Feldbeiträge nicht bekannt sind. Aufgrund der antiferromagnetischen Kopplung zwischen Gd- und Fe-Atomen [56] ist jedoch bekannt, daß das magnetische Hyperfeinfeld am Fe durch benachbarte Gd-Atome reduziert wird [57]. So zeigen z.B. Fe-Atome in einer Gd-Umgebung nur ein paramagnetisches Spektrum [58]. Fe-Atome in der Grenzfläche und an Stufen werden jedoch von einer *mittleren* Anzahl von Gd-Atomen umgeben sein, was zu *mittleren* Hyperfeinfeldern an der Grenzfläche führt. So zeigt Teilspektrum (IV) einen Wert von 23.5 T, was dem Hyperfeinfeld einer amorphen 50:50 Fe-Gd Mischung entspricht [59]. Eine detaillierte Auswertung der Grenzflächenspektren erscheint aus dem genannten Grund nicht sinnvoll. Der relative Flächenanteil der Grenzflächenspektren und damit die kristallographische Störung an der Grenzfläche ist etwas größer als beim Fe/Cr-System. Abb. 5.17 zeigt schematisch ein einfaches Modell der Grenzfläche zwischen Fe und Gd.

Auch im Fe/Gd-System ergibt sich eine Oszillation des magnetischen Hyperfeinfeldes als Funktion des Abstandes d von der Grenzfläche. Abb. 5.18 zeigt die experimentellen Resultate. Analog zum Fe/Cr-System ist wiederum das magnetische Hyperfeinfeld über dem Abstand d der Sondenlage von der Grenze aufgetragen. Neben der Absenkung des Feldes in der 1. Lage fällt auf, daß auch hier eine Anhebung des Feldes in der 2.,3. Lage stattfindet, wenngleich der Volumenwert nicht erreicht

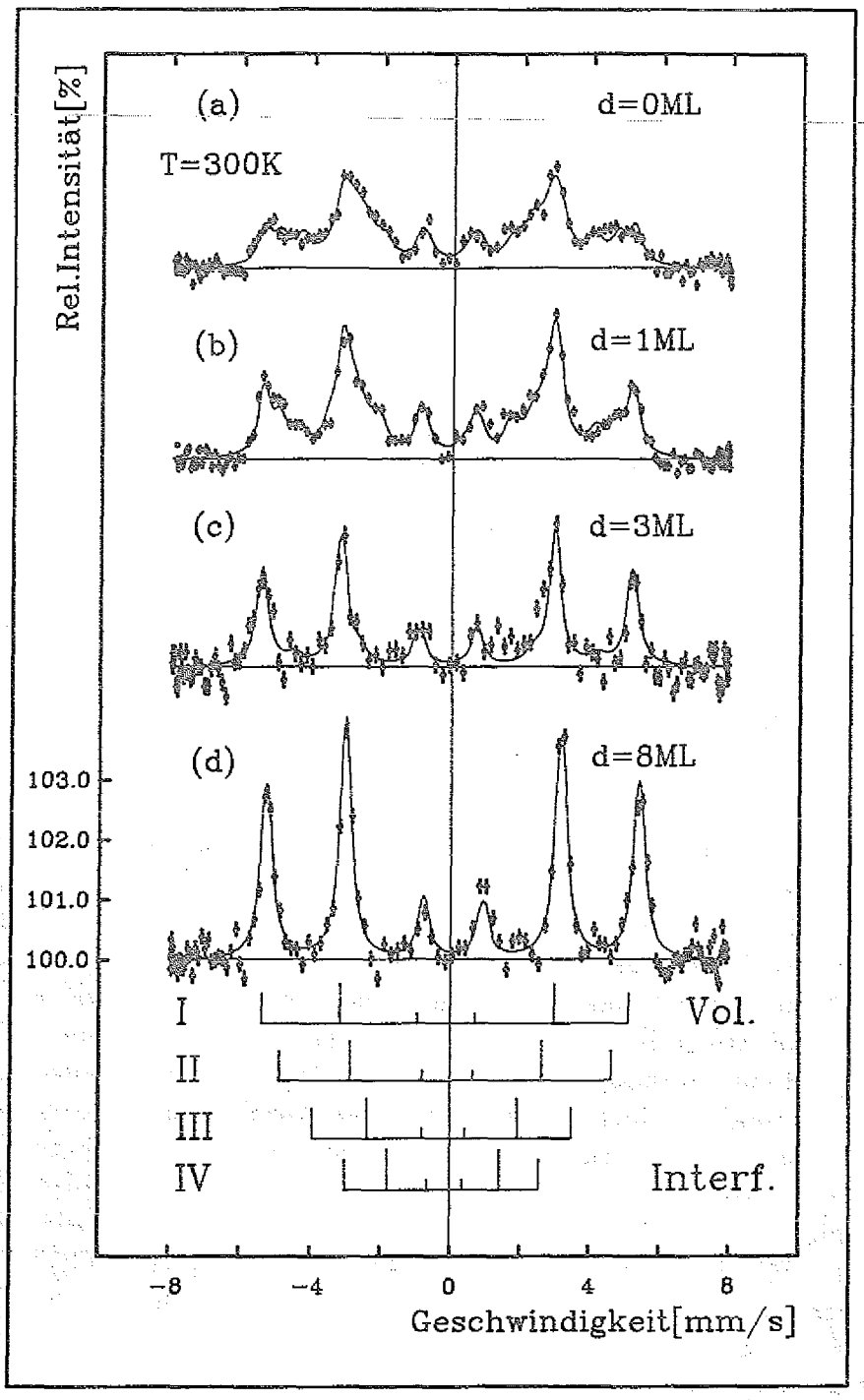


Abbildung 5.16: *Mößbauerspektren der Fe/Gd-Schichten mit (110)-orientiertem Fe und amorphem Gd nach Abb. 5.15. Der Abstand d zwischen* ^{57}Fe *-Sonde und Grenzfläche betrug: (a)* $d = 0\,ML$, *(b)* $d = 1\,ML$, *(c)* $d = 3\,ML$, *(d)* $d = 8\,ML$. *Die Dicke der Sondenschicht betrug* $2\,ML$ ^{57}Fe . *Alle Spektren wurden bei* $T = 300\,K$ *gemessen. Teilspektren I-IV durch Balkendiagramm angedeutet.*

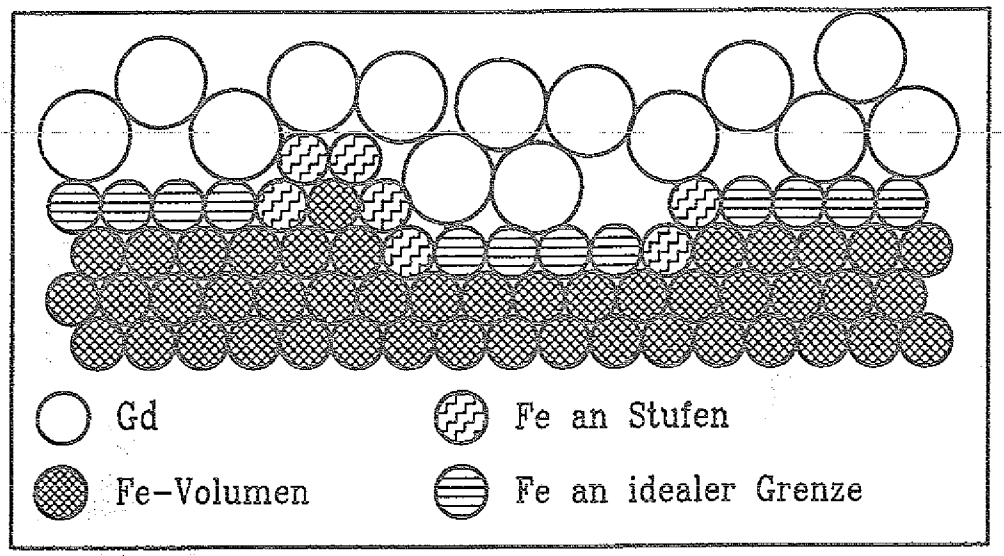


Abbildung 5.17: *Schematische Darstellung der Grenzfläche zwischen Fe und Gd. Aufgrund der unterschiedlichen Atomradien und der unterschiedlichen Kristallstruktur findet kein epitaktisches Wachstum des Gadoliniums auf der Fe-(110) Oberfläche statt.*

wird. Prinzipiell liegt aber ein ähnliches Verhalten wie beim Fe/Cr vor. Wesentlich ist jedoch, daß erst in der 18. Lage der Volumenwert des magnetischen Hyperfeinfeldes erreicht wird. Die Reichweite des Grenzflächeneinflusses ist also wesentlich größer als an der Fe/Cr-Grenzfläche.

Wie bereits erwähnt, wurden alle Schichten sofort nach der Präparation in-situ mittels CEMS gemessen. Kontrollmessungen nach einiger Zeit zeigen jedoch, daß die Proben nur zum Teil dieselben Resultate zeigen, d.h. nicht zuverlässig langzeitstabil sind! Einige der 2-4 Wochen alten Proben zeigten in Wiederholungsmessungen neben einem neu aufgetretenen paramagnetischen Anteil im Spektrum auch Hyperfeinfelder, die näher am Volumenwert lagen. Die Amplitude der Feldoszillation verringerte sich also im Laufe der Zeit, d.h. die in Abb. 5.18 gezeigten Resultate sind nur an einwandfreien Proben mit metallischem Gd meßbar. Die Veränderung der Probenstruktur wird vermutlich durch einen Oxidationseffekt in der Gd-Schicht hervorgerufen. RBS-Channeling Messungen an *diesen* Proben zeigten sowohl eine erhöhte Gd-Dicke als auch einen O_2-Anteil im Spektrum. Durch die relativ dünne Deckschicht aus 5 nm Al, bzw. 3 nm ^{56}Fe kommt es im Laufe der Zeit zu einer Oxidation des Gadoliniums, die offenbar bis zur Fe/Gd Grenzfläche voranschreitet. Zu Beginn weiterer Messungen (Temperaturabhängigkeit, Wiederholungsmessungen) wurde daher stets bei Raumtemperatur eine Kontrollmessung durchgeführt. Nur Proben, die reproduzierbare Resultate aufwiesen, wurden dann weiter untersucht.

Zusammengefaßt läßt sich die Fe/Gd-Grenzfläche in erster Näherung als eine amorphe 50:50 Legierung aus Fe und Gd beschreiben. Nennenswerte Diffusion fin-

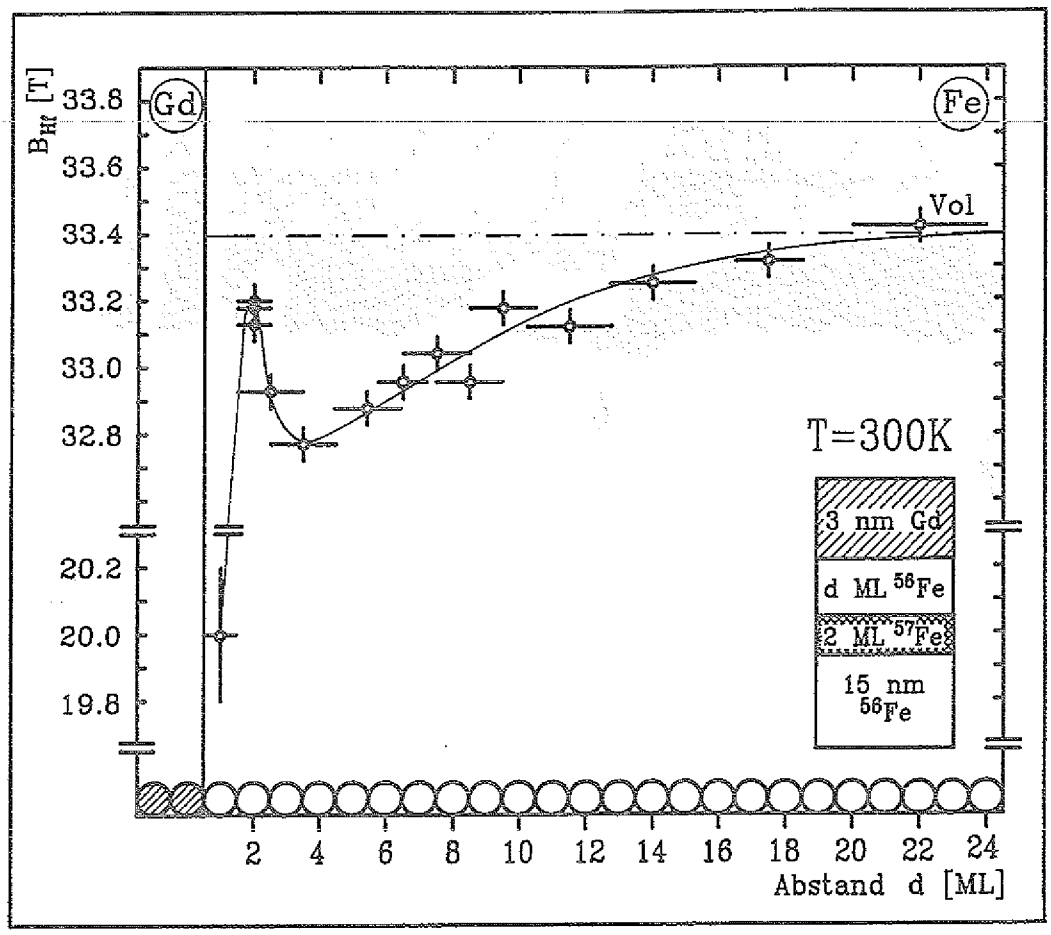


Abbildung 5.18: *Oszillation des magnetischen Hyperfeinfeldes B als Funktion des Abstandes d der* ^{57}Fe *-Sonde von der Fe/Gd Grenzfläche in Schichten mit dem angegebenen Aufbau in (110)-Orientierung der Fe-Schicht. Die Meßtemperatur lag bei* $T = 300\,K$.

det an der Grenzfläche nicht statt. Eine abstandsabhängige Oszillation des magnetischen Hyperfeinfeldes läßt sich ebenso wie an der Fe/Cr Grenzfläche nachweisen. Die Reichweite der Störung in der Fe-Schicht ist jedoch im Falle des Gadoliniums wesentlich größer und beträgt etwa. 18 ML.

5.1.3.2. Austauschkopplung

In völliger Analogie zum Fe/Cr-System läßt sich auch hier die Temperaturabhängigkeit des magnetischen Hyperfeinfeldes messen. Auch hier kann damit experimentell die Abweichung der Austauschkopplung vom Volumenwert bestimmt und eine Tiefenabhängigkeit dieser Abweichung ermittelt werden. In Abb. 5.19 (a) ist die Abweichung des Spinwellenparameters vom Volumenwert als Funktion des Grenzflächenabstandes aufgetragen. Ebenso wie die Oszillation des Hyperfeinfeldes reicht auch die Abweichung der Kopplung vom Volumenwert an der Fe/Gd-Grenzfläche offenbar

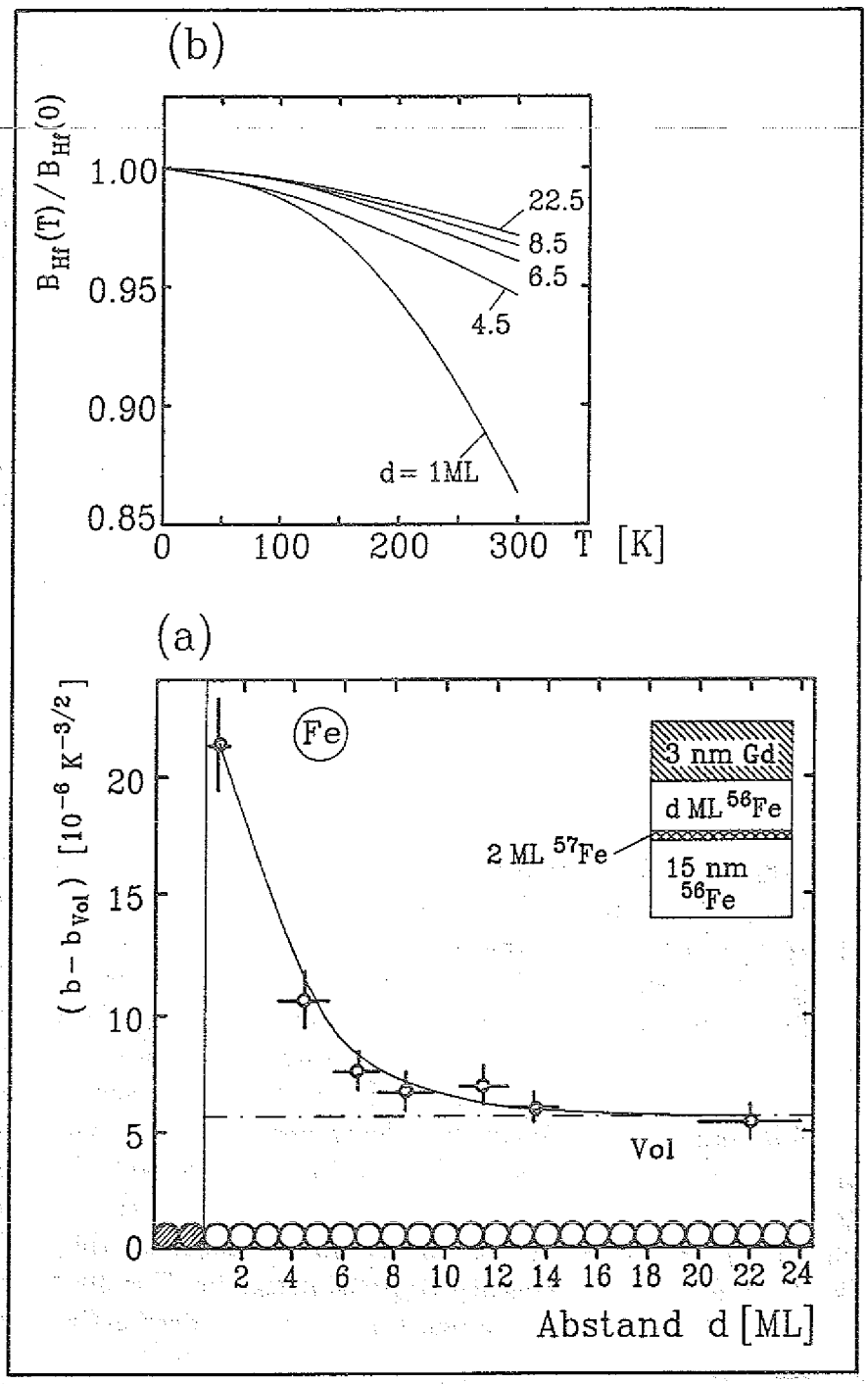


Abbildung 5.19: *Spinwellenparameter b als Funktion der Enfernung d von der Fe/Gd-Grenzfläche (a) und reduziertes Hyperfeinfeld $B_{Hf}(T)/B_{Hf}(0)$ als Funktion der Temperatur T (b). Die ausgezogenen Kurven in (b) stellen die experimentellen Ergebnisse dar, wobei der Übersichtlichkeit halber die Meßpunkte nicht mit eingetragen wurden.*

sehr viel tiefer in das Fe hinein als an der Fe/Cr-Grenze. Die Anpassung der Daten an eine theoretische Kurve zeigt wie beim Fe/Cr exponentiellen Verlauf mit

$$\Delta b = b(d) - b_{Vol} = 26.1 \exp(-d/\delta_{Gd}) \quad .$$

Analog zum Fe/Cr-System läßt sich die Kopplungslänge δ_{Gd} definieren, die hier einen Wert von $\delta_{Gd} = 2.7$ ML ergibt. Damit ist δ_{Gd} um den Faktor 4 größer als beim Fe/Cr-System. Sehr anschaulich wird die Reduktion der Kopplung im Vergleich zum Volumenwert, wenn man das magnetische Hyperfeinfeld B *direkt* über der Temperatur T aufträgt (Abb. 5.19 (b)). Die größte Abweichung liefert auch hier das Grenzflächenspektrum; erst mit steigender Entfernung von der Grenzfläche werden Volumenverhältnisse erreicht.

Zusammengefaßt ergeben sich beim Fe/Gd-System ähnliche Ergebnisse wie an der Fe/Cr-Grenzfläche. Neben einer Oszillation des magnetischen Hyperfeinfeldes und einer Störung bis zu einer Tiefe von ca. 18 ML ergibt sich eine ebenso weit reichende Abweichung der Austauschkopplung vom Volumenwert. Die Grenzfläche läßt sich wie eine amorphe 50:50 Fe/Gd Mischung beschreiben. Interdiffusion bzw. Durchmischung aufgrund von Wachstumsstufen an der Grenzfläche tritt nur bis zu einer Tiefe von ca. 3 ML auf.

5.1.4. Fe/Y-Grenzfläche

Die Reichweite der Hyperfeinfeldstörung im Fe/Gd-System ist mit einem Wert von etwa 18 ML sehr groß, so daß nicht ausgeschlossen werden kann, daß chemische Wechselwirkungen, d.h. Ladungstransfer zwischen Fe und Gd oder Gitterverzerrungen durch gerichtete chemische Bindungen ursächlich dafür verantwortlich sind. Um diese Einflüsse auszuschließen, wurden Experimente an der Fe/Y-Grenzfläche durchgeführt und mit den Resultaten im Fe/Gd-System verglichen. Yttrium ist chemisch dem Gd sehr verwandt, besitzt insbesondere die gleiche hcp- Gitterstruktur und hat darüberhinaus ähnliche Werte für Elektronegativität und Gitterkonstante. Im Gegensatz zum Gd weist Y jedoch kein 4f-Spinmoment auf, d.h. chemische und magnetische Einflüsse lassen sich auf diese Weise gut trennen. Der Aufbau der Fe/Y-Schichten entspricht den Fe/Gd-Schichten nach Abb. 5.15. Abb. 5.20 zeigt die Abstandsabhängigkeit des magnetischen Hyperfeinfeldes bei $T = 300$ K. Im Prinzip verläuft die Meßkurve völlig analog zu den Ergebnissen an der Fe/Cr- bzw. Fe/Gd-Grenzfläche. Im Gegensatz zum Gd liegt die Reichweite der Störung jedoch bei etwa 12 ML. Die größere Reichweite der Grenzflächenstörung beim Gd liegt daher sehr wahrscheinlich an den speziellen magnetischen oder elektronischen Eigenschaften des Gadoliniums.

Zusammengefaßt ergibt sich an der Fe/Y-Grenzfläche ein oszillatorisches Verhalten des magnetischen Hyperfeinfeldes mit kleinerer Reichweite der Störung als beim Fe/Gd-System. Dieser Zusammenhang kann vermutlich auf magnetische oder elektronische Eigenschaften des Gadoliniums zurückgeführt werden.

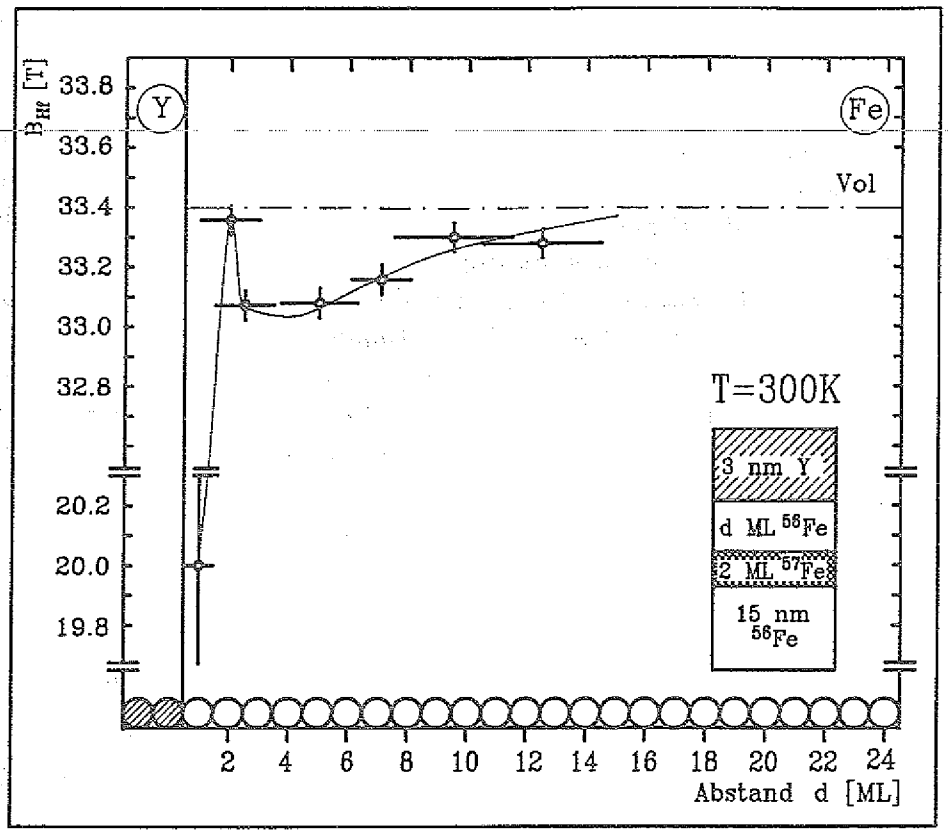


Abbildung 5.20: *Abstandsabhängigkeit des magnetischen Hyperfeinfeldes an der Grenzfläche Fe/Y. Alle Messungen wurden bei Raumtemperatur durchgeführt.*

5.1.5. Vergleich der Grenzflächen

Die Messungen der Tiefenabhängigkeit des Hyperfeinfeldes $B_{Hf}(d, T = 300\,\mathrm{K})$ an der Fe/X (X=Cr,Gd,Y) Grenzfläche zeigen zusammengefaßt folgendes Ergebnis. Die gemessenen Mößbauerspektren variieren als Funktion des Grenzflächenabstandes d der 2 ML dicken ^{57}Fe -Sondenschicht. Für $d = 0$ ML läßt sich ein Spektrum in zwei Anteile zerlegen, die umgerechnet in Dicke jeweils ca. 1 ML entsprechen. Der erste Anteil umfaßt die Grenzflächenspektren, die aufgrund der geänderten Umgebung der Fe-Atome ein gegenüber dem Volumenwert stark reduziertes Hyperfeinfeld zeigen. Sie können im Falle der Fe/Cr-Grenzfläche wegen der kurzen Reichweite der Fe-Cr Wechselwirkung durch ein Legierungsmodell unterschiedlichen Nachbarschaftskonfigurationen zugeordnet werden. Für Gd und Y verläuft die Begründung ähnlich. Hier liegt jedoch aufgrund der unterschiedlichen kristallographischen Eigenschaften eine *mittlere* Umgebung der Fe-Atome an der Grenzfläche vor, die nicht mehr nach einem einfachen lokalen Modell mit dem Feld korreliert werden kann. Der zweite Teil besteht aus dem Volumenhyperfeinfeld, das Fe-Atomen in einer Fe-Matrix entspricht.

In allen gemessenen Systemen ist der prinzipielle Verlauf des Hyperfeinfeldes gleich! Einer starken Absenkung auf Werte um $B \approx 22\,\mathrm{T}$ in der ersten Lage folgt ein Anstieg in der zweiten und dritten Lage im Fe. Ausnahme ist die freie Fe(110)-Oberfläche, hier liegt die Absenkung mit $B_1 \approx 30\,\mathrm{T}$ sehr nahe am Volumenwert. Der weitere Verlauf der $B_{Hf}(d)$-Kurve hängt von den spezifischen Eigenschaften der jeweiligen Grenzfläche ab. Dieser Zusammenhang legt die Vermutung nahe, daß die gemessene Oszillation, d.h. die Absenkung in der ersten und Anstieg in der zweiten, dritten Lage von der gestörten Symmetrie des Eisens selbst herrührt, während der weitere Verlauf von der Modifikation der Fe-Bandstruktur abhängt. Im Falle des Chroms übersteigt die Erhöhung in der zweiten/dritten Lage sogar den Volumenwert bei Raumtemperatur, während in allen anderen Fällen ein lokales Maximum erreicht wird. Ist das Feld an der Fe/Cr-Grenzfläche bereits in der 4.Lage auf den normalen Volumenwert reduziert, so spielen beim Gd und Y längerreichweitige Wechselwirkungen eine Rolle. Ein Vergleich zur freien Fe(110)-Oberfläche [47] zeigt, daß Y sich nahezu neutral verhält, d.h. die gleiche Abstandsabhängigkeit wie das Vakuum vorliegt. Im Gd dagegen reicht die Auswirkung der Grenzfläche bis zur 18. Lage in das Fe hinein. Abb. 5.21 zeigt in der Übersicht alle Meßdaten auf einen Blick. Die eigentlichen Meßpunkte sind in diesem Diagramm nicht eingezeichnet.

Der relativ kurzreichweitige Verlauf im Fe/Cr-System im Vergleich zur Fe/Y-Grenzfläche wird durch Bandstrukturrechnungen in Systemen mit wenigen Fremdatomen in einer Fe-Matrix (*Impurity calculations*) bestätigt [10]. Im Falle des Fe/Cr-System konnte darüberhinaus der gesamte experimentell ermittelte $B_{Hf}(d)$-Verlauf durch Bandstrukturrechnungen bestätigt werden, wie Abb. 5.22 zeigt. Die Anwendung der LMTO-Methode (*Linear Muffin Tin Orbital*) [11] auf Schichten aus 13 Lagen Fe und 7 Lagen Cr zeigt klar die Reduktion des Hyperfeinfeldes in der ersten Lage und die Überhöhung in der 2., 3. Lage im Eisen. Deutlich sichtbar ist auch, daß das magnetische Moment in Grenzflächennähe nicht mehr proportional zum Hyperfeinfeld verläuft, da Rumpf- und Leitungselektronenpolarisation einen unterschiedlichen Verlauf zeigen. Um die numerischen Ergebnisse besser mit den experimentellen Daten vergleichen zu können, wird in diesem Bild von der im Rahmen der vorliegenden Arbeit vereinbarten Konvention abgewichen und das Hyperfeinfeld mit Vorzeichen dargestellt. Leider fehlen zur Zeit theoretische Bandstrukturrechnungen an Fe/Gd- und Fe/Y-Grenzflächen, so daß in diesen Fällen eine theoretische Überprüfung nicht erfolgen kann.

Auch der Spinwellenparameter b zeigt beim Chrom einen kurzreichweitigen Verlauf bis zur 4.Lage, wie die Bestimmung der Kopplungslänge $\delta_{Cr} = 0.69\,\mathrm{ML}$ zeigt. Die über das Bloch'sche Spinwellengesetz korrelierte Änderung der Austauschkopplung ist somit durch den direkten Überlapp der 3d-Elektronenwellenfunktionen von Fe und Cr an der Grenzfläche erklärbar. Die Messungen des Spinwellenparameters im Fe/Gd-System ergeben eine um den Faktor 4 erhöhte Kopplungslänge $\delta_{Gd} = 2.7\,\mathrm{ML}$ im Vergleich zum Chrom an, d.h. auch die Störung der Kopplung wirkt sich tiefer in das Eisen aus. Nach $6\delta_{Gd} = 16.2\,\mathrm{ML}$ ist die Störung des Spin-

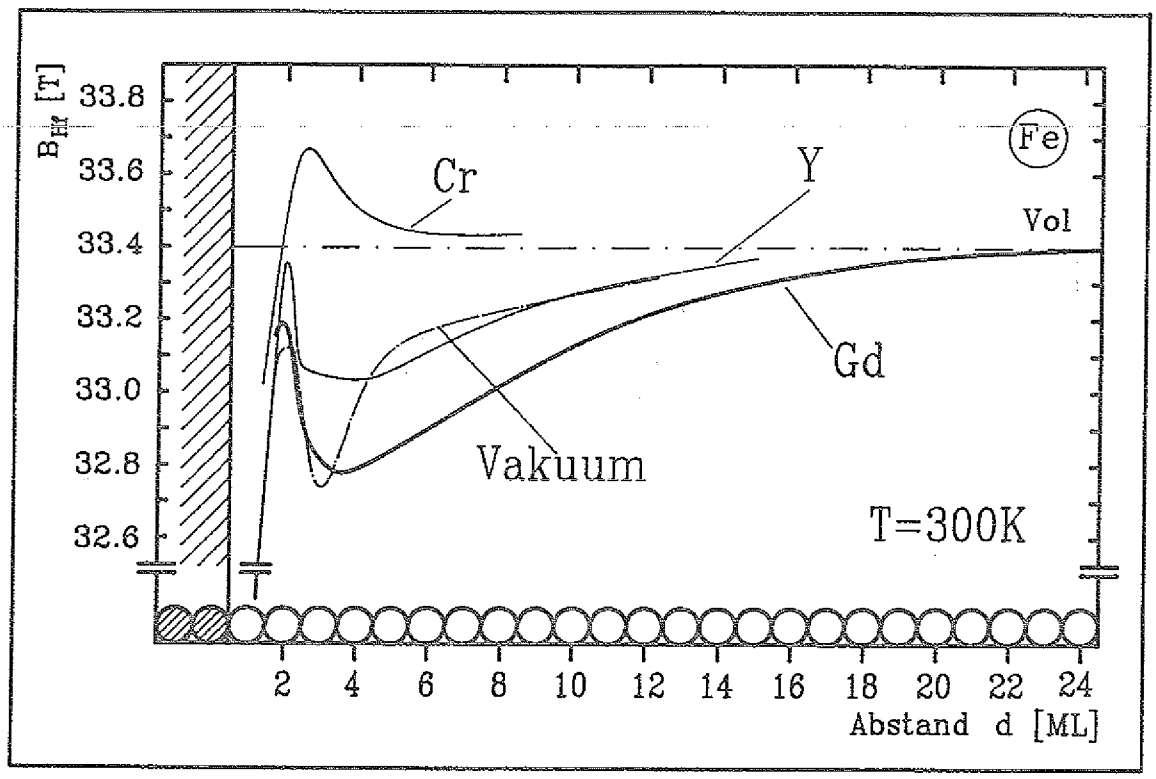


Abbildung 5.21: *Graphische Zusammenfassung der Oszillation des magnetischen Hyperfeinfeldes B_{Hf} als Funktion des Sondenabstands d. Die ausgezogenen Linien stellen experimentelle Kurven dar. Die Meßpunkte wurden der Übersichtlichkeit halber nicht eingezeichnet ($T = 300\,K$). Daten der freien Fe(110)-Oberfläche aus* [47] *sind bezogen auf $B_{Vol} = 33.4\,T$.*

wellenparameters b um $\exp(-6\delta) = 2.5 \cdot 10^{-3}$ abgeklungen. Dieses Resultat befindet sich in guter Übereinstimmung mit der Reichweite der Störung von 18 ML.

Yttrium verhält sich im Vergleich zur freien Oberfläche neutral, d.h. im Rahmen der Fehlergrenzen sind beide $B(d)$-Kurven nahezu identisch, abgesehen von der starken Absenkung des Hyperfeinfeldes in der ersten Lage, die nicht an der freien Fe-Oberfläche auftritt. Die Fe/Gd-Grenzfläche beeinflußt das Fe bis zu einer wesentlich größeren Tiefe als Cr und Y. Dieses Ergebnis kann im Prinzip auf zwei verschiedene Ursachen zurückgeführt werden. Elementares Gadolinium besitzt die Elektronenkonfiguration $4f^7 5d^1 6s^2$. Das 5d-Elektron überlappt wesentlich stärker mit den 3d-, 4s-Elektronen vom Fe als die 3d-Elektronen des Chroms und greift somit tiefer in das Fe ein. Das gleiche Argument läßt sich auch für die ($4d^1 5s^2$) Elektronenkonfiguration des Yttrium anführen. Diese Interpretation führt allerdings zu Widersprüchen im Vergleich Y zum Vakuum. Man sollte erwarten, daß die Grenzflächenstörung für Y eine größere Reichweite besitzt als im Falle der freien Fe-Oberfläche. Dies wird

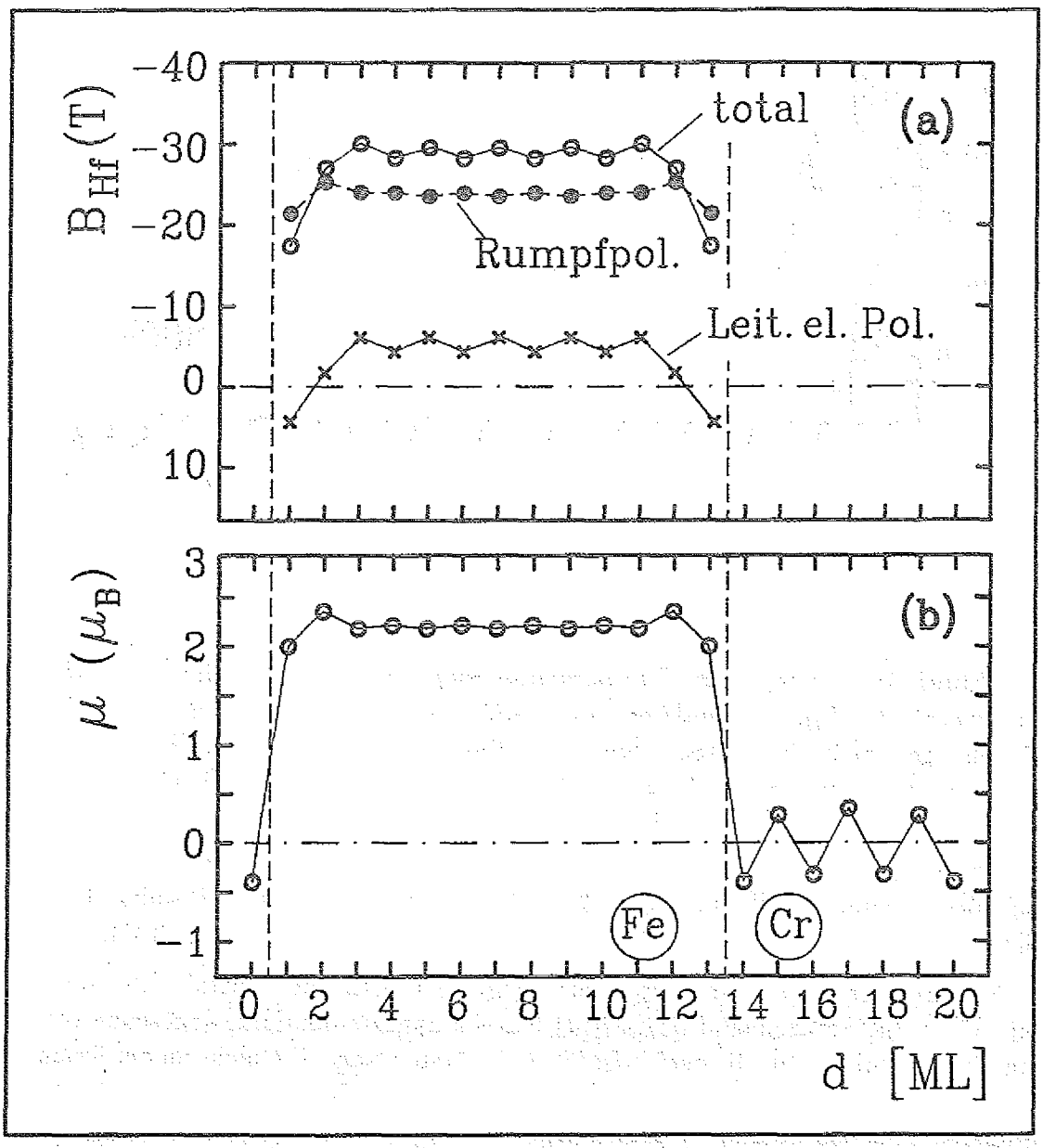


Abbildung 5.22: *LMTO-Bandstrukturrechnungen am System Fe/Cr. Dargestellt ist sowohl das magnetische Hyperfeinfeld als auch das magnetische Moment. Um diese numerischen Resultate mit den experimentellen Ergebnissen besser vergleichen zu können, sind alle Daten mit Vorzeichen eingetragen.*

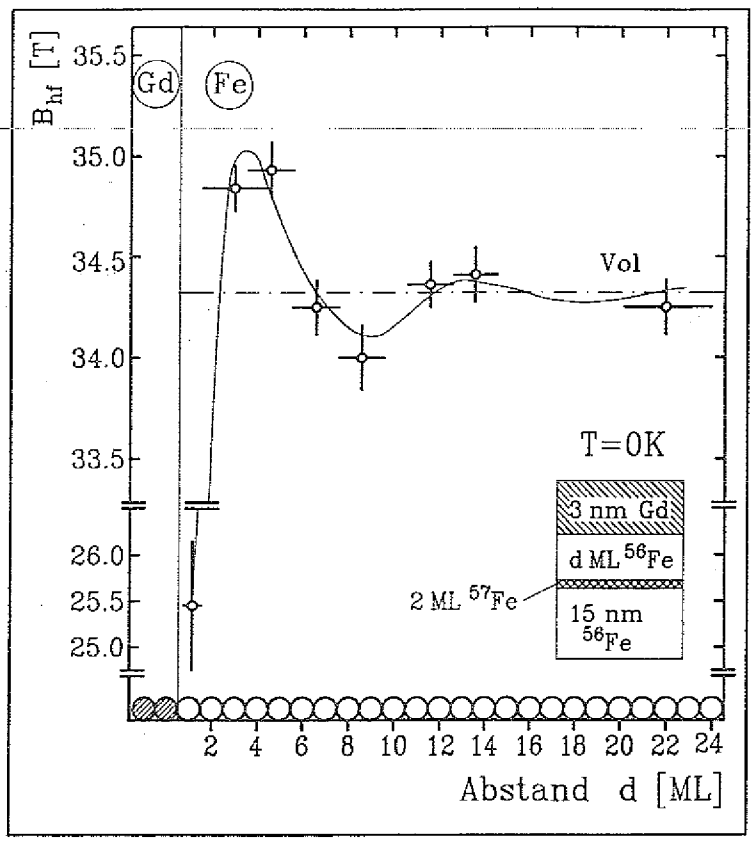


Abbildung 5.23: *Sättigungswerte der magnetischen Hyperfeinfelder an der Fe/Gd-Grenzfläche, extrapoliert aus Messungen im Intervall* $85\,K \leq T \leq 300\,K$. *Die eingetragene Kurve stammt aus der Rechnung.*

jedoch experimentell nicht bestätigt, Y verhält sich im Prinzip neutral.

Wahrscheinlicher ist dagegen eine andere Deutung. Der einzig relevante Unterschied zwischen Y und Gd liegt im großen $4f^7$-Spinmoment des Gadoliniums, das über die Austauschwechselwirkung in der Lage ist, Leitungselektronen zu polarisieren, die wiederum ihre Polarisationsinformation an die Fe-Kerne abgeben. Dieser Effekt sollte der RKKY-Wechselwirkung ähnlich sein, d.h. einen oszillatorischen Anteil im Fe liefern. Eine Überprüfung dieser Aussage setzt die Trennung des Polarisationseffektes von der Hyperfeinfeldreduktion durch verringerte Austauschkopplung voraus. Durch die Messung der Sättigungsfelder bei tiefen Temperaturen lassen sich beide Effekte separieren. Abb. 5.23 zeigt das experimentelle Resultat für die Fe/Gd-Grenzfläche. Im zeitlichen Rahmen der vorliegenden Arbeit konnte eine endgültige Klärung dieser Frage nicht erzielt werden. Die bisher vorliegenden Daten gestatten jedoch die Hypothese, daß tatsächlich eine der RKKY-Wechselwirkung ähnliche, abstandsabhängige Oszillation des Hyperfeinfeldes auftritt. Eine Anpassung der theoretischen Funktion, die in zweidimensionalen Systemen eine quadratische Abstandsabhängigkeit aufweist [43], [44] an die gemessenen Daten ist als Kurve in

Abb. 5.23 eingezeichnet. Die Theorie ergibt

$$B_{Hf} = B_{Vol} + \frac{A}{2k_F} \cdot \frac{\cos(2k_F d)}{d^2},$$

mit den Fitparametern $A = 8.1\,[\mathrm{T/ML}]$ und $2k_F = 0.7\,[1/\mathrm{ML}]$. Eine exakte Deutung der unterschiedlichen Abstandsabhängigkeiten an Grenzflächen setzt die genaue Kenntnis der jeweiligen Bandstruktur voraus. Erst genaue Rechnungen werden zeigen, ob die in dieser Arbeit gemessenen Resultate mit bestimmten Modifikationen der Bandstruktur und/oder mit dem magnetischen Verhalten der untersuchten Elemente korreliert sind. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit konnte eine Übereinstimmung mit den zur Zeit bereits vorhandenen theoretischen Ergebnissen gefunden werden.

5.2. Magnetische und strukturelle Eigenschaften

5.2.1. Problemstellung

Dreifachschichten mit dem Aufbau X/Fe/X (X=Gd,Y) stellen das Grundelement von Vielfachschichtsystemen (sog. *Multilayer*) dar, die zunehmend Interesse für mögliche technische Anwendungen finden. In diesen Systemen wurden Zusammenhänge zwischen strukturellen und magnetischen Eigenschaften mittels CEMS, MOKE (magnetooptischer Kerreffekt), Faraday-Waage, VSM (Vibrationsmagnetometrie) und HRTEM (Hochaufgelöste Elektronenmikroskopie) untersucht. In theoretischen Untersuchungen der antiferromagnetischen Kopplung im Fe/Cr/Fe-System wird je nach Modell antiferro- oder paramagnetisches Chrom in der Zwischenschicht angenommen. Für eine experimentelle Überprüfung ist daher die Untersuchung des magnetischen Ordnungszustandes in diesem Schichtsystem von Interesse.

Bedingt durch diese Aufgabenstellung ist eine Einteilung des Kapitels in zwei Teile sinnvoll. Im ersten Teil werden Fe/Cr/Fe-Schichten mit Hilfe der CEMS-Methode auf magnetische Ordnungstemperaturen hin untersucht. Im zweiten Teil wird zunächst über strukturelle und wachstumsbedingte Eigenschaften der Seltenerd-Eisen Systeme berichtet und im Anschluß daran mit magnetischen Phänomenen verglichen.

5.2.2. Fe/Cr/Fe-System

Wie in Kap. 5.1.1 bereits berichtet, tritt im Schichtsystem Fe/Cr/Fe bei einer Dicke der Chrom-Zwischenschicht von $d_{Cr} = 0.6\,\mathrm{nm}$ das absolute Maximum der antiferromagnetischen Kopplung auf. Da die ^{57}Fe -CEMS Methode durch den Einsatz von Sondenschichten sehr empfindlich grenzflächeninduzierte magnetische und

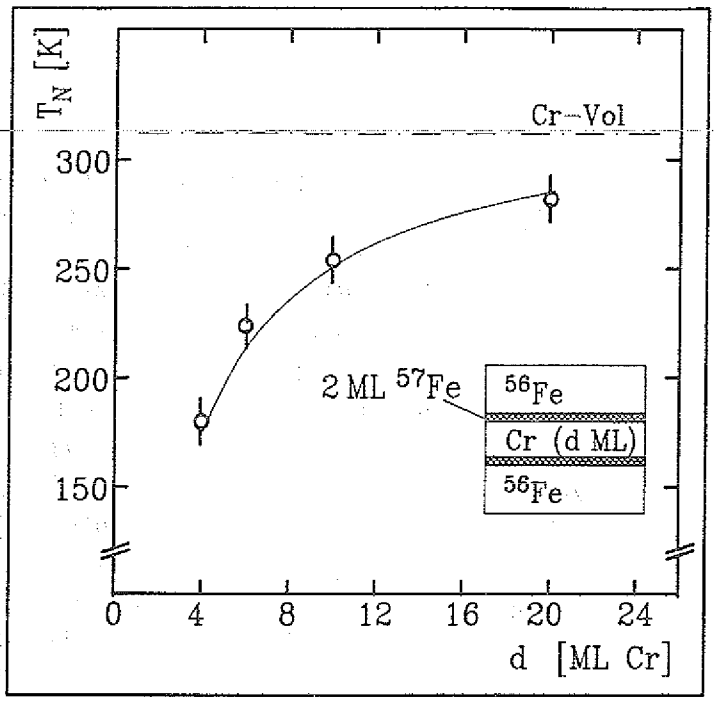


Abbildung 5.24: *Verlauf der Néel-Temperatur dünner Cr-Schichten in Abhängigkeit der Chromdicke d_{Cr}.*

elektronische Effekte detektieren kann, sollten Zusammenhänge zwischen magnetischem Hyperfeinfeld und antiferromagnetischer Kopplung meßbar sein. Zur Untersuchung wurden Schichten mit einem Aufbau nach 5.7 (b) (Seite 38) aufgedampft. Zu beiden Seiten der Chromschicht wurde dazu jeweils eine Sondenlage aus 2 ML ^{57}Fe eingebaut, während die Cr-Dicke im Bereich $d_{Cr} = 1 - 20$ ML variiert wurde. Als Grenzwert für dickes Chrom diente der Schichtaufbau mit der größten Dicke von $d_{Cr} = 20$ ML und System (c) nach Abb. 5.7. Wie im letzten Kapitel bereits diskutiert, folgt das magnetische Hyperfeinfeld im Temperaturbereich $85\,\mathrm{K} \leq T \leq 300\,\mathrm{K}$ dem Bloch'schen $T^{3/2}$-Spinwellengesetz. In Abb. 5.11 (Seite 46) ist im Temperaturverlauf des Feldes in der Nähe der Raumtemperatur eine kleine Unstetigkeit zu erkennen, die jedoch nur bei Teilspektrum (I), dem Spektrum der idealen Grenzfläche, deutlich zu sehen ist. Bei den Feldern der Fe-Atome an Stufenpositionen (II),(III) ist sie nur noch andeutungsweise, beim Volumenfeld (IV) gar nicht mehr erkennbar. Die gezeigte Messung wurde am Schichtsystem (b) nach Abb. 5.7 durchgeführt. Die erwähnte Unstetigkeit liegt bei der Néel-Temperatur des Volumen-Chroms, was eine Zuordnung sehr wahrscheinlich macht. Nach dieser Vorstellung detektiert die erste, an das Chrom angrenzende Fe-Schicht über die transferierten Hyperfeinfelder den magnetischen Ordnungszustand und dementsprechend die magnetische Ordnungstemperatur T_N der dünnen Cr-Schicht. Variiert man nun die Dicke des Chroms, so erhält man den Verlauf der Néel-Temperatur über der Dicke, wie Abb. 5.24 zeigt.

An die gemessenen Daten läßt sich ein Potenzgesetz anpassen

$$\frac{T_N(\infty) - T_N(d)}{T(\infty)} = c \cdot d^{-\lambda}$$

mit $c = 1.65 \pm 0.6$ und $\lambda = 1.0 \pm 0.2$. Für $T_N(\infty)$ wurde die Ordnungstemperatur von Volumen-Chrom ($T_N = 311\,K$) eingesetzt. Ein solches Potenzgesetz wird üblicherweise benutzt, um die Dickenabhängigkeit der Curietemperatur dünner ferromagnetischer Filme zu beschreiben [60], [61]. Der Exponent variiert dabei stets im Intervall von $\lambda = 1.0 - 2.0$ [60], [62]. Kürzlich durchgeführte Experimente an dünnen Ni-Filmen ergaben Werte von $\lambda = 1.42 - 1.44$ [62], [63]. Mit einem Wert von $\lambda = 1.0$ weicht der in der vorliegenden Arbeit ermittelte Exponent ab. Dieser Vergleich ist nicht überraschend, da infolge des speziellen Schichtaufbaus (antiferromagnetische Schicht zwischen zwei ferromagnetischen Schichten) sicher andere Verhältnisse vorliegen. Zusätzlich können möglicherweise Legierungseffekte an der Fe/Cr-Grenzfläche eine Rolle spielen. Wie aus dem magnetischen Phasendiagramm [64] zu ersehen ist, beeinflussen bereits wenige Fe-Atome die Néel-Temperatur von Chrom ganz wesentlich. Der Effekt wird aber in der Hauptsache nicht durch diese Legierungszone bestimmt, wie die Messungen zeigen, da ansonsten alle Proben bei gleichen Präparationsbedingungen die gleiche Legierungszonenbreite und somit die gleiche Ordnungstemperatur aufweisen sollten. Weitere Einflüsse, wie etwa dickenabhängige Isomerieverschiebungen oder Veränderungen des magnetischen Hyperfeinfeldes, konnten nicht festgestellt werden.

Zusammengefaßt ergibt sich, daß für dünne Cr-Schichten eine Absenkung der magnetischen Ordnungstemperatur auftritt, die sich als Funktion der Dicke durch ein Potenzgesetz beschreiben läßt und zu Néel-Temperaturen im Bereich $T_N = 180\,\mathrm{K} - 230\,\mathrm{K}$ im Dickenbereich der antiferromagnetischen Kopplung führt. Die Konsequenz dieses Resultates ergibt somit paramagnetisches Chrom bei Raumtemperatur, d.h. die auch bei $T = 300\,\mathrm{K}$ beobachtete antiferromagnetische Kopplung setzt offenbar kein antiferromagnetisches Chrom voraus. Dieses Ergebnis unterstützt das Modell von Wang et al. [42], das die Kopplung zweier ferromagnetischer Schichten über eine paramagnetische Zwischenschicht behandelt.

5.2.3. X/Fe/X-System (X=Gd,Y)

5.2.3.1. Wachstum in Gd/Fe/Gd

Alle Schichten wurden sowohl auf GaAs(110)- als auch auf Quarzglassubstrate aufgedampft, um substratabhängige Einflüsse zu erkennen. Da Gadolinium jedoch auf beiden Substraten nicht epitaktisch aufwächst, waren die i.f. beschriebenen Resultate wie zu erwarten identisch. Zwei verschiedene Schichtsysteme wurden untersucht, wie Abb. 5.25 zeigt. In beiden Fällen befanden sich insgesamt $0.14 - 7.0\,\mathrm{nm}$ Fe zwischen Gd. In Aufbau (a) bestand die gesamte Fe-Schicht aus dem Mößbauerisotop ^{57}Fe , während in (b) nur eine ca. 0.6 nm dicke Sonde aus ^{57}Fe (entsprechend

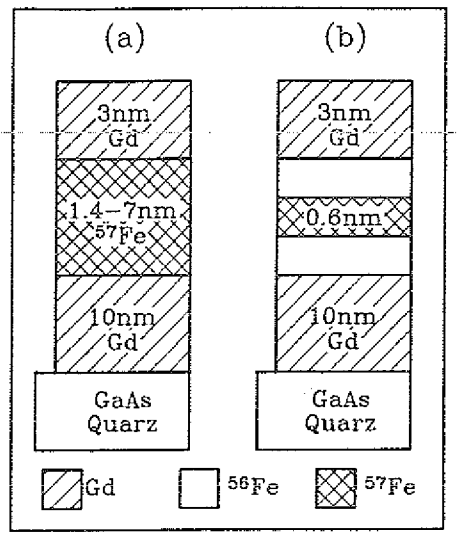


Abbildung 5.25: *Schichtaufbau der gemessenen Gd/Fe/Gd-Schichten. In (a) besteht die gesamte Fe-Zwischenschicht aus* ^{57}Fe *, während in (b) eine* ^{57}Fe *-Sonde aus* 0.6 *nm in* ^{56}Fe *eingebaut ist. Minimale Fe-Dicke* $d_{Fe} = 0.14$ *nm, maximale Dicke* $d_{Fe} = 7$ *nm. Abdeckung aus* 3 *nm* ^{56}Fe *oder* 5 *nm Al.*

etwa 3 ML in einer Schicht mit Lagenwachstum) in eine Schicht aus ^{56}Fe eingebaut war. Mit dem letztgenannten Schichtaufbau war es möglich, an genau definierten Stellen im Fe magnetische Eigenschaften zu untersuchen.

Alle Schichten wurden bei Raumtemperatur gemessen. In Abhängigkeit von der Fe-Zwischenschichtdicke d konnte ein völlig unterschiedliches Aussehen der Mößbauerspektren festgestellt werden. Alle Spektren konnten in genau drei Teilspektren zerlegt werden, die mit Typ A, B und P (Abb. 5.26) bezeichnet wurden. Für sehr kleine Fe-Dicken $d \leq 0.4$ nm erhält man *nur* Spektrum P, das ein paramagnetisches Spektrum mit etwas vergrößerter Linienbreite darstellt. Es spaltete auch bis zu einer Temperatur $T \approx 85$ K nicht magnetisch auf.

Oberhalb der Dicke $d = 0.4$ nm tritt zusätzlich ein weiteres, mit Typ A bezeichnetes Spektrum auf, das Spektren ähnelt, wie man sie von amorphen Materialien her kennt [57]. In diesen existiert eine breite Verteilung magnetischer Hyperfeinfelder. Im vorliegenden Fall beträgt der Mittelwert der Verteilung $B \approx 21$ T ($T = 300$ K) für Proben mit $d > 0.8$ nm. Im Dickenbereich $0.4\,\text{nm} \leq d \leq 0.8$ nm steigt B von 0 T–21 T an.

Die Situation ändert sich schlagartig, wenn man die kritische Dicke $d_{krit} = 2.3 \pm 0.1$ nm überschreitet. Die dann gemessenen Spektren bestehen zum überwiegenden Teil nur noch aus dem Teilspektrum vom Typ B, während der Anteil von Typ A drastisch reduziert wird (Abb. 5.27). Typ B zeigt ein für bcc-Eisen typisches Sechslinienspektrum mit etwas verbreiterten Linien und geringfügig reduziertem Hyperfeinfeld $B \approx 31$ T...32.5 T (zum Vergleich Volumen-Fe mit $B = 33.3$ T), das den Volumenwert jedoch auch bei $d_{Fe} = 7$ nm nicht ganz erreicht. Während dieses Spek-

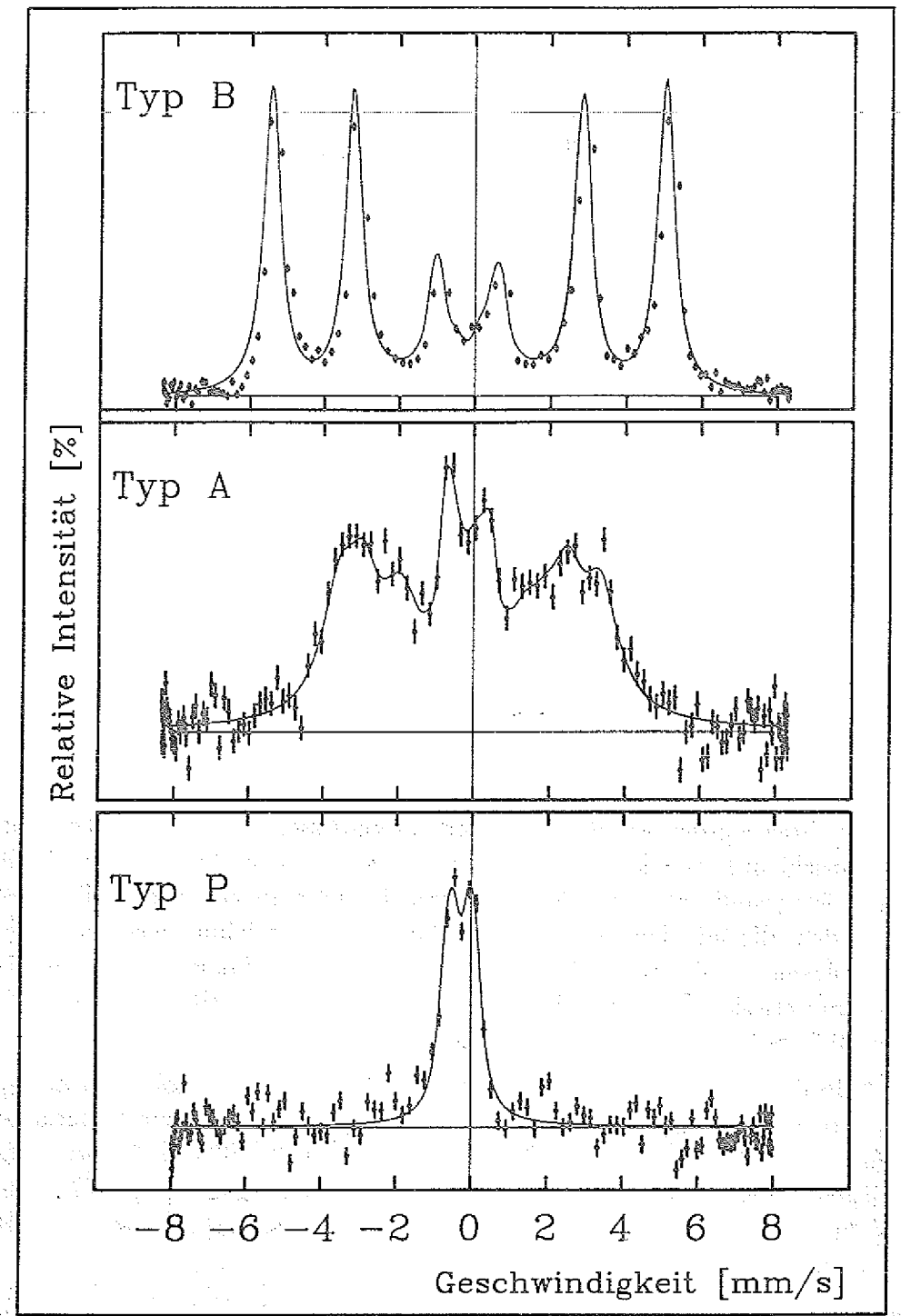


Abbildung 5.26: *Typische Mößbauerspektren im Schichtaufbau Gd/Fe/Gd nach Abb. 5.25. Je nach Dicke d der Fe-Zwischenschicht läßt sich ein grundsätzlich verschiedenes Aussehen erkennen. Zur Definition der Typen A, B, P siehe Text.*

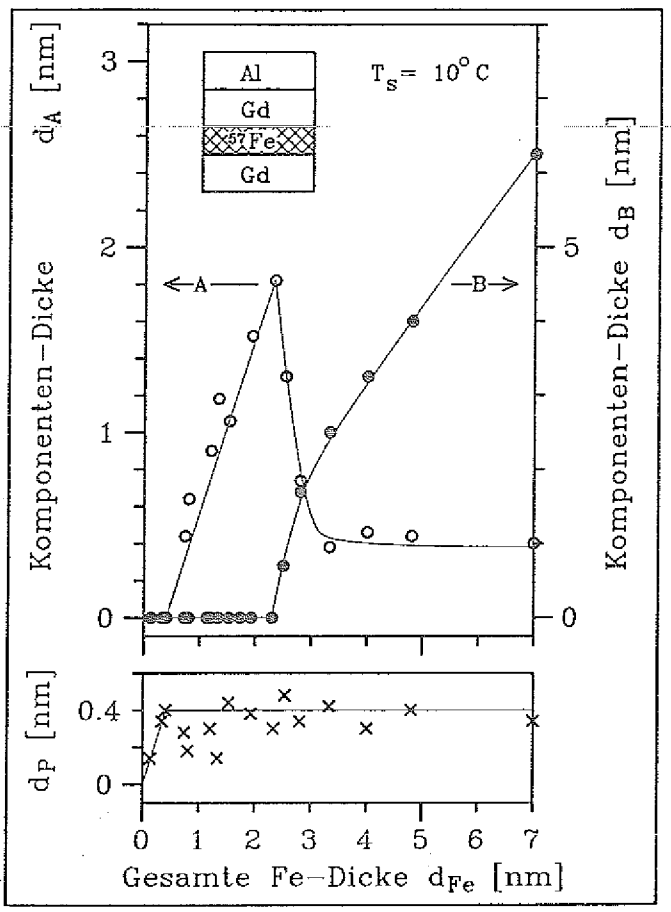


Abbildung 5.27: *In Dicke umgerechneter relativer Anteil (Komponenten-Dicke) der drei Teilspektren P,A,B, aufgetragen über der gesamten Fe-Dicke. Alle gemessenen Spektren konnten in diese drei Teilspektren zerlegt werden (alle Spektren bei $T = 300\,K$ gemessen).*

trum die für Eisen typische Isomerieverschiebung $S \approx -0.1$ mm/s aufweist, sind die Daten für die A- und P-Spektren verschoben zu $S \approx -0.15$ mm/s... $-$ 0.18 mm/s, was gleichbedeutend ist mit einer Erhöhung der s-Elektronendichte am Ort der ^{57}Fe - Kerne. Alle gemessenen Spektren konnten durch eine Überlagerung der drei genannten Spektren angepaßt werden. Der jeweilige relative Flächenanteil am gesamten Spektrum kann einer absoluten Dicke zugeordnet werden, wenn man Lagenwachstum annimmt (durch HRTEM bestätigt, siehe Abb. 5.29, Seite 70). Die Dicken der drei Teilspektren P, A, B für alle gemessenen Proben sind in Abb. 5.27 dargestellt. Für $d \leq 0.4$ nm besteht demnach ein gemessenes Spektrum ausschließlich aus Typ P, dessen umgerechnete Dicke mit steigender Fe-Gesamtdicke nicht weiter zunimmt, d.h. $d_P = const.$ Im Bereich $0.4\,\text{nm} \leq d \leq d_{krit}$ (mit $d_{krit} = 2.3 \pm 0.1$ nm) steigt der Dickenanteil von Typ A linear mit der gesamten Fe-Dicke an. Bei Erreichen von d_{krit} wird dieser Anteil stark reduziert auf Kosten des dann erstmalig auftretenden Spektrums vom Typ B.

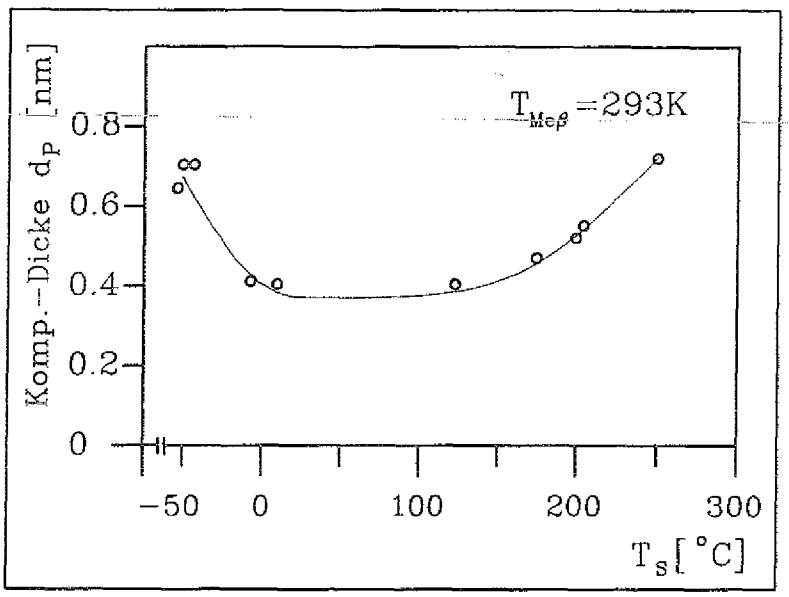


Abbildung 5.28: *Abhängigkeit des in Dicke umgerechneten Anteils von Spektrum P am gesamten Spektrum als Funktion der Substrattemperatur T_S während des Aufdampfens.*

Eine Deutung des Wachstumsverhaltens der Fe/Gd-Schichten läßt sich aus der Dickenabhängigkeit der Mößbauerspektren ableiten. Die Aufdampfrate während der Herstellung ist offenbar nur von untergeordneter Bedeutung. Schichten in den wichtigen Dickenbereichen wurden mit Raten von $1 \cdot 10^{-3} - 0.5 \cdot 10^{-2}$ nm/s hergestellt. Die gemessenen Spektren zeigten keine Abweichungen vom beschriebenen Resultat. Für das paramagnetische Spektrum P konnte jedoch eine Abhängigkeit von der Substrattemperatur während des Aufdampfens festgestellt werden. Sie ist in Abb. 5.28 dargestellt. Im Temperaturbereich 10° C−170° C beträgt der Anteil am Gesamtspektrum nahezu konstant 0.4 nm, was einer Dicke von 2 ML (110)-orientiertem Fe entspricht. Sowohl bei sehr hohen als auch bei sehr tiefen Temperaturen stieg dieser Anteil etwa auf das Zweifache an. Dieses Verhalten legt die Vermutung nahe, daß als physikalische Ursache für diesen Spektrentyp Interdiffusion an der Fe/Gd-Grenzfläche verantwortlich ist. Bei sehr tiefen Substrattemperaturen während des Aufdampfens kommt es durch Gitterfehler zu einer erhöhten Diffusion, während bei hohen Temperaturen thermische Effekte eine Rolle spielen.

Im Rahmen der Untersuchungen von [65] und [66] in Dy/Fe- bzw. Y/Fe-Viellagensystemen wurde bezüglich der unterschiedlichen Spektrentypen ein ähnliches Verhalten festgestellt. In diesen Arbeiten wird eine dickenabhängige Kristallisation des Eisens als Ursache vorgeschlagen, die auch als Erklärung der Resultate der vorliegenden Arbeit in Frage kommt. Abb. 5.27 zeigt, daß dieser Phasenübergang in Fe/Gd sehr scharf definiert ist.

Als Erklärungsursache sind jedoch zunächst auch andere Mechanismen denkbar.

Spektrum A könnte mit gleichem Meßergebnis auch von einer amorphen Fe/Gd-Mischung erzeugt werden. In den untersuchten Systemen müßte dazu jedoch eine hohe Interdiffusion und Löslichkeit von Gd in Fe vorliegen. Die Untersuchungen in [55] geben demgegenüber eine obere Grenze der Löslichkeit von 0.24 at % Fe in Gd an. Weiterhin zeigt das Volumenphasendiagramm [55], daß bis zu sehr hohen Temperaturen auch keine chemischen Verbindungen wie z.B. $GdFe_2$ o.ä. gebildet werden. Einzig die Bildung von Oberflächenphasen [67], die nur in sehr dünnen Schichten auftreten, wäre noch denkbar. Eine dickenabhängige Aufhebung chemischer Bindungen ist jedoch äußerst unwahrscheinlich. Die Erklärung in *diesem* Durchmischungsmodell müßte dann wie folgt gegeben werden. Nach Beendigung des Aufdampfvorganges der Gd-Schicht beginnt der Aufbau der Fe-Lage. Große Gd-Atome müßten ständig in die Schicht aus kleinen Fe-Atomen hineindiffundieren und umgekehrt. Bei Erreichen der kritischen Dicke ist überwiegend das Spektrum vom Typ B zu sehen, d.h. alle Gd-Atome werden aus der Schicht wieder herausgedrängt, bis nur noch bcc-Fe übrigbleibt. Dieser Rediffusionseffekt beschreibt zwar ebenfalls das geschilderte Ergebnis, ist jedoch äußerst unwahrscheinlich.

Die Interpretation des gezeigten Phänomens muß auf der Basis der Mößbauerexperimente zusammengefaßt folgendermaßen gegeben werden. Eisen wächst auf einer Gd-Unterlage zunächst strukturell stark gestört auf (Typ A), um bei Erreichen einer kritischen Dicke nahezu vollständig auszukristallisieren (Typ B). Nur an den Randzonen zwischen Fe und Gd bilden sich schmale Interdiffusionszonen von jeweils etwa 1 ML−2 ML aus (Typ P), die auch bei großen Dicken bestehen bleiben.

Ein direkter Beweis dieser Hypothese kann durch die Anwendung der HRTEM-Methode (*High Resolution Electron Microscopy*) gegeben werden. Zur Untersuchung wurde ein JEOL 4000-EX Mikroskop bei 400 kV eingesetzt. Vor der Messung müssen die zu untersuchenden Proben einen speziellen Präparationvorgang, das sog. *Argon Ion Milling* durchlaufen. Hierbei wird zunächst ein Querschnitt der Probe angefertigt. Dieser Querschnitt wird nach der mechanischen Bearbeitung (Schleifen) mit einem Ionenstrahl bei 5 keV weiter abgedünnt, bis die gesamte Dicke des Präparates einschließlich Substrat im Bereich von 2 − 10 nm liegt. Abb. 5.29 zeigt die Aufnahmen der Grenzflächenzonen in einer Probe mit $d_{Fe} = 1.6\,\mathrm{nm} < d_{krit}$ (a) bzw. mit $d_{Fe} = 3.2\,\mathrm{nm} > d_{krit}$ (b). Eine Längenskala ist durch den Netzebenenabstand des einkristallinen GaAs(110)-Substrates vorgegeben. Die Analyse der HRTEM-Aufnahmen ergibt folgendes Resultat. Gd wächst zunächst amorph auf dem orientierten GaAs-Substrat auf. Nach ca. 4.5 nm Dicke geht der Gd-Film in feinkristallines Gd mit hexagonaler hcp-Struktur und mit zur Schichtebene senkrechter c-Achse über (Korngröße ca. 3 − 5 nm). Die darunterliegenden Gd-Lagen kristallisieren jedoch nicht aus, sondern bleiben amorph! Der Gitterparameter c ist in einigen Körnern um ca. 4 % gegenüber dem Volumenwert erhöht. Das daraufliegende Eisen bleibt bis zu einer Dicke von $d_{krit} = 2.3\,\mathrm{nm}$ amorph und kristallisiert erst bei weiterer Dickensteigerung in kleine Nanokristallite von etwa 2−4 nm Durchmesser aus (b), die im Gitterparameter a eine Abweichung in einigen Körnern ge-

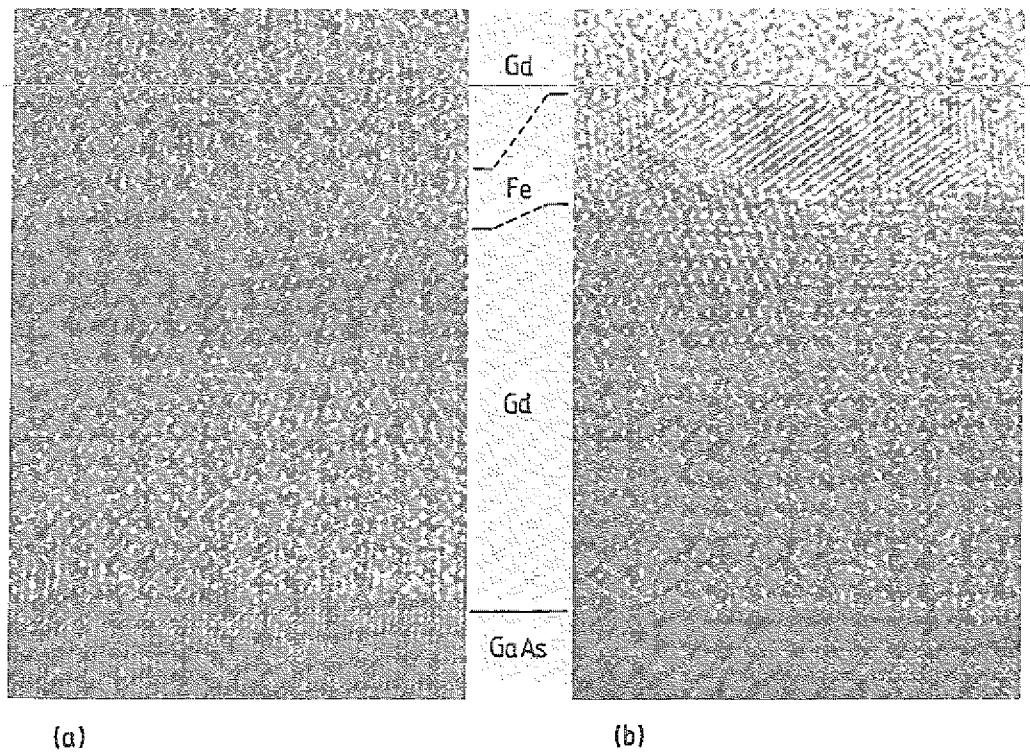


Abbildung 5.29: *HRTEM-Aufnahmen von Gd/Fe/Gd-Schichten mit einem Aufbau nach 5.25. In (a) beträgt die Fe-Dicke $d_{Fe} = 1.6\,nm < d_{krit}$, während in (b) eine Fe-Dicke $d_{Fe} = 3.2\,nm > d_{krit}$ vorliegt.*

genüber dem Volumenwert von ca. $\pm 5\,\%$ aufweisen. Im Gegensatz zur Gd-Schicht erfolgt dieser Kristallisationsvorgang über die gesamte Fe-Schichtdicke. Leider ist in Abb. 5.29 (a) der Unterschied zwischen amorphem Gd und amorphem Fe kaum sichtbar, da der Diffraktions- und Absorptionskontrast nicht ausreichend hoch ist. Sehr gut ist jedoch sichtbar, daß in beiden Fällen das polykristalline Wachstum der Gd-Schicht bei gleicher Schichtdicke unterbrochen ist, d.h. die Fe-Schicht beginnt. Sowohl auf dem amorphen wie auch auf dem nanokristallinen Fe wächst Gd offenbar amorph auf. Insgesamt ergibt sich durch diese Aufnahmen der Beweis der durch den Mößbauereffekt gegebenen Interpretation.

Das Spektrum vom Typ B kann somit nanokristallinen Bereichen im Fe zugeordnet werden. Aus der Volumenabhängigkeit der Isomerieverschiebung $dS/d\ln V = 1.38\,\mathrm{mm/s}$ [68] und des Hyperfeinfeldes $d\ln B_{Hf}/d\ln V = 0.372$ [69] läßt sich abschätzen, daß die beobachtete Variation des Gitterparameters eine Veränderung der Isomerieverschiebung im Bereich $\Delta S = \pm 0.1\,\mathrm{mm/s}$ und des Hyperfeinfeldes von $\Delta B_{Hf} = \pm 1.1\,\mathrm{T}$ erzeugen kann. Dieser Effekt erklärt damit die beobachtete Linienverbreiterung im Spektrum vom Typ B. Die erwähnte Reduktion des Hyperfeinfeldes wird sicher von der Korngröße der Fe-Kristallite abhängen. Unter Umständen spielt jedoch auch die in Kap. 5.1.3.1 diskutierte langreichweitige Störung an Fe/Gd-

Grenzflächen eine Rolle.

Ist die dickenabhängige Kristallisation damit recht gut beschrieben, so ist die Ursache dafür weiterhin unklar. Eine mögliche Erklärung könnte der Einfluß der oberen Gd-Deckschicht sein. Es ist denkbar, daß die Kristallisation erst durch das Aufdampfen dieser Decklage induziert wird. Um diesen Einfluß auszuschließen und darüberhinaus eine Aussage über den zeitlichen Ablauf der Kristallisation zu geben, wurden Proben der Struktur Quarz/10 nm Gd/d *nm* Fe/- mit $d = 2.0, 2.3, 2.6, 3.6$ nm ^{57}Fe bei $T = 10°$ C ohne Deckschicht präpariert und sofort nach der Herstellung in-situ in Zeitabständen von jeweils 30 min mittels CEMS gemessen. Als Ergebnis läßt sich feststellen, daß sowohl der Kristallisationsvorgang als auch die kritische Dicke gleiches Verhalten bzw. gleiche Werte wie im Aufbau mit Gd/Fe/Gd-Struktur aufwiesen. Im Verlauf des auf die Herstellung folgenden Tages ständig neu durchgeführte Wiederholungsmessungen zeigten keine weiteren Veränderungen, d.h. die Kristallisation findet noch während des Aufdampfprozesses oder unmittelbar danach statt und kommt rasch zum Stillstand. Schrittweises Heizen einer nanokristallinen Eisenschicht mit $d_{Fe} = 2.6$ nm nach der Präparation bei 250° C und 350° C führten zu einem Anwachsen des Volumenspektrums B auf Kosten des in diesem Dickenbereich noch vorhandenen amorphen Beitrags A, d.h. die Kristallisation wird durch Erhöhung der Temperatur begünstigt.

Mit Hilfe der CEMS-Methode ist es möglich, lokal innerhalb der Fe-Schicht magnetische Eigenschaften zu untersuchen. Durch Einbau einer dreilagigen ^{57}Fe -Sonde in eine Schicht aus ^{56}Fe können so z.B. in der Mitte und an den Grenzflächen zum Gd Messungen durchgeführt werden. An Schichtaufbau (b) nach Abb. 5.25 (Seite 65) wurden die Spektren nach Abb. 5.30 gemessen.

Legt man die ^{57}Fe -Sonde in die Mitte einer Fe-Schicht mit $d_{Fe} = 4.1$ nm, so erhält man ein Spektrum, das keinen Anteil vom Typ A enthält. Im Gegensatz dazu zeigt sich an den Grenzflächen eine Überlagerung aller drei Typen P, A, B. In der gezeigten Probe (oberhalb der kritischen Dicke) sind die paramagnetischen Fe-Regionen auf die Randzone von ca. $1 - 2$ ML beschränkt, während im Zentrum nur kristallines Eisen vorliegt. Erwähnenswert ist, daß in allen untersuchten Proben kein signifikanter Unterschied zwischen oberer und unterer Grenzfläche festgestellt werden konnte. In Proben mit $d_{Fe} < d_{krit}$ konnte mittels der Sondenmethode weder an den Grenzflächen noch im Zentrum der Eisenschicht ein Anteil vom Typ B gemessen werden.

Aus den vorliegenden Experimenten ist insgesamt ersichtlich, daß es sich bei der dickenabhängigen Kristallisation *nicht* um einen Viellageneffekt handelt. Bestimmte Eigenschaften der Gd/Fe-Grenzfläche sind offenbar einzig und allein für dieses Verhalten verantwortlich. Es existieren große Unterschiede zwischen Fe und Gd im Atomradius (0.126 nm, 0.170 nm), der Kristallstruktur (bcc, hcp), den Gitterparametern ($a = 0.286$ nm, $a = 0.362$ nm ($c = 0.575$ nm)), der Elektronegativität (1.8, 1.1) und der Oberflächenenergie (2.55, 0.9 (in J/cm^{-2}) [70]). Auch im Viellagensystem Fe/Mg (Mg kristallisiert ebenfalls in hcp-Struktur) wurde ein vergleichbarer

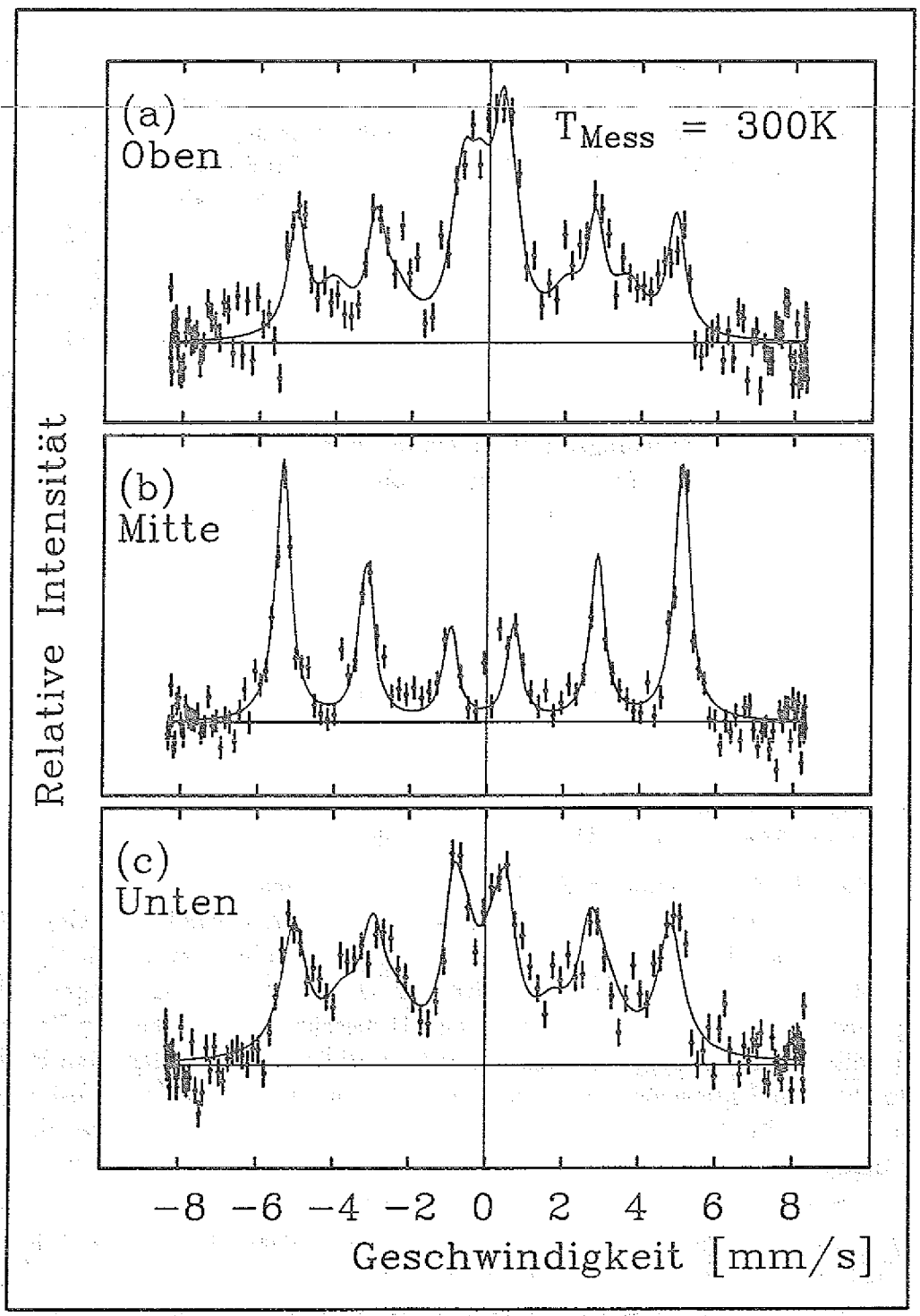


Abbildung 5.30: *Sondenschichten aus* 0.4 *nm* ^{57}Fe *in* ^{56}Fe *-Zwischenschichten im Gd/Fe/Gd-System. Sonde wurde an der oberen (a), an der unteren (c) Grenzfläche zum Gd und in der Mitte (b) eingebaut. Gesamte Fe-Dicke* $d_{Fe} = 4.1$ *nm.*

Kristallisationseffekt beobachtet [71], jedoch ist die kritische Dicke mit $d_{krit} = 1.2\,\mathrm{nm}$ viel kleiner als im Fe/Gd-System. Korrespondierend dazu sind bei Fe/Mg die Unterschiede im Gitterparameter, etc. geringer. Aus dem Vergleich der Systeme Fe/Mg - Fe/Gd läßt sich der Schluß ziehen, daß für die dickenabhängige Kristallisation die unterschiedlichen strukturellen Parameter verantwortlich sind. In den üblichen theoretischen Modellen der *R*ekristallisation, einem ähnlichen Prozess, ist eine Korngröße von ca. $100 - 1000\,\mathrm{nm}$ nötig, um den Rekristallisationsprozess auszulösen. Diese Größe ist bestimmt durch die Konkurrenz zwischen Oberflächenspannung in den Körnern und der gespeicherten Energie auf Grund von Gitterfehlern. Da eine geschlossene Theorie für Kristallisationsprozesse auf atomarer Skala jedoch bis heute fehlt, ist eine endgültige Angabe der Ursachen zur Zeit nicht möglich.

Zusammengefaßt ergibt sich für das Schichtsystem Gd/Fe/Gd folgendes Resultat. Bis zu einer Dicke von $d_{krit} = 2.3\,\mathrm{nm}$ wächst Fe amorph auf der Gd-Unterlage auf. Bei Erreichen dieser Dicke kristallisiert die Fe-Zwischenschicht als Ganzes aus, wobei Kristallite im Nanometerbereich entstehen. Dieses Verhalten kann auf unterschiedliche strukturelle und elektronische Eigenschaften von Gd und Fe zurückgeführt werden.

5.2.3.2. Wachstum in Y/Fe/Y

Wenn unterschiedliche strukturelle und elektronische Eigenschaften von Gd und Fe ursächlich für die dickenabhängige Kristallisation verantwortlich sein sollten, dann sollte sie nicht nur in Gd/Fe/Gd-Schichten, sondern in jedem vergleichbaren System auftreten. Ähnlich wie bei den Untersuchungen an einer Grenzfläche in Kap. 5.1 ist der Vergleich zum Schichtsystem Y/Fe/Y sinnvoll, da Yttrium chemisch und kristallographisch dem Gadolinium äquivalent ist, jedoch kein magnetisches 4f-Moment besitzt. Zur Untersuchung wurden Schichten mit $d_{Fe} = 2, 2.2, 2.5, 3.0, 3.6\,\mathrm{nm}$ ^{57}Fe in einem zu Abb. 5.25 (a) (Seite 65) analogen Aufbau bei einer Substrattemperatur von $T = 10°\,\mathrm{C}$ aufgedampft. Wie erwartet, konnte auch hier eine dickenabhängige Variation der Mößbauerspektren beobachtet werden, die in Abb. 5.31 dargestellt ist. Im Unterschied zum Gd/Fe/Gd-System besteht bis zu einer kritischen Dicke von $d_{Fe} = 2.3 \pm 0.2\,\mathrm{nm}$ ein Mößbauerspektrum ausschließlich aus dem Typ P. Nach Überschreiten dieser Dicke liegt eine Überlagerung von Typ P, Typ B und einem kleinen Anteil vom Typ A vor. Diese Variation der Mößbauerspektren kann wie beim Gd als dickenabhängige Kristallisation der Fe-Schicht mit gleicher kritischer Dicke d_{krit} interpretiert werden. Im Unterschied dazu liegt im amorphen Bereich mit $d_{Fe} < d_{krit}$ keine magnetische Aufspaltung der Spektren vor, die Werte der Isomerieverschiebung sind mit $S \approx -0.18\,\mathrm{mm/s}$ jedoch ähnlich. Ungeklärt bleibt eine kleine Asymmetrie des paramagnetischen Spektrums, die möglicherweise auf einen kleinen elektrischen Feldgradienten mit einer Vorzugsrichtung zurückgeführt werden kann.

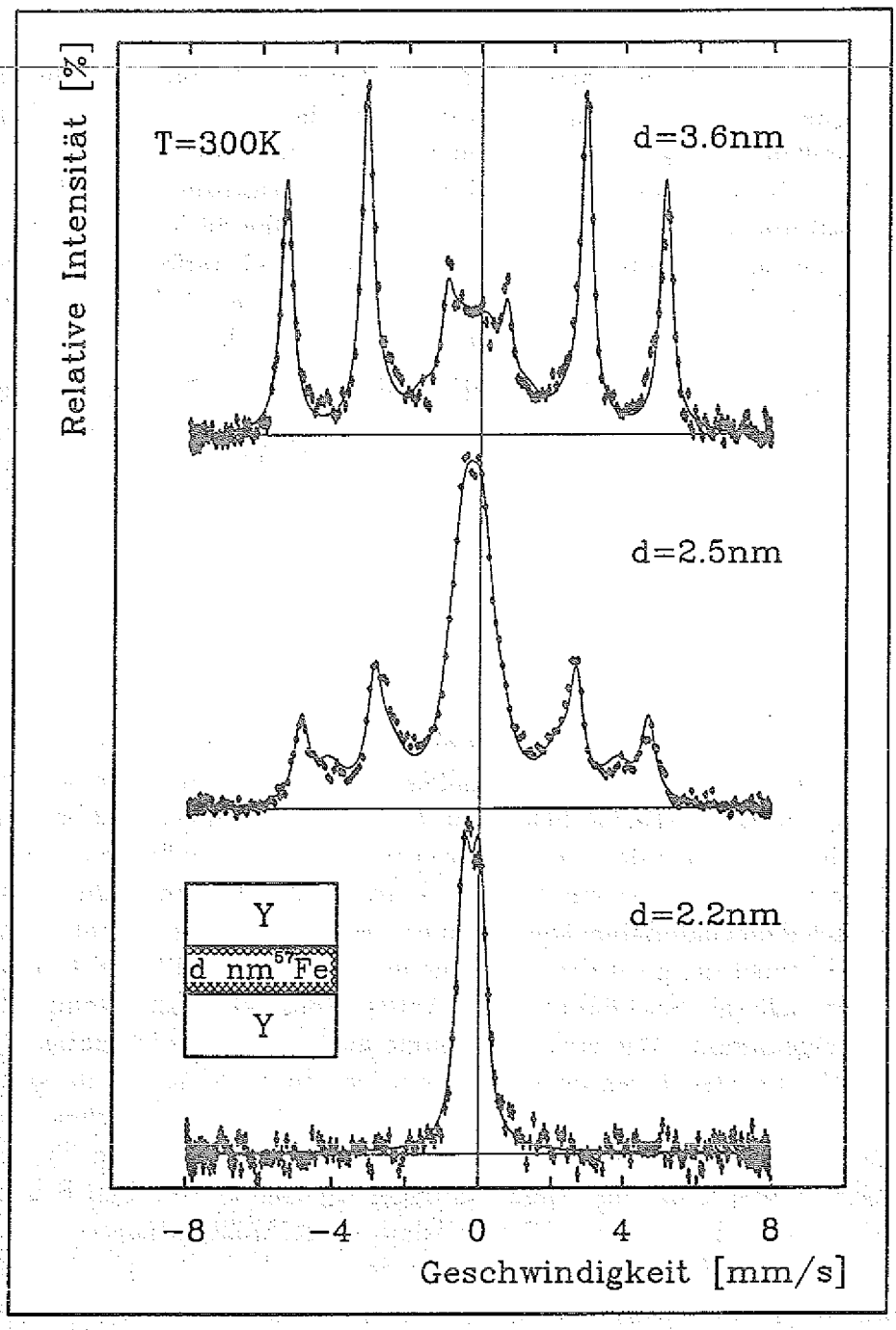


Abbildung 5.31: *Typische Mößbauerspektren im Schichtaufbau Y/Fe/Y. Im Gegensatz zum Gd/Fe/Gd-System tritt im gesamten Dickenbereich $d_{Fe} < d_{krit}$ nur ein paramagnetisches Spektrum Typ P auf.*

5.2.3.3. Magnetische Eigenschaften in Y/Fe/Y

Bezüglich der magnetischen Eigenschaften im Gd/Fe/Gd-Schichtsystem sind vor allem zwei Fragen von Bedeutung. Zunächst ist zu klären, ob es einen Zusammenhang mit der dickenabhängigen Kristallisation, d.h. zwischen den strukturellen und magnetischen Eigenschaften des Eisens für sich betrachtet gibt. Daran anschließend sind Untersuchungen des gesamten Schichtsystems von Interesse. Die erste Frage läßt sich im Gd/Fe/Gd-System nur indirekt beantworten, da sowohl die Fe- als auch die Gd-Atome ein magnetisches Moment besitzen und daher eine Separation des reinen Fe-Anteils nur bedingt möglich ist. Der Zusammenhang zwischen Struktur und Magnetismus der Fe-Schicht sollte jedoch im Y/Fe/Y-System gut zu erkennen sein, da Y kein magnetisches 4f-Moment aufweist.

In magnetischen Untersuchungen kommt der Wahl des Einheitensystems große Bedeutung zu. In der vorliegenden Arbeit wurde ausschließlich das SI-System benutzt, d.h. die Einheit der magnetischen Induktion ist (T), die Einheit der Magnetisierung (A/m). Da sämtliche Messungen im Vakuum stattfanden, wird gemäß der Gleichung $B = \mu_0 H$ das von außen angelegte Magnetfeld als Induktion in (T) angegeben. Um die Darstellung konsistent zu gestalten, wird auch die Koerzitivfeldstärke als Induktion B_c in (T) angegeben.

Mit Hilfe der ^{57}Fe -CEMS Methode wurde an einer Y/Fe/Y-Schicht mit $d_{Fe} = 2\,\mathrm{nm}$ die Temperaturabhängigkeit des magnetischen Hyperfeinfeldes gemessen. Überraschenderweise spaltete die paramagnetische Linie (Typ P) bis zu der kleinsten, durch die Meßapparatur begrenzten Temperatur $T = 85\,\mathrm{K}$ magnetisch nicht auf. Dieses Ergebnis läßt mehrere Deutungen zu. Entweder sind Kopplung und/oder magnetisches Moment im amorphen Eisen stark reduziert oder es existieren sehr schnelle Fluktuationen des Momentes, die ebenfalls zu einem Spektrum des Typs P führen können.

Zur genaueren Klärung dieser Frage wurde eine Probe mit $d_{Fe} = 2.2\,\mathrm{nm} < d_{krit}$ mit Hilfe eines Faraday-Waage Magnetometers untersucht. Der Aufbau dieser Apparatur wird in [72] ausführlich beschrieben. Die Messung wurde bei einer Temperatur von $T = 4.5\,\mathrm{K}$ in einem Magnetfeld von $B \leq 1\,\mathrm{T}$ parallel zur Schichtebene durchgeführt. Es zeigte sich, daß infolge des sehr kleinen magnetischen Effektes der Schicht magnetische Verunreinigungen des Substrates, verursacht z.B. durch das Schneiden oder Polieren, erfaßt werden mußten. Da das eingesetzte Quarzglassubstrat *Herasil* auch nach Abätzen mit verdünnter HCl noch Spuren ferromagnetischer Verunreinigungen aufwies, wurde durch eine Messung des unbedampften Substrates der magnetische Untergrund bestimmt und später subtrahiert. Das Ergebnis der Messung zeigt Abb. 5.32. Die Hysteresekurve zeigt einen rechteckigen Verlauf mit einer Koerzitivfeldstärke von $B_c \approx 25\,\mathrm{mT}$. Sättigung wurde auch im Maximalfeld von $B = 1\,\mathrm{T}$ nicht erreicht, die Kurve steigt oberhalb von B_c schwach an. Man erhält durch Extrapolation eine Größenordnung für die Sättigungsmagnetisierung, deren wahrer Wert einige Prozent höher liegt. In den CEMS-Untersuchungen

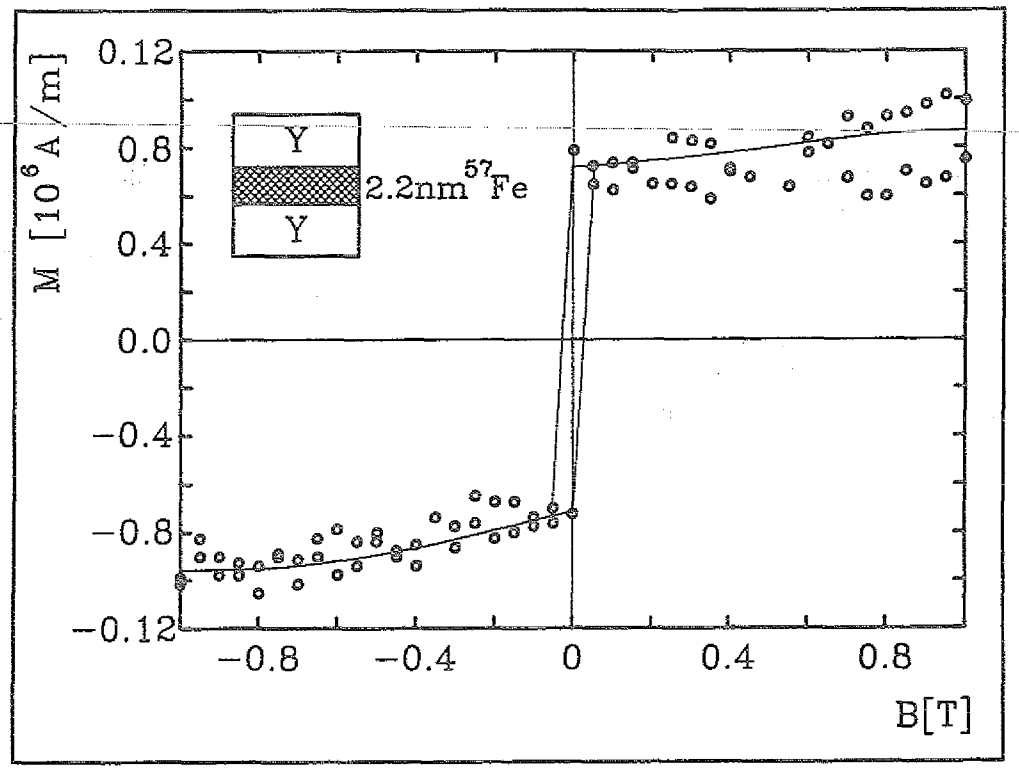


Abbildung 5.32: *Hysteresekurve an einer Schicht:* 10 *nm Y*/2.2 *nm* ^{57}Fe /3 *nm Y. Das Magnetfeld wurde parallel zur Schichtebene angelegt, die Meßtemperatur lag bei* $T = 4.5\,K$.

im strukturell äquivalenten Gd/Fe/Gd-System zeigte sich, daß das mit Typ P bezeichnete paramagnetische Spektrum ausschließlich in den Randbereichen der Fe-Zwischenschicht auftrat. Dieses Verhalten läßt sich so interpretieren, daß Fe- und Gd-Atome in den Randzonen stark durchmischt sind, d.h. die an das Gd angrenzenden ersten jeweils 0.2 nm (entspr. 1 ML (110)-bcc Fe) Fe sind paramagnetisch. Im Y/Fe/Y-System ist eine Unterscheidung dieser Randzonen vom reinen amorphen Eisen durch den Mößbauereffekt nicht möglich, da hier bis zur Kristallisationsdicke nur ein Spektrum vom Typ P auftritt. Da Gd und Y jedoch strukturell vergleichbar sind, läßt sich die Breite der Randschichten von jeweils ca. 0.2 nm Fe auch auf das Y/Fe/Y-System übertragen. Diese Durchmischungszonen werden i.f. von der Fe-Dicke subtrahiert, d.h. eine Schicht mit 2.2 nm Fe besteht demnach aus nur 1.8 nm reinem amorphen Eisen. Vergleicht man die Sättigungsmagnetisierung von bcc-Fe unter Einsetzen der Volumengitterkonstanten von $a_{Fe} = 0.2866\,\mathrm{nm}$ (bcc) sowie des magnetischen Momentes von $\mu_{Fe} = 2.2\mu_B$ mit der gemessenen Magnetisierung der Schicht, so ergibt sich für das Fe-Moment in der reinen amorphen Fe-Schicht ein Wert von $\mu_{Fe} = 1.1\mu_B$, das damit um 50 % kleiner als erwartet ist. Eine mögliche Erklärung besteht in der Annahme, daß amorphes Eisen ein stark verkleinertes Moment aufweist. Wenn nur ferromagnetisch koppelnde Fe-Atome zum magnetischen Signal beitragen, kommt es unter der Annahme einer magne-

tisch homogenen Schicht zu einer kleineren Magnetisierung als es 2.2 nm Fe entsprechen. Eine andere Deutung könnte darin bestehen, daß es innerhalb der Fe-Schicht eine Verteilung von Nachbarabständen gibt, die nach der Bethe-Slater Kurve [73] in unterschiedlichen Kopplungen resultiert. Bereits geringste Abstandsvariationen können zu antiferro-, ferro- oder paramagnetischem Fe führen. Dies wird z.B. für Schichten mit einigen Monolagen fcc-Eisen auf Cu-Einkristallsubstraten beobachtet [74], bei denen bereits geringfügige Änderungen des Atomabstandes zu den drei unterschiedlichen magnetischen Ordnungstypen führen. Ebenso ist bekannt, daß ϵ-Fe (hcp-Struktur) paramagnetisch ist [69]. Die empfindliche Reaktion von fcc-Fe auf geringfügige Abstandsvariationen ergibt sich auch aus Bandstrukturrechnungen. In dem theoretischen Modell von Moruzzi et al. [75] wird eine dünne Fe-Schicht auf einem CuAu-Substrat betrachtet. Dabei kann es zu ferro-, antiferro- oder ferrimagnetischer Kopplung zwischen benachbarten Fe-Atomen kommen. Im Falle der ferrimagnetischen Kopplung mit einer Gesamtmagnetisierung $M > 0$ existiert für ein Fe-Moment von $\mu = 1.1\mu_B$ ein kritischer Punkt, d.h. besitzt Fe ein größeres Moment, so ist die ferromagnetische Anordnung energetisch günstiger, für kleinere Momente die antiferro- oder ferrimagnetische. Die Messungen zeigen gerade diesenWert des kritischen Momentes im amorphen Eisen. Möglicherweise befindet sich durch die Verteilung von Nachbarabständen das Fe der Zwischenschicht sehr nahe an diesem von der Theorie postulierten kritischen Punkt.

Das Magnetisierungsverhalten einer dünnen Schicht läßt sich ebenfalls mit Hilfe des *longitudinalen Kerreffektes* untersuchen. Linear polarisiertes LASER-Licht wird von magnetisch orientierten Bereichen in Oberflächennähe reflektiert und in der Polarisationsrichtung gedreht. Der Drehwinkel ist dabei ein direktes Maß für die Magnetisierung. Die damit verbundene Meßmethode heißt MOKE (*Magnetooptical Kerr Effect*). Die in [76] beschrieben Meßapparatur läßt eine Absolutbestimmung des Drehwinkels nicht zu, so daß alle MOKE-Resultate nur relative Ergebnisse darstellen, d.h. eine Absolutbestimmung der Sättigungsmagnetisierung ist nicht möglich. Die Untersuchungen wurden an Schichten mit $d_{Fe} = 2, 2.2, 3.6$ nm zwischen Y in Magnetfeldern $B \leq 0.1$ T parallel zur Schichtebene bei $T = 5 - 300$ K vorgenommen. Die Schicht mit $d_{Fe} = 3.6$ nm zeigte eine für polykristalline Fe-Schichten typische Hysteresekurve mit einer Koerzitivfeldstärke von $B_c \approx 7$ mT, die im gesamten Temperaturintervall konstant blieb. In [77] z.B. wurde eine 10 nm dicke polykristalline Einzelschicht aus Eisen auf oxidiertem Si-Substrat vermessen. Die Koerzitivfeldstärke lag dort bei $B_c \approx 8$ mT. Demgegenüber zeigten die in der vorliegenden Arbeit gemessenen Schichten mit $d_{Fe} = 2, 2.2$ nm *keine* Tendenz zur Kerr-Rotation! Messungen bei $T = 5, 80, 120, 160, 293$ K zeigten darüberhinaus keine anderen Resultate, d.h. das amorphe Eisen erzeugte im gesamten Temperaturintervall keine mit der Kerrdrehung korrelierte Magnetisierung obwohl die Messung in der Faraday-Waage an *derselben* Probe trotz sorgfältiger Berücksichtigung aller Fehlerquellen ein ferromagnetisches Moment anzeigt. Dieser Widerspruch konnte im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht gelöst werden. Erst umfangreiche weitere Messungen müssen hier Klarheit schaffen. Ein möglicher Unterschied zwischen Waage und

MOKE-Apparatur besteht in der unterschiedlichen Integrationszeit während einer Messung. Dauerte die Aufnahme einer MOKE-Kurve ca. 1 min, so nahm die Messung einer Hysteresekurve in der Faraday-Waage eine Zeit von einigen Stunden in Anspruch. Um diesen Einfluß zu untersuchen, wurde die Probe mit $d_{Fe} = 2.2\,\mathrm{nm}$ mittels MOKE-Methode zeitabhängig gemessen. Ein zur Schicht paralleles Magnetfeld von $B = 0.66\,\mathrm{T}$ wurde angelegt und das MOKE-Signal als Funktion der Zeit gemessen. Dabei ergab sich bis zu einer Dauer von $t = 42\,\mathrm{min}$ keine Änderung des Meßsignals, so daß eine Zeitabhängigkeit wohl keine Rolle spielen dürfte.

Zusammengefaßt läßt sich sagen, daß im System Y/Fe/Y amorphes Eisen mit $d_{Fe} < d_{krit}$ im Mößbauereffekt ein paramagnetisches Spektrum bis zu einer Temperatur von $T = 85\,\mathrm{K}$ zeigt. MOKE-Messungen ergeben keine Tendenz zur Kerr-Rotation, auch nicht bei zeitabhängigen Experimenten über eine längere Dauer. Demgegenüber zeigt die statische Magnetisierungsmessung mit der Faraday-Waage eine rechteckige Hysteresekurve mit reduzierter Sättigungsmagnetisierung, die unter der Annahme einer magnetisch homogenen Schicht mit bcc-Gitterabstand einem Fe-Moment von $1.1\mu_B$ entspricht. Nanokristallines Eisen mit $d_{Fe} > d_{krit}$ dagegen zeigt im Mößbauereffekt für bcc-Fe typische Spektren sowie in MOKE-Messungen Hysteresekurven wie man sie für polykristallines Fe erwartet.

5.2.3.4. Magnetische Eigenschaften in Gd/Fe/Gd

In Gd/Fe/Gd-Schichten ist das magnetische Verhalten wegen der ferrimagnetischen Kopplung zwischen Fe- und Gd-Atomen komplizierter. Der Magnetismus der Fe-Schicht für sich betrachtet sollte jedoch wegen der in beiden Systemen auftretenden dickenabhängigen Kristallisation vergleichbar sein. Auch an den Gd/Fe/Gd-Schichten wurden temperaturabhängige Messungen der Magnetisierung mit Hilfe der MOKE-Methode durchgeführt. Wiederum wurde ein äußeres Feld von $B \leq 0.1\,\mathrm{T}$ parallel zur Schichtebene angelegt und die Temperatur im Intervall $5\,\mathrm{K} < T < 300\,\mathrm{K}$ variiert. Die Resultate für die Koerzitivfeldstärken sind in Abb. 5.33 zusammengefaßt. Unterhalb der kritischen Fe-Dicke verlaufen alle Kurven annähernd gleich, wie der Vergleich für $d_{Fe} = 0.4$ bzw. $1.6\,\mathrm{nm}$ zeigt. Oberhalb 150 K zeigt die Schicht mit $d_{Fe} = 1.6\,\mathrm{nm}$ eine konstante Koerzitivfeldstärke von $B_c \leq 1\,\mathrm{mT}$, darunter einen hyperbelähnlichen Anstieg. Für $d_{Fe} = 0.4\,\mathrm{nm}$ liegt das gleiche Verhalten vor, B_c geht jedoch oberhalb 170 K gegen Null. Der erwähnte Anstieg bei tiefen Temperaturen ist bei allen Messungen zu beobachten. Er rührt von der Gd-Schicht her, die in allen untersuchten Schichten die gleiche Dicke aufweist.

Die mit der Dicke korrelierte Spitze im $B_c(T)$-Verlauf kann mit dem Auftreten von Ferrimagnetismus in Zusammenhang gebracht werden [78]. Dabei orientieren sich durch die ferrimagnetische Kopplung zwischen Fe- und Gd-Atomen in den Grenzflächenlagen ganze Teilschichten antiparallel, d.h. es liegt ein makroskopischer Ferrimagnet, ein sog. *Giant Ferrimagnet* [79] vor. Im Kompensationspunkt, der durch die Spitze angezeigt wird, ist die Gesamtmagnetisierung der Schicht sehr

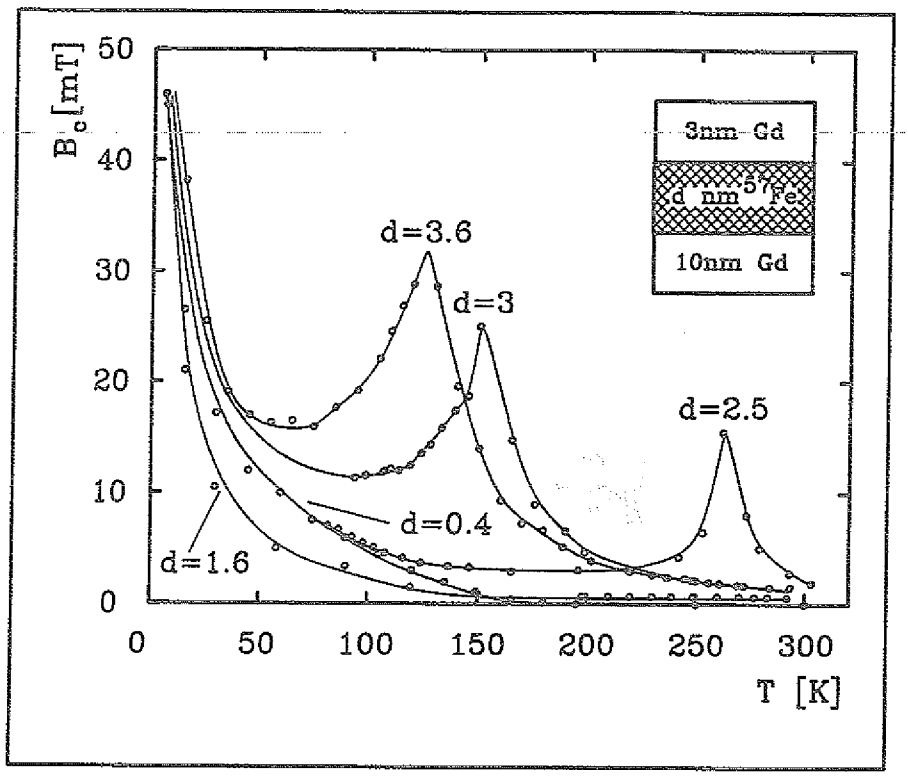


Abbildung 5.33: *MOKE-Messungen der Temperaturabhängigkeit der Koerzitivfeldstärke B_c im Schichtaufbau Gd/Fe/Gd.*

klein, d.h. die Magnetisierungen der Teilschichten kompensieren sich hier. Bei dieser Temperatur wird die Koerzitivfeldstärke B_c sehr groß. Im Idealfall gilt sogar $B_c(M = 0) \rightarrow \infty$. Je nach Dicke der Fe-Schicht läßt sich bei konstanter Gd-Dicke der Kompensationspunkt zu verschiedenen Temperaturen hin verschieben. Für Fe-Schichtdicken $d_{Fe} < d_{krit}$ konnte bis zur Raumtemperatur kein Kompensationspunkt gesehen werden. Folgt man der beim Y/Fe/Y-System gegebenen Interpretation, so liegt die Ursache im stark verkleinerten magnetischen Moment der Fe-Schicht, so daß der Curiepunkt der Gd-Schicht und der Kompensationspunkt der Gesamtschicht sehr nahe beieinander liegen und im Experiment nicht mehr zu unterscheiden sind. Oberhalb der Kompensationstemperatur ist die Fe-Magnetisierung größer als die Gd-Magnetisierung und zeigt in Richtung des angelegten Feldes. Unterhalb T_{Komp} trägt die Gd-Schicht die größere Magnetisierung und zeigt in Richtung des äußeren Feldes. Die dann kleinere Fe-Magnetisierung weist nun entgegengesetzt zum Feld. Da in MOKE-Messungen wegen der sehr kleinen Kerrdrehung von Gd fast ausschließlich der Beitrag der Eisenschicht gemessen wird, ist die Drehung des Fe-Momentes korreliert mit einer Richtungsänderung der Hysteresekurven, wie Abb. 5.34 zeigt.

Der Ferrimagnetismus in den Gd/Fe/Gd-Schichten läßt sich auch mit Hilfe der Vibrationsmagnetometrie (VSM) untersuchen. Im Gegensatz zur Faraday-Waage ist die wesentlich kürzere Meßzeit von Vorteil, während im Vergleich zur MOKE-

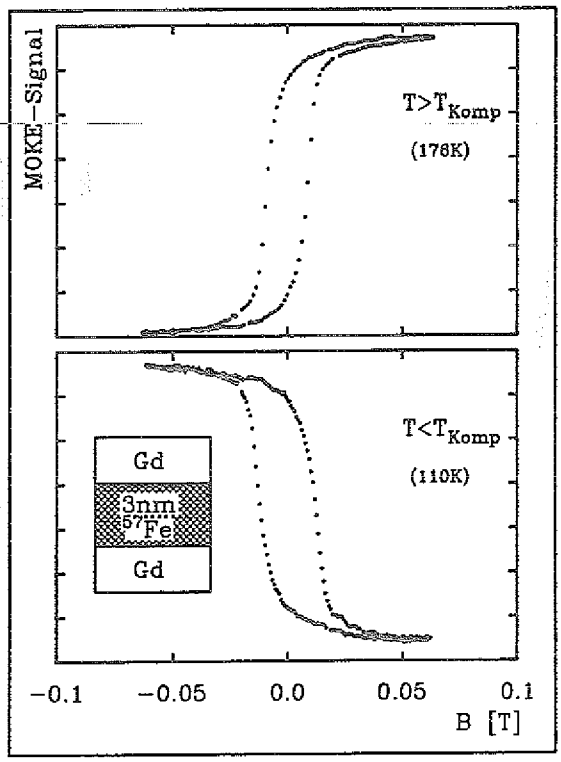


Abbildung 5.34: *MOKE-Hysteresekurven für eine Schicht mit: Gd/3.0 nm*^{57}Fe */Gd. Oberhalb T_{komp} zeigt das Fe-Moment in Richtung des äußeren Feldes, unterhalb in die Gegenrichtung. Dieses Verhalten wird durch den Richtungswechsel der Hysteresekurve angezeigt.*

Methode absolute Werte der Magnetisierung gemessen werden können. Der Aufbau der eingesetzten Apparatur sowie Details der Meßmethodik werden in [80] beschrieben. Im ferrimagnetischen Kompensationspunkt ist die Gesamtmagnetisierung sehr klein, d.h. eine Messung der Temperaturabhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung sollte ein Minimum bei T_{Komp} aufweisen. Parallel zur Schichtebene wurde ein Magnetfeld von $B \leq 0.1$ T angelegt und die Temperatur im Intervall 80 K $< T <$ 300 K verändert. In Abb. 5.35 sind die Ergebnisse aus den Messungen an Gd/Fe/Gd-Schichten mit $d_{Fe} = 0.4, 2.5, 3.6, 4.8$ nm zusammengefaßt. Als sehr problematisch in den VSM-Messungen stellte sich das kleine Messignal heraus. Bedingt durch die Geometrie des Vibrationsmagnetometers konnten die hergestellten Proben mit einem Durchmesser der bedampften Fläche von ca. 11 mm nicht als Ganzes eingebaut werden. Zur Verbesserung des Signal/Rausch-Verhältnisses wurden bei Schichten, die eine sehr kleine absolute Magnetisierung zeigten, mehrere Plättchen aus derselben Probe ausgeschnitten und gleichzeitig gemessen, d.h. die Messungen sind ohne Korrektur nicht untereinander vergleichbar. Üblicherweise wird die Magnetisierung definiert als $M = \mu/V$. Da sich in den Gd/Fe/Gd-Systemen jedoch zwei verschiedene Momente mit ferrimagnetischer Kopplung in zwei verschieden großen

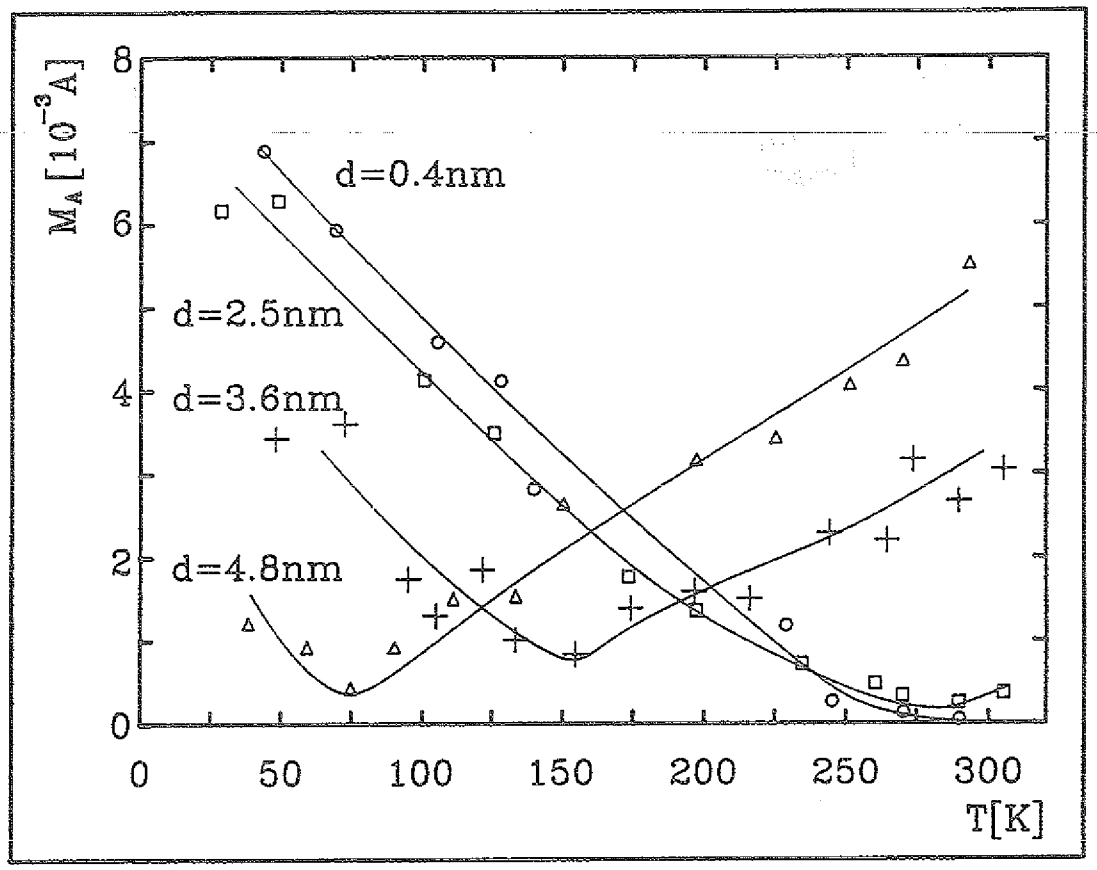


Abbildung 5.35: *VSM-Messungen an Gd/Fe/Gd-Schichten mit Fe-Dicken von $d_{Fe} = 0.4, 2.5, 3.6, 4.8$ nm. $B \leq 0.1$ T parallel zur Schicht. Dargestellt ist die flächennormierte Magnetisierung $M_A = \mu/A$.*

Teilvolumina befinden, ist die Normierung auf das gesamte Probenvolumen nicht sinnvoll. Um dennoch alle VSM-Messungen untereinander vergleichen zu können, ist in Abb. 5.35 die auf die Fläche A der Proben normierte Magnetisierung $M_A = \mu/A$ dargestellt. Deutlich sichtbar sind die Minima der Magnetisierungskurven. Für die Schicht mit der kleinsten Fe-Dicke $d_{Fe} = 0.4$ nm ist jedoch kein Minimum ersichtlich. Unterhalb von $T = 230$ K steigt hier die Magnetisierung linear an, während es darüber zu einer allmählichen Reduktion auf $M = 0$ kommt. Auch diese Ergebnisse zeigen klar das Auftreten von ferrimagnetischem Verhalten im Gd/Fe/Gd-System an.

Die Schicht mit $d_{Fe} = 3.6$ nm zeigt bei etwa 150 K ein Minimum der Sättigungsmagnetisierung in einem äußeren Feld von $B = 0.1$ T parallel zur Oberfläche. Eine Messung derselben Probe in der Faraday-Waage in einem Magnetfeld von $B = 4$ T zeigt jedoch keinen Kompensationspunkt, sondern einen relativ flachen Abfall im $M(T)$-Verlauf bis zur Raumtemperatur. Große Magnetfelder führen offenbar zu

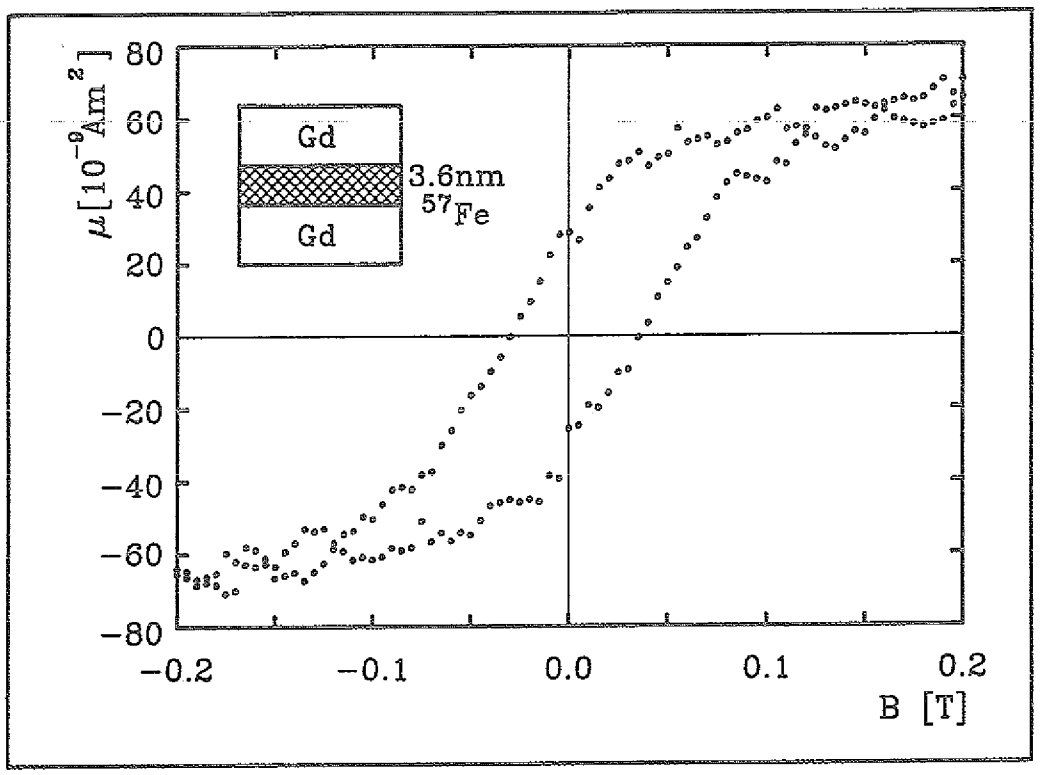


Abbildung 5.36: *Hysteresemessung (Faraday-Waage) einer Schicht mit $d_{Fe} = 3.6$ nm Fe zwischen Gd. $T = 4.5$ K, Feld parallel zur Schichtebene.*

einer Ausrichtung der Teilmagnetisierungen *in* Feldrichtung und so zu einem Verschwinden des Kompensationspunktverhaltens. Eine Messung der Hysteresekurve nach Abb. 5.36 in einem zur Schichtebene parallelen Feld bei $T = 4.5$ K zeigt folgendes Resultat: Nach Erreichen der Koerzitivfeldstärke $B_c \approx 38\,mT$ steigt die stark gescherte Kurve weiter an, d.h. Sättigung ist nicht erreicht. Ursache für diese Scherung könnte eine Senkrechtanisotropie sein, deren Einfluß ebenfalls im Faraday-Waage Magnetometer untersucht wurde.

In Schichten mit $d_{Fe} = 3.0, 3.6, 4.8$ nm wurde dazu bei einer Temperatur von $T = 4.5$ K die Magnetisierung gemessen, wobei das Magnetfeld $B \leq 4$ T senkrecht zur Schicht angelegt wurde. Sättigung war in diesen Experimenten erst oberhalb von $B_S = 3$ T zu erkennen, wie Abb. 5.37 zeigt. Zur Verdeutlichung ist dort jeweils nur die mit ansteigendem Feld gemessenen Hälfte der Hysteresekurve dargestellt. Diese Messungen deuten darauf hin, daß zumindest bei tiefen Temperaturen die Magnetisierung nicht in Schichtebene, sondern unter einem Winkel zu ihr liegt. Es sind relativ große Magnetfelder $B > 3$ T erforderlich, um die Magnetisierung senkrecht zur Schichtebene in Sättigung zu bringen. Möglicherweise ergibt sich hier ein Bezug zu dem kürzlich von Bennemann [81] vorgeschlagenen theoretischen Modell, nach dem bei tiefen Temperaturen in dünnen Schichten die Senkrechtanisotropie anwächst und u.U. die Formanisotropie in der Ebene übertreffen kann.

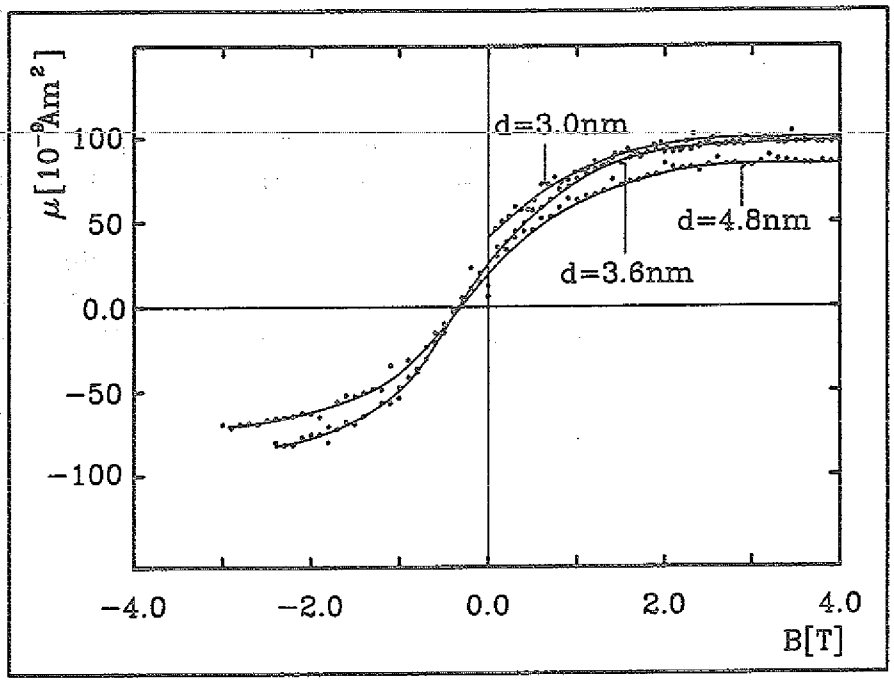


Abbildung 5.37: *Mit ansteigendem Feld gemessene Hysteresekurven an Schichten mit $d_{Fe} = 3.0, 3.6, 4.8$ nm bei $T = 4.5$ K und senkrecht zur Schicht anliegendem Feld in der Faraday-Waage.*

5.2.4. Vergleich der Dreifachschichten

In X/Fe/X- (X=Gd,Y) Schichtsystemen konnte eine dickenabhängige Kristallisation der Fe-Schicht gefunden werden. Unterhalb einer scharf definierten kritischen Dicke von $d_{Fe} = 2.3 \pm 0.1$ nm zeigt die Fe-Schicht eine amorphe Struktur, während oberhalb polykristallines Eisen mit sehr kleiner Kristallitgröße im Nanometerbereich vorliegt. Dieser Strukturwechsel kann mit unterschiedlichem magnetischem Verhalten des Eisens korreliert werden. Im amorphen Bereich weist die Fe-Schicht eine kleinere Magnetisierung auf als erwartet, Mößbauerspektren spalten bis zu einer Temperatur von $T = 85$ K nicht magnetisch auf. Darüberhinaus zeigt sich in MOKE-Experimenten keine Tendenz zur Kerr-Rotation beim amorphen Eisen. Im nanokristallinen Bereich ergeben dagegen alle Meßmethoden typische Ergebnisse für polykristallines bcc-Fe. Schichten des Systems Gd/Fe/Gd weisen oberhalb der kritischen Fe-Dicke eine ferrimagnetische Kompensationstemperatur auf, die mit steigender Fe-Dicke zu kleineren Werten hin verschoben wird. In diesem System existiert zumindest bei tiefen Temperaturen $T < 85$ K auch eine Senkrechtanisotropie. In relativ großen Magnetfeldern von $B \approx 3$ T ist es möglich, die Magnetisierung bei $T = 4.5$ K senkrecht zur Schichtebene zu sättigen.

Ein theoretisches Modell, das den Magnetismus eines solchen Gd/Fe/Gd-Schichtsystems qualitativ beschreibt, stammt von Camley und Tilley [82], [83]. In diesem

Modell werden zwei ferromagnetische Schichten beschrieben, die untereinander antiferromagnetisch koppeln. Je nach Temperatur und Größe des äußeren Feldes ergeben sich drei magnetisch geordnete Bereiche. Im ersten Fall sind alle Gd-Spins parallel zum äußeren Feld orientiert, während alle Fe-Spins in die entgegengesetzte Richtung weisen (*aligned Gd*). Im zweiten Fall sind die Verhältnisse gerade umgekehrt (*aligned Fe*). Im dritten möglichen Zustand, der für große äußere Magnetfelder zutrifft, sind sowohl die Fe- als auch die Gd-Spins unter einem ortsabhängigen Winkel zum äußeren Feld orientiert (*twisted state*). Dabei rotieren die Spins von Ebene zu Ebene jeweils um einen kleinen Winkel $\Delta\phi$ weiter, so daß nach einer charakteristischen, vom Material abhängigen Distanz, der Gesamtwinkel $\Delta\phi = 180°$ beträgt und die makroskopisch meßbare Magnetisierung $M = 0$ wird. Nach [83] soll diese Distanz im Fe etwa 62 Lagen, im Gd ca. 22 Lagen betragen. Die unterschiedlichen magnetischen Zustände sind das Resultat einer Konkurrenz zwischen der Zeemanenergie, die ihr Minimum erreicht, wenn alle Spins parallel zum äußeren Feld liegen, und der Austauschenergie, die minimal wird, wenn alle Fe- und Gd-Spins sich antiparallel ausrichten.

Der im Modell beschriebene makroskopische Ferrimagnetismus der Fe- und Gd-Schichten wird durch die vorliegenden Experimente bestätigt. Auch der Vorzeichenwechsel vom ersten (aligned Gd) in den zweiten (aligned Fe) Zustand wird durch die Messungen wiedergegeben, wie der Richtungswechsel der MOKE-Hysteresekurven zeigt. Für kleine Temperaturen und große Felder ist der Zustand mit zueinander gedrehten Fe- und Gd-Spins (twisted state) durch Magnetisierungskurven gekennzeichnet, die im Bereich der Sättigung nicht horizontal, sondern unter einem bestimmten Winkel zur B-Achse verlaufen. Das bedeutet, daß in diesem Bereich die Suszeptibilität nahezu unabhängig ist von der Größe des angelegten Feldes. Auch diese Aussagen des Modells werden durch die Messungen bestätigt. Darüberhinaus zeigt Abb. 5.36 (Seite 82) eine Gesamtmagnetisierung, die einer 3.6 nm dicken Fe-Schicht allein entspricht. Dieses Resultat kann im Modell von Camley als *twisted state* interpretiert werden, wobei die Fe-Schicht fast gar keine Spin-Rotation zeigt (62 Lagen für 180°), die Gd-Schichten wegen der kleinen charakteristischen Distanz für eine 180°-Rotation von 22 Lagen nach außen magnetisch neutral erscheint.

Leider sind darüberhinaus weitere quantitative Voraussagen des Modells nicht auf die Experimente übertragbar. So werden Effekte wie die dickenabhängige Kristallisation und damit die Änderung der magnetischen Eigenschaften des Fe beim Übergang amorph zu nanokristallin nicht berücksichtigt. Ebenso wird sowohl das Eisen als auch das Gadolinium mit einer bcc-Gitterstruktur und gleicher Gitterkonstante angenommen. Dieser Ansatz weicht stark von den wahren Verhältnissen ab und macht einen Vergleich der numerischen Vorhersagen mit den experimentellen Daten problematisch. Bemerkenswert ist jedoch, daß sich geschichtete Gd/Fe-Systeme in ihren makroskopischen magnetischen Eigenschaften wie z.B. Kompensationstemperatur oder Maximum in der Koerzitivfeldstärke nicht wesentlich von gesputterten Schichten aus amorphen Gd-Fe Mischungen unterscheiden [59].

6. Zusammenfassung

Ziel der vorliegenden Arbeit waren Grenzflächenuntersuchungen in antiferromagnetisch koppelnden Schichtsystemen. Bedingt durch die Aufgabenstellung ist die vorliegende Arbeit in zwei Hauptteile untergliedert. Im ersten Teil der Arbeit wurde die ^{57}Fe -CEMS Methode auf Schichten mit *einer* Grenzfläche im Aufbau Fe/X (X=Cr,Gd,Y) angewandt, während im zweiten Teil Untersuchungen der technisch wichtigen X/Fe/X (X=Gd,Y) Dreifachschichten im Vordergrund standen.

Durch Aufdampfen von sehr dünnen Sondenschichten aus ^{57}Fe konnten im ersten Teil der Arbeit mit Monolagenauflösung tiefenselektiv magnetische Hyperfeinfelder untersucht werden. Dabei ergab sich für alle Systeme eine vergleichbare Variation der gemessenen Mößbauerspektren als Funktion des Grenzflächenabstandes. Auf eine starke Absenkung des magnetischen Hyperfeinfeldes in der ersten Monolage (ML) im Fe folgt ein lokales Maximum in der zweiten, dritten ML, an die sich ein vom Material abhängiger, in Bezug auf den Volumenwert gestörter Verlauf mit einer charakteristischen Reichweite in das Fe hinein anschließt. Im Falle der Fe/Cr-Grenzfläche klingt die Abweichung vom Volumenwert nach etwa 4 ML ab. Dieser Teil der Untersuchungen im Fe/Cr-System wurde in [84] veröffentlicht. Durch bisher nicht publizierte LMTO-Bandstrukturrechnungen [11] der Fe/Cr-Grenzfläche wurde dieses Verhalten des magnetischen Hyperfeinfeldes bestätigt. Neben der Störung des Hyperfeinfeldes konnte eine abstandsabhängige Erhöhung des Spinwellenparameters $b \propto 1/J^{3/2}$ in Grenzflächennähe beobachtet werden. Im Falle des Chroms war diese Erhöhung bereits innerhalb der ersten ML ($\delta_{Cr} = 0.69$ ML) auf den e-ten Teil reduziert. An der Fe/Y-Grenzfläche beträgt die Reichweite der Hyperfeinfeldstörung 12 ML, im Fe/Gd-System sogar 18 ML. Gd trägt im Gegensatz zum chemisch und kristallographisch äquivalenten Y ein großes lokales 4f-Spinmoment von $7\mu_B$, sa daß die große Reichweite im Falle des Gd hauptsächlich auf den Einfluß polarisierter Leitungselektronen an der Grenzfläche zurückgeführt werden kann. Auch im Fe/Gd-System wurde eine Abweichung des Spinwellenparameters b vom Volumenwert gefunden, die im Vergleich zum Chrom mit $\delta_{Gd} = 2.7$ ML um den Faktor 4 tiefer in das Fe hineinreicht. Sowohl der Vergleich zwischen den experimentellen Daten und den Bandstrukturrechnungen im Fe/Cr-System als auch die Meßergebnisse der Spinwellenparameter werden in [85] veröffentlicht.

Im zweiten Teil der Arbeit standen Untersuchungen in Dreifachschichten im Vordergrund. Derartige Systeme stellen das Grundelement von Vielfachschichtsystemen dar, die zunehmend Interesse für mögliche technische Anwendungen finden. Im Sy-

stem Fe/Cr/Fe konnte mit Hilfe der ^{57}Fe -CEMS Methode die Néel-Temperatur dünner Chrom-Zwischenschichten ermittelt werden. Sie folgt im Dickenbereich $d_{Cr} = 4 - 20$ ML einem $1/d$-Gesetz. Diese Ergebnisse werden ebenfalls in [85] publiziert. Eine Darstellung erster Resultate zu dieser Thematik wurde in [86] veröffentlicht.

Im Schichtsystem X/Fe/X (X=Gd,Y) konnte ein Zusammenhang zwischen strukturellen und magnetischen Eigenschaften gefunden werden. Variiert man die Dicke der Fe-Zwischenschicht, so läßt sich eine Veränderung der gemessenen Mößbauerspektren erkennen. Im System Gd/Fe/Gd tritt bis zu einer Dicke $d_{Fe} = 0.4$ nm nur ein paramagnetisches Spektrum auf. Im Dickenbereich $d_{Fe} = 0.4 - 2.3$ nm tritt ein zusätzliches Spektrum hinzu, das Mößbauerspektren amorpher Fe-Legierungen ähnlich ist. Oberhalb dieser kritischen Dicke bestehen alle Spektren fast ausschließlich aus den für polykristallines bcc-Eisen typischen Sechslinienspektren. Diese Variation in Abhängigkeit von der Fe-Dicke tritt auch im Y/Fe/Y-Schichtsystem auf. Im Unterschied zum Gd liegen hier jedoch bis zur Dicke von $d_{Fe} = 2.3$ nm nur paramagnetische Spektren vor. Der Vergleich mit HRTEM-Aufnahmen an diesen Schichten zeigt, daß dieses Verhalten als dickenabhängige Kristallisation der Fe-Zwischenschicht interpretiert werden kann. Unterhalb $d_{Fe} = 2.3$ nm liegt pures, mit Gd oder Y nicht durchmischtes amorphes Fe vor, das bei Erreichen dieser Dicke eine Phasenumwandlung in nanokristallines Fe erfährt. Die Ergebnisse dieses Teils der vorliegenden Arbeit werden in [87] veröffentlicht.

Mit dieser Kristallisation ist eine Änderung der magnetischen Eigenschaften verbunden. So zeigen Gd/Fe/Gd-Schichten mit nanokristallinem Fe ($d_{Fe} > 2.3$ nm) ferrimagnetisches Kompensationspunktverhalten, wobei ganze Teilschichten zu einem sog. *Giant Ferrimagnet* [79] koppeln. Durch magnetische Untersuchungen mittels MOKE, VSM und Faraday-Waage konnte gezeigt werden, daß die ferrimagnetische Kompensationstemperatur in diesen Schichten mit der Dicke des Eisens variiert. Schichten mit amorphem Eisen ($d_{Fe} < 2.3$ nm) zeigten diesen Ferrimagnetismus bis $T = 300$ K nicht.

Die magnetischen Eigenschaften des amorphen Eisens wurden im System Y/Fe/Y näher untersucht. Bei einer Zwischenschichtdicke von 2.2 nm Fe zeigten Messungen mit dem Mößbauereffekt bis zu einer minimalen Temperatur $T = 85$ K paramagnetische Spektren, während Messungen mit der Faraday-Waage bei 4.5 K ein kleines Moment von $\mu_{Fe} = 1.1\mu_B$ für das amorphe Fe ergaben. Dieses Schichtsystem zeigte überraschenderweise in MOKE-Messungen keine Tendenz zur Kerrdrehung. Die amorphe Fe-Zwischenschicht besitzt offenbar von bcc-Fe stark abweichende Eigenschaften. Nanokristallines Fe dagegen zeigte in MOKE-Experimenten Hysteresekurven, die mit Koerzitivfeldstärken von $B_c < 10$ mT für polykristallines bcc-Fe typisch sind.

A. Experimentelle Details

Die im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelten und aufgebauten Quarzoszillatoren zur Schichtdickenmessung während des Aufdampfprozesses entsprechen im wesentlichen dem Typ IPN 007-251 der Fa. Leybold-Inficon. In Verbindung mit dem wassergekühlten Quarzhalter Typ Leybold Bakeable IPN 007-219 und dem Inficon XTC Ratenmeßgerät ergab sich eine Genauigkeit der Aufdampfrate von $> 0.02\,\mathrm{nm/s}$, ein Wert, der für die gewünschte Genauigkeit der Schichtdickenbestimmung nicht ausreichte. Der Einfluß aller in Frage kommenden Einflüsse auf die Stabilität der Meßfrequenz wurde im Rahmen der Arbeit untersucht.

Eine gute Frequenzstabilität wiesen die Ag-bedampften Quarzscheiben der Fa. Leybold-Inficon auf (Typ IPN 008-009) auf, die daher auch in die neuen Quarzhalter mit verbesserter Kühlung eingebaut wurden. In der Aufdampfkammer sollten bis zu 6 Quellen gleichzeitig und unabhängig voneinander betrieben werden. Daher mußten statt des ursprünglich eingebauten Meßquarzes insgesamt sechs Quarze mit jeweils einem Oszillator betrieben werden können. Die aus der notwendigen geometrischen Anordnung resultierenden Leitungslängen zwischen Quarz und Oszillator ließen eine Verwendung des Original-Oszillators nicht mehr zu. Die neu konzipierten sechs Oszillatoren sind jeweils in einem eigenen Metallgehäuse mit gemeinsamer Masse in einem Gesamtgehäuse untergebracht. Um die Kabellängen möglichst kurz zu halten, ist dieses Gesamtgehäuse so nah wie möglich an den Hochfrequenzdurchführungen (BNC-Verbindungen) der UHV-Kammer angeordnet. Die durch die neue Anordnung bedingte Änderung der Anschlußimpedanz kann durch die auf jeder Oszillatorplatine angeordneten Trimmpotentiometer angepaßt werden. Der Schaltplan ist in Abb. A.1 gezeigt. Die Einstellung wird wie folgt vorgenommen. Ausgehend von einer mittleren Einstellung, werden nacheinander beide Potentiometer (R12, R13) so lange verändert, bis die Signalform der in Abb. A.2 gezeigten Kurve entspricht. Ein Schwingquarz läßt sich in der Regel in mehreren stabilen Frequenzzuständen betreiben. Bezogen auf die eingesetzten Quarzplättchen ist jedoch nur bei einer Frequenz von etwa $f \approx 5.7 - 5.9\,\mathrm{MHz}$ optimale Stabilität zu erwarten. Anschwingprobleme beim Einschalten der Oszillatoren können mitunter auftreten, sind jedoch durch Aus- und Wiedereinschalten oder geringfügiges Nachstellen der Oszillatoren zu beseitigen. Wurde die Einstellung richtig vorgenommen und der mit einem Quarzofen ausgestattete Frequenzzähler Hameg Typ 8122 angeschlossen, sollte bei konstanter Quarztemperatur die Stabilität der Frequenz sowohl kurzzeitig als auch im Langzeitversuch einen Wert von $\Delta f \approx 0.01\,\mathrm{Hz}$ (entsprechend etwa $1 \cdot 10^{-3} nm/s$)

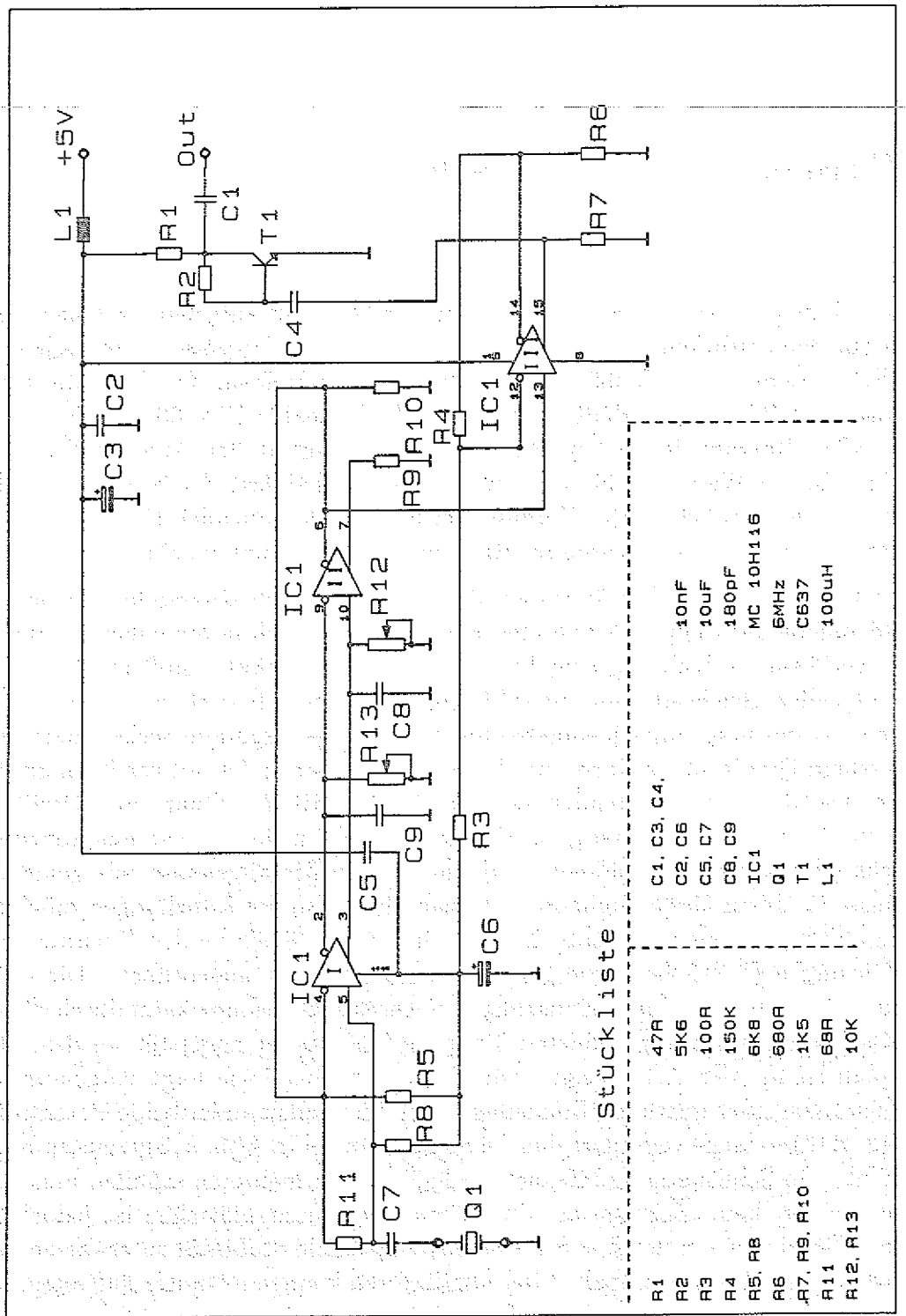


Abbildung A.1: *Schaltplan der aufgebauten Quarzoszillatoren mit den Trimmern R12, R13 zur Impedanzanpassung.*

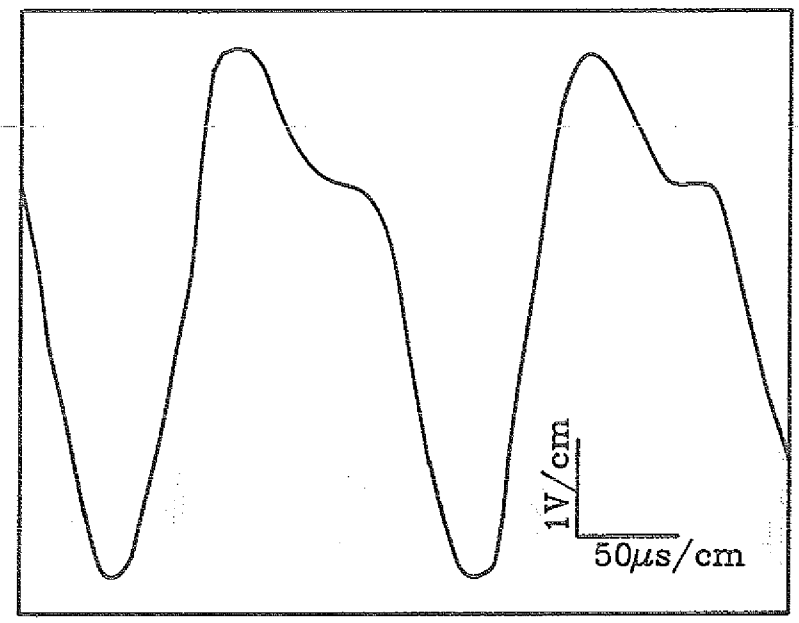


Abbildung A.2: *Signalform der Quarzoszillatoren bei richtiger Einstellung. Als Referenz ist der Maßstab der X- und Y-Ablenkung des Oszilloskops eingezeichnet.*

nicht überschreiten. Trotz der guten Wasserkühlung im Quarzhalter treten Temperaturschwankungen infolge von Wärmestrahlung während des Aufdampfprozesses auf. Zur Erzielung der größtmöglichen Genauigkeit ist daher nach dem Öffnen der Tiegelblenden vor dem eigentlichen Aufdampfbeginn eine Wartezeit von mindestens zwei Minuten zu empfehlen, bis wieder ein Temperaturgleichgewicht am Quarz eintritt. Ebenfalls problematisch sind Änderungen der Heizleistung während des Aufdampfprozesses, die wegen der veränderten Wärmestrahlung ebenfalls zu Frequenzschwankungen führen. Aus den beschriebenen Gründen ist die maximale Genauigkeit nur unter großer experimenteller Sorgfalt zu erreichen. Ein vergleichende Messung der bisherigen Methode und der verbesserten Version (allerdings noch mit dem ursprünglichen Quarzhalter!) ist in Abb. A.3 dargestellt. Deutlich ist sichtbar, daß bei erforderlicher hoher Genauigkeit eine wesentliche Verbesserung erzielt werden konnte.

Da die Signalform der aufgebauten Quarzoszillatoren nicht sinusförmig ist, wurden Versuche mit anderen Schaltungen durchgeführt. Wegen der Leitungslängen zwischen Quarz und Oszillator von etwa 1 m ergaben sich jedoch trotz der erreichten guten Sinusform des Signals Probleme mit der Frequenzstabilität, die das Hauptkriterium beim Betrieb der Anlage darstellt. Der in der Anlage eingesetzte Oszillator ist wegen der Verwendung der integrierten Schaltung Typ MC 10H116 optimal an die Übertragung kleiner hochfrequenter Spannungen über große Distanzen angepaßt.

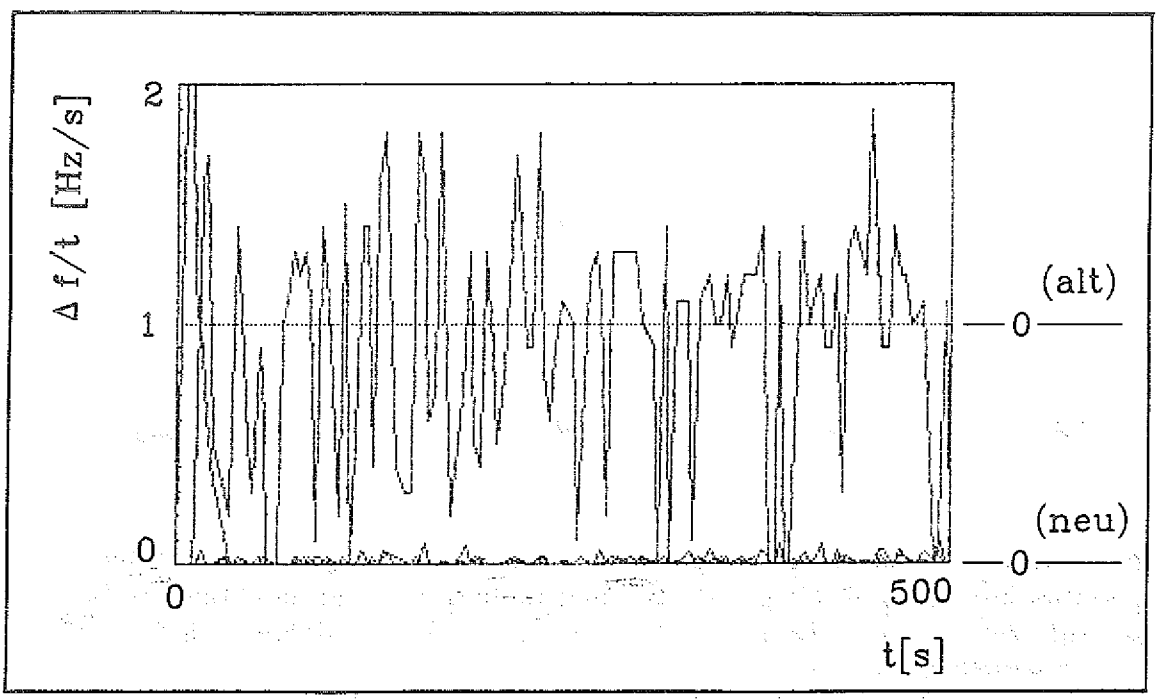


Abbildung A.3: *Vergleich der bisherigen Methode der Frequenzmessung zur verbesserten Version. Dargestellt ist der Verlauf der Frequenzabweichung in (Hz/s) über der Meßzeit. Die obere Kurve wurde durch die direkte Messung der Inficon-XTC Daten über den IEC-Bus mit einem IBM PS/2-Computer gewonnen.*

B. ...ein paar Worte des Dankes

Herrn Prof. Dr. W. Zinn möchte ich nicht nur für die Aufnahme in das Institut und die Aufgabenstellung danken, sondern vor allem für die zahlreichen Anregungen und Diskussionen im Laufe der Arbeit. Mein besonderer Dank geht an Herrn Dr. Ch. Sauer. Seine menschliche und fachlich kompetente Betreuung trägt einen wesentlichen Anteil am Gelingen. Die vielen Diskussionen mit ihm waren stets physikalisch gehaltvoll und haben mir Spaß gemacht.

Im Rahmen dieser Arbeit mußten zahlreiche elektrische und elektronische Probleme gelöst werden. Mein Dank in diesem Bereich geht vor allem an Herrn P. Pickartz, der alle Aufträge schnell und gut bearbeitet hat.

Um das Ergebnis abzurunden und zu untermauern, mußten viele zusätzliche Meßmethoden eingesetzt werden. Für die Durchführung der HRTEM-Aufnahmen danke ich Herrn Dr. B. Kabius vom IFF. Für die sehr schnelle und hervorragende Anfertigung der zahlreichen fotographischen Abzüge möchte ich Frau G. Waßenhoven (IFF) danken. Die Epitaxie-Kontrolle der Schichten mittels RBS wäre ohne die engagierte Mitarbeit der Herren K. Schmidt und Dr. S. Mantl vom ISI nicht möglich gewesen. Den Herren Dr. U. Köbler (Faraday-Waage), A. Fuß (MOKE) und U. Irnich (VSM) (alle IFF) sei für die gute Kooperation und die Durchführung der vielen magnetischen Messungen gedankt.

Besonders wichtig war der Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit theoretischen Bandstrukturrechnungen. An dieser Stelle möchte ich Herrn Dr. H.Ebert von der Fa. Siemens in Erlangen danken, der mir für diese Arbeit seine bisher unveröffentlichten Ergebnisse aus LMTO-Rechnungen an Fe/Cr-Grenzflächen zur Verfügung gestellt hat.

Darüberhinaus gab es weitere Unterstützung, die ebenfalls nicht unerwähnt bleiben darf. Probleme im Zusammenhang mit dem Aufdampfprozeß wurden durch den unerschöpflichen Erfahrungsfundus Herrn R. Schreibers gelöst. Viele hilfreiche Diskussionen konnte ich vor allem mit den Herren Dr. R. A. Brand (jetzt Duisburg) und Dr. Zs. Kajcsos (jetzt Budapest) führen. Dank dafür. Besonders in der Phase der Niederschrift der Arbeit war es sehr nützlich, Verbesserungsvorschläge aus der „Nicht-Mößbauersicht“ zu erhalten. Dafür danke ich Herrn A. Wolf (IFF).

C. Literaturverzeichnis

[1] Grünberg,P., Schreiber,R., Pang,Y., Brodsky,M.B., Sowers,H.
Phys. Rev. Lett. **57** (1986) 2442

[2] Parkin,S.S.P, More,N., Roche,K.P.
Phys. Rev. Lett. **64** (1990) 2304

[3] Grünberg,P., Demokritov,S., Fuß,A., Vohl,M., Wolf,J.A.
J. Appl. Phys. **69** (1991) (im Druck)

[4] Demokritov,S., Wolf,J.A., Grünberg,P.
Submitted to Europhys. Lett.

[5] Baibich,M.N., Broto,J.M., Fert,A., Nguyen Van Dau,F., Petroff,F., Etienne,P., Creuzet,G., Friederich,A., Chazelas,J.
Phys. Rev. Lett **61** (1988) 2472

[6] Binasch,G., Grünberg,P., Saurenbach,F., Zinn,W.
Phys. Rev. B **39** (1989) 4828

[7] Barnas,J., Fuss,A., Camley,R.E., Walz,U., Grünberg,P., Zinn,W.
Phys. Rev. B **42** (1990) 8110

[8] Tsang,Ch., Chen,M., Yogi,T., Ju,K.
IEEE Trans. Mag. **26** (1990) 1689

[9] Fu,C.L., Freeman,A.J.
J. M. M. M. **54-57** (1986) 777

[10] Drittler,B., Stefanou,N., Blügel,S., Zeller,R., Dederichs,P.H.
Phys. Rev. B **40** (1989) 8203

[11] Ebert,H.
Fa. Siemens AG, Erlangen, Private Mitteilung (1991)

[12] Mößbauer,R.L.
Z. f. Physik **151** (1958) 124

[13] Muir,A.H.jr, Ando,K.J., Coogan,H.M.
Mössbauer-Effect Data Index 1958-1965
Interscience Publ., New York, London, Sydney (1966)

[14] Hesse,J.
Habilitationsschrift, Inst.A f. Physik
TU Braunschweig (1978)

[15] Goldanskii,V.I., Herber,R.H.
Chemical Applications of Mössbauer Spectroscopy
Academic Press, New York and London (1968)

[16] Freeman,A.J.
in: Hyperfine Structure and Nuclear Radiations
Matthias,E., Shirley,D.A. (Ed.)
North-Holland Publ. Comp., Amsterdam (1968)

[17] Daniel,E.
in: Hyperfine Structure and Nuclear Radiations
Matthias,E., Shirley,D.A. (Ed.)
North-Holland Publ. Comp., Amsterdam (1968)

[18] Wegener,H.
Der Mößbauer-Effekt
BI-Hochschultb. 2/2a, Bibl.Institut A.G., Mannheim (1966)

[19] Schatz,G., Weidinger,A.
Nukleare Festkörperphysik
B.G. Teubner, Stuttgart (1985)

[20] Carbucicchio,M.
Nucl. Instr. Meth. **144** (1977) 225

[21] Klingelhöfer,G., Kankeleit,E.
Hyp. Int. **57** (1990) 1905

[22] Sawicki,J.A., Tyliszczak,T.
Nucl. Instr. Meth. **216** (1983) 501

[23] Meisel,W.
Hyp. Int. **45** (1989) 73

[24] Toriyama,T., Asano,K., Saneyoshi,K., Hisatake,K.
Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. **B4** (1984) 170

[25] Sawicki,J.A., Sawicka,B.D.
Hyp. Int. **13** (1983) 199

[26] Liljequist,D., Ekdahl,T., Bäverstam,U.
Nucl. Instr. Meth. **155** (1978) 529

[27] Sauer,Ch., Holzwarth,A., Kajcsos,Zs., Zinn,W.
Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. **B34** (1988) 377

[28] Holzwarth,A.
Dissertation, Universität Köln (1988)

[29] Window,B.
J. Phys. C Suppl. **3** (1970) 323

[30] Hesse,J., Rübartsch,A.
J. Phys. E **4** (1971) 526

[31] Campbell,S.J., Aubertin,F
Evaluation of distributed hyperfine parameters
in: Mossbauer Spectroscopy Applied To Inorganic Chemistry, Vol. 3
Plenum Press (1988)

[32] Kajcsos,Zs., Sauer,Ch. et al.
Hyp. Int. **46** (1989) 707

[33] Kajcsos,Zs., Sauer,Ch., Zinn,W.
Hyp. Int. **57** (1990) 1889

[34] Waldrop,J.R., Grant,R.W.
J. Appl. Phys. **34** (1979) 630

[35] Prinz,G.A., Krebs,J.J.
Appl. Phys. Lett. **39** (1981) 397

[36] Vermaak,J.S., Snyman,L.W., Auret,F.D.
in: Surface Contamination, Vol. 2
Plenum Publ. Corp., (1979)

[37] Saurenbach,F.
Jül. Ber. 2271, (März 1988)

[38] Weller,D.
Jül. Ber. 2026, (November 1985)

[39] Lu,C., Lewis,O.
J. Appl. Phys. **43** (1972) 4385

[40] Lu,C.
J. Vac. Sci. Technol. **12** (1975) 578

[41] Saurenbach,F.
Forschungszentrum Jülich, IFF, Private Mitteilung (1988)

[42] Wang,Y., Levy,P.M., Fry,J.L.
Phys. Rev. Lett. **65** (1990) 2732

[43] Bardasis,A., Falk,D.S., Ferrell,M.S., Fullenbaum,M.S., Prange,R.E., Mills,D.L.
Phys. Rev. Lett. **14** (1965) 298

[44] Yosida,K., Okiji,A.
Phys. Rev. Lett. **14** (1965) 301

[45] Przybylski,M., Gradmann,U., Korecki,J.
J. M. M. M. **69** (1987) 199

[46] Bayreuther,G.
J. M. M. M. **38** (1983) 273

[47] Korecki,J., Gradmann,U.
Europhys. Lett. **2** (1986) 651

[48] Onishi,S., Freeman,A.J., Weinert,M.
Phys. Rev. B **28** (1983) 6741

[49] Freeman,A.J., Fu,C.L., Wimmer, E.
Nucl. Instr. Meth. in Phys. Res. **B27** (1987) 201

[50] Freeman,A.J., Fu,C.L.
J. Appl. Phys. **61** (1987) 3356

[51] Dubiel,S.M., Zukrowski,J.
J. Mag. Magn. Mat. **23** (1981) 214

[52] Weißmantel,Ch., Hamann,C.
Grundlagen der Festkörperphysik, Springer Verlag (1980)

[53] Mathon,J.
Physica B **149** (1988) 31

[54] Pierce,D.T., Celotta,R.J., Unguris,J., Siegmann,H.C.
Phys. Rev. B **26** (1982) 2566

[55] Kubaschewski,O.
Iron Binary Phase Diagrams, Springer Verlag (1982)

[56] Taborelli,M., Allenspach,R., Boffa,G., Landolt,M.
Phys. Rev. Lett. **56** (1986) 2869

[57] Pollard,R.J., Hargraves,P., Morrish,A.H., Soohoo,R.F., Taylor,R.C.
J. M. M. M. **53** (1985) 93

[58] Brewer,W.D., Wehmeier,E.
Phys. Rev. B **12** (1975) 4608

[59] Heiman,H., Lee,K.
Phys. Lett. **55** A (1975) 297

[60] Allen,G.A.T.
Phys. Rev. **B1** (1970) 352

[61] Domb,C.
J. Phys. A **6** (1973) 1296

[62] Ballentine,C.A., Fink,R.L., Araya-Pochet,J., Erskine,J.L.
Phys. Rev. B **41** (1990) 2631

[63] Li,Y., Farle,M., Baberschke,K.
Phys. Rev. B **41** (1990) 9596

[64] Burke,S.K., Cywinski,R., Davis,J.R., Rainford,B.D.
J. Phys. F: Met. Phys. **13** (1983) 451

[65] Yoden,K., Hosoito,N., Kawaguchi,K., Mibu,K., Shinjo,T.
Jap. J. Appl. Phys. **27** (1988) 1680

[66] Morishita,T., Togami,Y., Tsushima,T.
Proc. Int. Symp. on Physics of Magnetic Materials
Sendai April 8-11, (1987) 295
Eds.: Takahashi,M., Maekawa,S., Gondo,Y., Nose,H.

[67] Keppner,W., Wesche,R., Klas,T., Voigt,J., Schatz,G.
Thin Sol. Films **143** (1986) 201

[68] Moyzis,A.J. jr, Drickamer,H.G.
Phys. Rev. **171** (1968) 389

[69] Williamson,D.L., Bukshapan,S., Ingalls,R.
Phys. Rev. B **6** (1972) 4194

[70] Miedema,A.R., Dorleijn,J.W.F.
Surf. Sci. **95** (1980) 447

[71] Kawaguchi,K., Yamamoto,R., Hosoito,N., Shinjo,T., Takada,T.
J. Phys. Soc. Jap. **55** (1986) 2375

[72] Köbler,U., Deloie,F.
Jül. Ber. 1305, (1976)

[73] Kouvel,J.S., Wilson,R.H.
J. Appl. Phys. **32** (1961) 435

[74] Macedo,W.A.A., Keune,W., Ellerbrock,E.D.
J. M. M. M. (1991) (im Druck)

[75] Moruzzi,V.L., Marcus,P.M., Kübler,J.
Phys. Rev. B **39** (1989) 6957

[76] Walz,U.
Jül. Ber. 2272 (1989)

[77] Fuß,A.
Diplomarbeit, Universität Köln (1989)

[78] Introduction to Magnetic Recording
Ed. by R.M. White, IEEE Press, New York (1985)

[79] Dohnomae,H., Shinjo,T., Motokawa,M.
Proceedings of the E-MRS Meeting, Mai 1990, Strasbourg
To be published in J. M. M. M. (1991)

[80] Wiechers,R.
Dissertation, Universität Köln (1991)

[81] Jensen,P.J., Bennemann,K.H.
Phys. Rev. B **42** (1990) 849

[82] Camley,R.E., Tilley,D.R.
Phys. Rev. B **37** (1988) 3413

[83] Camley,R.E.
Phys. Rev. B **39** (1989) 12316

[84] Landes,J., Sauer,Ch., Brand,R.A., Zinn,W., Mantl,S., Kajcsos,Zs.
Magnetic Hyperfinefields near the Fe/Cr (100,110) Interface studied by CEMS
J. M. M. M. **86** (1990) 71

[85] Sauer,Ch., Landes,J., Ebert,H., Zinn,W.
CEMS Interface Study of (Fe/M)-Multilayers (M=Cr,Gd)
Proceedings of the MRS Spring Meeting, 29.4.-3.5.1991
Anaheim, California, U.S.A. (to be published)

[86] Landes,J., Sauer,Ch., Brand,R.A., Zinn,W., Kajcsos,Zs.
CEMS-Study of the Interface in Fe/Cr Multilayer Systems
Hyp. Int. **57** (1990) 1941

[87] Landes,J., Sauer,Ch., Kabius,B., Zinn,W.
Critical Thickness of the amorphous-nanocrystalline Transition in Gd/Fe Film Structures
Submitted to Phys. Rev. B (1991)

FORSCHUNGSZENTRUM JÜLICH GmbH

KFA

Jül-2439
Juni 1991
ISSN 0366-0885