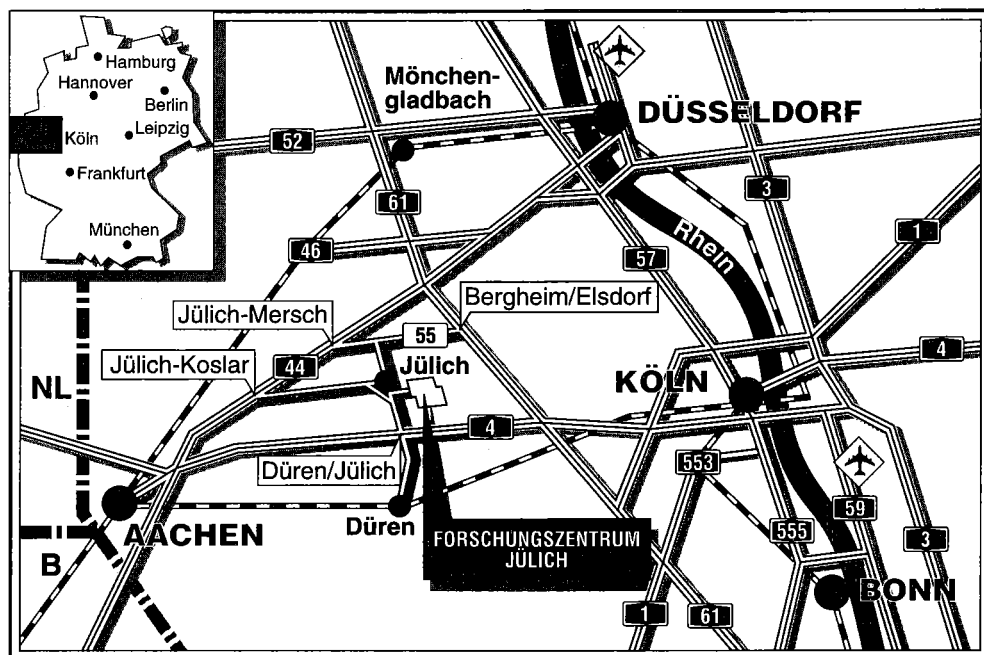


*Institut für Grenzflächenforschung
und Vakuumphysik*

**Korrelation von Magnetismus, Struktur
und Morphologie ultradünner Eisen-
und Manganfilme auf einkristallinen
Metallsubstraten**

Benedikt Feldmann



Berichte des Forschungszentrums Jülich ; 3185

ISSN 0944-2952

Institut für Grenzflächenforschung und Vakuumphysik Jül-3185

D82 (Diss. RWTH Aachen)

Zu beziehen durch: Forschungszentrum Jülich GmbH · Zentralbibliothek

D-52425 Jülich · Bundesrepublik Deutschland

Telefon: 02461/61-61 02 · Telefax: 02461/61-61 03 · Telex: 833556-70 kfa d

Korrelation von Magnetismus, Struktur und Morphologie ultradünner Eisen- und Manganfilme auf einkristallinen Metallsubstraten

Benedikt Feldmann

Abstract

Ultrathin Fe and Mn films were deposited on single crystal substrates to investigate the correlation between magnetic, structural and morphological properties of ultrathin films. Cu(100) and Cu₃Au(100) single crystals were chosen as substrates to stabilize the high temperature fcc phases of Fe and Mn at room temperature.

The magnetic properties were investigated by the Magneto-Optic Kerr-Effect (MOKE). The structure of the films was characterized by Low Energy Electron Diffraction (LEED) and determined by quantitative, full dynamical analysis of LEED I/V spectra. LEED, Spot Profile Analyzing LEED (SPA-LEED), Medium Energy Electron Diffraction (MEED) and Auger Electron Spectroscopy (AES) were used to analyze the morphological properties. Films were deposited at 300 K (RT-films) or at 100 K followed by a subsequent annealing to 300 K (LT-films).

In dependence on deposition temperature and thickness Fe grows in two different fcc and the bcc phase on the Cu(100) substrate. The ferromagnetic (FM) fcc Fe phase is stabilized on the Cu(100) substrate below about 4.5 monolayers (ML) independent of the deposition temperature. Within this coverage regime the magnetization is aligned perpendicular to the film surface. In correspondence to theoretic calculations the volume of this phase ($12.19 \text{ \AA}^3$) is expanded in comparison to the bcc ($11.82 \text{ \AA}^3$) and the antiferromagnetic (AF) fcc phase ($11.5 \text{ \AA}^3$). Every layer of the film is reconstructed perpendicular as well as parallel to the film surface. Atomic rows in fcc[011]-direction are sinusoidally sheared and corrugated in fcc[0 $\bar{1}$ 1]-direction. This reconstruction is characteristic of a structural instability of the FM fcc Fe phase. Apart from the surface layer the reconstruction vanishes and the bulk interlayer distance decreases, when the thickness of RT-films exceeds 4.5 ML. The smaller atomic volume of the film bulk corresponds to the atomic volume of the AF fcc phase. Due to the reduced coordination number the FM fcc phase remains stabilized at the film surface. This causes a constant signal of the polar Kerr effect upon increasing thickness. Above 10 ML the fcc(100) Fe is transformed to bcc(110) Fe by a martensitic transformation. As a result of this transition the film is homogeneously magnetized parallel to the film surface.

LT-films transform directly from the FM fcc(100) to the bcc(110) Fe phase above 4.5 ML by an increase of the in-plane shear amplitude and the interlayer distance. Due to the reconstruction pattern of the FM fcc phase the bcc(110) domains are smaller than the domains of the RT-films. The structural transition causes a switching of the magnetization to in-plane.

An increase of the in-plane lattice constant to $3.745 \text{ \AA}$ by deposition on Cu₃Au(100) suppresses the formation of fcc Fe. Instead, Fe grows epitaxially strained in the bcc(100) structure up to 5.5 ML. Below this coverage a layer-by-layer like growth mode is found. The interface and the magneto-elastic anisotropy stabilize a perpendicular magnetization direction at low coverage. Fe and substrate atoms diffuse at the Fe substrate interface during deposition at 300 K. This interdiffusion reduces the critical thickness

for a reorientation of the magnetization to in-plane from 3.2 ML for LT-films to 2.3 ML for RT-films. Above 5.5 ML unstrained bcc(100) Fe is formed on the substrate upon increasing coverage.

Mn grows pseudomorphically on the $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ substrate up to 25 ML. Above a deposition temperature of 170 K layer-by-layer growth is found. Whereas the in-plane lattice spacing of the film remains unchanged upon increasing thickness, the interlayer distance changes up to about 11 ML. Above about 14 ML Mn is stabilized in the AF fcc modification, which is corroborated by a quantitative structural analysis at 16 ML. Due to an antiferromagnetic spin density wave with vector $[100]$ the c/a -ratio is reduced by 5.2 %.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Magnetismus ultradünner Filme	5
2.1	Grundlagen	6
2.2	Wechselbeziehung zwischen Magnetismus und Struktur	14
2.3	Die magnetische Anisotropie	28
2.4	Der magnetooptische Kerr-Effekt	34
3	Modifizierung struktureller Eigenschaften	39
3.1	Spannungsinduzierte Kontrolle	40
3.2	Stabilisierung metastabiler Phasen	43
3.3	Strukturbestimmung mittels LEED	52
4	Morphologie ultradünner Filme	55
4.1	Wachstum	55
4.2	Charakterisierung morphologischer Eigenschaften	59
5	Experimenteller Aufbau	63
5.1	Die Apparatur	63
5.2	Der magnetooptische Kerr-Effekt	67
5.3	Präparation	72
5.3.1	Präparation der Einkristalle	72
5.3.2	Präparation der Filme	77

6	Experimente an ultradünnen Eisenfilmen	81
6.1	Ultradünne Eisenfilme auf Cu(100)	83
6.1.1	Magnetismus	92
6.1.2	Morphologie	97
6.1.3	Struktur	103
6.1.4	Korrelation	116
6.1.5	Vergleich mit anderen Arbeiten	127
6.2	Ultradünne Eisenfilme auf Cu ₃ Au(100)	132
6.2.1	Morphologie	134
6.2.2	Magnetismus	144
6.2.3	Struktur	152
6.2.4	Korrelation	163
6.2.5	Vergleich mit anderen Arbeiten	167
6.3	Vergleich der Eisenfilme	169
7	Experimente an ultradünnen Manganfilmen	173
7.1	Morphologie	176
7.2	Struktur	180
7.3	Diskussion	185
8	Zusammenfassung	191

Abbildungsverzeichnis

2.1	Spinaufgespaltene Bandstruktur und Zustandsdichte des krz Eisens . . .	11
2.2	Stoner-Kriterium für die 3d-Elemente	12
2.3	Phasendiagramm des Eisens	15
2.4	Slater-Pauling-Kurve	16
2.5	Gitterkonstanten kubisch flächenzentrierter Eisenlegierungen in Abhängig- keit der Elektronenkonzentration pro Atom e/a	18
2.6	Magnetische Phasen des krz und kfz Eisens in Abhängigkeit des atoma- ren Volumens	19
2.7	Magnetische Phasen des kfz und krz Mangans in Abhängigkeit des ato- maren Volumens	20
2.8	Antiferromagnetische Spinstruktur in einem krz und einem kfz Kristall .	22
2.9	Antiferromagnetische Spinstrukturen in einem kfz Kristall	22
2.10	Deformation der lokalen, spinaufgespaltenen Zustandsdichte eines AF kfz Kristalls mit einer SSDW-Spinstruktur bei einer Verkleinerung des interatomaren Abstands	23
2.11	Berechnete Abhängigkeit der Temperatur des Reorientierungsübergangs und der Curie-Temperatur von der Schichtdicke	32
2.12	Polarisationszustand des senkrecht polarisierten, einfallenden Lichts nach dem Durchtritt bzw. der Reflexion an einem Medium.	35
3.1	Epitaktisches Wachstum struktureller Phasen auf einkristallinen Sub- straten	40
3.2	Abschätzung des Stabilitätsbereichs für das pseudomorphe Wachstum metastabiler Phasen	49
3.3	Tetragonale Ebene und epitaktische Linie für strukturelle Phasen der 3d-Übergangsmetalle	51

4.1	Wachstumsmodi	56
4.2	Einfluß von Defekten auf das LEED-Beugungsbild	61
5.1	Aufbau der Apparatur	66
5.2	Abhängigkeit der Suszeptibilität von der Amplitude des externen Feldes und der Temperatur	70
5.3	Aufbau zur Messung des magnetooptischen Kerr-Effekts	71
5.4	Kristallstruktur der geordneten Cu ₃ Au-Legierung	72
5.5	Augerspektren des präparierten Cu(100)- und Cu ₃ Au(100)-Kristalls . .	73
5.6	LEED-Bilder der geordneten und ungeordneten Cu ₃ Au(100)-Legierung .	74
5.7	LEED I(E)-Spektren der reinen Substratoberfläche für verschiedene Präpa- rationsbedingungen	75
5.8	Abhängigkeit der Auger-Intensitätsverhältnisse von der Schichtdicke . .	78
6.1	Modelle der Überstrukturen in den Bereichen I und II	86
6.2	MEED-Kurven des (0,0)-Reflexes bei 300 K	88
6.3	LEED-Bilder von RT-Eisenfilmen auf Cu(100)	89
6.4	Abhängigkeit der Kerr-Elliptizität und der Curie-Temperatur der RT- Filme von der Schichtdicke	90
6.5	Abhängigkeit der magnetischen Eigenschaften der RT-Filme von der Schichtdicke	93
6.6	Verlauf der Koerzitivfeldstärke beim Übergang von II nach III	94
6.7	Magnetismus der TT-Filme	95
6.8	Magnetismus nicht angelassener TT-Filme	96
6.9	Morphologie eines 10 und eines 21 ML dicken RT-Eisenfilmes auf Cu(100)	98
6.10	Form des (0,0)-Reflexes der RT-Eisenfilme auf Cu(100)	99
6.11	Rastertunnelmikroskopbild eines RT-Films im Bereich II	100
6.12	Rastertunnelmikroskopbild eines RT-Films im Bereich III	101
6.13	LEED-Bilder der TT-Eisenfilme	102

6.14 LEED-Bilder der Überstrukturen der RT-Filme mit großer Schichtdicke (III)	103
6.15 LEED I(E)-Kurven für den (1,0)-Reflex der RT-Eisenfilme in den verschiedenen Schichtdickenbereichen	104
6.16 Intensitätsverteilung des LEED-Bildes um die Position des (1,0)-Reflexes in Bereich III	106
6.17 Schematisches LEED-Bild dicker Fe-Filme auf Cu(100)	107
6.18 Realraummodell des krz(110)-Eisens auf dem Cu(100)-Substrat	108
6.19 LEED I(E)-Spektren eines 20 ML Fe-Films auf Cu(100)	109
6.20 Rastertunnelmikroskopaufnahme der Cu(100)-Oberfläche	110
6.21 Atomar aufgelöstes RTM-Bild des krz Eisens auf Cu(100) im Bereich III	110
6.22 Schematische Darstellung der Domänenstruktur in Abb. 6.21	111
6.23 LEED I(E)-Spektren der (0,1)-Reflexe der TT-Filme bei kleiner Schichtdicke	112
6.24 Vergleich der LEED I(E)-Spektren von RT- und TT-Filmen	114
6.25 Optimierte Struktur der Eisenfilme im Bereich I und A	115
6.26 Strukturelle und magnetische Phasen des Fe auf einem Cu(100)-Substrat	116
6.27 Modell für den strukturellen Übergang von der FM kfz(100)- zur krz(110)-Phase des Fe für TT-Filme	118
6.28 Modell für eine dünne magnetische Schicht mit zweiphasiger Magnetstruktur	122
6.29 Modell für die Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke vom Anteil der Phase II	123
6.30 Temperaturen für das Einsetzen der Diffusion in Abhängigkeit der Schichtdicke	134
6.31 MEED-Wachstumskurven verschiedener Reflexe für TT- und RT-Filme	136
6.32 MEED-Kurven des (0,0)-Reflexes bei verschiedenen Depositionstemperaturen	139
6.33 LEED-Bilder der TT-Filme auf Cu ₃ Au(100)	141
6.34 LEED-Bilder angelassener TT-Filme auf Cu ₃ Au(100)	142

6.35	LEED-Bilder der RT-Filme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$	142
6.36	LEED-Bilder angelassener RT-Filme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$	143
6.37	Magnetische Eigenschaften der RT-Filme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$	144
6.38	Magnetische Eigenschaften der TT-Filme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$	145
6.39	Magnetische Anisotropie eines TT-Films mit großer Schichtdicke auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$	146
6.40	Abfolge von Hysteresekurven bei der Drehung der senkrechten Magnetisierung in die Filmebene	147
6.41	Abhängigkeit des Reorientierungsübergangs der TT-Filme von der Temperatur und der Schichtdicke	148
6.42	Curie-Temperatur der Eisenfilme auf einem $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ -Substrat	149
6.43	Sättigungsmagnetisierung in Abhängigkeit der Schichtdicke nach unterschiedlichen Filmpräparationen	151
6.44	Bestimmung der Überstruktur dünner Eisenfilme	152
6.45	Vergrößerung des lateralen nächsten Nachbarabstandes der RT-Filme oberhalb 5 ML	154
6.46	Abhängigkeit der Reflexbreite angelassener RT-Filme zwischen 5 und 10 ML	155
6.47	Spektren für die beste Übereinstimmung zwischen experimentellen und theoretischen Werten eines 53 ML RT-Eisenfilms auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$	157
6.48	Einfluß der Variation der Strukturparameter auf den Pendry-R-Faktor .	158
6.49	Spektren für die beste Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den theoretischen Werten eines 18,7 ML RT-Eisenfilms auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$	159
6.50	Vergleich von $I(E)$ -Spektren des (0,0)-Reflexes bei verschiedenen Schichtdicken.	160
6.51	Spektren für die beste Übereinstimmung zwischen experimentellen und theoretischen Werten eines 4,8 ML RT-Eisenfilms auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$	161
6.52	Schematisches Realraummodell und berechnete LEED-Bilder für die Überstrukturen bei kleinen Schichtdicken	162

6.53	Tetragonale Ebene und epitaktische Linie im Vergleich mit experimentellen Daten von Eisenfilmen auf unterschiedlichen Substraten	172
7.1	MEED-Wachstumskurven der Manganfilme	177
7.2	Beugungsbilder der Mn-Filme in Abhängigkeit der Bedeckung	179
7.3	I(E)-Spektren der Mn-Filme in Abhängigkeit der Schichtdicke	180
7.4	Vergleich berechneter und experimenteller I(E)-Spektren für einen 16 ML Film	181
7.5	Einfluß der Variation der Strukturparameter auf die R-Faktoren	184
7.6	Berechnete Abhängigkeit der lateralen Gitterkonstante a_0 vom c_0/a_0 -Verhältnis für unverspanntes kfz Mn	186
7.7	Vergleich zwischen experimentellen und berechneten Werten der magnetischen und strukturellen Phasen des kfz Mangans	190
8.1	Korrelation der magnetischen, strukturellen und morphologischen Eigenschaften der Eisenfilme auf Cu(100)	192
8.2	Korrelation der magnetischen, strukturellen und morphologischen Eigenschaften ultradünner Eisenfilme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$	193

Tabellenverzeichnis

2.1	Strukturelle Phasen der d-Übergangsmetalle	7
2.2	Ergebnisse aus Totalenergieberechnungen der magnetischen und strukturellen Phasen der 3d-Elemente	21
2.3	Berechnung der tetragonalen Verzerrungen in kfz Fe und Mn induziert durch die antiferromagnetische Spinstruktur	24
3.1	Magnetische und strukturelle Phasen der 3d-Übergangsmetalle	45
5.1	Diffusion der Tieftemperatur-Eisenfilme auf Cu(100)	77
6.1	Berechnete Strukturparameter für die unterschiedlichen magnetischen und strukturellen Phasen des Fe auf verschiedenen einkristallinen Substraten	82
6.2	Übersicht über experimentelle Ergebnisse aus Untersuchungen an Eisenschichten auf Cu(100)	83
6.3	Vergleich der experimentell bestimmten Interlagenabstände für Fe-Filme auf einem Cu(100)-Substrat	85
6.4	Energien, bei denen die Halbwertsbreiten des (0,0)-Reflexes in den Bereichen II und III extremal werden	109
6.5	Strukturelle Parameter der besten Übereinstimmung zwischen den Berechnungen und dem Experiment für die (5×1)-Überstruktur	115
6.6	Beste Übereinstimmung zwischen experimentellen und berechneten I(E)-Spektren für ultradünne Eisenfilme auf Cu ₃ Au(100)	156
7.1	Abhängigkeit der Diffusion von der Schichtdicke	176
7.2	Optimierte Strukturparameter von Mn-Filmen mit großer Schichtdicke .	182

Kapitel 1

Einleitung

Die Entwicklung neuer Werkzeuge und Materialien ist in der Geschichte der menschlichen Zivilisation ein wesentliches Kennzeichen des Fortschritts gewesen. Unsystematisches Experimentieren und ein mystisch verbrämter Zugang der Bevölkerungsmehrheit zur Natur verhinderten jedoch über einen größeren Zeitraum eine schnelle technische Entwicklung. Mit dem Zeitalter der Aufklärung fand jedoch eine analytisch-rationale Denkweise und systematische Erkenntnisgewinnung weite Verbreitung. Dies ermöglichte zusammen mit der politischen und wirtschaftlichen Liberalisierung im letzten Jahrhundert die erste und zweite industrielle Revolution. Ziel der technologischen Entwicklung ist es seither, mechanische, elektronische, optische und magnetische Eigenschaften für jeden denkbaren Anwendungsfall maßzuschneidern. War in der ersten Revolution noch die Ausbeutung der Rohstoffe ein entscheidender Faktor, so wurde mit fortschreitender Industrialisierung ihre Verarbeitung und die Ausnutzung der Materialeigenschaften zunehmend bedeutsamer.

Diese Tendenz hat sich bis zur heutigen Zeit fortgesetzt. Insbesondere für die Entwicklung neuer Hochtechnologieprodukte ist eine genaue Kenntnis der Eigenschaften des Festkörpers erforderlich, um eine systematische Kontrolle der Materialeigenschaften zu gewährleisten. Die Entwicklung neuer Materialien und ihre Anwendung kann daher ohne ein vollständiges Verständnis der Materialeigenschaften nur kurz- oder mittelfristig, nicht aber langfristig erfolgreich sein. Dies gilt insbesondere für die Informationstechnologie, die in den vergangenen beiden Jahrzehnten den größten Anteil am Innovationsschub ausgemacht hat. Sowohl für den Bereich der Halbleitertechnologie als auch den der magnetooptischen Speichermedien ist das Aufbringen dünner Schichten ein wesentlicher Prozeßschritt. Die zunehmende Komplexität und Miniaturisierung der Systeme erfordert eine Kontrolle des Wachstums der Schichten auf einer immer kleineren Skala.

Bei der Herstellung von Dünnschichtsystemen mit maßgeschneiderten magnetischen Eigenschaften ist daher eine Kontrolle des Schichtwachstums essentiell. Allerdings sind die Anwendungen und Anforderungen an magnetische Materialien so vielseitig und anspruchsvoll, daß eine Kontrolle der Schichtdicke allein bei weitem nicht ausreicht. So muß, anders als in der Halbleitertechnologie, ein defektfreier Film nicht unbedingt von

Vorteil sein, da Defekte magnetische Eigenschaften auch positiv beeinflussen können. Die systematische Modifizierung der Filmeigenschaften setzt allerdings ein Verständnis des Zusammenhangs zwischen den magnetischen und anderen Eigenschaften voraus. Neben Defekten fällt unter diese Eigenschaften auch die Struktur, das heißt die atomare Position, und die Morphologie (Filmbeschaffenheit). Eine Untersuchung dieses Zusammenhangs ist erforderlich, da Konzepte, die für den Volumenkristall gelten, nicht auf Schichtsysteme im Subnanometerbereich übertragbar sind und die Grenzflächen der Filme einen erheblichen Einfluß auf die Filmeigenschaften ausüben können. So lassen sich unter Normalbedingungen strukturelle Phasen eines Materials in ultradünnen Filmen stabilisieren, die im Volumen erst bei deutlich höherer Temperatur oder höherem Druck vorliegen. Der Einfluß der Grenzfläche kann z.B. eine senkrecht zur Oberfläche orientierte Magnetisierung des Films unterhalb einer kritischen Schichtdicke stabilisieren.

Ziel dieser Arbeit ist es, den Zusammenhang zwischen den magnetischen, strukturellen und morphologischen Eigenschaften ultradünner, magnetischer Metallfilme systematisch zu untersuchen und Methoden zu entwickeln, die magnetischen Eigenschaften durch eine strukturelle Modifikation zu beeinflussen. Dazu wurden Elemente der 3d-Schale auf einkristalline Substrate aufgedampft, da die 3d-Elemente im Volumen eine ausgeprägte Abhängigkeit der magnetischen Eigenschaften von der Struktur aufweisen. Da bei diesen Elementen hauptsächlich die Spins der d-Orbitale zum magnetischen Moment beitragen, ist der magnetische Zustand der 3d-Elemente von der Hybridisierung der d-Orbitale benachbarter Atome abhängig.

Mangan und Eisen als 3d-Elemente mit großem Gesamtspin besitzen bei höherer Temperatur eine kubisch flächenzentrierte Struktur. Bei Raumtemperatur lassen sich diese Phasen in Legierungen stabilisieren, die verschwindende oder sehr große Ausdehnungskoeffizienten oder eine außergewöhnlich große Längenänderung bei Anlegen eines äußeren Feldes (Magnetostriktion) aufweisen. Zum Verständnis dieser makroskopischen Effekte ist eine Analyse der mikroskopischen Eigenschaften der reinen Phasen erforderlich. Durch die Wahl eines Substrats mit geeigneter Gitterkonstante wurde unter anderem versucht, die Hochtemperaturphasen beider Elemente bei Raumtemperatur zu stabilisieren. Die Stabilisierung ist wahrscheinlich, wenn die Gitterkonstante der kubisch flächenzentrierten Phasen des Mangans und Eisens nur wenig von der des Substrats abweicht und der Film nahezu unverspannt auf dem Substrat aufwächst. Durch die Variation der Gitterkonstante des Substrats wurde der Einfluß von Spannungen auf die Filmeigenschaften untersucht. Durch die stärkere Verspannung kann sich z.B. die Magnetisierungsrichtung oder die Struktur des Films ändern.

Die magnetischen, strukturellen und morphologischen Eigenschaften ultradünner, magnetischer Metallfilme an sich waren bereits Gegenstand mehrerer Experimente, die Untersuchung der Korrelation aller Größen bedarf jedoch einer eingehenden Untersuchung. Die Experimente wurden daher in einem Versuchsaufbau durchgeführt, der die

Untersuchung der magnetischen, strukturellen und morphologischen Eigenschaften *in situ* zuläßt.

Diese Promotion wurde durch die Begabtenförderung der Konrad Adenauer Stiftung gefördert.

Kapitel 2

Magnetismus ultradünner Filme

Die markanteste Erscheinung des Magnetismus ist die Ausbildung einer spontanen Ordnung der magnetischen Momente unterhalb einer kritischen Temperatur. Bei Parallelstellung der Momente wird diese Ordnung als ferromagnetisch, bei antiparalleler Stellung als antiferromagnetisch bezeichnet. In Legierungen können die verschiedenen großen Momente der Bindungspartner antiparallel zueinander orientiert sein, so daß das resultierende magnetische Moment nicht Null ist. Diese Ordnung wird als ferrimagnetisch bezeichnet. Langreichweitige ferromagnetische Ordnung setzt unterhalb der Curie-Temperatur, antiferromagnetische unterhalb der Néel-Temperatur ein. Die mit der Ordnung verbundene Energie, die Austauschenergie, liegt im Bereich von 0,1 eV/Atom. Die Größe dieser Energie erklärt, warum Curie-Temperaturen mehrerer hundert Kelvin für Volumenkristalle beobachtet werden. Im Vergleich dazu liegt der energetische Beitrag der Grenzfläche bei 0,1 eV/Grenzflächenatom. Da die Grenzflächenatome bei ultradünnen Filmen einen erheblichen Anteil des Films ausmachen, können die Grenzflächenbeiträge im Vergleich zum Volumenkristall nicht vernachlässigt werden. Durch die Modifizierung der Grenzflächeneigenschaften bietet sich die Möglichkeit, die magnetischen Eigenschaften des Films gezielt zu beeinflussen. Durch die Wahl der Orientierung des Substrats kann man versuchen, dem Film eine Symmetrie aufzuprägen. Durch die Wahl des Substratmaterials wird die Hybridisierung zwischen Substrat und Aufdampfmaterial beeinflusst. Solche Überlegungen spielen nicht nur für die Existenz einer magnetischen Ordnung sondern auch die Orientierung der magnetischen Momente eine Rolle. Im Volumen wird die Anisotropie durch Energien auf einer Skala von 10^{-6} eV/Atom bestimmt, an der Grenzfläche von $10^{-3} \dots 10^{-6}$ eV/Grenzflächenatom. Die Magnetisierungsrichtung dünner Filme kann daher, induziert durch die Grenzflächenbeiträge, von der des Volumens abweichen.

Im folgenden Abschnitt werden zunächst die Grundlagen des Magnetismus im Festkörper vorgestellt. Im Anschluß daran wird auf die Abhängigkeit des Magnetismus von der Struktur und dem atomaren Volumen eingegangen. Schließlich werden die Energiebeiträge, die zur Orientierung der magnetischen Momente in eine kristallographische Richtung führen, vorgestellt.

2.1 Grundlagen

Alle Materialien, die als freie Atome ein magnetisches Moment tragen, sind prinzipiell als magnetische Werkstoffe interessant. Dieses Moment hängt von dem Beitrag der Spins S und des Bahndrehimpulses L ab. Für leichte und mittlere Atome ist die Spin-Bahn-Kopplung klein gegenüber der Coulombwechselwirkung zwischen den Elektronen (Russel-Saunders oder L-S Kopplung) [1]. Nicht betrachtet werden soll der Fall schwerer Atome, für die der Spin und der Bahndrehimpuls jedes Elektron zum Gesamtdrehimpuls koppelt (J-J Kopplung). Bei der L-S Kopplung kann die Spin-Bahn-Wechselwirkung als Störungsterm erster Ordnung berücksichtigt werden; die Auffüllung der Elektronenschalen erfolgt dann nach den Hund'schen Regeln [2]. Die Besetzung der Elektronenschalen wird durch das Pauli-Prinzip bestimmt; die Gesamtwellenfunktion muß antisymmetrisch sein. Soweit das Mehrfachbesetzungsverbot es zuläßt, ist die Spinmultiplizität im Grundzustand der Atome maximal.

Den größten Gesamtspin besitzen die Atome mit halbgefüllter Schale. Je größer der Spin ist, desto unsymmetrischer ist die Ortsfunktion. Die Elektronen müssen dann auf unterschiedlichen Bahnen lokalisiert sein und die Wellenfunktion muß für jeweils 2 Elektronen einen Knoten haben. Die Wahrscheinlichkeit, daß sich 2 Elektronen mit gleichem Spin nahe beieinander befinden, ist klein, und der Energiebeitrag der Coulombenergie verringert sich. Diese Wechselwirkung zwischen den Elektronen wird Austauschwechselwirkung genannt. Sie bewirkt, daß Elektronen parallelen Spins einen möglichst großen Abstand besitzen. Die Elektronen führen daher ein *Austauschloch* mit sich. Aufgrund des Austauschloches wird die Coulombenergie reduziert und potentielle Energie gewonnen.

Die Austauschwechselwirkung bestimmt damit im wesentlichen die Geometrie der Orbitale. Die Orbitale sind demnach um so stärker gerichtet, je größer der Gesamtspin in der Unterschale ist. Der Effekt ist daher bei den d- und f-Orbitalen mit halber Besetzung ausgeprägt. Sie bestimmen aufgrund ihres stark gerichteten Charakters auch die Geometrie der Bindung. Allerdings sind die f-Orbitale trotz größeren magnetischen Momentes und Bahndrehimpuls zu wenig ausgedehnt, um im direkten Austausch durch Überlapp der Wellenfunktionen wesentlich zur Bindung beizutragen: sie sind lokalisiert. Bei sehr ausgedehnten Orbitalen verursacht die Hybridisierung eine große Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen am Nachbaratom: die Elektronen sind itinerant. Die Betrachtung der d-Elektronen als ausschließlich lokalisiert oder itinerant ist eine Vereinfachung der wirklichen Situation, in der die d-Valenzelektronen beide Charakteristika aufweisen.

Aufgrund des stark unsymmetrischen Charakters der Ortsfunktion für die d-Atome mit großem Gesamtspin wird im Festkörper nicht die dichtest gepackte, hexagonale (hex) oder kubisch flächenzentrierte (kfz), sondern, entsprechend der räumlichen Geometrie der d-Orbitale, die kubisch raumzentrierte Struktur (krz) bevorzugt.

Diese Überlegungen wurden von Pettifor [3] in einem quantitativen Modell vorgestellt und verifiziert und sind in Tab. 2.1 dargestellt. In guter Übereinstimmung wird für die

	hex		krz			hex		kfz
3d	Sc hex	Ti hex	V krz	Cr krz	Mn kub	Fe krz	Co hex	Ni kfz
4d	Y hex	Zr hex	Nb krz	Mo krz	Tc hex	Ru hex	Rh kfz	Pd kfz
5d	La hex	Hf hex	Ta krz	W krz	Re hex	Os hex	Ir kfz	Pt kfz
n_{s+d}	3	4	5	6	7	8	9	10

Tab. 2.1: Strukturelle Phasen der d-Übergangsmetalle

In der obersten Zeile ist die Vorhersage von Pettifor [3] für die Struktur der d-Elemente angegeben. Darunter sind die Elemente mit ihrer Struktur unter Normalbedingungen (hex: hexagonal dichtest gepackte Struktur, kfz: kubisch flächenzentriert, krz: kubisch raumzentriert, kub: Struktur des α -Mn mit 58 Atomen pro Einheitszelle) in Abhängigkeit der Summe aus s- und d-Elektronen (n_{s+d}) angegeben.

d^3 - bis d^5 -Elemente eine kubisch raumzentrierte Struktur vorhergesagt. Für Elemente mit fast leerer oder fast voller Schale ist der Beitrag der d-Orbitale gering und der gerichtete Charakter der Bindung klein. Die Kristallstruktur wird daher vornehmlich durch die sp-Orbitale bestimmt. Da diese jedoch räumlich isotrop verteilt sind, entsteht zur Maximierung des Überlapps die dichtest gepackte Struktur.

Obwohl nahezu alle freien Atome magnetisch sind, ist dies für den Festkörper eher die Ausnahme. Die Ursache hierfür liegt darin begründet, daß durch den Magnetismus die kinetische Energie und damit die Fermi-Energie ansteigt. Zur Verdeutlichung dieses Effektes stelle man sich ein freies Elektronengas vor. Alle Zustände befinden sich innerhalb der Fermikugel mit Radius k_F und sind doppelt mit Spin auf ($\uparrow$) und Spin ab ($\downarrow$) besetzt. Bei einer Parallelstellung der Spins muß die Anzahl der Zustände anwachsen, da aufgrund des Pauli-Prinzips Elektronen gleichen Spins verschiedene Zustände besetzen müssen. Als Folge davon steigt der Radius der Fermikugel k_F und damit die kinetische Energie des Gesamtsystems an. Der Abstand der Elektronen wird größer. Im Extremfall maximaler Spinpolarisation aller Zustände ist der Radius um einen Faktor $\sqrt[3]{2}$ angewachsen. In diesem Fall ist die Zunahme der kinetischen Energie größer als der Gewinn durch die Coulombenergie. Elemente mit vollständig delokalisierten Elektronen zeigen daher keine Tendenz zum Magnetismus. Folglich ist die Ausbildung eines magnetischen Moments im Festkörper von der Energiebilanz aus dem Gewinn an potentieller Energie durch die Austauschwechselwirkung und dem Anstieg der kinetischen Energie bestimmt. Der Grad der Lokalisierung der Valenzelektronen ist für das

Auftreten eines magnetischen Zustandes im Festkörper bestimmend [4]. Elemente mit fast freien Elektronen wie die Alkaliatome besitzen deshalb kein magnetisches Moment im Festkörper.

Von besonderem Interesse ist das Auftreten einer ferromagnetischen oder antiferromagnetischen Ordnung der magnetischen Momente. Sie wird bevorzugt, wenn die durch die kollineare Anordnung der Spins gewonnene Austauschenergie die damit verbundene Erhöhung der kinetischen Energie überwiegt. Eine quantitative Behandlung dieser Phänomene wird zufriedenstellend durch die Dichtefunktionaltheorie mit Spinpolarisation [4] geleistet. Hohenberg und Kohn [5] zeigten, daß die Grundzustandsenergie E eines Festkörpers als Funktional der spinabhängigen Elektronendichte $n^\uparrow$ und $n^\downarrow$ aufgefaßt werden kann. Die Elektronendichte $n(\underline{r})$ ergibt sich dann aus der Summe, die Magnetisierungsdichte $m(\underline{r})$ aus der Differenz dieser Größen

$$\begin{aligned} n(\underline{r}) &= n^\uparrow(\underline{r}) + n^\downarrow(\underline{r}) \\ m(\underline{r}) &= n^\uparrow(\underline{r}) - n^\downarrow(\underline{r}). \end{aligned} \quad (2.1)$$

Für das Energiefunktional $E[n^\uparrow(\underline{r}), n^\downarrow(\underline{r})]$ ergibt sich

$$\begin{aligned} E[n^\uparrow(\underline{r}), n^\downarrow(\underline{r})] &= T_s[n^\uparrow(\underline{r}), n^\downarrow(\underline{r})] + \frac{e^2}{2} \iint d\underline{r} d\underline{r}' \frac{n(\underline{r})n(\underline{r}')}{|\underline{r} - \underline{r}'|} \\ &+ \sum_{s=\uparrow\downarrow} \int d\underline{r} n^s(\underline{r}) V_{ext}^s(\underline{r}) + E_{xc}[n^\uparrow(\underline{r}), n^\downarrow(\underline{r})] \end{aligned} \quad (2.2)$$

mit der kinetischen Energie für nicht wechselwirkende Elektronen, T_s , der Hartree-Energie (= Coulombwechselwirkung der Elektronen untereinander), der Energie gegeben durch das äußere Potential der Kerne und das Magnetfeld $V_{ext}^s(\underline{r})$ und der Austauschkorrelationsenergie E_{xc} . Der Hartree-Term vernachlässigt den Austausch und die Korrelation. Die Korrelation resultiert aus der vom Spinzustand unabhängigen Wechselwirkung der Elektronen. Die Bewegung der Elektronen ist so korreliert, daß elektrische Felder abgeschirmt werden. Das Elektron ist daher von einer positiven Ladung, dem Korrelationsloch, umgeben. Der Beitrag des Austauschs und der Korrelation zur Elektron-Elektron-Wechselwirkung und der Beitrag der Korrelation zur kinetischen Energie sind in $E_{xc}[n^\uparrow(\underline{r}), n^\downarrow(\underline{r})]$ enthalten. Zur Minimierung der Energie verwendet man den Ansatz

$$n^{\uparrow\downarrow}(\underline{r}) = \sum_{k\nu(\underline{r})} |\varphi_{k\nu(\underline{r})}^{\uparrow\downarrow}|^2 \quad (2.3)$$

mit den beiden Einteilchenfunktionen $\varphi_{k\nu(\underline{r})}^{\uparrow\downarrow}$, wobei die Summe über alle besetzten Zustände im k -Raum mit den Bandindex ν geht. Nach Anwendung des Energiefunktionals (Gleichung 2.2) auf die Eielektronenzustände ergibt sich für das Austauschkorrelationspotential

$$V_{xc}^{\uparrow\downarrow}(\underline{r}) = \frac{\partial E_{xc}[n^\uparrow(\underline{r}), n^\downarrow(\underline{r})]}{\partial n^{\uparrow\downarrow}(\underline{r})}. \quad (2.4)$$

Die zu lösende Aufgabe besteht in der Näherung dieses Potentials. In der lokalen Spindichtenäherung (LSD) betrachtet man die Austauschkorrelationsenergie des homogenen Elektronengases mit konstanter Dichte und Magnetisierung. Damit wird der Austausch, die Korrelation und die Tendenz zum Magnetismus überschätzt. Da dieser Beitrag zur Elektron-Elektron-Wechselwirkung kleinere Bindungsabstände bevorzugt, sind in der LSD die Gitterkonstanten für die meisten Metalle um 3 – 4 % unterschätzt. Da die Magnetisierungsdichte $m(\underline{r})$ klein zur Dichte $n(\underline{r})$ ist, kann das Austauschkorrelationspotential nach dieser Größe entwickelt werden. In erster Ordnung ergibt sich

$$V_{xc}^{\uparrow\downarrow}(\underline{r}) = V_{xc}^0(\underline{r}) \mp \tilde{V}(n(\underline{r})) m(\underline{r}); \quad \tilde{V} > 0. \quad (2.5)$$

mit dem Austauschkorrelationspotential im unmagnetischen Fall V_{xc}^0 . Auf die Elektronen mit Spin $\uparrow$, den sogenannten Majoritätselektronen, wirkt somit ein stärker anziehendes Potential als auf die Elektronen mit Spin $\downarrow$, den Minoritätselektronen.

Im Modell von Stoner wird diese Absenkung durch eine Konstante I , das Austauschintegral bzw. den Stoner-Parameter, genähert.

Auch wenn der Betrag der Magnetisierung M pro Atom konstant ist, so ist noch keine Aussage darüber getroffen, wie sich die Spins räumlich anordnen. Die Magnetisierung $\underline{M}_\alpha$ kann sich in Abhängigkeit der Position des Atomkerns α ($\underline{R}_\alpha$) mit der Periode q räumlich ändern,

$$\underline{M}_\alpha = [0, 0, M \cos q\underline{R}_\alpha], \quad (2.6)$$

die durch ein fiktives äußeres Magnetfeld $\underline{H}_\alpha = [0, 0, H \cos q\underline{R}_\alpha]$ induziert wird. Für kleine Felder sind dann M und H über die Spinsuszeptibilität $\chi(q)$ verknüpft

$$M = \chi(q)H. \quad (2.7)$$

Die Spinsuszeptibilität ist die wesentliche Charakterisierungsgröße für die Anordnung der Spins im Gitter.

Für das lokale Moment M und die Anzahl der Elektronen N des Atoms müssen die Bedingungen

$$\begin{aligned} M &= \int^{E_F} dE [n_0^\uparrow(E) - n_0^\downarrow(E)] \\ N &= \int^{E_F} dE [n_0^\uparrow(E) + n_0^\downarrow(E)] \end{aligned} \quad (2.8)$$

erfüllt sein. Anstelle von Gleichung 2.5 ergibt sich nun

$$V_{eff,\alpha} = V_{eff,\alpha}^0 + \Delta V_\alpha = V_{eff,\alpha} - \left(\frac{1}{2}IM + \mu_B B\right) \cos q\underline{R}_\alpha \quad (2.9)$$

und daraus das magnetische Moment

$$M = \chi(q)H = \left(\frac{1}{1 - \frac{I\chi_0(q)}{2\mu_B}} \right) \chi_0(q)H \quad (2.10)$$

mit der Spinsuszeptibilität ohne Berücksichtigung der Austauschwechselwirkung $\chi_0(\underline{q})$ und dem Verstärkungsfaktor $(1 - I\chi_0(\underline{q})/(2\mu_B))^{-1}$. Für $q = 2\pi/a$ wechseln sich positive und negative Magnetisierung auf den Gitterplätzen ab (Néel-Antiferromagnet). Im Cr liegt eine inkommensurable Spindichtewelle mit $q \approx 0,952 \cdot 2\pi/a$ vor, da die magnetische Periodizität und die strukturelle Periodizität inkommensurabel sind. [4, 6]. Im Grenzfall $\underline{q} \rightarrow \underline{0}$ ist die Magnetisierungsrichtung unabhängig von der strukturellen Periodizität und es liegt eine ferromagnetische Ordnung der Spins vor. Diese Ordnung wird bevorzugt, wenn die Fermi-Energie E_F in der Nähe der oberen (Fe, Co, Ni) oder unteren Bandkante des d-Bandes liegt, nicht jedoch wenn sie in der Bandmitte liegt (Cr und Mn) [4]. Das Austauschkorrelationspotential ist dann nach Gleichung 2.5 im Stonermodell nur um den konstanten Betrag $\frac{1}{2}IM$ in Abhängigkeit der Spinrichtung verschoben

$$V_{xc}^{\uparrow\downarrow}(\underline{r}) = V_{xc}^0(\underline{r}) \mp \frac{1}{2}IM. \quad (2.11)$$

Das gleiche gilt für das Energiefunktional der Gleichung 2.2. Die Einteilchenwellenfunktionen nach Gleichung 2.3 ändern sich daher, ebenso wie die Bandstruktur, nicht gegenüber dem unmagnetischen Fall; die Energiebänder sind jedoch in Abhängigkeit des Spins um das konstante Austauschkorrelationspotential $\frac{1}{2}IM$ auf der Energieskala für Majoritätselektronen zu kleineren und für Minoritätselektronen zu größeren Energien verschoben. Die Bandstruktur ist spinaufgespalten. Eine solche spinaufgespaltene Bandstruktur ist für krz Fe in Abb. 2.1 dargestellt. Man erkennt, daß Majoritäts- und Minoritätselektronen durch eine nahezu gleiche, jedoch gegeneinander verschobene Bandstruktur gekennzeichnet sind. Kleine Abweichungen gegenüber dem Stonermodell ergeben sich aus genaueren Berechnungen der spinaufgespaltenen Bandstruktur. Die Bandstruktur im unmagnetischen Fall ist für alle 3d-Elemente ähnlich. Durch die Auffüllung des Bandes ändert sich jedoch die Lage des Ferminiveaus. Die Zustandsdichte der Elektronen an der Fermi-Energie ergibt sich aus der Bandstruktur und ist damit ebenfalls spinaufgespalten. Im Stonermodell ist diese ebenfalls um eine Konstante gegeneinander verschoben. Abb. 2.1 (rechts) zeigt dazu die spinaufgespaltene Zustandsdichte der Elektronen des Eisens. Die Zustandsdichte setzt sich aus den Beiträgen der sp- und d-Zustände zusammen. Aus der Abbildung ist ersichtlich, daß der größte Beitrag zur Zustandsdichte aus der Hybridisierung der d-Elektronen resultiert. Ein um so größeres, magnetisches Moment wird erwartet, je größer der Stoner-Parameter und damit die Verschiebung der beiden Teilbänder gegeneinander ist.

Das magnetische Moment wird auch schon bei kleinem Stoner-Parameter bzw. kleiner Austauschaufspaltung um so mehr vergrößert, je höher die Zustandsdichte der Elektronen nahe der Fermi-Energie ist. Nach einer selbstkonsistenten Lösung innerhalb des Stonermodells gilt für das magnetische Moment mit $\chi_0(\underline{q} = \underline{0}) = \mu_B n_0(E_F)$

$$M = \frac{1}{1 - In_0(E_F)} \mu_B n_0(E_F) H \quad (2.12)$$

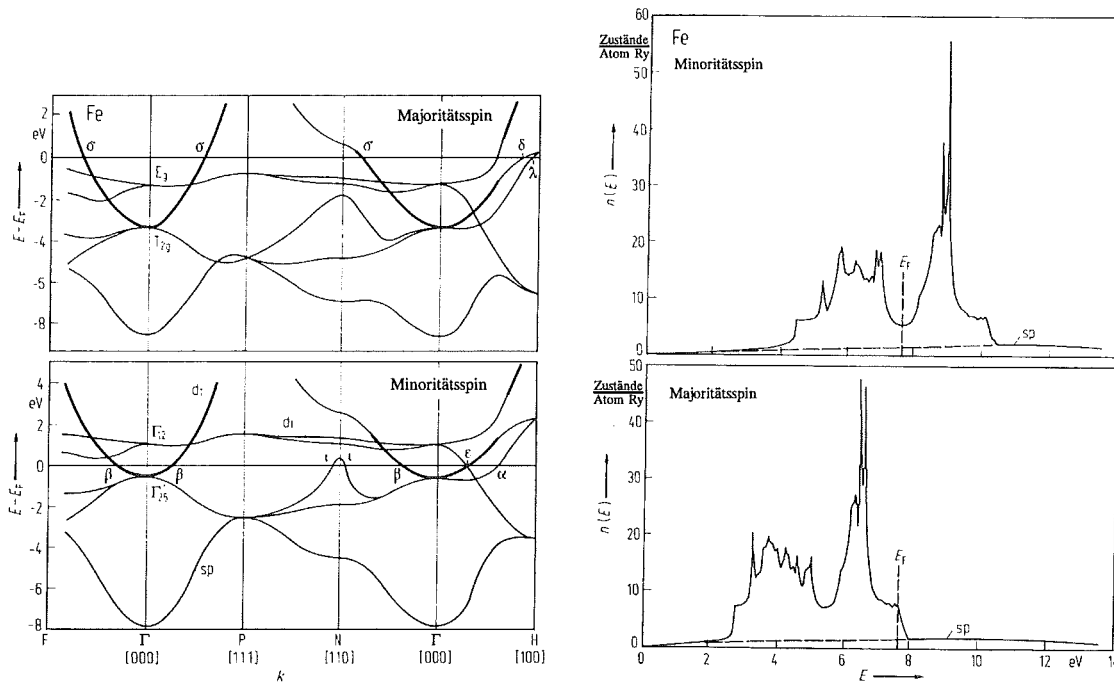


Abb. 2.1: Spinaufgespaltene Bandstruktur und Zustandsdichte des krz Eisens

Links: Berechnete, spinaufgespaltene Bandstruktur des Eisens [7, 8]. Majoritäts- (oben) und Minoritätsbänder (unten) sind näherungsweise um einen konstanten Betrag gegeneinander verschoben. Nahe dem Zentrum der Brillouin Zone Γ liegt das sp -Band mit der niedrigsten Energie. Die E_g -Bänder sind über große Bereiche des k -Raums eher flach. Diese Dispersion weist auf eine große effektive Masse und damit einen quasilokalen Charakter der Elektronen hin. Die d -Zustände sind zu einem großen Teil an dem magnetischen Moment des Fe ($\approx 2 \mu_B$) beteiligt. Eines der T_{2g} -Bänder zeigt eine größere Dispersion, die einer niedrigen effektiven Masse vergleichbar freien Atomen entspricht.

Rechts: berechnete Zustandsdichte von Fe für Minoritäts- (oben) und Majoritätsspins (unten) [7, 8]. Die beiden schmalen Maxima auf dem breiten Untergrund resultieren aus den quasi lokalisierten E_g -Bändern. Im Vergleich zu den d -Bändern ist der Beitrag der sp -Bänder zur Zustandsdichte und damit zum magnetischen Moment klein.

mit $n_0(E_F)$ der Zustandsdichte der Elektronen im unmagnetischen Fall. Der Verstärkungsfaktor divergiert für $In_0(E_F) = 1$. Für

$$In_0(E_F) > 1 \quad (2.13)$$

ist die ferromagnetische Lösung stabil. I ist das Maß für die Stärke der Austauschwechselwirkung, $n_0(E_F)$ ein Maß für die kinetische Energie der Elektronen. Diese Ungleichung wird als Stoner-Kriterium bezeichnet und stellt eine Bedingung dar, mit

der man den Ferromagnetismus für die d-Elemente vorhersagen kann (Abb. 2.2). Nur die 3d-Elemente Fe, Co und Ni erfüllen in Übereinstimmung mit der experimentellen Beobachtung dieses Kriterium. Abb. 2.2 zeigt, daß zwar die Zustandsdichte des unma-

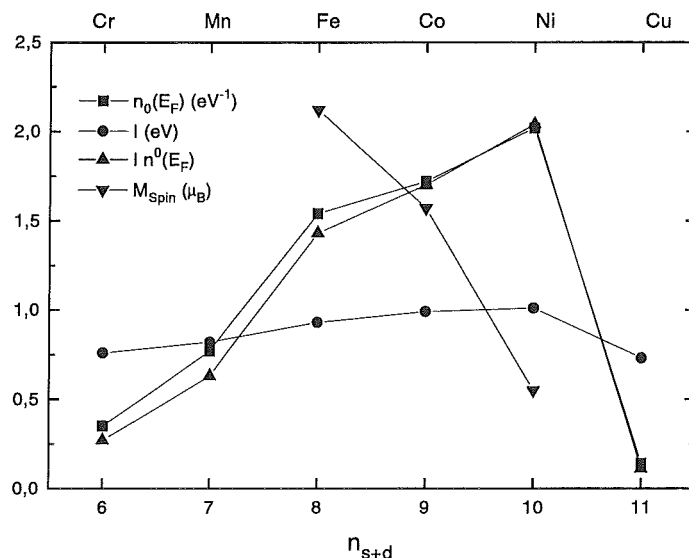


Abb. 2.2: Stoner-Kriterium für die 3d-Elemente

Dargestellt ist die Berechnung der Zustandsdichte der 3d-Elemente im unmagnetischen Fall $n_0(E_F)$ (Quadrate), der Stoner-Parameter I (Kreis), das Produkt aus I und $n_0(E_F)$ (nach oben zulaufende Dreiecke) sowie das resultierende magnetische Moment bei ferromagnetischer Ordnung M_{Spin} (nach unten zulaufende Dreiecke) in Abhängigkeit der Zahl der s- und d-Elektronen n_{s+d} nach [4]. In Übereinstimmung mit dem experimentellen Befund wird für Fe, Co und Ni Ferromagnetismus vorhergesagt.

netischen Elements bei E_F kontinuierlich bis zum Ni zunimmt, gleichzeitig aber das magnetische Moment von Fe nach Ni abnimmt. Die Ursache dafür ist, daß mit zunehmender Besetzung der Orbitale die Zustände der Majoritäts- und Minoritätselektronen aufgefüllt werden, so daß bei einem vergleichbaren Stoner-Parameter I für Fe, Co und Ni das magnetische Moment abnimmt. Bei Ni ist das Majoritätsband vollständig gefüllt und dem Minoritätsband fehlen nur 0,6 Elektronen pro Atom, während beim Fe beide Bänder nicht vollständig gefüllt sind. Da der Magnetismus des Fe aufgrund der unvollständigen Besetzung der Majoritätsbänder beeinflusst werden kann, bezeichnet man es als *schwachen*, Ni und Co dagegen als *starke* Ferromagneten.

Das Stoner-Kriterium eignet sich auch, die magnetischen Zustände der anderen d-Elemente vorherzusagen. In erster Näherung ist das Austauschintegral eine intraatomare Größe und von der lokalen atomaren Umgebung unabhängig. Als globaler Trend ergibt sich nach Blügel [9] ein abnehmender Wert für das Austauschintegral von den 3d- zu den 5d-Metallen.

Die andere, noch wichtigere Größe ist die Zustandsdichte $n_0(E_F)$ im unmagnetischen Fall. Wie die Kurve des Produktes aus Stoner-Parameter und Zustandsdichte bei der

Fermi-Energie im unmagnetischen Fall in Abb. 2.2 zeigt, bestimmt letztere Größe vollständig den Verlauf der Kurve. Die Zustandsdichte ist reziprok proportional zur Bandbreite und im wesentlichen durch die d-Bänder bestimmt, wie aus Abb. 2.1 deutlich hervorgeht. In einfacher Näherung gilt deshalb [9]

$$n_0(E_F) \approx n_0^d(E_F) \propto \frac{1}{W_d} \quad (2.14)$$

mit der Zustandsdichte der d-Orbitale bei E_F ($n_0^d(E_F)$) und der Bandbreite der d-Bänder (W_d). Im Kristall hängt die lokale Bandbreite am Atom i mit der Position $\underline{R}_i$ von der Geometrie und dem Bindungsabstand der Nachbaratome ab. Es gilt nach [9]

$$W_d(\underline{R}_i) = 2\sqrt{N_{nn}(\underline{R}_i)} h_d(R_{nn}). \quad (2.15)$$

Das Hüpfmatrixelement $h_d(R_{nn})$ der d-Elektronen zu seinem nächsten Nachbarn ist von der Besetzung der d-Orbitale abhängig, daher elementspezifisch, und wird mit abnehmender Lokalisierung der Wellenfunktionen größer. Aufgrund der unvollständigen Abschirmung ist das Hüpfmatrixelement am Beginn einer neuen d-Schale größer und $n_0^d(E_F)$ kleiner. Die Bandbreite nimmt von der 3d- zur 5d-Reihe zu und die Zustandsdichte an der Fermi-Energie $n_0^d(E_F)$ ab [9].

Beide Trends zeigen, daß eine magnetische Ordnung der Spins für die 3d-Elemente am günstigsten ist. Die Bandbreite hängt aber auch von der Anzahl der nächsten Nachbarn $N_{nn}(\underline{R}_i)$ bzw. der Koordinationszahl am Ort $\underline{R}_i$ ab. Je kleiner diese ist, desto geringer ist die d-d-Hybridisierung und die Bandbreite. Die magnetischen Eigenschaften sind daher eng mit der Geometrie der Bindung verknüpft. Zur Verdeutlichung betrachte man ein fiktives ferromagnetisches Material, das mit gleichem atomarem Volumen in einer kubisch raumzentrierten (krz) und einer kubisch flächenzentrierten-Struktur (kfz) vorliegen soll. Bezogen auf die Gitterkonstante der krz Zelle a sind dann die nächsten Nachbarabstände R_{nn} mit $\sqrt{3/2}a = 0,87a$ (krz) und $\sqrt[3]{2}a/\sqrt{2} = 0,89a$ (kfz) nur um 2 % verschieden. Die Koordinationszahl für den kfz Kristall beträgt jedoch 12 im Vergleich zu 8 für den krz Kristall. Die Tendenz zur Bildung eines ferromagnetischen Zustands ist daher in grober Näherung bei konstantem atomarem Volumen für kfz Kristalle geringer. Die größere Koordinationszahl kann jedoch in Gleichung 2.15 durch ein kleineres Hüpfmatrixelement bzw. eine stärkere Lokalisierung der d-Orbitale ausgeglichen werden. Dies kann durch einen größeren nächsten Nachbarabstand erreicht werden. Das atomare Volumen ferromagnetischer kubisch flächenzentrierter Kristalle sollte daher bei vergleichbarem magnetischem Moment größer sein als das der kubisch raumzentrierten Modifikation.

Diese groben Betrachtungen zeigen bereits, daß eine enge Korrelation zwischen den strukturellen und magnetischen Eigenschaften besteht. Eine eingehende Erläuterung hierzu wird im nächsten Abschnitt gegeben.

2.2 Wechselbeziehung zwischen den magnetischen und den strukturellen Eigenschaften

Die magnetischen Phasen eines Materials sind in grober Näherung über das Hüpfmatrixelement durch das atomare Volumen und über die Koordinationszahl durch die Kristallstruktur bestimmt. Aufgrund der d-d-Hybridisierung der 3d-Elemente im Festkörper ist eine empfindliche Abhängigkeit der magnetischen Eigenschaften vom atomaren Volumen und der Kristallstruktur zu erwarten. Für eine gezielte Modifizierung der magnetischen Eigenschaften ist daher die Analyse der Korrelation zwischen Struktur und Magnetismus notwendig.

Zur Untersuchung dieser Abhängigkeit existieren sowohl experimentelle als auch theoretische Ansätze. Zunächst können die magnetischen und strukturellen Eigenschaften der 3d-Elemente in Abhängigkeit der Temperatur und des Drucks untersucht werden. Das atomare Volumen kann durch Erhöhung der Temperatur vergrößert oder durch Anlegen eines Drucks verkleinert werden. Die Erhöhung der Temperatur führt zum Verlust der ferromagnetischen (FM) Ordnung oberhalb der Curie-Temperatur oder der antiferromagnetischen (AF) Ordnung oberhalb der Néel-Temperatur. Bei Anlegen eines Drucks führt die Verkleinerung des atomaren Volumens zu einer stärkeren Hybridisierung und damit zu einer Verringerung des magnetischen Momentes oder den Verlust magnetischer Ordnung.

Für die 3d-Elemente ergibt sich eine ausgeprägte Abhängigkeit der magnetischen und strukturellen Eigenschaften von diesen Parametern, die als Allotropie bezeichnet wird. Ein besonders ausgeprägtes allotropes Verhalten zeigt Mn. Unter Normalbedingungen ist die Struktur des Mangans komplex (α -Phase). Ihre Basis ist ein Hexatetrahedron, das aus 58 Atomen besteht. Unterhalb einer Néel-Temperatur von 95 K ist α -Mn antiferromagnetisch. Die magnetischen Momente unterscheiden sich in ihrer Größe und Orientierung in Abhängigkeit des Gitterplatzes. β -Mn ist eine allotrope Hochtemperaturphase des Mangans, deren kubische Einheitszelle 20 Atome umfaßt und paramagnetisch ist. γ -Mn ist kfz und ebenfalls paramagnetisch. Schließlich existiert noch eine paramagnetische, krz Struktur zwischen 1406 und 1517 K.

Eisen liegt in Abhängigkeit von der Temperatur und des Drucks in fünf verschiedenen Modifikationen vor (Abb. 2.3). Unter Normaldruck (1000 hPa) ist die krz α -Phase des Fe bis 1044 K ferromagnetisch. Fe geht bei 1184 K in die kfz γ -Phase über. Diese ist bis 1685 K paramagnetisch. Oberhalb dieser Temperatur existiert das Fe in der paramagnetischen, krz δ -Struktur bis zum Schmelzpunkt. Oberhalb eines Drucks von etwa 120 GPa ist die Struktur des diamagnetischen ϵ -Fe hexagonal, wie es von Pettifor [3] für Fe berechnet worden ist (Tab. 2.1).

Um zu untersuchen, welche magnetische Ordnung die kristallographischen Strukturen hoher Temperatur favorisieren, müssen sie bei tieferen Temperaturen stabilisiert werden. Insbesondere ist zur Anwendung ihrer Eigenschaften eine Stabilisierung unter

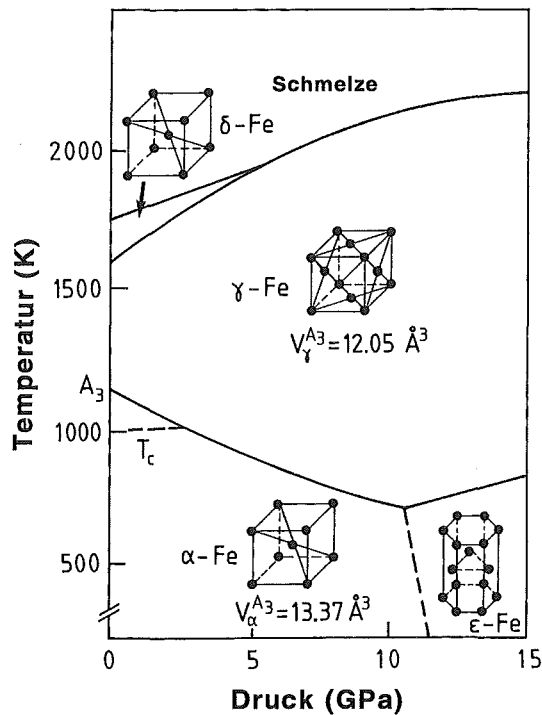


Abb. 2.3: **Phasendiagramm des Eisens**
Diagramm nach Wassermann [10].

Normalbedingungen erforderlich.

Erfolgreich lassen sich Hochtemperaturphasen in Form kleiner Einschlüsse (Präzipitate) in Kristallen mit einem Durchmesser zwischen 2 und 200 nm anderer Elemente stabilisieren [11–16]. Dies wird für die γ -Phase des Eisens in einem Kupferkristall beobachtet [17]. Messungen an diesen Einschlüssen von Knappwost [18], Newkirk [19], Abrahams [11], Gonser [12] und Murayama [20] zeigten, daß das γ -Fe unterhalb einer Néel-Temperatur von 70 K mit einem Moment von $0,6 \mu_B$ antiferromagnetisch ist. Die Gitterkonstante beträgt $3,58 \text{ Å}$. Dies stimmt gut mit dem Wert überein, der sich aus einer linearen Extrapolation der paramagnetischen γ -Phase auf Raumtemperatur mit Hilfe des Volumenausdehnungskoeffizienten ergibt ($3,59 \text{ Å}$) [21]. Unterhalb eines kritischen Durchmessers von 2 nm nimmt das Fe die Gitterkonstante des Cu an und wird expandiert. Als Folge davon wird ein superparamagnetisches Verhalten beobachtet [22, 23]. Ein ähnliches Ergebnis wird für Fe auch in einer CuAl-Matrix unterhalb eines Durchmessers von 15–20 nm erzielt [15].

Eine kontinuierliche Veränderung des mittleren atomaren Volumens kann erreicht werden, indem zwei 3d-Elemente legiert werden [15]. Diese Legierungen liegen nach der Wahl eines festen Mischungsverhältnisses in der Regel ungeordnet vor [24]. Das magnetische Moment, die Orientierung der Spins und die Längenänderung bei Anlegen eines äußeren Feldes (Magnetostriktion) lassen sich auf diese Weise einstellen. Die Abhängigkeit des magnetischen Moments der Legierungen von der Elektronenzahl wird *Slater-Pauling-Kurve* genannt und ist in Abb. 2.4 gezeigt.

In erster Näherung kann man davon ausgehen, daß durch das Legieren die Bandstruk-

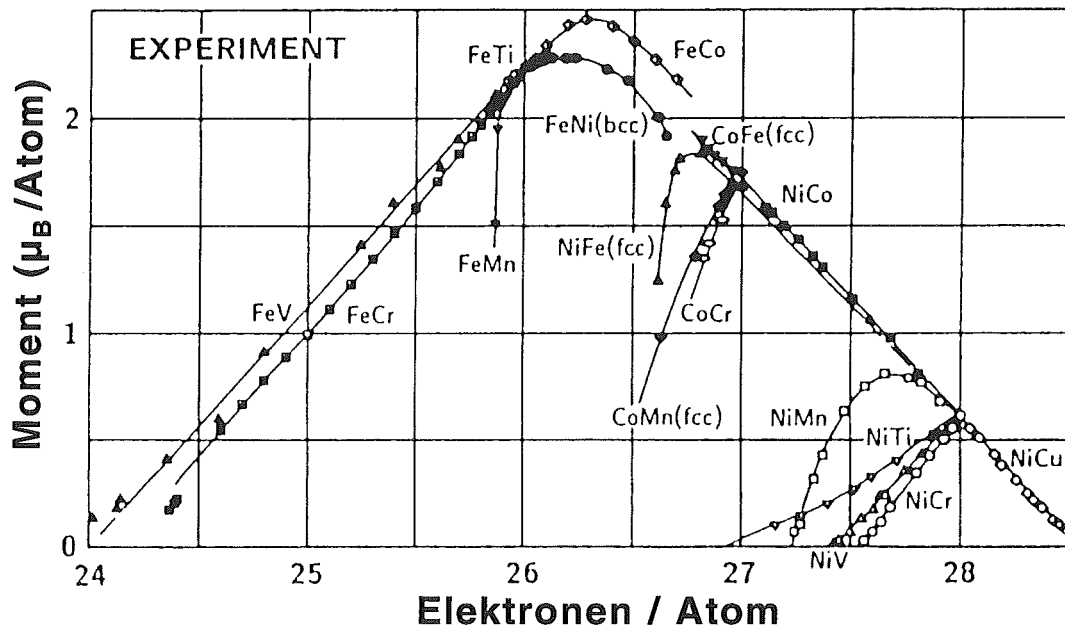


Abb. 2.4: Slater-Pauling-Kurve

Mittleres magnetisches Moment binärer Legierungen der 3d-Elemente in Abhängigkeit der mittleren Elektronenzahl. Die experimentellen Daten wurden aus der Sättigungsmagnetisierung bestimmt (Diagramm nach Ebert [24]).

tur unverändert bleibt (Starrbandmodell) und sich lediglich die Anzahl der Valenzelektronen der Legierungspartner durch einen Elektronenausgleich ändert. Der schwerwiegendste Schwachpunkt des Starrbandmodells ist der unrealistische Ladungstransfer, der sich bei rigider Anwendung des Modells bei großem Unterschied in der Valenzelektronenzahl ausbilden würde.

Durch die Wahl geeigneter Legierungen läßt sich die Valenzelektronenzahl kontinuierlich variieren. Das resultierende magnetische Moment ergibt sich dann aus der Summe der Einzelmomente μ der an der Legierung beteiligten Elemente A und B in Abhängigkeit ihres Mischungsverhältnisses x .

$$|\mu| = |x_A \underline{\mu}_A + x_B \underline{\mu}_B| \quad (2.16)$$

Die negative Steigung in Abb. 2.4 läßt sich innerhalb des Starrbandmodells wie folgt interpretieren. Im Falle der Legierung eines starken Ferromagneten mit einem Element noch höherer Valenzelektronenzahl werden weitere Zustände im Minoritätsband besetzt und das Moment sinkt. Umgekehrt kann durch Zulegieren eines 3d-Elementes kleinerer Valenzelektronenzahl das magnetische Moment erhöht werden. Mit abnehmender Valenzelektronenzahl nimmt die Tendenz zur antiparallelen Ordnung der Spins der Bindungspartner zu und das resultierende Moment sinkt. Dies wird bei Legierungen von Fe mit V, Cr und Mn beobachtet.

In den Legierungen liegen die Elemente auch in ihren Hochtemperaturphasen vor. Bestimmen läßt sich die kristallographische Phase der Komponenten durch die Ermittlung der atomaren Volumina und der magnetischen Momente. Durch kleine Beimengungen von C, Fe, Ni, Cu oder Pd kann z.B. die γ -Phase des Mangans bei tiefen Temperaturen stabilisiert werden [25,26]. Diese Legierungen sind unterhalb 540 K mit einem Moment zwischen 2,1 und 2,3 μ_B antiferromagnetisch [27].

Ebenso liegt auch das Fe in einer antiferromagnetischen kfz Struktur in Legierungen vor. In guter Übereinstimmung mit den bereits oben erwähnten Einschlüssen von Fe in Cu wurde ein kleines lokales magnetisches Moment von 0,5 μ_B in kfz $\text{Fe}_x\text{Ni}_{(1-x)}$ Legierungen gefunden [10].

Neben den Hochtemperaturphasen werden die 3d-Elemente in den Legierungen auch in anderen kristallographischen Phasen stabilisiert. So wurde in Fe-Co Legierungen auch eine krz Phase des Co mit einer Gitterkonstanten von 2,82 Å gefunden [28,29].

Für das Eisen wurde eine ferromagnetische kfz Phase in Legierungen gefunden [30]. Die Existenz dieser Phase wird durch Neutronenstreuungsmessungen an $\text{Fe}_x\text{Ni}_{(1-x)}$ Legierungen mit $x < 60\%$ bewiesen, in denen ein lokales magnetisches Moment des Eisens von 2,4 μ_B ermittelt wurde [24]. Da dieses Moment bedeutend höher als das der antiferromagnetischen Phase ist, muß nach Gleichung 2.15 das atomare Volumen größer sein. Dies wird deutlich, wenn man die Gitterkonstanten der Legierungen gegen die Anzahl der Elektronen pro Atom aufträgt (Abb. 2.5) [10]. Diese Auftragung besteht aus drei Zweigen: einem, in dem Eisen in einer antiferromagnetischen Phase (LS), und zweien, in denen es in einer ferromagnetischen Phase (HS) vorliegt. Die Gitterkonstante der Legierungen setzt sich aus der beider Legierungspartner zusammen. Die Gitterkonstante der HS-Phase des Fe nimmt daher mit zunehmendem Anteil des Ni ab, während sie bei wachsendem Pt- oder Pd-Anteil ansteigt. Durch Extrapolation der Werte auf den für reines Eisen typischen Wert von 8 Elektronen pro Atom kann für den ferromagnetischen Zustand bei 4,2 K ein atomares Volumen von 12,06 Å³, ($a_{42} = 3,64$ Å) mit einem magnetischen Moment von 2,87 μ_B ermittelt werden. Für den antiferromagnetischen Zweig ergibt sich 11,4 Å³, ($a_{42} = 3,58$ Å) mit einem Moment von 0,5 μ_B [10]. In Fe-Ni-Legierungen kann das Eisen in Abhängigkeit seiner Konzentration in einem der beiden Zustände vorliegen. Ein Übergang zwischen den beiden Zuständen wird bei einer Zusammensetzung von 35 bis 39 % Ni auch in Abhängigkeit der Temperatur beobachtet. Dieser Übergang führt zu einer Reihe von Anomalien in der thermischen Ausdehnung, der Magnetostriktion und der spezifischen Wärme [10]. Als Folge des Übergangs ist z.B. der Wärmeausdehnungskoeffizient bei Raumtemperatur nahezu konstant. Der Effekt wurde von Ch. E. Guillaume 1897 [31] mit dem Begriff *INVAR* bezeichnet. Basierend auf Berechnungen von Kaufmann [32], die einen ferromagnetischen (2,8 μ_B , 3,64 Å) und einen antiferromagnetischen Zustand (0,6 μ_B , 3,56 Å) postulierten, führte Weiss 1963 [30] den Übergang zwischen beiden Phasen als Erklärung des INVAR-Effekts an. Der Übergang von der ferromagnetischen HS-Phase mit großem atomaren Volumen bei

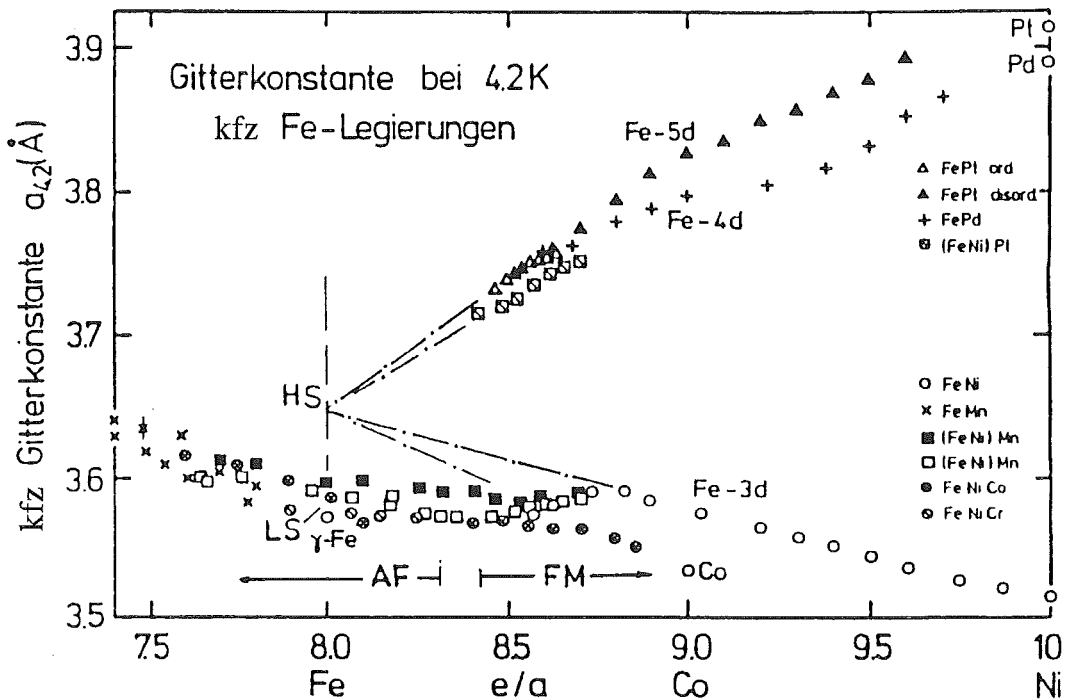


Abb. 2.5: Gitterkonstanten kubisch flächenzentrierter Eisenlegierungen in Abhängigkeit der Elektronenkonzentration pro Atom e/a

Die Gitterkonstanten a_{42} wurden bei 4,2 K bestimmt. Durch Extrapolation aus dem ferromagnetischen Bereich erhält man eine Phase mit $a_{42} = 3,64 \text{ \AA}$ für reines kfz Fe. Aus dem antiferromagnetischen Bereich wird eine Phase mit $a_{42} = 3,58 \text{ \AA}$ extrapoliert (Diagramm nach Wassermann [10]).

tiefer Temperatur zur LS-Phase mit kleinerem atomaren Volumen führt bei Raumtemperatur zu einem verschwindenden Ausdehnungskoeffizienten.

Während die Stabilitätsbereiche für das Auftreten des INVAR-Effekts im Volumen in Abhängigkeit der Valenzelektronendichte, des atomaren Volumens und der Temperatur weitestgehend untersucht worden sind [33], besteht noch Aufklärungsbedarf über die Korrelation zwischen der magnetischen und der strukturellen Änderung. Dazu wäre es von Vorteil, die Eigenschaften der FM kfz Phase separat zu untersuchen. Die Stabilisierung eines FM kfz Volumenkristalls ist jedoch nicht möglich, da diese Phase nur in Legierungen oberhalb einer Elektronenkonzentration von 8,5 Elektronen pro Atom auftritt (Abb. 2.5).

Einen Zugang zu diesem Problem ermöglichen jedoch Totalenergieberechnungen des magnetischen Zustands in Abhängigkeit des atomaren Volumens bzw. der Gitterkonstanten der kubischen Zelle. Andersen et al. [34] berechneten einen Übergang von einem nichtmagnetischen Zustand unterhalb von $3,595 \text{ \AA}$ zu einem FM Zustand ($2,6 \mu_B$) bei $3,665 \text{ \AA}$.

Moruzzi et al. [35, 36] benutzten die lokale Spindichtenäherung bei fester Gitterkonstante, um die Energie pro Atom als Funktion des magnetischen Moments zu berechnen.

Die Ergebnisse aus diesen Berechnungen sind in Abb. 2.6 gezeigt. Die linke Abbildung

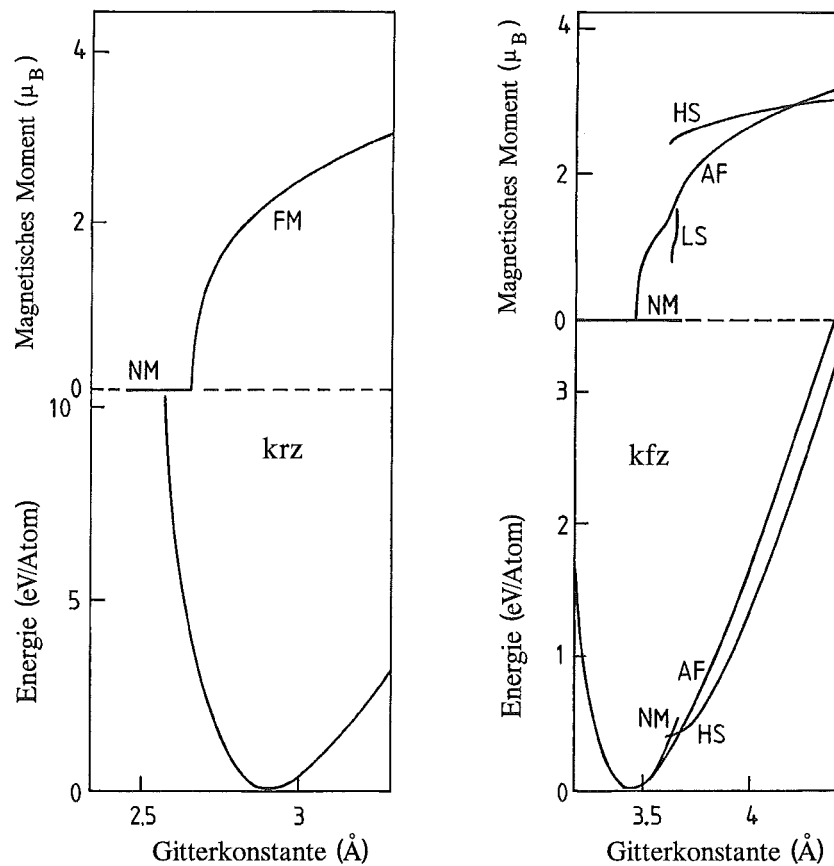


Abb. 2.6: Magnetische Phasen des krz und kfz Eisens in Abhängigkeit des atomaren Volumens

Links: Magnetisches Moment und totale Energie des krz Fe als eine Funktion der Gitterkonstanten mit unmagnetischer (NM) und ferromagnetischer Lösung (FM) nach Moruzzi [35].

Rechts: Berechnungen für kfz Fe mit einer ferromagnetischen Phase mit großem (HS) und kleinem Moment (LS) und einer antiferromagnetischen Phase (AF) nach Moruzzi [36].

(krz Fe) zeigt ein Minimum der Energie bei einer Gitterkonstanten von 2,8 $\text{\AA}$ mit einem magnetischen Moment von 2,2 μ_B . Ferromagnetische Kopplung setzt oberhalb einer Gitterkonstanten von 2,7 $\text{\AA}$ ein. Das Moment steigt mit wachsender Gitterkonstante aufgrund der abnehmenden d-d-Hybridisierung an und würde bei unendlichem Abstand der Fe-Atome den Wert des freien Atoms (4 μ_B) erreichen. Die entsprechende Kurve für kfz Fe zeigt einen wesentlich komplexeren Verlauf. Unmagnetischer (NM), antiferromagnetischer (AF), ferromagnetischer LS (LS = *low spin state*) und ferromagnetischer HS (HS = *high spin state*) Zustand liegen energetisch dicht beieinander. Bei 3,4 $\text{\AA}$ ist der nichtmagnetische Zustand, direkt oberhalb dieses Wertes bereits die antiferromagnetische Ordnung stabil. Oberhalb 3,62 $\text{\AA}$ ist die ferromagnetische Phase bevorzugt. Der abrupte Anstieg des magnetischen Moments innerhalb einer kleinen

Änderung der Gitterkonstanten wird als Moment-Volumen-Instabilität bezeichnet. Eine solche Moment-Volumen-Instabilität wird auch in Cr-Mn-INVVAR-Legierungen beobachtet [10]. Anders als bei Fe ist es hier die krz Phase, die diese Instabilität aufweist. Die Abhängigkeit der totalen Energie und des magnetischen Momentes von der Gitterkonstanten für kfz und krz Mn ist in Abb. 2.7 gezeigt. Zwischen dem Minimum

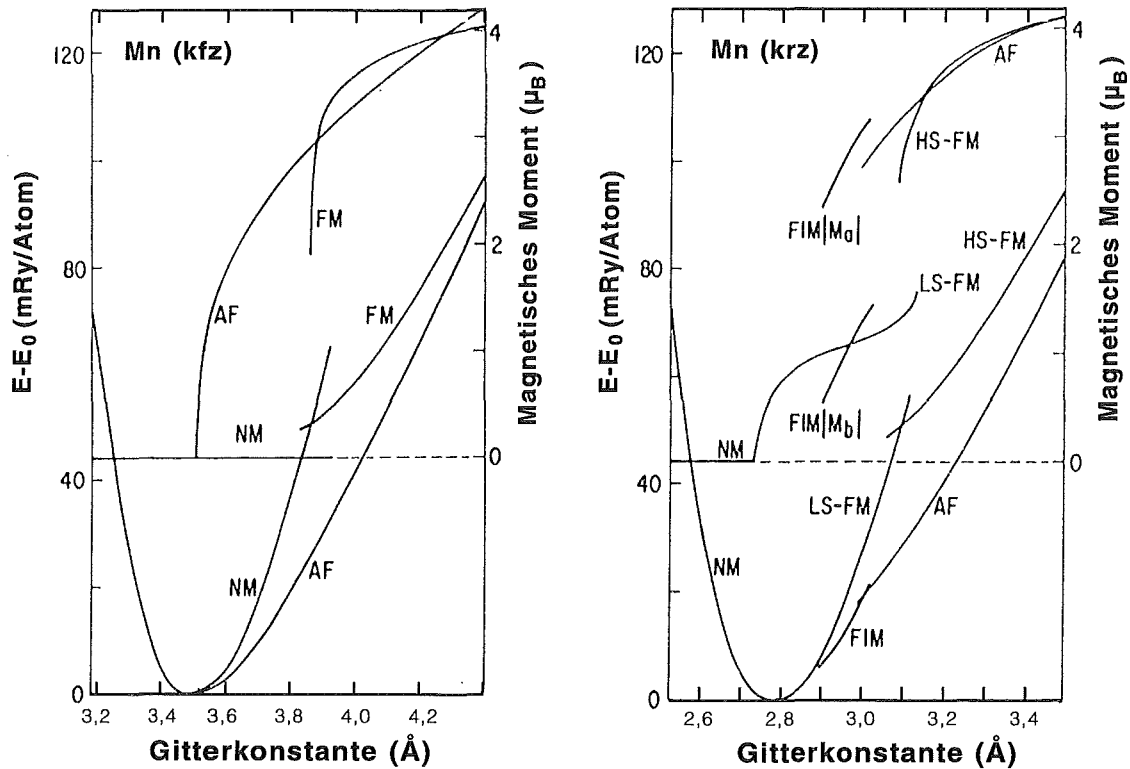


Abb. 2.7: Magnetische Phasen des kfz und krz Mangans in Abhängigkeit des atomaren Volumens

Links: Magnetisches Moment und totale Energie als eine Funktion der Gitterkonstanten mit unmagnetischen (NM), antiferromagnetischen (AF) und ferromagnetischen (FM) Lösungen für kfz Mn nach Moruzzi [36].

Rechts: Lösungen für krz Mn mit einer ferromagnetischen Phase mit großem Moment (HS-FM), einer antiferromagnetischen (AF) und einer ferrimagnetischen (FIM) Phase mit den Momenten $FIM|M_a|$ und $FIM|M_b|$ nach Moruzzi [37].

der totalen Energie bei 3,49 Å und sehr großen Abständen ergibt sich für die antiferromagnetische Lösung des kfz Mn die niedrigere Totalenergie. Wesentlich komplexer verhält sich die krz Phase. Bei dem Minimum der totalen Energie von 2,79 Å ist eine ferromagnetische Phase mit einem magnetischen Moment von $1,2 \mu_B$ stabil. Be-

reits eine dreiprozentige Expansion der Gitterkonstanten führt zur Bevorzugung eines ferrimagnetischen Zustands mit den Momenten M_a und M_b . Ab etwa 3,01 Å ist die antiferromagnetische Phase stabil [37].

Eine Berechnung der Abhängigkeit der totalen Energie vom Wigner-Seitz Radius wurde neben der krz und kfz Phase von Asada [38] auch für die hexagonale Phase mittels Spindichtenäherung und generalisierter Gradientennäherung (GGA) [39] durchgeführt. Bei dieser Methode wird das Austauschkorrelationspotential nach höheren Termen in den Gradienten der Elektronendichte entwickelt und damit der Austausch und die Korrelation besser berücksichtigt. Die Berechnungen ergaben, daß die hexagonale Struktur die kleinste Totalenergie besitzt und bei tiefen Temperaturen bevorzugt werden sollte. Für die krz Phase wird jedoch kein ferrimagnetischer, sondern ein antiferromagnetischer Grundzustand oberhalb einer Gitterkonstanten von 2,9 Å vorhergesagt. Die antiferromagnetische, krz Phase ist nach den Berechnungen der stabile Zustand bei 300 K mit einer Gitterkonstanten von 3,01 Å und einem magnetischen Moment von 2,37 μ_B .

Ähnliche Berechnungen wurden auch für Fe und Cr durchgeführt [40–43]. Die gesamten Ergebnisse von Asada et al. sind in Tab. 2.2 zusammengefaßt.

Element	Struktur	Magnetismus	$(E_{tot})_{min}$ (Ry)	a (Å)	m (μ_B)
Cr	krz	AF	-2102,7911	2,92	0,76
	kfz	NM	-2102,7578	3,72	-
Mn	krz	AF	-2318,3381	3,01	2,73
		FM	-2318,3416	2,87	0,99
	kfz	AF	-2318,3429	3,68	2,13
Fe	kfz	NM	-2546,6560	3,51	-
		AF	-2546,6579	3,55	1,21
		FM	-2546,6551	3,67	2,56
	krz	FM	-2546,6703	2,89	2,32

Tab. 2.2: Ergebnisse aus Totalenergieberechnungen der magnetischen und strukturellen Phasen der 3d-Elemente

Für die magnetischen 3d-Elemente Cr, Mn und Fe wurden Berechnungen mittels generalisierter Gradientennäherung (GGA) von Asada et al. [40–43] durchgeführt. Angegeben ist die Gitterkonstanten a und das magnetische Moment m bei dem lokalen Minimum der totalen Energie $(E_{tot})_{min}$.

In den theoretischen Berechnungen wird eine Orientierung der Spins auf den Gitterplätzen vorgegeben. Im ferromagnetischen Fall sind die Spins aller Atome und damit auch die der nächsten Nachbarn parallel gekoppelt. Im antiferromagnetischen Fall hängt die antiparallele Kopplung der Spins nächster Nachbarn von der Kristallstruktur ab (Abb. 2.8). Die Orientierung der magnetischen Momente ändert sich in den (100)-Ebenen lagenweise. Diese Spinstruktur wird daher auch als lagenweiser Anti-

ferromagnetismus bezeichnet. Im krz Kristall (Abb. 2.8 links) ist ein Atom von acht

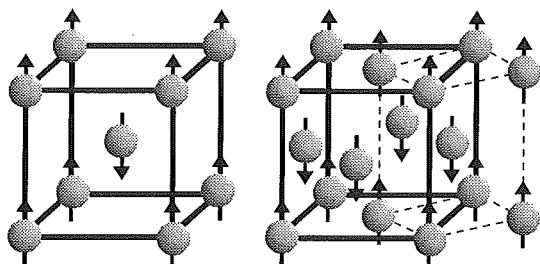


Abb. 2.8: Antiferromagnetische Spinstruktur in einem krz und einem kfz Kristall

Die Spins aller acht nächsten Nachbarn eines Atoms im krz Gitter sind antiparallel orientiert. Im kfz Kristall sind die Spins der vier nächsten Nachbarn in der (100)-Ebene parallel orientiert.

nächsten Nachbarn umgeben, deren Spins antiparallel orientiert sind. Anders als in der krz Struktur besitzt ein Atom im kfz Kristall (Abb. 2.8 rechts) zwölf nächste Nachbarn, deren Spins nicht alle antiparallel orientiert sein können: die Spins des kfz Gitters sind *frustriert* [44]. Als Konsequenz daraus müssen die magnetischen Momente im kfz Gitter nicht kollinear angeordnet sein, so daß keine einheitliche Quantisierungsachse für die Spins existiert. Das kfz Gitter ist dann in Untergitter aufgeteilt, in denen sich die Spins jeweils kompensieren [44]. Dazu wird die totale Energie (Gleichung 2.2) für verschiedene Spinstrukturen ermittelt. Für einen Oktanten der kfz Gitters sind drei verschiedene Anordnungen der Spins (Abb. 2.9) [44, 45] möglich. Die einfache Spin-

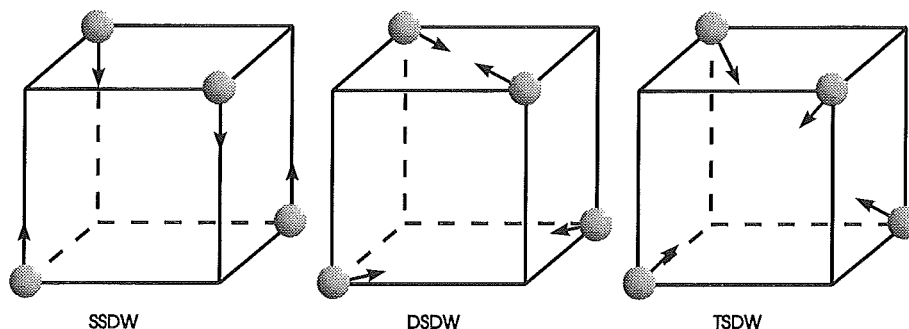


Abb. 2.9: Antiferromagnetische Spinstrukturen in einem kfz Kristall

Links: SSDW mit $\underline{m}$ in $[100]$ -Richtung, Mitte: DSDW mit $\underline{m}$ in $[011]$ - und $[0\bar{1}1]$ -Richtung, rechts: TSDW mit $\underline{m}$ in drei Raumrichtungen nach Crockford et al. [44, 46].

ichtewelle (SSDW) ist der kollineare Fall mit einem $\underline{m}$ -Vektor in $[100]$ -Richtung. Bei der zweifachen Spindichtewelle (DSDW) sind die entsprechenden Vektoren in $[011]$ - und $[0\bar{1}1]$ - Richtung orientiert, während die dreifache (TSDW) durch $\underline{m}$ -Vektoren in drei Raumrichtungen gekennzeichnet ist. Für kfz Fe wird eine alternierende Abfolge von SSDW- und DSDW-Domänen vorhergesagt [47]. Eine Berechnung der Bandstruktur und der totalen Energie wurde von Crockford [44] für kfz Fe und kfz Mn mit

verschiedenen Anordnungen durchgeführt. Sie ergaben, daß die Unterschiede in der totalen Energie zwischen den Spinstrukturen sehr klein sind und daher nicht-kollinearer Magnetismus in diesen Systemen auftreten kann. Die Kopplung der Spins nächster Nachbarn ist jedoch in den drei Spinstrukturen unterschiedlich. Eine Änderung des interatomaren Abstands wirkt sich daher in Abhängigkeit der Kopplung unterschiedlich auf die spinaufgespaltene Zustandsdichte aus (Abb. 2.10).

Eine Verkleinerung des interatomaren Abstands führt zu einer Vergrößerung der Hüpf-

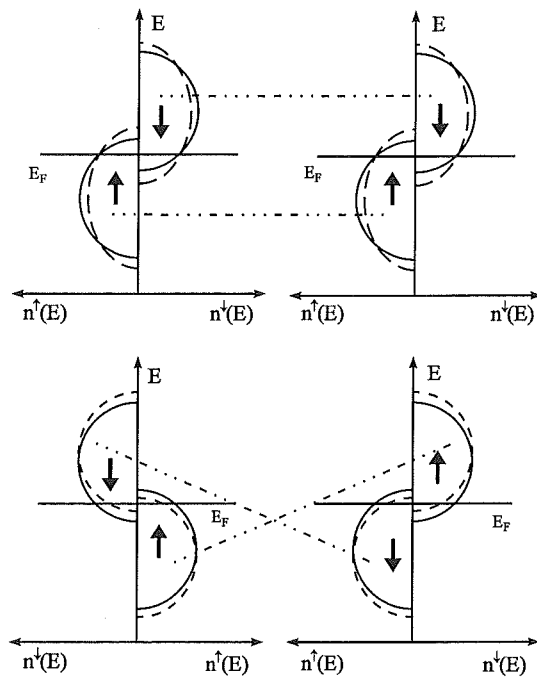


Abb. 2.10: Deformation der lokalen, spinaufgespaltenen Zustandsdichte eines AF kfz Kristalls mit einer SSDW-Spinstruktur bei einer Verkleinerung des interatomaren Abstands

Durchgezogene und gestrichelte Linien geben den Verlauf der undeformierten bzw. deformierten, lokalen Zustandsdichte der Elektronen an. Die punktiert gestrichelten Linien repräsentieren die Hybridisierung zwischen benachbarten Atomen gleicher Spinorientierung.

Oben: Bandverbreiterung durch ein erhöhtes Hüpfmatrixelement zwischen ferromagnetisch gekoppelten Ebenen infolge einer Verkleinerung des interatomaren Abstands.

Unten: verstärkte Austauschaufspaltung durch ein vergrößertes Hüpfmatrixelement.

Diagramm nach Oguchi et al. [48].

matrixelemente. Innerhalb der (100)-Ebenen hybridisieren d-Bänder mit paralleler Spinorientierung. Zur Vermeidung der Doppelbesetzung von Zuständen mit Elektronen der gleichen Spinrichtung muß sich daher die Bandbreite vergrößern (Abb. 2.10 oben). Eine Vergrößerung des Hüpfmatrixelementes zwischen antiferromagnetisch gekoppelten Atomen der (100)-Ebenen führt zu einer Hybridisierung von d-Bändern benachbarter Atome mit der gleichen Spinorientierung, die energetisch durch die Austauschaufspaltung getrennt sind (Abb. 2.10 unten). Majoritäts- und Minoritätsbänder verschieben sich gegeneinander; die Austauschaufspaltung wird größer. Da die Bänder des AF kfz Mangans mit einer relativ großen Austauschaufspaltung nahezu halbgefüllt sind, kann der Effekt der Bandverschiebung die d-Bindung dominieren. Als Folge davon gewinnt

das System durch eine Kontraktion der (100)-Ebenen Energie. Eine Erhöhung der kinetischen Energie, die durch die Kompression der sp-Bänder eintreten würde, kann durch eine laterale Expansion vermieden werden. Dieser Vorgang kann auch durch den Überlapp der d-Orbitale erklärt werden [46]. Die x^2-y^2 Orbitale liegen in den (100)-Ebenen und haben einen großen Überlapp in der xy-Ebene, während die $3z^2-r^2$ Orbitale senkrecht zur (100)-Ebene orientiert sind. In der SSDW-Struktur sind die Spins innerhalb der (100)-Ebenen parallel gekoppelt. Aufgrund des Pauliprinzipes muß das Hüpfmatrixelement zwischen den x^2-y^2 Orbitalen klein sein. Folglich sind diese Orbitale stärker lokalisiert als die $3z^2-r^2$, xy, yz und zx Orbitale und tragen daher ein größeres Moment. Die stärkere Lokalisierung bedeutet eine geringere Hybridisierung in der Ebene und damit eine Tendenz, den Abstand der Atome in der Ebene zu vergrößern. Für benachbarte Atome mit antiparallelen Spins kann durch eine stärkere Hybridisierung die Energie abgesenkt werden. Die Lokalisierung der Elektronen und das resultierende Moment der an der Bindung beteiligten d-Orbitale ist folglich kleiner. Im SSDW-Modell besteht daher die Tendenz zur Verringerung des Abstands der (100)-Ebenen. Als Folge davon müssen antiferromagnetische kfz Strukturen mit SSDW-Spinstruktur eine tetragonale Verzerrung unterhalb der Néel-Temperatur aufweisen. Eine Kontraktion wird immer senkrecht zu den Ebenen mit den dichtest gepackten, ferromagnetisch gekoppelten Spins auftreten. Respektive vergrößern parallele Spins ferromagnetischer Ebenen ihren Abstand, während benachbarte Ebenen antiparallelen Spins ihren Abstand verkleinern. Ein Maß für die Verzerrung ist das sogenannte c/a-Verhältnis. Es ist definiert als der Quotient aus zweifachem Interlagenabstand und nächstem Nachbarabstand in der Filmebene. Die betrachtete Zelle für das c/a-Verhältnis ist damit eine kubisch raumzentrierte, tetragonal verzerrte (krt). Folglich ist das c/a-Verhältnis gleich 1 für eine kubisch raumzentrierte Struktur und gleich $\sqrt{2}$ für eine kubisch flächenzentrierte Struktur. Für ein Gitter mit DSDW-Spinstruktur muß daher das c/a-Verhältnis größer als $\sqrt{2}$ sein. Für eine TSDW-Struktur tritt keine tetragonale Verzerrung ein. Für kfz Mn [46, 48] und kfz Fe [46] wurden diese Verzerrungen berechnet (Tab. 2.3). Während für Fe eine vernachlässigbare Verzerrung für alle Spinstrukturen ermittelt

Element	SSDW	DSDW	TSDW	Ref.
Mn	-10	-	-	[48]
	-3,8	1,4	0,02	[46]
Fe	-0,02	-0,08	0,0003	[46]

Tab. 2.3: Berechnung der tetragonalen Verzerrungen in kfz Fe und Mn induziert durch die antiferromagnetische Spinstruktur

Die Abweichungen vom c/a-Verhältnis der kfz Struktur $c/a = \sqrt{2}$ sind in Prozent angegeben.

wird, ist die Abweichung des c/a-Verhältnisses von der kfz Struktur für γ -Mn mit

SSDW-Spinstruktur erheblich. Für die DSDW-Struktur wird in Übereinstimmung mit den obigen Überlegungen eine Vergrößerung des c/a -Verhältnisses berechnet.

Die theoretischen Berechnungen stimmen mit experimentellen Ergebnissen an kfz Mn-Legierungen mit $c/a \approx 1,27$ [27,49,50] und $c/a = 1,34$ [51,52] überein. Für $\text{Mn}_{81,5}\text{Ni}_{18,5}$ Legierungen wird eine Vergrößerung des c/a -Verhältnisses um 1,5 % beobachtet [53], was auf eine DSDW-Spinstruktur schließen läßt. Acet et al. [25] ermittelten an Mn-reichen Cu-Legierungen die Temperaturen T_t , bei denen eine tetragonale Verzerrung der γ -Phase einsetzt. Durch Extrapolation kann der Wert für die reine γ -Phase zu $T_t = 540$ K bestimmt werden. Unterhalb eines Mn-Anteils von ca. 85 % stimmt dieser Wert mit der Néel-Temperatur überein [25]. Mit größer werdendem Anteil des Mn liegt die Néel-Temperatur jedoch höher. Der extrapolierte Wert für die Néel-Temperatur der reinen γ -Phase beträgt 670 K.

Experimente an Einschlüssen von AF kfz $\text{Fe}_{100-x}\text{Co}_x$ Legierungen ($x \approx 1$) mittels Neutronenstreuung [54] ergaben eine nicht kollineare, spirale magnetische Struktur mit $\underline{m} = (\delta, 0, 1) 2\pi/a$, $\delta \approx 0,3$. Sich daran anschließende Berechnungen von Uhl et al. [55] mittels LSD-Näherung ergaben eine empfindliche Abhängigkeit der Spinstruktur vom atomaren Volumen und eine spirale magnetische Struktur für das kfz Fe.

Die bisher vorgestellten, experimentellen und theoretischen Untersuchungen beschränkten sich auf die Volumeneigenschaften von Legierungen bzw. reinen Metallen. Bei dünnen Filmen üben die Grenzflächen jedoch einen ausgeprägten Einfluß auf die magnetischen Eigenschaften dünner Filme aus.

Ein wesentlicher Grund dafür ist die Reduktion der Koordinationszahl an der Filmoberfläche. Die Reduktion ist von der Orientierung der Kristalloberfläche abhängig und für die dicht gepackten Flächen (kfz(111) und krz(110)) am geringsten. Sie führt zur Verringerung der d-d-Hybridisierung und damit zur Bandverengung. Die Tendenz zur Vergrößerung des magnetischen Moments ist damit an der Oberfläche besonders ausgeprägt. Für einige Elemente wird eine magnetische Ordnung der Oberfläche oberhalb der Curie- bzw. Néel-Temperatur des Volumens beobachtet. Ein solches Phänomen wird auch als *magnetic live (surface) layer* bezeichnet [56]. Für Gd(0001) wird eine erhöhte Curie-Temperatur im Vergleich zum Volumen um 5 bis 7 % und für Tb(0001) um 14 % ermittelt. Bei Cr ist sie um einen Faktor 2,5 bis 2,7 im Vergleich zur Néel-Temperatur erhöht [6, 56]. Dieser Trend ist bei Vanadium insofern noch verstärkt, als dieses im Volumen unmagnetisch ist, die Curie-Temperatur an der Oberfläche jedoch 475 K bzw. 540 K beträgt.

Für Ni, das im Volumen nur 0,6 freie Zustände im Minoritätsband besitzt, wird dagegen durch die Bandverengung an der Oberfläche eine Auffüllung des Minoritätsbandes und damit eine unmagnetische Oberfläche (*dead layers*) [56,57] erwartet. Dieses Bild ist jedoch zu einfach, da drei Teileffekte den Magnetismus der Oberfläche in Abhängigkeit der lokalen Umgebung auf komplexe Weise beeinflussen [58]. Eine Verschiebung des

d-Niveaus relativ zum sp-Band resultiert aus der Relaxation der d-Ladungsdichte an der Oberfläche, die die Energieniveaus der d-Elektronen absenkt. Eine verringerte sp-d-Hybridisierung an der Oberfläche bewirkt eine Erhöhung der Anzahl der d-Elektronen. Als dritte Bedingung darf die Ladungsneutralität nicht verletzt werden. Alle drei Teilleffekte führen nicht nur zu einem nicht verschwindenden, sondern leicht erhöhtem Moment des Nickels an der Oberfläche. Die Momente sind an der Oberfläche für kfz Ni um 7 %, für hexagonales Co um 10 %, für krz Fe um 32 % und für kfz Mn um 58 % erhöht [59]. Die Majoritätsbänder im Volumen des Ni und Co sind gesättigt und die Momenterhöhung resultiert aus einer Verringerung der Anzahl der Minoritätselektronen. Das Majoritätsband des Fe und Mn ist im Volumen nicht gesättigt; deshalb können an der Oberfläche mehr Majoritäts- und weniger Minoritätsbänder besetzt werden, was zu einer deutlichen Erhöhung des magnetischen Moments führt. Die Majoritätsbänder der Oberflächenatome sind dann mit Ausnahme von kfz Mn vollständig besetzt [59]. Bei den bisherigen Betrachtungen wurde eine Änderung des lokalen Volumens der Oberflächenatome nicht berücksichtigt. Sie wird jedoch bei der Reduktion der Koordinationszahl und der Änderung des magnetischen Momentes erwartet. Entsprechende Berechnungen zur krz Fe(100)-Oberfläche [60] ergeben ein Minimum der totalen Energie bei einer Relaxation der Oberfläche um -4 %. Die Kompression des ersten Interlagenabstands führt zu einer Verringerung des Moments an der Oberfläche um 5 % auf $2,84 \mu_B$, das jedoch noch immer einem erheblich erhöhten magnetischen Moment gegenüber dem Volumenwert von $2,2 \mu_B$ entspricht [61].

Für ultradünne Filme treffen die obigen Überlegungen sowohl auf die Grenzfläche Film/Vakuum als auch Film/Substrat zu. Allerdings hängen die Eigenschaften letzterer von der Hybridisierung zwischen Substrat- und Adsorbatatomen ab.

Im Fall von Monolagen eines Metalls auf einem Einkristall hängt die Wechselwirkung zwischen Substrat und Film von dem Hüpfmatrizelement und der Koordinationszahl (Gleichung 2.15) senkrecht ($\perp$) und parallel ($\parallel$) zur Grenzfläche ab [58]. Bei der Wahl eines Edelmetalls (Cu, Ag oder Au) sind die d-Schalen gefüllt und die d-d-Hybridisierung zwischen Substrat und Adsorbat bzw. $h_{d\perp}$ ist klein. Magnetische Monolagen zeigen dann ein fast ideales zweidimensionales Verhalten. Berechnungen für Monolagen der 3d-, 4d- und 5d-Elemente auf Ag(100) [62] zeigen, daß auch die 4d- und 5d-Metalle als Monolage ein magnetisches Moment aufweisen.

Durch das magnetische Moment kann auch eine geordnete Legierung an der Oberfläche stabilisiert werden, die im Volumen nicht beobachtet wird. Ein ausgezeichnetes Beispiel dafür ist die $c(2\times 2)$ -Struktur [63] einer $\text{Mn}_{0,5}\text{Cu}_{0,5}$ Oberflächenlegierung auf einer Cu(100)-Oberfläche. Sie ist durch eine unverhältnismäßig große Korrugation der legierten Mn-Atome an der Oberfläche um $0,3 \text{ \AA}$ gekennzeichnet [64]. Die Korrugation vergleichbarer Legierungen auf dem gleichen Substrat wie die $c(2\times 2)$ -Au [65] und die $c(2\times 2)$ -Pd [66] ist erheblich geringer. Der Grund dafür ist das große magnetische Moment des Mn mit $3,64 \mu_B$, das zu einem vergrößerten, partiellen Volumen der

Mn-Atome führt. Die Momente der Mn-Atome koppeln über die Hybridisierung ihrer d-Bänder mit den sp-Bändern des Cu ferromagnetisch [64].

2.3 Die magnetische Anisotropie

Die kristallographische Richtung, in die sich das magnetische Moment eines Ferromagneten unterhalb der Curie-Temperatur orientiert, wird *leichte Achse* genannt. Als *schwere Achse* wird die kristallographische Richtung bezeichnet, in die das größte äußere Feld angelegt werden muß, um das Moment in Folge einer reversiblen Drehung parallel zum Feld zu orientieren. Die Differenz zwischen den Energien beider Richtungen beträgt 10^{-6} bis 10^{-3} eV/Atom und ist damit um mehrere Zehnerpotenzen kleiner als die Austauschenergie $\approx 0,1$ eV/Atom, die für die magnetische Ordnung verantwortlich ist. Die relevanten Energiebeiträge zur magnetischen Anisotropie resultieren aus der Spin-Bahn-Wechselwirkung und der Dipol-Dipol-Wechselwirkung.

Im Volumen bestimmt im wesentlichen die Spin-Bahn-Wechselwirkung und nur zu einem kleinen Anteil die Dipol-Dipol-Wechselwirkung die magnetische Kristallanisotropie ($\approx 10^{-6}$ eV/Atom). Das thermodynamische Potential eines kubischen Kristalls kann in Potenzen der Richtungskosinus der drei Kristallachsen α_i ($i = 1, 2, 3$) entwickelt werden. Aufgrund der Invarianz des Hamilton-Operators gegen Zeitumkehr sind nur gerade Exponenten in der Entwicklung zulässig. Für die Anisotropieenergie im Volumen eines kubischen Kristalls $G_{Kristall}^V$ gilt nach Bruno [67]:

$$G_{Kristall}^V(\Omega_M) = K_0 + \frac{K_1}{2} \sum_{i,j=1, i \neq j}^3 \alpha_i^2 \alpha_j^2 + K_2 \alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2 + K_3 \left(\frac{1}{2} \sum_{i,j=1, i \neq j}^3 \alpha_i^2 \alpha_j^2 \right)^2 + \dots \quad (2.17)$$

Der konstante Beitrag K_0 resultiert aus dem quadratischen Term ($\sum_{i=1}^3 \alpha_i^2 = 1$). Die Unterschiede zwischen K_1 , K_2 und K_3 bestimmen die Orientierung der leichten Achse. Für krz Fe bei 4,2 K ist $K_1 = 4,02 \cdot 10^{-6}$ eV/Atom, $K_2 = 1,44 \cdot 10^{-8}$ eV/Atom und $K_3 = 6,0 \cdot 10^{-9}$ eV/Atom. Da alle Werte größer als Null sind, ist nach Gleichung 2.17 zur Minimierung der Energie die [100]-Richtung die leichte Achse.

Aufgrund der reduzierten Koordinationszahl unterscheidet sich die Umgebung der Oberflächenatome von der der Atome im Volumen [67, 68]. Die Richtung senkrecht zur Oberfläche ist damit inäquivalent zu den Richtungen in der Oberfläche; anders als in Gleichung 2.17 müssen dann Terme zweiter Ordnung in Bezug auf die Oberflächennormale berücksichtigt werden. Danach kann der Energiebeitrag einer kubischen Oberfläche, die Oberflächenanisotropie, nach dem Winkel Θ zur Oberflächennormalen und Φ zur Kristallachse in der Ebene entwickelt werden

$$G_{Kristall}^S = K_1^S \sin^2 \Theta + (K_2^S + K_2'^S \cos(4\Phi)) \sin^4 \Theta + \dots \quad (2.18)$$

Der erste, quadratische Term liefert den Hauptbeitrag und liegt im Bereich zwischen 10^{-4} und 10^{-3} eV/Oberflächenatom. Er ist bedeutend größer als der des Volumens,

kommt aber aufgrund der geringen Zahl der Oberflächenatome im Vergleich zu den Volumenatomen nicht zum Tragen. Im Falle ultradünner Schichten ist jedoch die Zahl der Oberflächenatome mit der der Atome im Volumen des Films vergleichbar bzw. größer. Für den Fall $K_1^S > 0$ wird eine Magnetisierung senkrecht zur Oberfläche bevorzugt.

Die magnetische Grenzflächenanisotropie setzt sich aus verschiedenen Energiebeiträgen zusammen. Die magnetokristalline Oberflächenanisotropie beruht auf dem Beitrag der Spin-Bahn-Wechselwirkung an den Grenzflächen. Ein Vergleich zwischen Volumenanteil und Oberflächenanteil kann durch eine Näherung in Störungstheorie erfolgen [69]. Dabei ist die Änderung der Energie durch die Spin-Bahn-Wechselwirkung ΔE_{SB}^n gegeben durch

$$\Delta E_{SB}^n = \sum_{<ang|} \frac{|<ang|H_{SB}|gr>|^n}{(E_{gr} - E_{ang})^{n-1}}, \quad (2.19)$$

wobei die Summe über alle angeregten Zustände $<ang|$ geht und H_{SB} die Spin-Bahn-Wechselwirkung im Hamiltonoperator ist.

Für ein uniaxiales System (z.B. Oberfläche) müssen Terme zweiter Ordnung ($n = 2$), für ein kubisches (Volumen) Terme vierter Ordnung ($n = 4$) berücksichtigt werden. In grober Näherung entspricht die Energiedifferenz zwischen angeregtem und Grundzustand der Bandbreite W [69–71]

$$K_1^{uniaxial} \approx \frac{\xi^2}{W}, \quad K_1^{kubisch} \approx \frac{\xi^4}{W^3}. \quad (2.20)$$

Mit realistischen Werten der Spin-Bahn-Wechselwirkung für die 3d-Elemente von $\xi \approx 75$ meV und der Bandbreite $W \approx 5$ eV liegen die Werte bei 1 meV/Atom im uniaxialen und 0,3 μ eV/Atom im kubischen Fall [67]. Diese Näherung zeigt den Unterschied zwischen Volumen- und Oberflächenatomen. Die magnetokristalline Oberflächenanisotropie ist von den Energiezuständen nahe der Fermienergie und damit auch von der Auffüllung des Valenzbandes abhängig. Für eine ideale, freie Monolage ist unterhalb einer 3d-Elektronenzahl von 8 (Fe) eine senkrecht zur Oberfläche orientierte Magnetisierung bevorzugt, oberhalb 8 eine parallel zur Oberfläche [67]. Zudem ergibt sich auch eine Abhängigkeit von der Dichte und der Geometrie der Oberflächenatome. So wird für die (110)-Orientierung des krz Eisens eine Bevorzugung der Magnetisierung in der Ebene beobachtet [72, 73].

An der Grenzfläche zwischen Film und Substrat hybridisieren die Orbitale beider Elemente. Bei der Wahl eines Substrats mit nicht aufgefüllter d-Schale kann durch die d-d-Hybridisierung eine beträchtliche Spinpolarisierung an der Grenzfläche hervorgerufen werden, die zur Anisotropie beiträgt. Pd und Pt [67] besitzen z.B. eine große Suszeptibilität zusammen mit einer starken Spin-Bahn-Wechselwirkung, die im Falle ultradünner Co(111)-Schichten zu einer Favorisierung der senkrechten Magnetisierung führt [74]. Die Hybridisierung zwischen Co- und Au-Grenzflächenatomen führt zu einer Vergrößerung der Grenzflächenanisotropiekonstante [75]. Dagegen wurde für

die Grenzfläche Fe/Au eine Reduktion dieses Wertes vom Wert der Grenzfläche Fe/-Vakuum $0,96 \text{ mJ/m}^2$ auf $0,47 \text{ mJ/m}^2$ gemessen [75, 76].

Mit wachsender Schichtdicke steigt die *Formanisotropie* an. Sie resultiert aus der Dipol-Dipol-Wechselwirkung. Die Wechselwirkung nimmt nur langsam als eine Funktion des Abstands der Momente am Ort i und j ab ($\propto r_{ij}^{-3}$). Als Konsequenz daraus hängt das dipolare Feld, das ein Moment im Volumen des Films erfährt, von der Orientierung der Momente an den Grenzflächen des Körpers und damit der Form des Körpers ab. Für die Geometrie einer dünnen Ebene gilt:

$$G_{Form}^V = K_{Form}^V \sin^2 \Theta = -2\pi M_V^2 \sin^2 \Theta. \quad (2.21)$$

Die Geometrie ultradünner Filme bevorzugt aufgrund des negativen Vorzeichens eine Magnetisierung in der Ebene. Die zugehörige Anisotropiekonstante K_{Form}^V liegt im Bereich von 10^{-4} eV/Atom und ist damit größer als die magnetokristalline Volumenanisotropie. Da dieser Beitrag mit steigender Schichtdicke monoton wächst, während die Grenzflächenanisotropieenergie konstant bleibt, wird sich die zunächst senkrecht zur Oberfläche orientierte Magnetisierung bei einer kritischen Schichtdicke in die Filmebene orientieren.

Volumenanteile und Grenzflächenanteile können in effektiven Anisotropiekonstanten K_V^{eff} und K_{GF}^{eff} zusammengefaßt werden. Die Grenzflächenanisotropiekonstante K_{GF}^{eff} setzt sich aus einem Anteil Film-Vakuum (FV) und Film-Substrat (FS) zusammen

$$K^{eff} = K_V^{eff} + \frac{K_{GF}^{eff}}{d} = K_V^{eff} + \frac{K_{FV}^{eff} + K_{FS}^{eff}}{d}. \quad (2.22)$$

Formanisotropie und magnetokristalline Oberflächenanisotropie sind in unterschiedlichem Maße temperaturabhängig [71, 77]. So kann bei tiefen Temperaturen der Energiebeitrag der magnetokristallinen Oberflächenanisotropie größer sein, und die Magnetisierung steht senkrecht zur Oberfläche. Mit steigender Temperatur kann dieser Beitrag sich schneller verkleinern als der der Formanisotropie. Als Folge davon wird eine spontane Änderung der Magnetisierungsrichtung bei der Temperatur T_s von senkrecht nach parallel eintreten [77].

Auch in der Filmebene kann sich die Magnetisierungsrichtung in Abhängigkeit der Temperatur ändern. Ein Beispiel dafür wurde kürzlich von Oepen et al. gezeigt [78–80]. Sie verwendeten als Substrat einen Cu(1,1,17)-Kristall, der durch eine regelmäßige Stufenabfolge in [011]-Richtung gekennzeichnet ist. Während die Oberflächenanisotropie eine Magnetisierungsrichtung parallel zu den Stufenkanten bevorzugt, ist an der Grenzfläche Film-Substrat die Richtung senkrecht zur Stufenkante bevorzugt. In Abhängigkeit der Temperatur ändern sich beide Beiträge in unterschiedlichem Maße und damit auch die Orientierung der Magnetisierung in der Filmebene.

In realen Schichtsystemen kann man nicht von einer idealen, glatten Grenzfläche ausgehen, sondern die Grenzflächenanisotropie hängt von der Grenzflächenrauigkeit ab. Bei der Bevorzugung einer longitudinalen Magnetisierung treten am Rand einer Terrasse

magnetische Ladungen auf, die zu einem Demagnetisierungsfeld führen. Der Beitrag der Rauigkeit zum dipolaren Anteil der Anisotropie hat ein positives Vorzeichen und führt zu einer Bevorzugung der senkrechten Magnetisierung [70].

Eine Änderung der magnetokristallinen Grenzflächenanisotropie resultiert dagegen aus der Änderung der Umgebung der Oberflächenatome im Vergleich zu einer idealen Oberfläche. Fehlen die nächsten Nachbarn in der Ebene, ist die Asymmetrie der Oberflächenatome zu den Atomen im Volumen reduziert. Der Beitrag der Rauigkeit zur magnetokristallinen Oberflächenanisotropie ist daher negativ [81] und bevorzugt die parallele Magnetisierung. An der Grenzfläche Substrat/Adsorbat hängt er von der Wahl des Substrates ab. Die Modifizierung der Grenzflächeneigenschaften kann zur systematischen Kontrolle der magnetischen Eigenschaften genutzt werden. Dazu muß das Wachstum ultradünner Filme kontrolliert und die Grenzflächenrauigkeit quantitativ analysiert werden.

Eine andere Möglichkeit der Beeinflussung der Magnetisierungsrichtung resultiert aus einer tetragonalen Verzerrung der Volumenstruktur des magnetischen Materials.

Durch die Verzerrung wird eine nicht vernachlässigbare, magnetische Anisotropie im Film induziert. Art und Größe werden durch die magnetoelastischen Konstanten bestimmt. In der Entwicklung der Richtungskosinus ist die magnetoelastische Energie $G_{\text{magn.el.}}$ durch [67, 82, 83]

$$G_{\text{magn.el.}} = B_1(\epsilon_{11}\alpha_1^2 + \epsilon_{22}\alpha_2^2 + \epsilon_{33}\alpha_3^2) + 2B_2(\epsilon_{12}\alpha_1\alpha_2 + \epsilon_{23}\alpha_2\alpha_3 + \epsilon_{31}\alpha_3\alpha_1) + \dots \quad (2.23)$$

mit den elastischen Konstanten B_1 und B_2 und den Komponenten des Dehnungstensors ϵ_{ij} gegeben. Für Fe ist $B_1 = -2,53 \cdot 10^{-4}$ eV/Atom und $B_2 = -5,56 \cdot 10^{-4}$ eV/Atom [67]. Durch Anlegen eines Zuges stellt sich die Magnetisierung parallel zur Zugspannungsachse ein, bei Anlegen eines Drucks senkrecht zur Druckachse. Das bedeutet, daß bei einer Vergrößerung des c/a-Verhältnisses die Magnetisierung in die c-Richtung bevorzugt ist. Umgekehrte Überlegungen gelten für Ni mit den elastischen Konstanten $B_1 = 6,05 \cdot 10^{-4}$ eV/Atom und $B_2 = 6,97 \cdot 10^{-4}$ eV/Atom [67].

Eine gezielte Änderung der magnetischen Eigenschaften über die magnetoelastischen Konstanten setzt eine Kontrolle des c/a-Verhältnisses und damit der strukturellen Eigenschaften voraus. Durch das geordnete Wachstum eines Films auf einem einkristallinen Substrat ist es möglich, diesen Parameter zu beeinflussen.

Die Stabilität der ferromagnetischen Ordnung zweidimensionaler Systeme hängt entscheidend von der Stärke der magnetischen Anisotropie ab. Nach dem Mermin-Wagner Theorem [2, 84, 85] existiert in ein- und zweidimensionalen, isotropen Systemen nach dem Heisenberg-Modell lokalisierter Momente keine spontane Magnetisierung. In den Filmen weniger Lagen wird sie durch die Formanisotropie und die magnetokristalline Oberflächenanisotropie stabilisiert. Dabei vermag der dipolare Anteil bedeutend weniger die ferromagnetische Ordnung zu stabilisieren als der uniaxiale Anteil [86]. Zur Berechnung der Stabilität des Ferromagnetismus in Abhängigkeit der Schichtdicke

muß der Einfluß der Spinwellen berücksichtigt werden (Abb. 2.11) [86]. Mit wachsen-

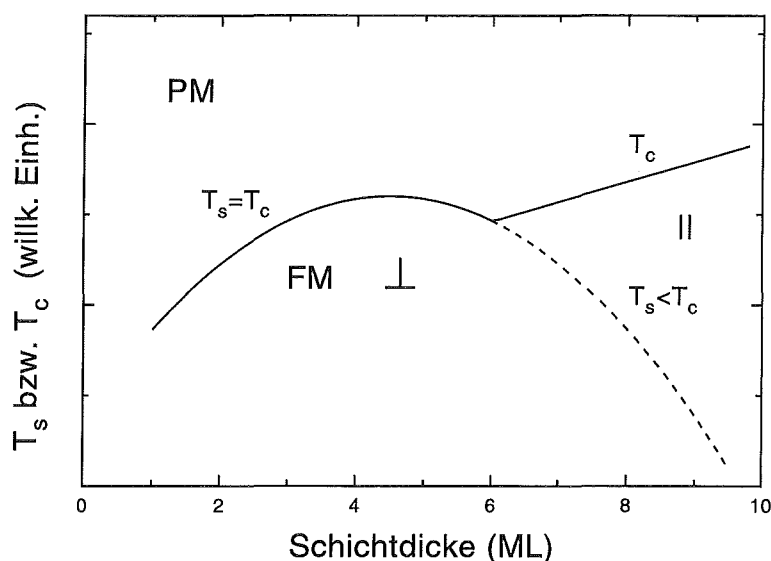


Abb. 2.11: Berechnete Abhängigkeit der Temperatur des Reorientierungsübergangs und der Curie-Temperatur von der Schichtdicke

Schematisches Diagramm nach Politi et al. [86]

der Schichtdicke werden thermische Fluktuationen in den Spinwellen reduziert und die Curie-Temperatur steigt. Bei sehr kleinen Schichtdicken mit senkrechter Magnetisierung ist die ferromagnetische Ordnung durch den uniaxialen Oberflächenanteil stabilisiert und der dipolare Anteil so klein, daß keine Änderung der Magnetisierungsrichtung bis zur Curie-Temperatur berechnet wird ($T_s = T_c$). Mit steigender Bedeckung bleibt der Grenzflächenbeitrag konstant und der dipolare Anteil wird größer. Als Folge nimmt die Temperatur für den Reorientierungsübergang und damit auch die Curie-Temperatur ab. Folglich kann die Curie-Temperatur bei kleinerer Schichtdicke ein lokales Maximum besitzen. Dieses Maximum wird in einem Bereich zwischen 1 und 6 ML erwartet [86]. Die Curie-Temperatur steigt mit wachsender Bedeckung erst wieder an, wenn die durch den dipolaren Anteil stabilisierte ferromagnetische Ordnung einen Wert der Curie-Temperatur erreicht, der größer als der des Reorientierungsübergangs ist. Oberhalb dieser Schichtdicke liegt die Temperatur für den Reorientierungsübergang unterhalb der Curie-Temperatur ($T_s < T_c$).

Im Fall einer biaxialen Oberflächenanisotropie wird bei kleiner Schichtdicke kein Maximum sondern ein kontinuierlich ansteigender Verlauf berechnet [86].

Die hier diskutierte Eigenschaft des Films ist Kennzeichen eines Übergangs von einem zweidimensionalen zu einem dreidimensionalen Verhalten. Ein weiteres Merkmal der Änderung dieses Verhaltens sind die kritischen Exponenten, die die Abhängigkeit der magnetischen Größen nahe der Curie-Temperatur T_c beschreiben. Für die Magnetisie-

rung M gilt

$$M \propto \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)^\beta \quad (2.24)$$

mit dem kritischen Exponenten β .

Für ein zweidimensionales System mit uniaxialer Anisotropie (Ising Modell) ist β gleich $1/8$ [84, 87–89] und mit biaxialer Anisotropie (2d-xy-Modell) $0,23$ [90]. Für ein dreidimensionales Heisenberg- und Ising-System sollte β $0,365$ bzw. $0,325$ [91] betragen. Mit steigender Bedeckung müssen die kritischen Exponenten daher größer werden. Eine Untersuchung dieser Änderung an ultradünnen Ni(111)-Filmen auf einem W(110) Substrat ist von Li et al. durchgeführt worden [92]. Unterhalb einer Dicke von 4 ML liegt ein 2D-Ising-Verhalten vor. Die größte Änderung des kritischen Exponenten wird zwischen 4 und 7,5 ML beobachtet. Oberhalb etwa 12 ML zeigt der Film bereits dreidimensionales Verhalten. Dieses Verhalten ist analog dem der Curie-Temperatur, das oberhalb 5 ML Werte erreicht, die nur um 10–15 % unterhalb denen des Volumens liegen [71, 92]. Die Untersuchung der zweidimensionalen Eigenschaften ultradünner Filme erscheint in diesem Zusammenhang nur innerhalb der ersten zehn Lagen sinnvoll.

2.4 Der magnetooptische Kerr-Effekt

1845 wurde von M. Faraday [93] die Drehung der Polarisationssebene von Licht beim Durchgang durch Bleiborsilikatglas, an das in Lichtausbreitungsrichtung ein Magnetfeld angelegt war, beobachtet. Er stellte in weiteren Studien fest, daß die Größe der Drehung proportional zur Dicke des durchstrahlten Materials und dem an die Probe angelegten Magnetfeld ist. 1876 beobachtete J. Kerr eine Drehung der Polarisationssebenen des Lichts auch bei Reflexion an magnetisierten Eisenspiegeln [94]. Beide Effekte wurden nach ihren Entdeckern Faraday- bzw. Kerr-Effekt benannt.

In Abhängigkeit der Geometrie unterscheidet man drei verschiedene Kerr-Effekte. Beim *polaren* Kerr-Effekt ist die Magnetfeldrichtung, respektive die Magnetisierung, senkrecht zur Oberfläche der Probe und in der Einfallsebene des Lichtes orientiert. Beim *longitudinalen* bzw. meridionalen Kerr-Effekt ist die Magnetfeldrichtung ebenfalls in der Einfallsebene des Lichtes, aber zusätzlich parallel zur Oberfläche der Probe orientiert. Beim *transversalen* bzw. äquatorialen Kerr-Effekt ist die Magnetfeldrichtung senkrecht zur Einfallsebene des Lichtes und parallel zur Oberfläche der Probe orientiert.

Mit Hilfe der Theorie des Elektromagnetismus von Maxwell und der Dispersionstheorie von Lorentz und Drude [95, 96] entstand am Beginn dieses Jahrhunderts ein klassisches Modell zur quantitativen Beschreibung der magnetooptischen Effekte. Dazu geht man von einem harmonisch gebundenen Elektron unter gleichzeitiger Einwirkung einer Lichtwelle und der Lorentzkraft aus [97]. Die Lorentzkraft stellt vereinfacht den Einfluß des inneren magnetischen Feldes des Atoms dar

$$m \frac{\partial^2 \underline{r}}{\partial t^2} + \gamma \frac{\partial \underline{r}}{\partial t} + \omega_0^2 \underline{r} = e \underline{E} + e \frac{\partial \underline{r}}{\partial t} \times \underline{B}, \quad \underline{r} = [x, y, z] \quad (2.25)$$

mit $\underline{B} = [0, 0, B]$ und $\underline{E} = [E_x, E_y, 0] e^{i\omega t}$. Nach der Ausführung des Vektorproduktes läßt sich die Polarisation des Lichts durch die Betrachtung der Komponenten, x und y , ermitteln. Durch geeignete Wahl neuer Koordinaten $x_{\pm} = x \pm iy$; $E_{\pm} = E_x \pm iE_y$ werden die Differentialgleichungen entkoppelt. Damit betrachtet man eine Zerlegung des linear polarisierten Lichts in einen links- und einen rechtszirkular polarisierten Anteil. Mit den neuen Koordinaten ergibt sich mit dem Dipolmoment $P_{\pm}$ und der Polarisierbarkeit $\alpha_{\pm}$ die Lösung [97]

$$P_{\pm} = ex_{\pm} = \alpha_{\pm} E_{\pm}. \quad (2.26)$$

Die zirkular polarisierten Lösungen sind damit die Eigenmoden der Differentialgleichung 2.25. Aus den Maxwell-Gleichungen folgt für die Dielektrizität

$$\epsilon_{\pm} = \frac{N\alpha_{\pm}}{\epsilon_0} + 1 = \tilde{n}_{\pm}^2 \quad (2.27)$$

mit der Anzahl der Oszillatoren N , der Dielektrizitätskonstante ϵ_0 und dem Brechungsindex $\tilde{n}_\pm$. Der Brechungsindex $\tilde{n}_\pm = n_\pm \pm i\kappa_\pm$ ist komplex und beschreibt mit dem Realteil $n_\pm$ die Änderung der Phasengeschwindigkeit und mit dem Imaginärteil $\pm i\kappa_\pm$ die Absorption der optischen Moden im Medium. Eine Differenz in der Phasengeschwindigkeit führt zu einer Drehung der Polarisationsachse um den Winkel φ_F und die Differenz in der Absorption zu elliptisch polarisiertem Licht. Nach dem Durchtritt eines linear polarisierten Strahls durch ein magnetooptisch aktives Medium besitzt daher im allgemeinen das Licht einen elliptisch polarisierten Zustand, dessen große Achse um den Winkel φ_F gedreht ist (Abb. 2.12). Als Maß für die Elliptizität ϵ_F gilt das Verhältnis der kleinen zur großen Halbachse. Für kleine κ gilt dann $\varphi_F = \frac{\pi}{\lambda_0}(n_+ - n_-)d$ und

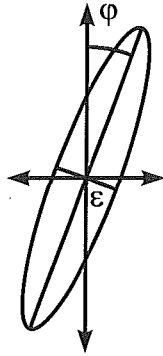


Abb. 2.12: **Polarisationszustand des senkrecht polarisierten, einfallenden Lichts nach dem Durchtritt bzw. der Reflexion an einem Medium.**

Die große Achse ist um den Winkel φ gedreht, die Elliptizität ϵ ergibt sich aus dem Verhältnis von kleiner zur großer Halbachse.

$\epsilon_F = \frac{\pi}{\lambda_0}(\kappa_+ - \kappa_-)d$ mit der Wegstrecke d im Medium [97].

Transformiert man die Lösungen auf die Achsen x, y zurück, ist die Polarisierbarkeit $\underline{\alpha}$ ein Tensor mit Nichtdiagonalelementen. Aus den Maxwell-Gleichungen ergibt sich damit, daß die Dielektrizität ebenfalls ein Tensor ist:

$$\epsilon_{ij} = \frac{N\alpha_{ij}}{\epsilon_0} + \delta_{ij}. \quad (2.28)$$

Aus dem Ohmschen Gesetz $\underline{j} = \underline{\sigma} \underline{E} = Ne \partial \underline{r} / \partial t$ folgt, daß auch die Leitfähigkeit $\underline{\sigma}$ durch einen Tensor beschrieben wird, der dieselbe Anisotropie wie der Dielektrizitätstensor besitzt

$$\underline{\epsilon} = \underline{1} - i \frac{4\pi}{\omega} \underline{\sigma}. \quad (2.29)$$

Dieses Modell besitzt seine Gültigkeit für die Transmission von Licht, also den Faraday-Effekt. Für den Kerr-Effekt (Reflexion) werden zur Lösung der Differentialgleichung wieder zirkuläre Moden angesetzt, die jedoch mit dem zugehörigen Reflexionskoeffizienten multipliziert werden

$$\tilde{r}_\pm = r_\pm e^{i\varphi_\pm} = \frac{\tilde{n}_\pm - 1}{\tilde{n}_\pm + 1}. \quad (2.30)$$

Daraus ergibt sich die Gleichung einer Ellipse, die im Vergleich zur Reflexion einer linear polarisierten Welle ohne Wechselwirkung um den Winkel $\varphi_K = (\varphi_+ - \varphi_-)/2$ gedreht ist und deren Elliptizität $\epsilon_K = (r_+ - r_-)/(r_+ + r_-)$ beträgt. Für kleine Werte von $\varphi_+ - \varphi_-$ und $r_+ - r_-$ ergibt sich in guter Näherung

$$\varphi_K = \text{Im} \left(\frac{\tilde{r}_+ - \tilde{r}_-}{\tilde{r}_+ + \tilde{r}_-} \right), \quad \epsilon_K = \text{Re} \left(\frac{\tilde{r}_+ - \tilde{r}_-}{\tilde{r}_+ + \tilde{r}_-} \right). \quad (2.31)$$

Die Kerr-Drehung ist damit [97]

$$\varphi_K = \text{Im} \left(\frac{n_+ - n_- - i(\kappa_+ - \kappa_-)}{n_+ n_- - i(\kappa_+ n_- + \kappa_- n_+) - \kappa_+ \kappa_- - 1} \right). \quad (2.32)$$

Aus dieser Gleichung folgt, daß die Kerr-Drehung für $\kappa_+ = \kappa_- = 0$ verschwindet. Sie tritt also nur bei absorbierenden Medien auf. Die Absorption beruht im wesentlichen auf dem Vorhandensein von Nichtdiagonalelementen im Dielektrizitäts- bzw. Leitfähigkeitstensor. Im Nenner der Kerr-Drehung sind jedoch auch die Diagonalelemente der „normalen“ optischen Eigenschaften enthalten. Durch geeignete Wahl der Werte dieser Elemente kann eine Verkleinerung des Nenners und damit eine Erhöhung der Kerr-Drehung erreicht werden. Da die Werte frequenzabhängig sind, kann dies z.B. durch die Wahl einer Photonenenergie an der Plasmakante erreicht werden. Das magnetooptische Kerr-Signal wird so durch einen nichtmagnetischen Effekt erhöht. Eine weitere Möglichkeit zur Erhöhung des Signals besteht in der Herstellung einer Schichtstruktur mit einem geeigneten, nichtmagnetischen Material. Ist die Schichtdicke wesentlich kleiner als die Lichtwellenlänge, ergeben sich die optischen Konstanten für das Licht aus einer Mittelung der Konstanten der Einzelmaterialeien [97]. Eine Erhöhung des Kerr-Signals kann auch erreicht werden, wenn die optische Weglänge in der dünnen Schicht gleich der halben Wellenlänge λ ist. In diesem Fall wird das Signal durch Mehrfachreflexion verstärkt [98].

Zur quantenmechanischen Berechnung des Kerr-Effekts muß eine Berechnung des dispersiven und absorptiven Anteils der Nichtdiagonalelemente des Leitfähigkeitstensors erfolgen [99]. Wesentliche Ursache dafür ist die Spin-Bahn-Wechselwirkung und die Austauschspaltung. Die Spin-Bahn-Wechselwirkung bewirkt für eine Richtung des Spins ($\uparrow$) eine Verschiebung der Absorptionskurven für rechts- und links-zirkular polarisiertes Licht. Die Differenz der beiden Absorptionskurven ergibt den magnetischen zirkularen Dichroismus bzw. den absorptiven Anteil der nichtdiagonalen Leitfähigkeit. Die Größe der Kerr-Rotation skaliert proportional zur Stärke der Spin-Bahn-Wechselwirkung [99]. Im diamagnetischen Fall ergibt sich für die andere Richtung des Spins ($\downarrow$) vom Betrag her die gleiche Verschiebung, jedoch mit umgekehrten Vorzeichen, so daß sich die Beiträge der verschiedenen Spins gerade aufheben. Durch die Austauschwechselwirkung sind jedoch die Zustände der Majoritäts- und Minoritätslektronen gegeneinander verschoben und links- und rechtszirkularer Anteil heben sich nicht auf. Die

Spin-Bahn-Wechselwirkung allein reicht nicht zur Erklärung der großen magnetooptischen Effekte aus, da trotz vergleichbarer Stärke der Spin-Bahn-Kopplung im Fe und Ni die Kerr-Rotation des Eisens 3-6 fach größer als die des Nickels ist. Dieser Unterschied resultiert aus der Position der besetzten und unbesetzten Bänder in der Brillouin-Zone und der detaillierten Austauschspaltung [99]. Interbandübergänge in Kombination mit der Spin-Bahn-Wechselwirkung und der Austauschspaltung [100–102] sind daher die grundlegende Ursache für den Kerr-Effekt. Der nicht vernachlässigbare Einfluß von Intrabandübergängen auf das Spektrum bleibt auf Photonenenergien kleiner als 1-2 eV beschränkt. Der magnetooptische Kerr-Effekt ist damit nicht nur element-, sondern auch strukturabhängig. Ein Beispiel dafür ist der Vergleich der spektralen Abhängigkeit des Kerr-Effekts zwischen kfz und hexagonalem Co [103].

Kapitel 3

Modifizierung struktureller Eigenschaften ultradünner Filme

Als Epitaxie ($\epsilon\pi\iota$ (aufliegend) + $\tau\alpha\xi\iota\zeta$ (Anordnung)) [104] wird das geordnete Wachstum eines Kristalls durch Deposition dünner Schichten auf einem anderen bezeichnet. Im Fall ultradünner Filme werden nur wenige Atomlagen auf einem Einkristall, dem Substrat, deponiert. Bei homoepitaktischen Schichten sind Aufdampf- und Substratmaterial identisch. Ihre Strukturen stimmen überein, sofern das Wachstum nicht amorph erfolgt. Wesentlich komplexer gestaltet sich der Fall heteroepitaktischer Schichten, bei dem Aufdampfgut und Einkristall nicht identisch sind und ihre Strukturen voneinander abweichen können. Im Idealfall wächst das Aufdampfgut lateral mit der zweidimensionalen Oberflächeneinheit zelle des Substrats, das heißt pseudomorph, auf. Durch die Unterschiede in den Gitterkonstanten beider Phasen wird der Kristall in der Regel nicht mit der unter Normalbedingungen charakteristischen Volumenstruktur, sondern verspannt aufwachsen.

Durch die Wahl eines geeigneten Substrats können auch Hochdruck- oder Hochtemperaturphasen eines Materials oder neue, nur in Legierungen vorliegende oder im Volumen des Kristalls nicht beobachtete Phasen stabilisiert werden.

Beide Aspekte der Modifizierung der strukturellen Eigenschaften, die Stabilisierung metastabiler Phasen und die epitaktische Spannung des Films durch pseudomorphes Wachstum, werden nachfolgend diskutiert.

3.1 Spannungsinduzierte Kontrolle mittels pseudomorphem Wachstum

Ein Maß für die Abweichung des zu stabilisierenden Kristalls mit quadratischer Oberflächeneinheit zelle von dem Substrat ist die sogenannte Gitterfehlpassung f . Sie ist definiert als das Verhältnis der Differenz zwischen den Gitterkonstanten des Aufdampfmaterials a_0 und des Substrats a zu der des Aufdampfmaterials

$$f = \frac{a_0 - a}{a_0}. \quad (3.1)$$

Nicht betrachtet werden soll der Fall hexagonaler Oberflächen. Bei diesen kann als

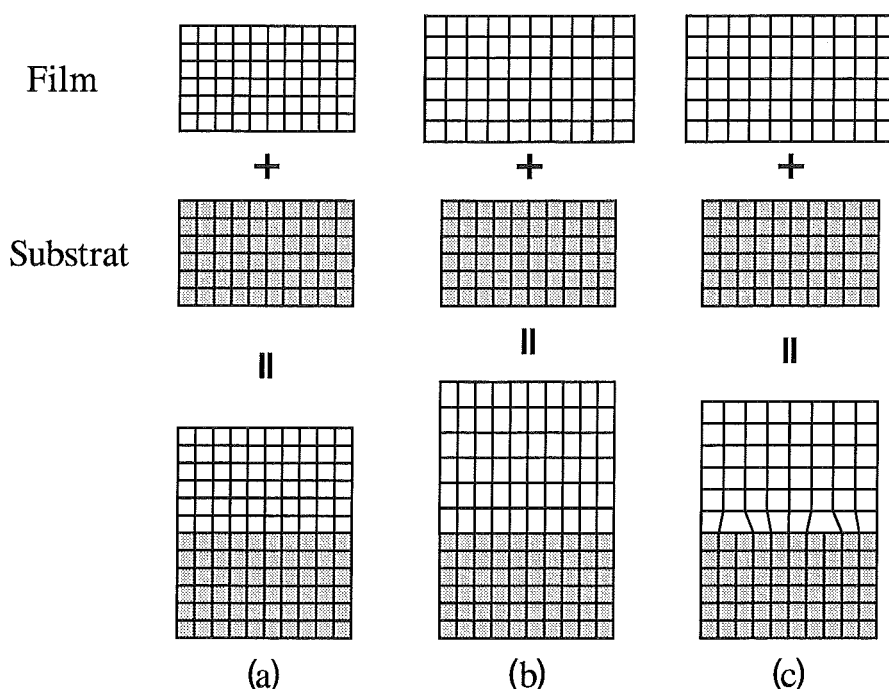


Abb. 3.1: Epitaktisches Wachstum struktureller Phasen auf einkristallinen Substraten

(a) homoepitaktisches Wachstum, (b) pseudomorphes, heteroepitaktisches Wachstum, (c) inkommensurables, heteroepitaktisches Wachstum

Maß für die Spannung die Fläche, die ein Atom im verspannten Film einnimmt, mit der im unverspannten Kristall verglichen werden.

Im Fall nahezu identischer Konstanten ist f sehr klein, bei der Homoepitaxie gleich Null, und der Film wächst unverspannt auf dem Substrat mit seiner Volumenstruktur auf (Abb. 3.1(a)). Bei differierenden Gitterkonstanten sind drei Fälle zu unterscheiden. Ist die Gitterfehlpassung zu groß ($|f| > 10\%$), wächst das Aufdampfmaterial mit der

Gitterkonstanten des Volumens, häufig in der dicht gepackten Orientierung, unabhängig vom Substrat auf. In diesem Fall wächst das Adsorbat *inkommensurabel* auf dem Substrat (Abb. 3.1 (c)). Ist die Gitterfehlpassung kleiner, kann das Adsorbat lateral mit der Gitterkonstanten des Substrats aufwachsen. Ist die Gitterkonstante des Aufdampfmaterials größer als die des Substrats ($f > 0$), wird die parallel zur Oberfläche liegende Einheitszelle biaxial gestaucht (Abb. 3.1 (b)). Als Folge davon expandiert der Abstand der Ebenen senkrecht zur Filmoberfläche (Interlagenabstand). Umgekehrt führt eine kleinere Gitterkonstante des Aufdampfmaterials ($f < 0$) zu einer biaxialen Expansion in der Ebene und einer Kontraktion des Interlagenabstands. Pseudomorph gewachsene Filme sind in der Regel tetragonal verzerrt, weil für die meisten Systeme die Gitterfehlpassung von Null verschieden ist. Im Fall des pseudomorphen Wachstums ist der nächste Nachbarabstand in der Filmebene identisch mit dem des Substrats und das c/a -Verhältnis kann über die Wahl der Substratgitterkonstanten eingestellt werden. Die Einstellung des c/a -Verhältnisses hängt bei dem heteroepitaktischen, pseudomorphen Wachstum von den elastischen Konstanten ab [105,106]. Mit der tetragonalen Verzerrung von der Volumenstruktur, wie es in Abb. 3.1(b) dargestellt ist, sind zwei Transformationen verbunden. Ausgehend von der $krt(001)$ -Zelle werden die (110)-Ebenen bei einer Änderung des c/a -Verhältnisses verschert. In der Regel ändert sich damit auch das atomare Volumen um δV . Eine Verzerrung des Kristalls aus der Volumenstruktur beinhaltet daher eine Erhöhung der totalen Energie. Dieser Energiezuwachs, die potentielle Energie [107], muß in gerader Ordnung von $\delta \frac{c}{a}$ und δV abhängen, da sie unabhängig vom Vorzeichen dieser Größen bei einer Verspannung bzw. Abweichung von der Volumenstruktur anwachsen muß. Unter der Voraussetzung, daß die elastischen Module konstant sind und die Gitterfehlpassung klein ist, ergibt sich die potentielle Energie δE als die Änderung der Energie einer krt -Zelle von ihrer Gleichgewichtsstruktur (c_0, a_0) nach [105,106] zu

$$\frac{\delta E}{V_0} = \frac{B}{2} \left(\frac{\delta V}{V_0} \right)^2 + \frac{2G}{3} \left(\delta \left(\frac{c}{a} \right) \right)^2. \quad (3.2)$$

V_0 ist das Volumen pro Atom, B das Volumen-Modul und G das Schermodul der (110)-Ebenen der kubischen Struktur. Da beim pseudomorphen Wachstum a fest vorgegeben ist und das atomare Volumen der krt -Zelle $V = ca^2/2$ von c abhängt, kann das Minimum der Energie δE durch Ableitung nach c und Gleichsetzen mit Null ermittelt werden [105,106] zu

$$\frac{\delta c}{\delta a} = - \frac{c_0}{a_0} \frac{6B - 4G}{3B + 4G} = - \frac{2c_{12}}{c_{11}} \frac{c_0}{a_0} = - \gamma \frac{c_0}{a_0} \quad (3.3)$$

mit den elastischen Gleichungen $B = (c_{11} + 2c_{12})/2$ und $G = (c_{11} - c_{12})/2$ und den elastischen Konstanten c_{11} und c_{12} . Die elastische Größe γ kann mit Hilfe des Poisson-

Verhältnisses $\nu = c_{12}/(c_{11} + c_{12})$ ausgedrückt werden zu

$$\gamma = \frac{2\nu}{(1 - \nu)}. \quad (3.4)$$

Gleichung 3.3 wird auch als Dehnungsverhältnis-Gleichung bezeichnet, weil sie das Verhältnis der senkrechten Dehnung $\delta c/c_0$ zur parallelen $\delta a/a_0$ über γ in Beziehung setzt. Durch Integration der Gleichung 3.3 bei konstantem γ ergibt sich die sogenannte epitaktische Linie [105, 106]

$$\frac{c}{c_0} = \left(\frac{a}{a_0}\right)^{-\gamma}. \quad (3.5)$$

Das atomare Volumen des pseudomorph gewachsenen Films hängt über die elastische Größe γ vom c/a -Verhältnis ab und ist damit durch die Gitterkonstante des Substrats bestimmt. Das atomare Volumen V und das c/a -Verhältnis sind eine orthogonale Basis für die Beschreibung kleiner tetragonaler Verzerrungen kubischer Strukturen [105] und spannen die tetragonale Ebene auf. Die Änderung des atomaren Volumens mit der Substratgitterkonstante ergibt sich aus der folgenden Gleichung [105, 106]:

$$\frac{\delta V}{V} = \frac{2\delta a}{a} + \frac{\delta c}{c} = (2 - \gamma) \frac{\delta a}{a}, \quad \gamma \leq 2, \quad (3.6)$$

wobei Gleichung 3.3 zur Substitution von $\delta c/c$ verwendet wurde.

Aus der Gleichung ist ersichtlich, daß nur für $\gamma = 2$ das atomare Volumen konstant bleibt. Wie in Gleichung 3.6 kann auch die potentielle Energie in Abhängigkeit der Gitterkonstante des Substrats angegeben werden

$$\frac{\delta E}{V_0} = \frac{(c_{11} + 2c_{12})(c_{11} - c_{12})}{c_{11}} \left(\frac{\delta a}{a_0}\right)^2 = \frac{6BG}{c_{11}} \left(\frac{\delta a}{a_0}\right)^2. \quad (3.7)$$

δE muß analog zur Gleichung 3.2 auch von δa und δV in gerader Ordnung abhängen. Mit dem Modell von Marcus et al. [106] und Kraft et al. [105] ist man in der Lage, die potentielle Energie und den Interlagenabstand einer Phase des Aufdampfmaterials in Abhängigkeit der Substratgitterkonstanten a zu berechnen.

Die Spannungsenergie wächst mit zunehmendem Volumen bzw. wachsender Schichtdicke an. Bei einer kritischen Schichtdicke ist es energetisch günstiger, Versetzungen auszubilden, die die Spannungsenergie verringern. Die Größe der kritischen Schichtdicke ist von der Art der Versetzungen abhängig. Für Metalle sind dies in der Regel vollständige Stufenversetzungen [108] mit einem Burgers-Vektor ($\underline{b} = \frac{1}{2}a[110]$). Partialversetzungen, wie die Frank- ($\underline{b} = \frac{1}{2}a[111]$) oder Shockley-Versetzung ($\underline{b} = \frac{1}{6}a[112]$) führen zu Stapelfehlern in den Filmen. Da der Betrag der Komponente parallel zur Oberfläche kleiner ist, reduzieren die Frank- und Shockley-Versetzung die Gitterfehlpassung nicht so effektiv wie die vollständige Stufenversetzung. Wenn die Bildung dieser Versetzungen energetisch bevorzugt ist, ist die kritische Schichtdicke kleiner.

3.2 Stabilisierung metastabiler, struktureller Phasen auf einkristallinen Substraten

Die magnetischen und strukturellen Modifikationen eines Elementes zeichnen sich durch unterschiedliche Kristallstrukturen und verschiedene atomare Volumina aus. Eine Kontrolle des atomaren Volumens ist notwendig, um die magnetischen Eigenschaften der jeweiligen kristallographischen Phase stabilisieren zu können. Indirekt kann dies durch Temperaturerhöhung, Legierungsbildung oder Anlegen eines hohen Drucks erreicht werden. Für die Stabilisierung vieler magnetischer Phasen wäre es jedoch wünschenswert, das atomare Volumen durch einen *negativen Druck* bei 300 K zu vergrößern, was in theoretischen Berechnungen zwar möglich [35–38, 42, 43, 109], experimentell jedoch nicht durchführbar ist.

Die Epitaxie bietet jedoch die Möglichkeit, durch die Wahl der Orientierung und der Gitterkonstanten des Substrats die Gitterfehlpassung zwischen der zu stabilisierenden, metastabilen Phase und dem Substrat sehr gering zu halten. Ausgehend von einem lokalen Minimum der totalen Energie für eine metastabile strukturelle Phase bei einem Wigner-Seitz-Radius wird das Aufdampfmateriale verspannt auf dem Substrat aufzuwachsen. Ein lokales Minimum der Energie ist zwar ein notwendiges, jedoch kein hinreichendes Kriterium für das Wachstum des Adsorbats in der gewünschten Struktur. Dazu muß zunächst die Metastabilität dieser Phase nachgewiesen werden. Der Nachweis mittels theoretischer Berechnungen erfordert daher zusätzlich die Untersuchung der Abhängigkeit der totalen Energie von infinitesimalen Verformungen der Adsorbatstruktur [105, 110]. Eine solche Überprüfung kann für kubische Strukturen durch die Ermittlung der Abhängigkeit der totalen Energie vom c/a -Verhältnis erfolgen. Nur wenn ein lokales Minimum vorliegt, ist die Struktur gegen Deformationen stabil. Für einen krt Kristall ist dies die Stabilität gegen Verscherungen der (110)-Ebenen. Entsprechende Berechnungen wurden für krz Cu [105] und krz Fe [111, 112] durchgeführt. Von Krasko et al. [112] wurde mittels der Stoner-Theorie die Abhängigkeit der totalen Energie vom c/a -Verhältnis berechnet. Die totale Energie ist für die FM krz bei 1 und für die NM kfz Phase bei $\sqrt{2}$ minimal, die Energie der FM kfz Modifikation dagegen bei $\sqrt{2}$ maximal. Daraus folgerten sie, daß die FM kfz Phase instabil gegen tetragonale Deformationen ist. Ähnliche Berechnungen der totalen Energie mittels der Dichtefunktionaltheorie von Peng und Jansen [111] ergaben für die FM krz und AF kfz Phase Minima bei einem c/a -Verhältnis von 1 bzw. $\sqrt{2}$ und damit einen theoretischen Nachweis für die Stabilität des FM krz bzw. für die Metastabilität des AF kfz Eisens. Ein lokales Maximum der Energie wird dagegen für die FM kfz Phase bei $\sqrt{2}$ analog zu den Berechnungen von Krasko und Olson ermittelt. Abweichend von den Ergebnissen letzterer Autoren existiert in diesen Berechnungen jedoch ein schwach ausgeprägtes Minimum bei größerem c/a -Verhältnis, das auf einen metastabilen, FM, tetragonalen Zustand dieser Phase hinweist.

Ein qualitatives Kriterium, um zu entscheiden, ob das epitaktische Wachstum einer metastabilen Phase möglich sein kann, ist, ob diese Phase im Volumen von Legierungen bis zu kleinen Anteilen des zulegierten Elements über einen großen Temperaturbereich vorliegt. So ist die Struktur des Mangans in $\text{Mn}_{95,58}\text{Cu}_{4,42}$ Legierungen unter Normalbedingungen kubisch flächenzentriert [25, 26]. Die krz Phase des Kobalts liegt in Fe-Co Legierungen bis zu einem Kobalt-Anteil von 75 % vor. Ein pseudomorphes Wachstum sollte die Stabilisierung dieser Phasen ermöglichen. Ferromagnetisches kfz Fe wird temperaturabhängig dagegen nur bis etwa 65 % in Fe-Ni Legierungen stabilisiert.

Zur Stabilisierung einer metastabilen Phase ist es vorteilhaft, den Bereich der Substratgitterkonstanten abzuschätzen, innerhalb dessen das pseudomorphe Wachstum dieser Phase energetisch bevorzugt ist. Dabei müssen folgende Energiebeiträge berücksichtigt werden: die Differenz der totalen Energie der metastabilen E_{ms} und der stabilen Phase E_{st} , die Spannungsenergien der metastabilen δE_{ms} und der stabilen Phase δE_{st} in Abhängigkeit der Substratgitterkonstanten und die Energie E_d , die zum inkommensurablen Wachstum der stabilen Phase auf dem Substrat führt. E_d ist im wesentlichen durch die Wechselwirkungsenergie zwischen der Adsorbat- und Substratstruktur bestimmt. Im Vergleich zur pseudomorphen Struktur besetzen die Grenzflächenatome der inkommensurablen Phase nicht nur die energetisch günstigen Muldenplätze. Ein Modell zur Berechnung von E_d ist von van der Merwe et al. [113] vorgestellt worden. Dazu wird von einem starren Substrat und Adsorbat ausgegangen und die Wechselwirkung zwischen den Adsorbatatomen bleibt unberücksichtigt. Eine genaue Bestimmung von E_d ermöglicht das Modell nicht. Die Wechselwirkungsenergie zwischen einer hexagonalen und einer quadratischen Grenzfläche kann jedoch auf ca. 0,2 eV/Grenzflächenatom abgeschätzt werden [64, 114].

Das pseudomorphe Wachstum einer metastabilen Phase sollte energetisch begünstigt sein, sofern die totale Energie dieser Phase E_{ms} zuzüglich der potentiellen Energie δE_{ms} kleiner als die Summe der im Volumen stabilen Phase $E_{st} + \delta E_{st}$ ist

$$E_{ms} + \delta E_{ms} < E_{st} + \delta E_{st}. \quad (3.8)$$

Zudem darf ein inkommensurables Wachstum der stabilen Phase nicht bevorzugt sein

$$E_{ms} + \delta E_{ms} < E_{st} + E_d. \quad (3.9)$$

Für das pseudomorphe Wachstum der stabilen Phase ergibt sich damit folgende Bedingung:

$$\delta E_{st} < E_d. \quad (3.10)$$

Die Energiedifferenz $E_{ms} - E_{st}$ kann aus den Berechnungen nach den Referenzen [29, 35–38, 42, 43, 109] (Tab. 2.2) bestimmt werden. Zur Ermittlung der potentiellen Energien nach Gleichung 3.7 [106] müssen auch die elastischen Konstanten der metastabilen Phasen bekannt sein. Die elastischen Konstanten der Strukturen einiger Elemente sind in Tab. 3.1 eingetragen. Nach der Bestimmung der Differenz der totalen

Element	Struktur	Magnetismus	T (K)	c_{11} (GPa)	c_{12} (GPa)	a (Å)
Cr	krz	AF	293	347	66	2,895
Mn	kfz	PM	1370	-	-	3,84
		AF	300	-	-	3,70 ⁽ⁱⁱ⁾
	krz	PM	1410	-	-	3,08
		PM	300	-	-	2,94 ⁽ⁱ⁾
Fe	krz	FM	520	230	135	2,87
	kfz	PM	1428	154	122	3,65
		AF	4,2	-	-	3,58
		FM	4,2	-	-	3,64 ⁽ⁱⁱⁱ⁾
Co	kfz	FM	300	242	160	3,54
	krz	FM	-	-	-	2,82 ^(v)
Ni	kfz	FM	300	247	153	3,54
	krz	FM	300	-	-	2,78 ^(iv)

Tab. 3.1: Magnetische und strukturelle Phasen der 3d-Übergangsmetalle

(i): Extrapolierter Wert aus der paramagnetischen Phase mittels einem Ausdehnungskoeffizienten von $\alpha = 41,6 \cdot 10^{-6} \frac{1}{K}$, (ii): Extrapolierter Wert nach Ergebnissen von Acet [25, 26], (iii) Experimenteller Wert nach Ergebnissen von Wassermann [10], (iv) Hochdruckphase bei 5 GPa; (v) Wert aus Ref. [29]. Die übrigen Werte wurden Ref. [29, 115] entnommen.

Energie zwischen der metastabilen und der stabilen Phase $E_{ms} - E_{st}$ und der potentiellen Energie der stabilen und metastabilen Phase $\delta E_{st} - \delta E_{ms}$ kann dann durch Einsetzen überprüft werden, für welche Substratgitterkonstanten Ungleichung 3.8 erfüllt ist. An der Phasengrenze muß dazu die Energiedifferenz aus der Verspannung der stabilen und der metastabilen Phase gleich der Totalenergiedifferenz beider Phasen sein ($E_{ms} - E_{st} = \delta E_{st} - \delta E_{ms}$). Sofern für die metastabilen Phasen die elastischen Konstanten nicht bekannt sind, werden in Näherung die des krz Fe bzw. der PM kfz Fe-Phase verwendet. Die Differenz der totalen Energien wurde aus Tab. 2.2 und aus Referenz [29] (Co) und [116] (Ni) bestimmt. Für Mn, Fe und Cr wurden die Gitterkonstanten aus Tab. 2.2, für die anderen Elemente experimentelle Werte (Tab. 3.1) verwendet. Die Differenz der potentiellen Energien $\delta E_{st} - \delta E_{ms}$ in Abhängigkeit der Gitterkonstanten des Substrats ist in Abb. 3.2 gezeigt. Der Wert, der der Differenz der totalen Energie zwischen der metastabilen und der stabilen Phase $E_{ms} - E_{st}$ entspricht, markiert die Substratgitterkonstante, die das pseudomorphe Wachstum der stabilen von der metastabilen Phase auf dem Substrat trennt.

Für Cr besteht ein großer Energieunterschied von 0,45 eV/Atom [40] zwischen der krz und der kfz Phase. Nach Abb. 3.2 scheint die kfz Phase unterhalb 2,56 Å mit einer Git-

terfehlpassung von 3 % stabilisierbar zu sein. Die Gitterfehlpassung für die krz Phase beträgt bereits mehr als 10 %. Zudem wird für einen Wert von etwa 0,2 eV/Atom für E_d ein inkommensurables Wachstum erwartet. Eine experimentelle Untersuchung an ultradünnen Cr-Filmen auf Cu(100) [117] ergab mit Beginn der Deposition ein Wachstum des Cr in der krz(110)-Phase. Daher wird Cr mit großer Wahrscheinlichkeit auch auf Substraten mit kleinerer Substratgitterkonstanten inkommensurabel mit dieser Struktur aufwachsen. Weiterhin läßt sich daraus ableiten, daß E_d weniger als 0,45 eV/Atom beträgt und ein inkommensurables Wachstum wahrscheinlich bereits oberhalb 2,6 Å bevorzugt wird. Eine Stabilisierung der kfz-Phase des Cr in (100)-Orientierung durch pseudomorphes Wachstum ist daher unwahrscheinlich.

Der Fall des Mn ist wesentlich komplexer, da nach den Berechnungen von Asada et al. [38] das Mn in einer AF kfz und krz sowie einer FM krz Modifikation vorliegen kann. Bei den Berechnungen der potentiellen Energien wurden die α - und β -Phase des Mn nicht berücksichtigt und von der AF kfz Phase als der stabileren Modifikation ausgegangen. Danach sollte die AF kfz Phase unterhalb ca. 2,78 Å, die FM krz Phase zwischen 2,78 und 2,9 Å und die AF krz Phase oberhalb 2,91 Å stabilisiert werden.

Der Fall des Fe ist ebenfalls komplex, da die kfz Phase ferromagnetisch oder antiferromagnetisch sein kann. Der energetische Grundzustand der AF kfz Phase liegt um 169 meV und der der FM kfz Phase um 207 meV über dem der krz Phase. Betrachtet man die Ungleichung 3.8 für beide Phasen getrennt, würde man eine Stabilisierung der AF kfz Phase unterhalb einer Gitterkonstanten von 2,56 Å und der FM kfz Phase unterhalb von 2,52 Å erwarten. Da die Summe aus potentieller und Grundzustandsenergie im gesamten betrachteten Bereich der Gitterkonstanten für die AF kfz Phase kleiner als für die FM kfz Phase ist, ist nur die Stabilisierung der AF Phase energetisch bevorzugt. Ein inkommensurables Wachstum der krz(110) Phase ist jedoch aus zwei Gründen nicht auszuschließen. Zum einen beträgt die Gitterfehlpassung unterhalb 2,58 Å mehr als 10 % und zum anderen wird der abgeschätzte Wert für die Wechselwirkungsenergie der hexagonalen/quadratischen Grenzfläche von 0,2 eV bei 2,54 Å überschritten. Unter diesen Gesichtspunkten erscheint das Wachstum eines volumenartigen FM kfz Fe-Films unwahrscheinlich.

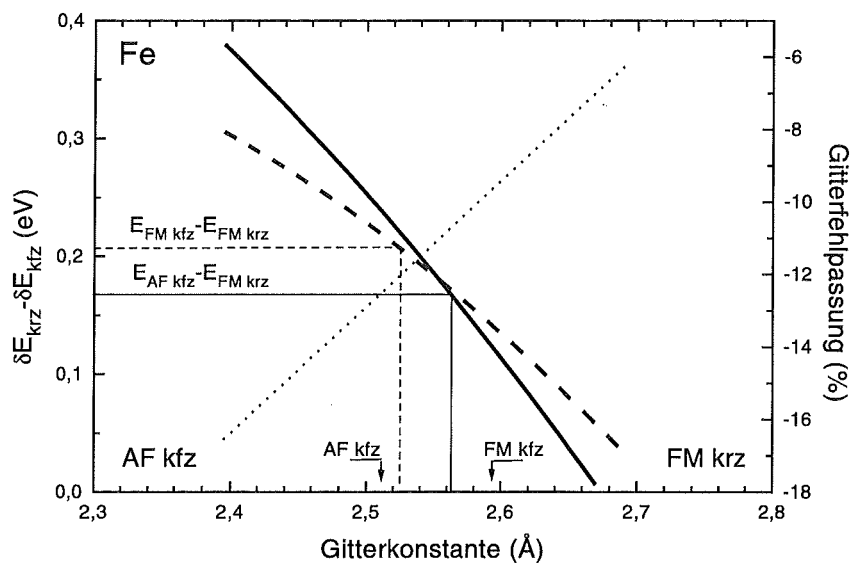
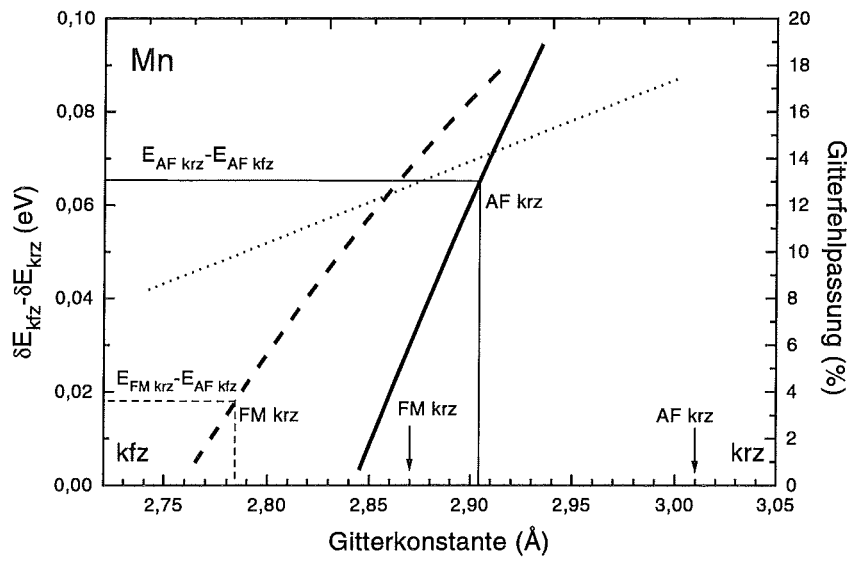
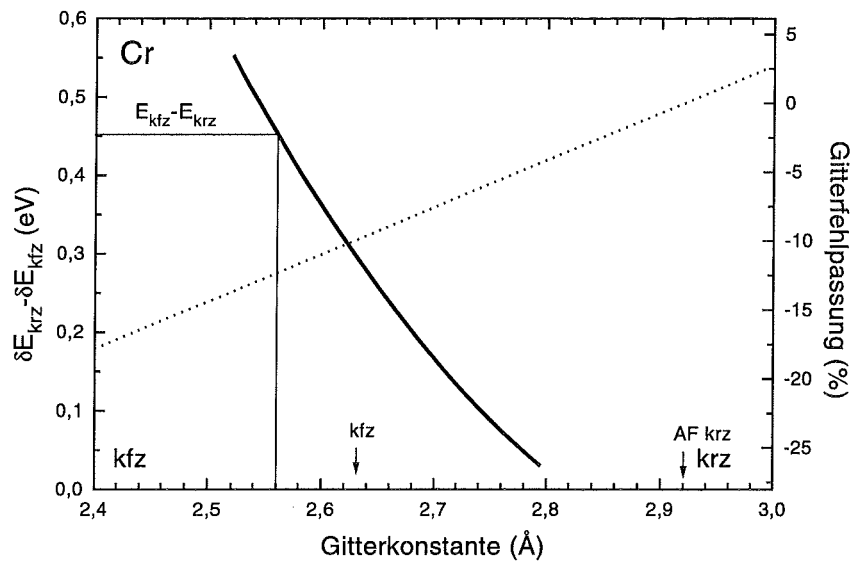
Das Wachstum der krz Phase des Co ist nach den Berechnungen oberhalb 2,73 Å bevorzugt. Die Gitterfehlpassung der kfz Modifikation ist bis 2,78 Å kleiner als 10 %, so daß ein pseudomorphes Wachstum des krz Co möglich sein sollte. Allerdings wurde die hexagonal-dichtestgepackte Phase des Co bei den Berechnungen nicht berücksichtigt. Eine Stabilisierung der krz Phase des Nickels ist bei einer Differenz der totalen Energien zwischen der krz und der kfz Phase des Ni nach den Berechnungen von Moruzzi et al. [116] mit nur 54 meV oberhalb 2,68 Å wahrscheinlich. Die Gitterfehlpassung der kfz Phase des Ni ist bis ca. 2,8 Å kleiner als 10 %. Zwischen 2,68 und 2,8 Å ist daher ein pseudomorphes Wachstum der krz Phase des Ni nicht auszuschließen.

Die Berechnungen sind Abschätzungen der Größe der Substratgitterkonstanten, auf de-

nen metastabile Phasen durch pseudomorphes Wachstum stabilisiert werden können. Sie sind in den Fällen, in denen die elastischen Konstanten benachbarter Elemente herangezogen wurden oder die elastischen Konstanten einer anderen Temperatur verwendet wurden, nur bedingt aussagefähig. Weiterhin modifizieren sich die Stabilitätsbereiche bei Variation des nur kleinen Unterschieds in der totalen Energie der stabilen und metastabilen Phase. Zudem sind diese Berechnungen nur für kleine Abweichungen von der Gleichgewichtsstruktur hinreichend genau.

Zur experimentellen Bestimmung der Stabilitätsbereiche ist es erforderlich, die Struktur der Filme auf verschiedenen Substraten quantitativ zu bestimmen. Da sich das atomare Volumen des pseudomorphen Films nach Gleichung 3.6 mit der Gitterfehlpassung ändert, reicht es nicht aus, das atomare Volumen der Adsorbatschicht mit dem der unverspannten Struktur zu vergleichen, es muß vielmehr mit der Abhängigkeit des atomaren Volumens vom c/a -Verhältnis (tetragonale Ebene) und des c/a -Verhältnisses von der Gitterkonstanten des Substrats (epitaktische Linie) verglichen werden [106]. Die tetragonale Ebene und die epitaktische Linie sind für einige strukturelle Phasen in Abb. 3.3 dargestellt.

Auch wenn sich eine metastabile Struktur auf dem Substrat stabilisieren läßt, tritt ab einer kritischen Schichtdicke eine strukturelle Umwandlung zur stabilen Modifikation ein. Ursache dafür ist der abnehmende stabilisierende Einfluß der Substratoberfläche auf die Filmstruktur mit steigender Bedeckung.



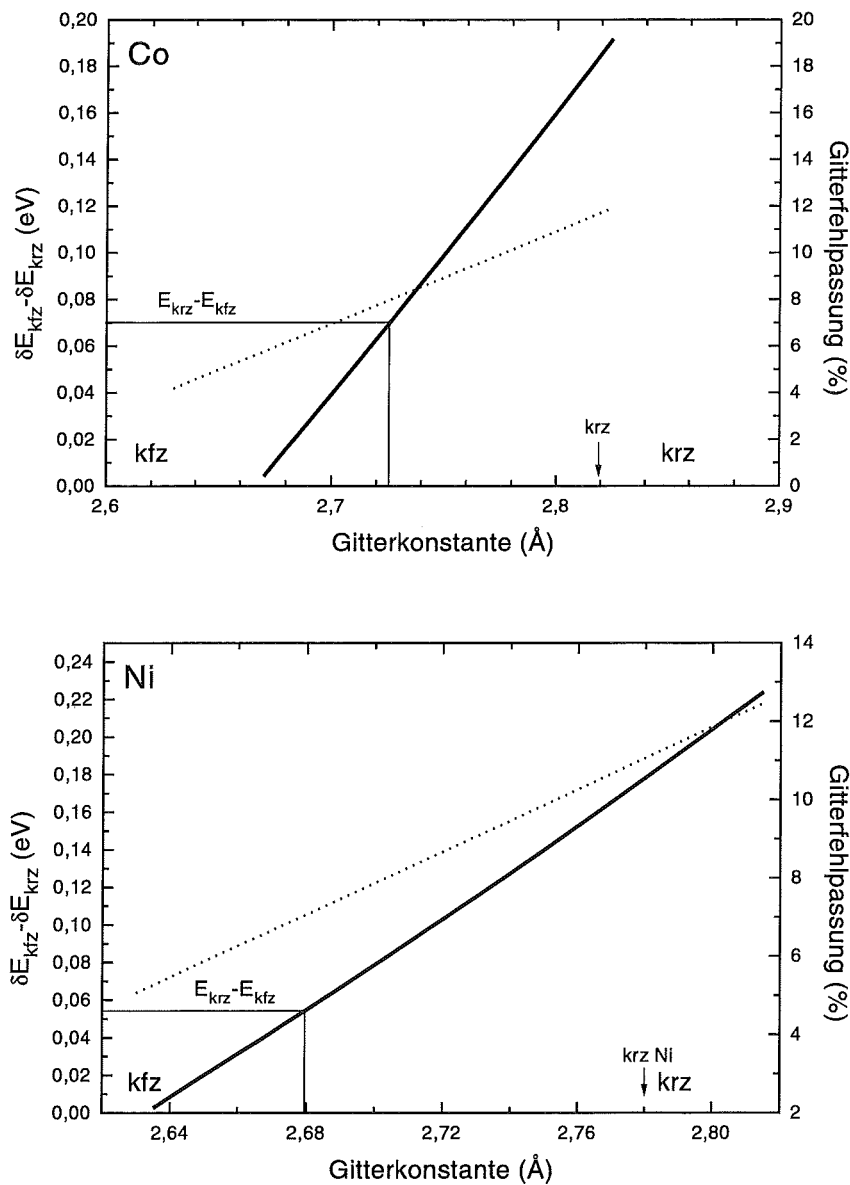
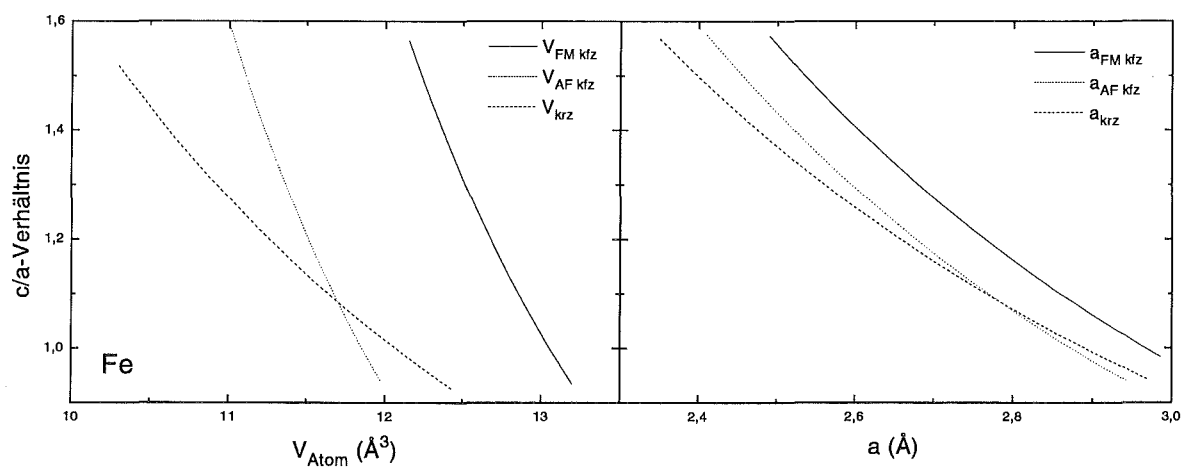
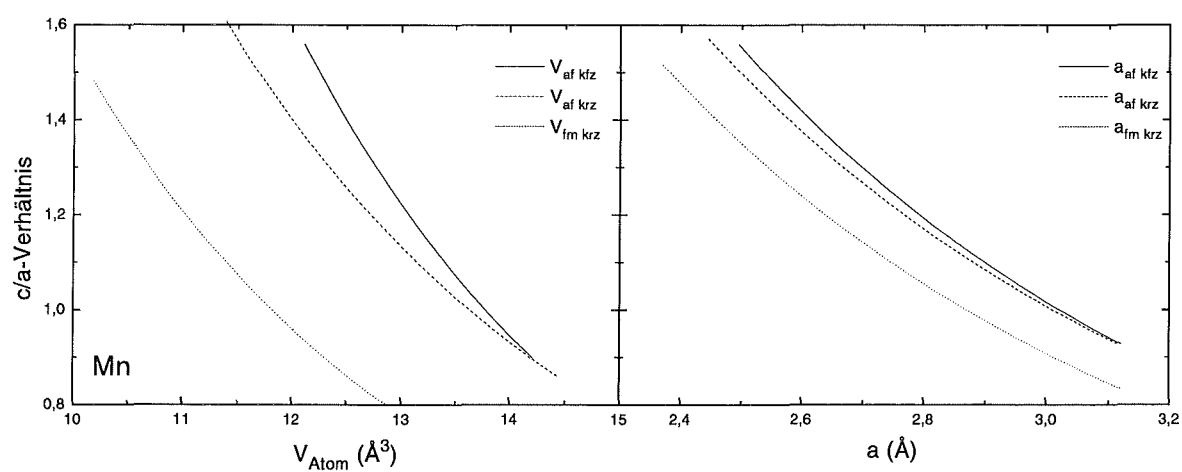
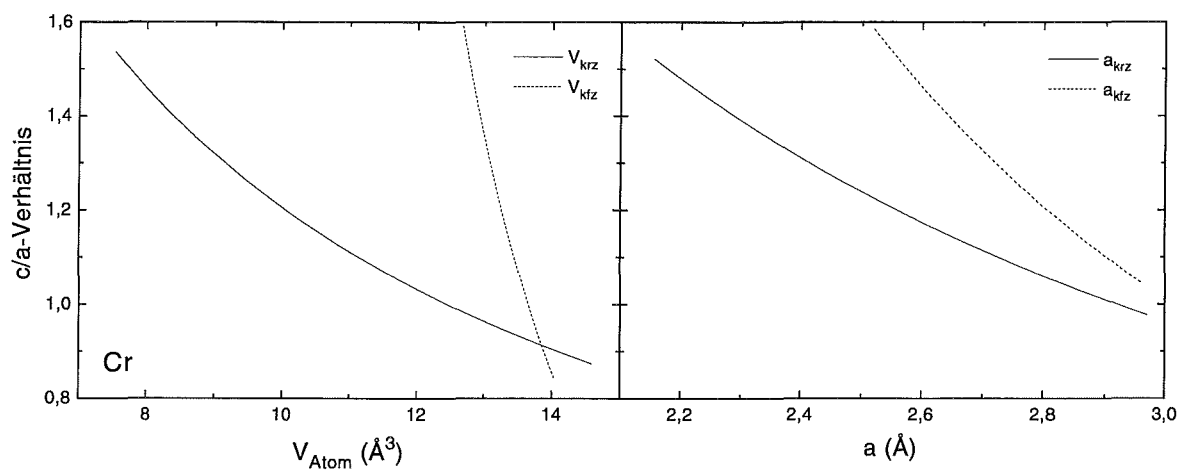


Abb. 3.2: Abschätzung des Stabilitätsbereichs für das pseudomorphe Wachstum metastabiler Phasen

Abhängigkeit des Energieunterschiedes zwischen der potentiellen Energie der stabilen (δE_{st}) und der metastabilen Phase (δE_{ms}) von der Substratgitterkonstanten (durchgezogene und gestrichelte Linien). Zur Abschätzung des Stabilitätsbereichs (horizontale und vertikale Linie) wurden die Unterschiede der totalen Energie nach Tab. 2.2 und Ref. [29, 116] herangezogen. Die vertikalen Linien trennen die Bereiche, innerhalb derer das pseudomorphe Wachstum einer Phase des Adsorbats bevorzugt ist. Zur Berechnung der Energien wurden die elastischen Konstanten aus Tab. 3.1 und die Gitterkonstanten aus Tab. 2.2 verwendet. Für die Gitterkonstante der strukturellen Phasen wurden die Werte aus Tab. 2.2 oder Tab. 3.1 verwendet. Für Eisen und Mangan ist die Grenze für die ferromagnetischen (gestrichelte Linien) und die antiferromagnetischen (durchgezogene Linie) Phasen bestimmt. Zusätzlich ist die Gitterfehlpassung der stabileren Phase angegeben (punktuelle Linie). Die Gitterkonstanten der unverspannten Phasen sind durch Pfeile markiert.



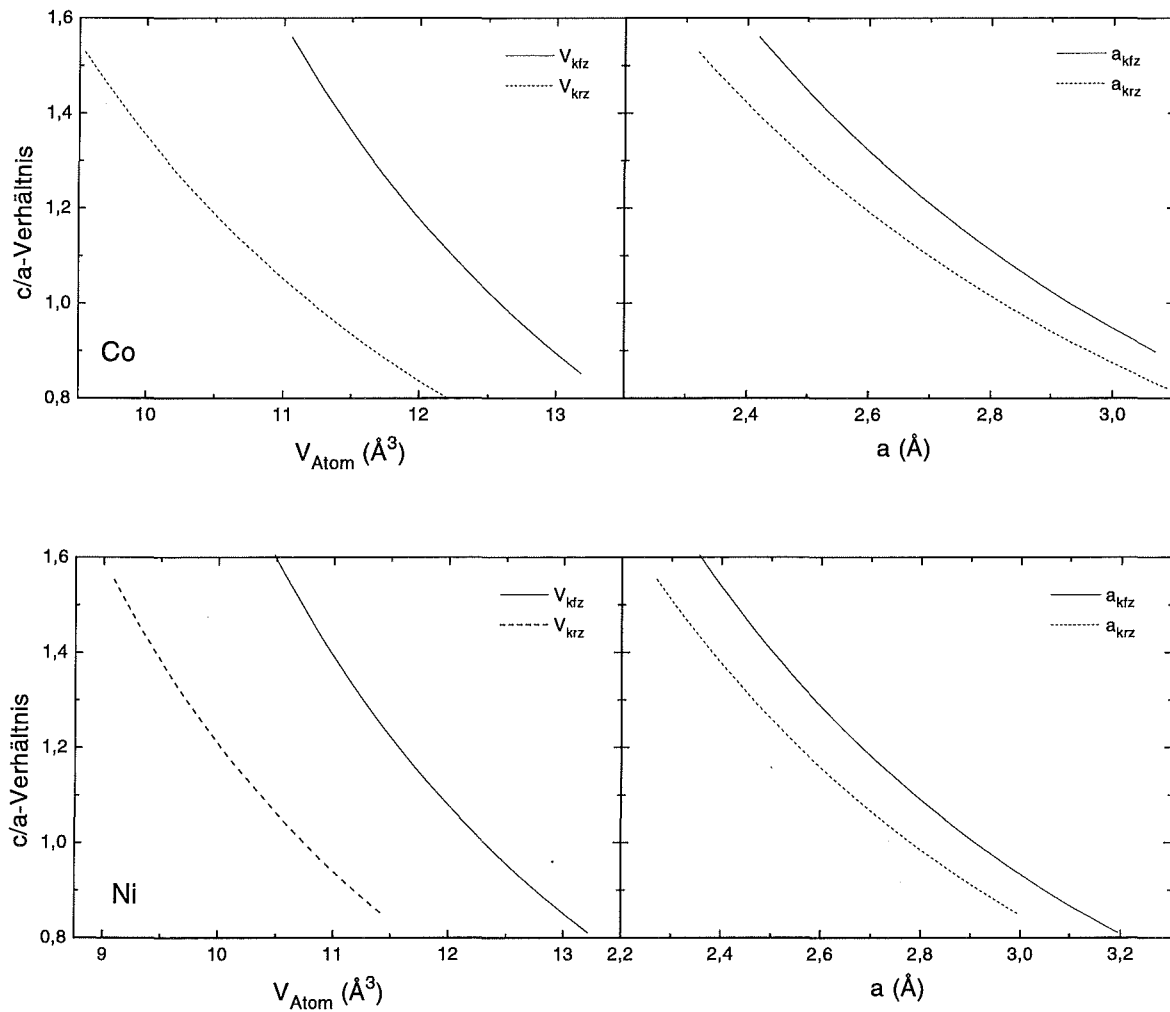


Abb. 3.3: Tetragonale Ebene und epitaktische Linie für strukturelle Phasen der 3d-Übergangsmetalle

Links: Abhängigkeit des atomaren Volumens vom c/a-Verhältnis (tetragonale Ebene).

Rechts: c/a-Verhältnis in Abhängigkeit der Substratgitterkonstanten a (epitaktische Linie). Zur Berechnung der Kurven wurden die gleichen Werte wie in Abb. 3.2 verwendet.

3.3 Strukturbestimmung mittels Beugung niederenergetischer Elektronen (LEED)

An ein Experiment, das es erlaubt, die strukturellen Eigenschaften der stabilen Phase von jenen der metastabilen unterscheiden zu können, muß die Anforderung gestellt werden, das atomare Volumen und das c/a -Verhältnis quantitativ bestimmen zu können. Zur Untersuchung des Einflusses der Oberfläche auf die Filmeigenschaften muß die Methode gleichfalls oberflächensensitiv sein. Änderungen der Atomabstände müssen zur quantitativen Analyse der Struktur nicht nur in, sondern auch senkrecht zur Oberfläche bestimmt werden können. Für diese Aufgabe benötigt man ein Experiment, das sensitiv auf das Element, die Oberfläche und tiefere Lagen ist und eine genaue quantitative Bestimmung der Struktur ermöglicht.

Eine Methode, die diese Bestimmung zuläßt, ist die Beugung niederenergetischer Elektronen (*LEED = Low Energy Electron Diffraction*). Da die freie Weglänge in einem Energiebereich zwischen 50 und 500 eV 5 bis 10 Å beträgt, ist diese Methode auch oberflächensensitiv. Im experimentellen Aufbau fallen monoenergetische Elektronen dieses Energiebereichs unter einem definierten Winkel auf einen Einkristall ein. Die Intensität der zurückgestreuten Elektronen wird auf einem phosphoreszierenden Schirm detektiert. Maximale Intensität ergibt sich für die Richtungen, in denen die gebeugten Elektronenwellen konstruktiv interferieren. Die Intensität der gebeugten Elektronen I ergibt sich aus dem Betragsquadrat der Summe der interferierenden Wellenfunktionen ψ am Atom m

$$I = \left| \sum_{m=1}^M \psi_m \right|^2. \quad (3.11)$$

Für den Fall, daß es sich um ein Gitter mit L verschiedenen Atomen in einer Basiszelle handelt, die sich aus Einheitszellen mit den Gitterkonstanten a_i ($i = 1 \dots 3$) zusammensetzt, gilt für die Intensität [64]

$$I = \left| \sum_{l=1}^L \psi_l \right|^2 \times \left| \sum_n e^{i((\underline{k}_i - \underline{k}_f) \underline{R}_n)} \right|^2 = \left| \sum_{l=1}^L \psi_l \right|^2 \times \left| \sum_{i,j,k=1}^{\infty} e^{i\Delta \underline{K}(i\underline{a}_1 + j\underline{a}_2 + k\underline{a}_3)} \right|^2 = |F|^2 \times |G|^2 \quad (3.12)$$

mit dem Impuls der einfallenden $\underline{k}_i$ und gebeugten Elektronen $\underline{k}_f$ und der Energieerhaltung $|\underline{k}_i| = |\underline{k}_f|$. Der erste Term ($|F|^2$) wird als *Strukturfaktor*, der zweite Term ($|G|^2$) als *Gitterfaktor* bezeichnet. Der Strukturfaktor umfaßt Vielfachstreuungseffekte, die Zusammensetzung und die lokale Anordnung der Atome in der Einheitszelle. Aus dem Gitterfaktor ergibt sich direkt, daß eine Intensitätsverstärkung nur für die Richtungen erreicht wird, in denen das Produkt im Exponenten ein ganzzahliges Vielfaches von 2π ergibt. Damit setzt sich $\Delta \underline{K}$ aus einer Linearkombination von Vektoren $\underline{a}_i^\times$ zusammen, für die

$$\underline{a}_i^\times \underline{a}_j = \delta_{ij} \quad i, j \in \{1, 2, 3\} \quad (3.13)$$

mit dem Kronecker-Symbol δ_{ij} ist. Diese Gleichung ist die Bedingung für die Konstruktion des reziproken Gitters. Für die Beugung an dreidimensionalen Strukturen, wie sie z.B. mit Röntgenstrahlen durchgeführt wird, ergibt sich dann nur unter wenigen Winkeln bei einer bestimmten Energie eine Intensitätsverstärkung. Im zweidimensionalen Fall $i, j \in \{1, 2\}$ wird für einen Impulsübertrag, der einem zweidimensionalen, reziproken Gittervektor entspricht eine energieunabhängige, konstante Intensität erwartet. Da im LEED-Experiment die Elektronen eine endliche Eindringtiefe besitzen, ist die Intensität in Abhängigkeit der Energie durch die Struktur der ersten Lagen moduliert. Die Information über den Abstand der Atome in der Ebene ist durch die Position der Intensitätsreflexe gegeben. Da sich bei strukturellen Änderungen des Films die Gitterkonstante im Prozentbereich ändert, ist eine hohe Auflösung des Beugungsbildes von Vorteil. Von Henzler et al. [118] ist dazu ein LEED-Gerät mit einer großen Transferweite von 1000 – 2000 Å entwickelt worden. Die gebeugten Elektronen werden mittels eines Sekundärelektronenvervielfachers detektiert. Der reziproke Raum kann bis auf Prozentbruchteile der Brillouin-Zone aufgelöst werden. Das Gerät ermöglicht zudem die energieabhängige Analyse der Halbwertsbreiten von Reflexen und wird deshalb als „Spot Profile Analyzing Low Energy Electron Diffraction“ (*SPALEED*) bezeichnet. Für eine vollständige, quantitative Bestimmung der atomaren Position und insbesondere der Lagenabstände ist eine Analyse der Intensitätsänderung der Beugungsreflexe mit der Energie, sogenannter I(E)- oder I/V-Spektren, erforderlich. Da durch das Absolutquadrat in Gleichung 3.11 die Information über die Phasendifferenz der interferierenden Elektronen verlorengeht, kann aus der Intensität keine direkte Information über die Struktur erhalten werden. Statt dessen muß ein Modell für die Struktur angenommen werden, für das I(E)-Kurven mehrerer Reflexe berechnet werden. Die berechneten Spektren werden mit den experimentellen verglichen. Maß für die Unterschiede zwischen berechneten und experimentell gemessenen Kurven sind die R-Faktoren (*R: reliability*), wie der R_{DE} -Faktor [119], der Pendry-R-Faktor (R_P) [120] oder der Zannazzi-Jona-R-Faktor (R_{ZJ}) [121]. Je kleiner diese Faktoren sind, desto besser ist die Übereinstimmung zwischen dem Modell und der Struktur. Die Berechnung der LEED-I(E)-Kurven erfolgt in drei Schritten [122]. Da die Streuamplitude energieabhängig ist, wird im ersten Schritt der atomare Streuprozess für eine Energie berechnet. Im zweiten Schritt wird die Streuung der Elektronen an den Atomen in der strukturellen Anordnung des Modells in einer Lage bestimmt. Im dritten Schritt wird die Beugung an mehreren Lagen mit vorgegebenen Interlagenabständen berechnet [122]. Bei den Berechnungen werden die Vielfachstreuung, das innere Potential und die Debye-Temperatur berücksichtigt. Der Aufwand dieser volldynamischen Rechnungen hängt von der Anzahl der Atome in der Basiszelle ab. Für sehr langreichweitige Rekonstruktionen ist er für das Berechnen der Spektren zu groß. Methoden, wie TensorLEED [64, 123], sind entwickelt worden, um den Parameterraum komplexer Strukturen zu optimieren. Zur Berechnung der in dieser Arbeit gemessenen Spektren wurde ein Programm verwendet, das

von Moritz [124] entwickelt worden ist. Zur Beschreibung des atomaren Streuprozesses werden Phasenverschiebungen, die aus Bandstrukturberechnungen stammen [125], verwendet. Die Streuprozesse wurden für die thermisch diffuse Streuung durch eine Debye-Temperatur korrigiert. Der Imaginärteil des inneren Potentials V_i , der die Abschwächung der Elektronen beschreibt, ist $V_i = 0,851 E^{\frac{1}{3}}$ (mit V_i und E in eV). Der Realteil des inneren Potentials wird durch die beste Übereinstimmung zwischen experimentell gemessenen und theoretisch berechneten Spektren bestimmt. Die Übereinstimmung wird mit den R-Faktoren überprüft. Abschätzungen für den Fehler in der Strukturbestimmung resultieren aus der Varianz von R , $var(R_P) = R_P \sqrt{8V_i/\Delta E}$, wobei ΔE die Spektrenweite ist, in der berechnete und gemessene Spektren überlappen.

Kapitel 4

Morphologie ultradünner Filme

Die Morphologie eines Films (Filmbeschaffenheit) wird durch die Ordnung an der Oberfläche (Rauhigkeit), an der Grenzfläche zwischen Substrat und Aufdampfmaterial (Interdiffusion) und im Volumen (strukturelle Ordnung) charakterisiert.

In den folgenden Abschnitten wird eine Klassifizierung des Wachstums vorgenommen und anschließend werden Möglichkeiten zur Charakterisierung der morphologischen Eigenschaften mittels Elektronenbeugung skizziert werden.

4.1 Wachstum

Die Modifizierung der magnetischen und strukturellen Eigenschaften ultradünner Filme setzt eine Kontrolle des Wachstums ultradünner Metallfilme voraus. So ist z.B. eine Vorbedingung für die Untersuchung des zweidimensionalen Verhaltens magnetischer Schichten, daß das Adsorbat in einem homogenen Film weniger Lagen mit glatten Grenzflächen auf dem Substrat aufwächst.

Energetische und kinetische Aspekte müssen bei der Vorhersage von Wachstumseigenschaften berücksichtigt werden [126]. Ein Vorhersagekriterium, das den energetischen Aspekt betrifft, ist das sogenannte Bauer-Kriterium [126]. Es besagt, daß im Falle einer kleineren Oberflächenenergie des Adsorbats σ_A im Vergleich zu der des Substrats σ_S eine Benetzung des Substrats durch das Aufdampfmaterial bevorzugt ist. Zu berücksichtigen ist dabei jedoch auch der Energiebeitrag der Grenzfläche zwischen Film und Substrat σ_G . Ein ideales zweidimensionales Wachstum der ersten Monolage wird für den Fall

$$\Delta\sigma = \sigma_G + \sigma_A - \sigma_S \leq 0 \quad (4.1)$$

erwartet. Für die weitere Deposition von Lagen ist die Erfüllung des Bauer-Kriteriums erneut zu überprüfen. So ist für das Wachstum der zweiten Monolage die Oberflächenenergie der ersten Monolage relevant. Diese ist jedoch durch eine Verspannung in Folge pseudomorphen Wachstums modifiziert, so daß die Erfüllung des Kriteriums bei der ersten Monolage nicht notwendig die Erfüllung für alle nachfolgenden Lagen bedingt. Aus

diesen Betrachtungen lassen sich drei Wachstumsmodi ableiten (Abb.4.1). Ist $\Delta\sigma \leq 0$

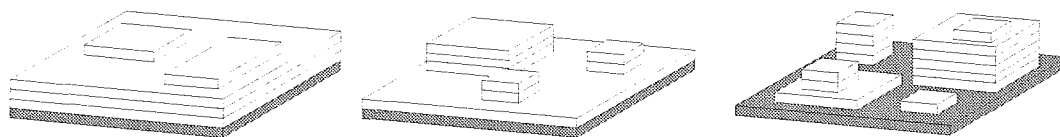


Abb. 4.1: Wachstumsmodi

Links: lagenweises Wachstum (Frank-van-der-Merwe-Wachstum, Mitte: Stranski-Krastanov-Wachstum, rechts: dreidimensionales Wachstum (Volmer-Weber-Wachstum)

für alle Lagen, wächst das Adsorbat ideal zweidimensional im sogenannten Lage-für-Lage-Wachstumsmodus oder Frank-van-der-Merwe-Modus auf. Wird $\Delta\sigma$ oberhalb einer kritischen Schichtdicke größer als Null, wachsen die nachfolgenden Schichten dreidimensional auf; dieser Wachstumsmodus wird Stranski-Krastanov-Modus genannt. Gilt bereits ab der ersten Lage, daß die Summe der Oberflächenenergien größer als Null ist, wächst das Aufdampfmaterial direkt dreidimensional auf dem Substrat (Volmer-Weber-Wachstum). Die Oberflächenenergie des Eisens beträgt $2,55 \text{ mJ/m}^2$, die des Mangans $1,6 \text{ mJ/m}^2$. Bei verschwindendem σ_G tendiert das Fe dazu, auf einem Cu Substrat ($1,8 \text{ mJ/m}^2$) zu agglomerieren. Umgekehrt ist für das Mn eine vollständige Benetzung des Cu-Substrats energetisch begünstigt. Auf einem Au-Substrat ($1,55 \text{ mJ/m}^2$) ist dagegen eine Agglomeration von Fe-Atomen bevorzugt.

Das Bauer-Kriterium geht von einem thermodynamischen Gleichgewicht aus, das jedoch während des Wachstumprozesses nicht vorliegt. Kinetische Prozesse sind in der Regel der bestimmende Faktor für den Wachstumsmodus der Schichten. Zur Untersuchung der atomaren Mechanismen, die beim Wachstum der Schichten eine Rolle spielen, wurden in den vergangenen Jahren homoepitaktische Systeme untersucht [127–133].

Bei einer großen Diffusionslänge der deponierten Atome in der Ebene erreichen im Idealfall alle Adatome bereits vorhandene Stufenkanten. Das Adsorbat wächst ideal zweidimensional auf. Dieses Wachstum ist durch eine konstante Anzahl an Stufen gekennzeichnet; die Stufen *wandern* über die Oberfläche. Bei einer Erhöhung der Adatomdichte bilden sich infolge Übersättigung kleine Keime auf der Oberfläche, die nach weiterer Anlagerung von Adatomen wachsende Inseln bilden. Oberhalb etwa $0,1 \text{ ML}$ bilden sich keine neuen Keime mehr [64]. Durch die Bildung von Inseln wird die Anzahl der Atome pro Fläche, die Stufenkanten bilden (Stufendichte), und die Inseldichte zunächst erhöht. Bei größerer Bedeckung wachsen die Inseln zusammen (Koaleszenz) und beide Größen nehmen wieder ab, bis im Idealfall zweidimensionalen Wachstums wieder eine glatte Oberfläche vorliegt. Im Falle eines zweidimensionalen Wachstums mit Stufenwanderung ist die Stufendichte konstant, bei einem zweidimensionalen Wachstum mit Keimbildung durchlaufen die Insel- und die Stufendichte zwischen der Komplettierung der Lagen ein Maximum. Eine Konsequenz aus dem lagenweisen Wachstum mit Keimbildung ist daher eine Oszillation der Insel- und Stufendichte mit wachsender

Bedeckung.

Die Ausbildung eines zweidimensionalen Wachstums hängt davon ab, wie sehr die Adatome, die sich auf einer Insel befinden, in der Lage sind, über die Stufenkante in die untere Ebene zu gelangen (Interlagenmassentransport) [64, 130]. Durch die reduzierte Koordinationszahl eines Atoms an einer Stufenkante kann jedoch eine energetische Barriere, die sogenannte Schwoebel-Barriere [134], einen Interlagenmassentransport behindern. Ist die Frequenz, mit der Atome, die auf einer Insel deponiert worden sind, auf die Stufenkante der Insel treffen, hoch, ist die Wahrscheinlichkeit für ein Überwinden der Barriere groß. Eine große Dichte kleiner Inseln am Beginn des Wachstums einer Lage oder eine fraktale Form der Inseln begünstigen daher zweidimensionales Wachstum [130]. Je kleiner die Insel ist, desto geringer ist die Wahrscheinlichkeit, daß sich die zur Bildung eines Keims notwendige Anzahl an Atomen auf einer Insel befindet. Auf fraktalen Inseln kann zwar eine ausreichende Anzahl an Atomen auf den Inseln deponiert werden, aufgrund der Form ist jedoch die Bildung stabiler Keime unwahrscheinlich.

Im umgekehrten Fall kleiner Stufen- und Inseldichte liegt eine kompakte Inselform mit wachsender lateraler Ausdehnung vor und es können sich auf den Inseln neue stabile Keime bilden. Ein solches Verhalten wird für das homoepitaktische System Ag auf Ag(111), Cu auf Cu(111), Pt auf Pt(111) [127, 128, 130, 133] und das heteroepitaktische System Ge auf Si(111) [135] beobachtet.

Eine Änderung der Aufdampfrate bzw. -temperatur kann zur Modifizierung des Wachstumsmodus genutzt werden [130]. Eine erhöhte Aufdampfrate bedingt eine erhöhte Adatomdichte. Eine Verringerung der Temperatur reduziert die Beweglichkeit der Adatome und begünstigt die Bildung fraktaler Inselformen. Für das System Pt/Pt(111) wird bei tiefen Temperaturen durch die Bildung fraktaler Inseln eine Oszillation der Stufendichte einiger Lagen beobachtet [132], die als *Wiedereintritt des lagenweisen Wachstums* bezeichnet worden ist. Ag-Filme auf Ag(111) zeigen ausgehend von dem Temperaturbereich der Stufenwanderung bei abnehmender Depositionstemperatur keine Oszillation, sondern eine kontinuierliche Abnahme der Intensität, was einer ebensolchen Zunahme der Stufendichte [130] entspricht. Dieses Verhalten resultiert aus der Tatsache, daß durch eine Verringerung der Temperatur die Beweglichkeit der Adatome auf beiden Ebenen herabgesetzt ist, so daß sich dort neue Inseln bilden können. Nach Rosenfeld [129] kann bei diesem epitaktischen System durch das *Konzept der zwei Beweglichkeiten* bei einer geeigneten Prozeßführung ein lagenweises Wachstum erzeugt werden. In der Anfangsphase des Wachstums muß dazu eine große Anzahl an kleinen Inseln erzeugt werden, die einen Interlagenmassentransport begünstigt. Das Adsorbat wird dazu in der Keimbildungsphase bei niedrigerer Temperatur oder größerer Aufdampfrate deponiert. Im zweiten Schritt wachsen die Inseln bei einer hohen lateralen Beweglichkeit der Adatome in der Ebene und begünstigtem Interlagenmassentransport. Dazu wird die Deposition bei höherer Depositionstemperatur oder nied-

rigerer Aufdampftrate fortgesetzt. Die Keimbildungsrate kann auch durch eine kurzzeitige Erhöhung der Adatomdichte durch den Beschuß mit niederenergetischen Ionen bei Beginn des Wachstums einer neuen Lage erhöht werden. In diesem Fall können Aufdampftrate und Temperatur konstant bleiben. Das Modell der zwei Beweglichkeiten kann auch als ein Ansatz zur Erklärung der Wirkungsweise sogenannter *surfactants* [136] herangezogen werden. Dazu wird das Substrat mit Atomen eines anderen Elements vorbelegt. Bei der darauf folgenden Deposition wird im Gegensatz zum Aufdampfen ohne Vorbelegung ein lagenweises Wachstum beobachtet. Bei Deposition des Aufdampfmaterials ist die Beweglichkeit der Adatome herabgesetzt. Nach der Bildung von Inseln ist die Beweglichkeit der Atome auf den Inseln höher als auf dem Substrat, solange sich keine surfactant-Atome auf den Inseln befinden, und der Interlagenmassentransport wird bevorzugt. Im Idealfall diffundieren die surfactant-Atome erst in der späteren Phase des Wachstums der Lage auf die Inseln. Andere Möglichkeiten der Erklärung der Wirkungsweise eines surfactants beziehen sich auf eine Erniedrigung der Aktivierungsbarriere für die Diffusion zwischen den Schichten [134] oder die Änderung der Form der Inseln [130].

Die Beweglichkeit der Adatome ist von der Orientierung der Substratoberfläche abhängig. Sie ist für dicht gepackte $kfz(111)$ - und $krz(110)$ -Flächen größer als für die (100) -Flächen [133]. Infolgedessen ist die Tendenz zur Bildung größerer Inseldichten in der Anfangsphase des Wachstums für letztere Orientierung größer. Eine Änderung der Struktur eines heteroepitaktischen Films von einer (100) - zu einer dicht gepackten Fläche ist daher häufig auch mit einer Änderung des Wachstumsmodus verbunden. Filme, die mit hexagonaler Struktur auf einer (100) -Fläche aufwachsen, wie z.B. Ag auf $Ni(100)$ [137] und $Cu(100)$ [138] zeigen in der ersten Lage ein zweidimensionales Wachstum, das bei weiterer Deposition von einem 3d-Wachstum abgelöst wird.

4.2 Charakterisierung morphologischer Eigenschaften mittels monoenergetischer Elektronenbeugung

Eine verbreitete Methode zur Analyse der Oberflächeneigenschaften ist die Rastertunnelmikroskopie (RTM). Nach dem Wachstum des Films kann durch eine statistische Analyse der Rastertunnelmikroskopbilder die mittlere Form und Größe von Inseln quantitativ bestimmt werden. Darüber hinaus kann die für das Wachstum wichtige Bewegung von Kinken quantitativ untersucht werden [139, 140]. Mittlerweile ist es ebenfalls möglich, Rastertunnelmikroskopbilder während der Deposition des Adsorbats aufzunehmen [135], um so das Wachstum der Schichten zu klassifizieren. Eine einfachere, allerdings der Interpretation bedürftige, qualitative Charakterisierung des Wachstums ultradünner Filme bietet die Beugung mittlereenergetischer Elektronen (MEED: Medium Energy Electron Diffraction), ($E = 1 - 10$ keV) oder die Reflektionsbeugung hochenergetischer Elektronen (RHEED: Reflection High Energy Electron Diffraction), ($E = 10 - 30$ keV), bei der der monoenergetische Elektronenstrahl unter flachem Winkel gegen die Oberfläche einfällt. Die Intensität der gebeugten Elektronenstrahlen wird während der Deposition aufgezeichnet. Bei geeigneter Wahl des Winkels und der Energie interferieren gebeugte Elektronen eines zwei Niveaus destruktiv nach der Laue-Bedingung. Es kann jedoch nicht für alle Reflexe gleichzeitig die destruktive Interferenz eingestellt werden, so daß ein Reflex, in der Regel der direkt reflektierte (0,0)-Reflex, ausgewählt werden muß. Ausgehend von einer idealen Substratoberfläche wird sich die Intensität dieses Beugungsreflexes verringern, sobald sich auf der Fläche zweidimensionale Inseln bilden. Im Falle eines idealen zweidimensionalen Wachstums des Adsorbats wird bei halber Bedeckung die Intensität minimal, weil dann der gleiche Anteil an Elektronen an beiden Niveaus gebeugt wird. Mit wachsender Bedeckung nimmt der Flächenanteil des oberen Niveaus zu und die Intensität steigt so lange an, bis bei einer idealen Monolage wieder der Ausgangswert erreicht wird. Bei weiterer Deposition wiederholt sich dieser Vorgang periodisch. Die Intensität des Beugungsreflexes oszilliert während des Aufdampfens mit der Periodizität einer Monolage.

Mit dem experimentellen Aufbau können miteinander interferierende Elektronen nur innerhalb einer endlichen Länge, der Transferweite, detektiert werden. Auf dem Substrat liegt bereits vor dem Wachstum eine endliche Anzahl an Stufen auf dem Substrat vor. Läuft das lagenweise Wachstum über Stufenwanderung ab, wird sich gemittelt über den Elektronenstrahl die Stufendichte nicht ändern und die Intensität bleibt konstant. Erst bei der Bildung von Inseln führt ein Anteil destruktiver Interferenz innerhalb der Transferweite zu einer Intensitätsverminderung. Oszillationen in der Intensität sind daher Kennzeichen eines lagenweisen Wachstums mit Inselbildung. Bei einer kontinuierlichen Abnahme ohne Oszillationen nimmt dagegen die Inseldichte ständig zu und es liegt der Fall eines dreidimensionalen Wachstums vor.

Da der Interlagenabstand des Aufdampfmaterials von dem des Substrats abweicht und

sich mit wachsender Schichtdicke ändern kann, kann die destruktive Interferenz nicht gleichzeitig für das Substrat und das Adsorbat eingestellt werden. Die MEED-Kurven sind damit auch von den strukturellen Eigenschaften des Adsorbats abhängig. Darüber hinaus beeinflussen dynamische Streuprozesse, die bei diesen Energien einen nicht vernachlässigbaren Beitrag liefern, den Verlauf der Kurve [141–143].

Neben dem kinematischen Ansatz, der die Oszillation der Intensität durch destruktive Interferenz erklärt [144, 145], ist alternativ vorgeschlagen worden, daß die RHEED-Oszillationen aus einer diffusen Streuung der Elektronen an Stufenkanten resultieren [146, 147]. Strosio et al. [131] führten in-situ-Messungen an homoepitaktischen Filmen auf Fe(100) in Abhängigkeit der Temperatur mittels RHEED und RTM durch, um den Beitrag beider Größen zu überprüfen. Sie fanden eine akzeptable Übereinstimmung der RTM-Daten mit einer kinematischen Interpretation der RHEED-Wachstumskurven. Sie konnten jedoch einen Beitrag der Streuung von Elektronen an Stufen zur Oszillationsamplitude nicht ausschließen.

Nach der Deposition der Filme kann die Beschaffenheit des Films mit niederenergetischer Elektronenbeugung (LEED) charakterisiert werden. Defekte üben einen Einfluß auf das Beugungsbild aus. Nach Henzler [148] lassen sich die Defekte nach ihrer Dimension klassifizieren. Dies sind z.B. Adatome oder Leerstellen (Punktdefekte), gefolgt von atomaren Stufen oder Phasengrenzen (eindimensionale Defekte), Überstrukturen oder Facetten (zweidimensionale Defekte) und Mosaikkristalle oder Stapelfehler (dreidimensionale Defekte). Da die Defekte in der Regel in großen Abständen auftreten, üben sie einen vernachlässigbaren Einfluß auf den Strukturfaktor in Gleichung 3.12 aus, der die lokale Anordnung der Atome in der Einheitszelle beschreibt. Im wesentlichen wird der Gitterfaktor durch die Defekte modifiziert.

Zur Verdeutlichung ist der Einfluß von Defekten auf das Beugungsbild in Abb. 4.2 gezeigt. Stufen (Abb. 4.2 links und oben rechts) führen in Abhängigkeit des Impulsübertrags zu einer energieabhängigen Aufspaltung bzw. Verbreiterung der Reflexe. Die Verbreiterung resultiert aus der destruktiven Interferenz der Elektronen an den unterschiedlichen Niveaus. Bei konstruktiver Interferenz ist die Halbwertsbreite minimal, bei destruktiver maximal. Der Phasenunterschied zwischen gebeugten Elektronenwellen an unterschiedlichen Niveaus läßt sich bis auf einen charakteristischen Stufenvektor $\underline{w}$ mit $\underline{w} = x \underline{a}_1 + y \underline{a}_2 + d \underline{a}_3$ mit dem senkrechten Abstand der beiden Niveaus d und den Basisvektoren in der Ebene $\underline{a}_1, \underline{a}_2$ reduzieren. Für eine Monostufe in einem kfz-Kristall ist $x = y = 1/2$ und für doppelatomare Stufen $x = y = 0$. Die Energie E_{n_1, n_2} , bei der eine Verbreiterung eines Reflexes (n_1, n_2) beobachtet wird, hängt auch vom Einfallswinkel ϑ gegen die Oberflächennormale und den Winkeln $\varphi_{\underline{a}_1}, \varphi_{\underline{a}_2}$ mit den Basisvektoren in

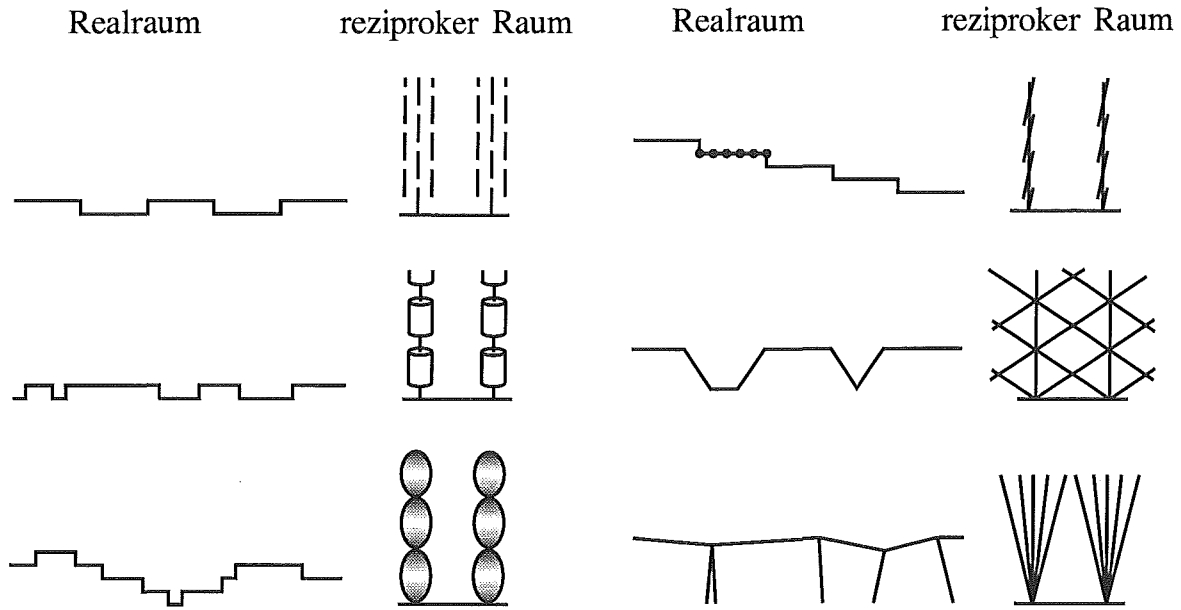


Abb. 4.2: Einfluß von Defekten auf das LEED-Beugungsbild

Links oben und Mitte: Zwei-Niveau System mit einer festen Inselgröße (oben) und einer verteilten Inselgröße (Mitte).

Links unten: unregelmäßige Stufenabfolge und Inselgröße.

Rechts oben: regelmäßige Stufenabfolge und Inselgröße.

Rechts Mitte: Facettierung der Oberfläche.

Rechts unten: Mosaikbildung.

der Ebene ab. Nach Henzler [149, 150] gilt

$$E_{n_1 n_2} = \frac{150(eV \text{ \AA}^2)}{4d^2} \left[\frac{(S - n_1 x - n_2 y)^2 + (n_1 \underline{a}_1^\times + n_2 \underline{a}_2^\times)^2 d^2 / 4\pi^2}{(S - n_1 x - n_2 y) \cos \vartheta - (n_1 |\underline{a}_1^\times| \cos \varphi_{a_1} + n_2 |\underline{a}_2^\times| \cos \varphi_{a_2}) d \sin \vartheta / 2\pi} \right]^2, \quad (4.2)$$

wobei die Reflexbreite für $S = (2n + 1)\frac{1}{2}$ maximal und $S = n$ minimal ist. Da an der Oberfläche auch Vielfachstufen existieren können, werden diese bei verschiedenen Energien das Intensitätsprofil beeinflussen. Durch eine Messung der Halbwertsbreite in Abhängigkeit der Energie können die verschiedenen Stufentypen identifiziert werden. Die Stärke der Verbreiterung ist ein Maß für die Ausdehnung der Inseln (Abb. 4.2 links oben und Mitte). Durch eine quantitative Analyse der Abhängigkeit der Reflexbreite von dem Impulsübertrag können die Stufenhöhe und die Stufenverteilung bestimmt werden. Eine Methode zur Berechnung dieser Verteilung ist die Domänen-Matrix-Methode, die von Pflanz und Moritz entwickelt worden ist [151, 152].

Facetten sind Oberflächen, die unter einem festen Winkel gegen die Oberflächennormale des Einkristalls geneigt sind. Sie stellen somit den Grenzfall einer regelmäßigen

Stufenabfolge mit konstantem, kleinen Abstand dar. Als Folge davon sind im LEED-Beugungsbild bei senkrechtem Einfall des Elektronenstrahls zwei Klassen von Reflexen beobachtbar. Die Reflexe, die von den Facetten stammen, bewegen sich energieabhängig auf Verbindungslinien zwischen den Hauptstruktureflexen, die von der senkrecht zum Elektronenstrahl orientierten Fläche stammen (Abb. 4.2 Mitte rechts).

Bei der Bildung von Mosaiken (Abb. 4.2 unten rechts) wird die Struktur im Volumen gestört, indem sich kleine Kristallite mit gleicher Orientierung bilden, die um kleine Winkel gegeneinander verkippt sind. Als Folge davon ist die Defektdichte an der Grenze zwischen zwei Mosaikkristallen erhöht. Die Reflexbreite steigt linear mit dem Impulsübertrag an.

Kapitel 5

Experimenteller Aufbau

5.1 Die Apparatur

Die Experimente wurden unter Ultrahochvakuum in einem mit μ -Metall ausgekleideten Edelstahlrezipienten durchgeführt, der zur Ermittlung der Korrelation des Magnetismus, der Struktur und der Morphologie ultradünner Filme konzipiert worden ist [142]. Eine Drehschieberpumpe, eine Turbomolekularpumpe, eine Titansublimationspumpe und eine Ionengetterpumpe erzeugen das Vakuum innerhalb des Rezipienten. Nach 36-stündigem Ausheizen der Apparatur bei 440 K beträgt der Basisdruck in der Kammer $3 \cdot 10^{-9}$ Pa. Der Druck wird mit einer Ionisationsmeßröhre gemessen.

Die Apparatur gliedert sich in drei Meßebenen mit verschiedenen Methoden zur Präparation des Einkristalls und der ultradünnen Schichten sowie der Analyse der magnetischen, strukturellen und morphologischen Eigenschaften. In der obersten Meßebene Abb. 5.1 befinden sich ein LEED-System, ein Augerspektrometer mit Zylinderspiegelanalysator (CMA), eine Ionenkanone zum Ätzen des Films bzw. der Substratoberfläche und ein Gaseinlaßsystem, eine Knudsenzelle und ein Aufdampfpaar, das zur Deposition der Filme aus der mittleren in die obere Meßebene geschwenkt werden kann. Der Winkel zwischen der Achse des LEED-Systems und der des Augerspektrometers beträgt 170° . Zur Beugung mittelenenergetischer Elektronen (MEED) wird die Probe, wie in Abb. 5.1 gezeigt, positioniert. Monoenergetische Elektronen der Augerkanone fallen mit einer Energie von 3 keV unter einem Einfallswinkel von 80 bis 85° gegen die Oberflächennormale auf den Einkristall ein. Der Strahldurchmesser beträgt 0,4 mm. Das ergibt bei einem Polarwinkel von $81,1^\circ$ eine Fläche von $0,8 \text{ mm}^2$. Der Divergenzwinkel des Elektronenstrahls beträgt $0,8 \pm 0,2^\circ$. Daraus resultiert eine Transferweite von $90 \text{ \AA}$ [143]. Die gebeugten Elektronenstrahlen sind auf dem Fluoreszenzschirm des LEED-Systems sichtbar. Während des Aufdampfens mittels der Knudsenzelle oder des hochgeschwenkten Ofens kann das Beugungsbild beobachtet und die Intensität der Beugungsreflexe gemessen werden. Zur Messung der Beugungsreflexintensitäten wird ein rechnergesteuertes Bildaufnahme- und -verarbeitungssystem (AutoLEED) verwendet [64, 122, 153]. Es besteht aus einer Videokamera, einer Einheit, die das Videosignal

zur rechnergestützten Bearbeitung aufbereitet und einem Monitor, der die aufgenommenen Bilder darstellt. Darüber hinaus stehen acht Analog-Digital-Wandler (A/D) zur Verfügung. Neben der Aufnahme der Reflexintensitäten in Abhängigkeit der Zeit für MEED-Wachstumskurven können LEED I(E)-Spektren aufgenommen werden. Die Probenoberfläche befindet sich dazu in einer Position nahezu senkrecht zum einfallenden Elektronenstrahl der LEED-Kanone. Die Energie der Elektronen wird über das AutoLEED gesteuert und gleichzeitig werden die Intensitäten von bis zu acht Beugungsreflexen aufgenommen. Das AutoLEED-System dient in eingeschränktem Maße auch der Analyse von Reflexprofilen und der Vermessung von Längen im reziproken Raum.

Fe wird in Form eines kleinen Plättchens hoher Reinheit (99,99 %) verdampft. Es wird durch die Wärmestrahlung eines W/Re-Filamentes geheizt und seine Temperatur über ein Re/WRe-Thermoelement gemessen. Filament und Plättchen sind von einem doppelwandigem Kupferzylinder umgeben, der die Abstrahlung von Wärme und ein Bedampfen anderer Vakuumkomponenten verhindert. Da die Eigenschaften der Eisenfilme empfindlich von der Kontamination aus dem Restgas abhängen, wurden der Fe-Ofen, die LEED- und die Augerkanone sorgfältig ausgegast. Der Druck während des Aufdampfens des Fe-Films lag unterhalb $2 \cdot 10^{-8}$ Pa während des Betriebs der Augerkanone und zwischen $7 \cdot 10^{-9}$ und $1,5 \cdot 10^{-8}$ Pa ohne den Betrieb der MEED-Kanone. Die Temperatur des Fe-Ofens während des Betriebs betrug 1570 K.

Hochreines Mn (99,99 %) wird aus einem Aluminiumoxidthiegel, an dem ein Thermoelement angebracht ist, verdampft. Dieser Tiegel befindet sich in einem zweiten Keramiktiegel, der von einem Tantal-Filament zur Heizung des Aufdampfgutes und einem Zylinder aus Aluminiumoxid umschlossen ist. Der gesamte Aufbau befindet sich in einem wassergekühlten, doppelwandigen Zylinder. Der Druck während des Aufdampfens betrug typischerweise $1,5 \cdot 10^{-8}$ bis $3,5 \cdot 10^{-8}$ Pa.

Zur Messung der magnetischen Eigenschaften mittels des magnetooptischen Kerr-Effekts befindet sich in der zweiten Meßebeine ein Helmholtzspulenpaar. Die Probe wird dazu in das Spulenpaar gefahren und der Laserstrahl fällt im polaren Effekt (siehe Abb. 5.1, durchgezogene Linie) unter 25° gegen die Oberflächennormale auf die Probe ein und wird außerhalb der Kammer detektiert. Im longitudinalen Effekt ist die Probe um 90° gedreht (gestrichelte Linie). Durch Anlegen eines Gleichstroms an die Spulen können Felder bis zu 80 kA/m (≈ 1000 Oe) angelegt werden.

In der dritten Meßebeine wurde für Experimente an Fe-Filmen auf Cu(100) ein SPALEED-Gerät [118] zur genauen Profilanalyse von Beugungsreflexen und zur präzisen Abstandsbestimmung im reziproken Raum eingebaut.

Zur Positionierung ist die Probe an einem Manipulator befestigt, der eine translatorische Bewegung in x- und y-Richtung um jeweils 20 mm und in z-Richtung um 400 mm erlaubt. Die Probe kann um einen beliebigen Polarwinkel um die z-Achse gedreht werden. Zusätzlich kann die Probe um eine Achse senkrecht zur Oberfläche um

einen azimuthalen Winkel von $\pm 65^\circ$ variiert werden. Der Tilt der Probe wurde vor dem Einbau des Manipulators fest eingestellt. Zur quantitativen Analyse von LEED I(E)-Spektren muß er daher separat bestimmt werden. Deshalb wurde der azimuthale Winkel so lange variiert, bis die [001]-Achse der Probe in horizontaler Richtung orientiert war. Dies konnte durch den Vergleich symmetrieäquivalenter Reflexe überprüft werden, die nahezu identische I(E)-Kurven zeigten ($R_P < 0,03$). Zur Ermittlung des Tiltes wurden I(E)-Spektren berechnet, bei denen der Tilt in Schritten von $0,2^\circ$ so lange geändert wurde, bis ein tiefes Minimum erreicht war.

Die Probentemperatur wird durch Elektronenbeschuß und Wärmestrahlung von einem W-Filament variiert. Sie wird mit einem Ni/CrNi-Thermoelement gemessen und kann über eine elektronische Regelung auf ± 1 K konstant gehalten werden. Durch Kühlung mit flüssigem Stickstoff kann eine Probentemperatur von 90 K erreicht werden.

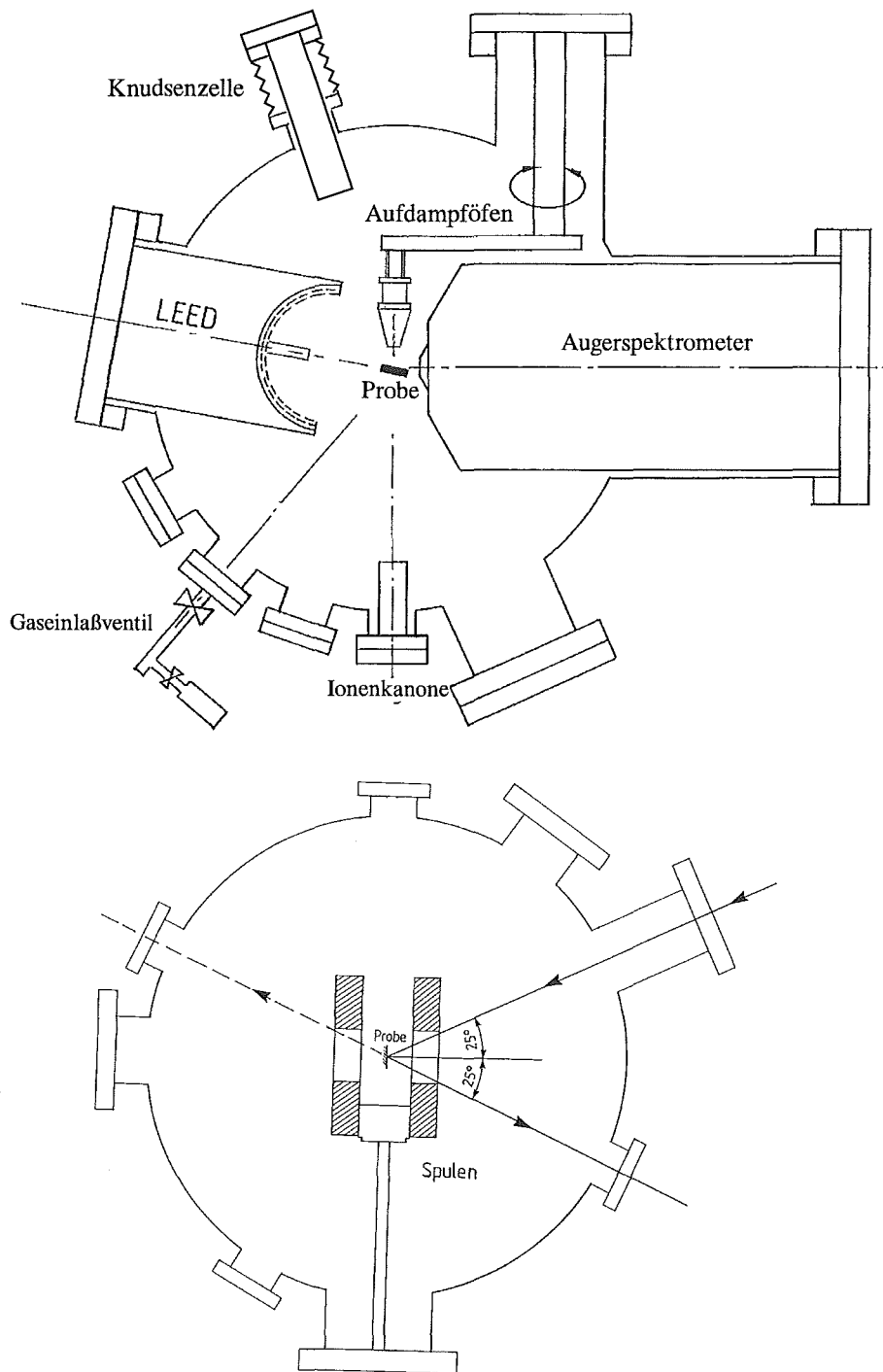


Abb. 5.1: Aufbau der Apparatur

Oben: In der obersten Meßeinheit befinden sich ein Augerspektrometer, eine Ionenkanone, ein Gaseinlaßventil, ein schwenkbarer Arm mit zwei Aufdampföfen, eine Knudsenzelle und ein LEED-System. Die dargestellte Anordnung entspricht der Position während des Aufdampfens. Unten: Die mittlere Meßeinheit ist um 90° gedreht dargestellt. Das Helmholzspulenpaar ist so angeordnet, daß zur Messung des polaren, magnetooptischen Kerr Effekts der Laserstrahl unter 25° auf die Probe einfällt (durchgezogene Linie). Für die Messung des longitudinalen Effektes wird die Probe um 90° gedreht (gestrichelte Linie).

5.2 Aufbau zur Messung des magnetooptischen Kerr-Effekts

Zur quantitativen Bestimmung der Kerr-Drehung und der Kerr-Elliptizität muß die Änderung der Intensität und der Polarisation des Lichtes bei Durchtritt durch die optischen Komponenten des experimentellen Aufbaus berechnet werden. Dazu bedient man sich des Jones-Matrix Formalismus [154]. Die Änderung des Polarisationszustandes wird in Form von 2×2 Matrizen dargestellt. Das Koordinatensystem wird so orientiert, daß seine Achsen senkrecht (s) bzw. parallel (p) zur Einfallsebene des Lichtes stehen. Der Kerr-Effekt, der durch die Reflexion des Lichtes an der Probe hervorgerufen wird, wird durch die Fresnel-Matrix dargestellt. Die äquivalente Beschreibung zu Gleichung 2.30 ist dann

$$\begin{bmatrix} E_p^r \\ E_s^r \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \tilde{r}_{pp} & \tilde{r}_{ps} \\ \tilde{r}_{sp} & \tilde{r}_{ss} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} E_p^e \\ E_s^e \end{bmatrix}. \quad (5.1)$$

Die Diagonalelemente $\tilde{r}_{ss}$, $\tilde{r}_{pp}$ sind die Reflexionskoeffizienten des unmagnetischen Mediums für die Reflexion parallel bzw. senkrecht polarisierten Lichtes $[E_p^e, E_s^e]^T$. Die Nichtdiagonalelemente $\tilde{r}_{sp}$ bzw. $\tilde{r}_{ps}$ beschreiben die Entstehung der Komponenten senkrecht zum parallel bzw. senkrecht polarisierten Lichtes. Nach der Reflexion liegt das Licht dann mit den Komponenten $[E_p^r, E_s^r]^T$ vor. Die äquivalente Darstellung der Kerr-Drehung bzw. Elliptizität in Gleichung 2.31 in Abhängigkeit der Polarisationsrichtung ist dann:

$$\begin{aligned} \varphi_K^p &= -\operatorname{Re} \left(\frac{\tilde{r}_{sp}}{\tilde{r}_{pp}} \right) & \varphi_K^s &= \operatorname{Re} \left(\frac{\tilde{r}_{ps}}{\tilde{r}_{ss}} \right) \\ \epsilon_K^p &= \operatorname{Im} \left(\frac{\tilde{r}_{sp}}{\tilde{r}_{pp}} \right) & \epsilon_K^s &= \operatorname{Im} \left(\frac{\tilde{r}_{ps}}{\tilde{r}_{ss}} \right). \end{aligned} \quad (5.2)$$

Zur Ermittlung dieser Größen wurde der magnetooptische Kerr-Effekt mittels der Polarisationsmodulationstechnik [142] und der Null-Ellipsometrie [79,80,155,156] gemessen. Beide Methoden können sowohl in polarer als auch in longitudinaler Geometrie betrieben werden. Zur Vereinfachung ist der experimentelle Aufbau der Polarisationsmodulationstechnik in polarer und der Null-Ellipsometrie in longitudinaler Geometrie gezeigt (Abb. 5.3). Als Quelle dient ein He-Ne-Laser mit einer Wellenlänge von 632,8 nm. Die Ausgangsleistung des auf $\pm 0,1$ % amplitudenstabilisierten Lasers beträgt 1,5 mW. Mit Hilfe eines Graukeils (G) kann die Lichtintensität stufenlos zwischen 20 und 80 % der auftreffenden Intensität eingestellt werden. Zur Polarisation des Lichtes (P) wurden Glan-Thompson-Polarisatoren mit einem Extinktionsverhältnis kleiner als 10^{-7} verwendet. Ein $\lambda/4$ -Plättchen wird bei der Nullellipsometrie zum Nullabgleich und bei der Modulationstechnik zusätzlich zur Kalibrierung verwendet. Mit Hilfe einer Photodiode, der ein Filter für die Wellenlänge des He-Ne-Laser Lichtes vorgeschaltet ist,

wird die Intensität gemessen.

Bei der Polarisationsmodulationstechnik wird der Polarisationszustand des Lichtes periodisch zwischen zwei elliptisch-polarisierten Zuständen variiert und die Intensitätsänderung der ersten und zweiten Harmonischen bestimmt. Aufgrund der schnellen Meßdatenaufnahme können Hysteresekurven mit einer maximalen Geschwindigkeit von 125 Punkten pro Sekunde aufgenommen werden. Das Rauschen des einfach gemessenen Signals beträgt $\pm 20 \mu\text{rad}$.

Der Modulator (M) besteht aus einem optisch-einachsigen Piezokristall, dessen Länge senkrecht zur optischen Achse durch Anlegen einer Wechselspannung periodisch verändert werden kann. Bei Anlegen einer Wechselspannung von ca. 200 V wird eine Phasendifferenz von $\delta = \pi$ erreicht. Der Laserstrahl wird unter 45° zur Streuebene polarisiert (P). Die optische Achse des Modulators steht senkrecht zur Einfallsebene, so daß die Amplituden des ordentlichen und des außerordentlichen Strahls gleich sind. Bei einer Phasenverschiebung von $(2n+1)\pi/2$ ist das Licht zirkular, bei $n\pi$ linear und dazwischen elliptisch polarisiert. Das mit der Phasenverschiebung $\delta = \delta_0 \sin \omega t$ bei einer Frequenz von 17 kHz modulierte Licht fällt nach Durchtritt durch ein $\lambda/4$ -Plättchen, dessen optische Achse nur einen kleinen Winkel $\alpha < 5^\circ$ mit der Einfallsebene einschließt, und einer Linse (L) auf die Probe. Nach der Reflexion und nach dem Durchtritt durch ein Analysator (A) mit der Polarisationsrichtung in der Einfallsebene wird die Intensität des Lichtes detektiert. Durch einen Lock-In-Verstärker (LIA) wird die Intensität des einfachen und doppeltfrequenten Anteils des Signals gemessen. Für dieses Signal gilt [142]:

$$\begin{aligned} I_0 &= \frac{1}{2} |r_p|^2 \left[1 - 2 \left(\operatorname{Im} \left(\frac{\tilde{r}_{ps}}{\tilde{r}_{pp}} \right) + \alpha \right) J_0(\delta_0) \right] \\ I_\omega &= 2 |r_p|^2 \left(\operatorname{Re} \left(\frac{\tilde{r}_{ps}}{\tilde{r}_{pp}} \right) + \alpha \right) J_1(\delta_0) \\ I_{2\omega} &= -2 |r_p|^2 \left(\operatorname{Im} \left(\frac{\tilde{r}_{ps}}{\tilde{r}_{pp}} \right) + \alpha \right) J_2(\delta_0) \end{aligned} \quad (5.3)$$

mit der Amplitude für die periodische Phasenverschiebung δ_0 , mit der Frequenz ω und $J_i(\delta_0)$ dem Wert der Besselfunktion an der Stelle δ_0 . Für $\delta_0 = 138^\circ$ ist $J_0(138^\circ) = 0$. Durch diese Wahl der Amplitude des Modulators kann die Kerr-Rotation durch die Messung des einfach frequenten und die Kerr Elliptizität durch die Messung des doppeltfrequenten Anteils bestimmt werden. Durch entsprechendes Einsetzen der Werte der Besselfunktionen in die Gleichung 5.3 kann durch Quotientenbildung der frequen- ten Anteile I_ω , $I_{2\omega}$ mit dem konstanten Anteil I_0 direkt in Abhängigkeit des Winkels

α die Kerr-Rotation und-Elliptizität für den polaren Kerr-Effekt bestimmt werden.

$$\begin{array}{ll}
 \text{polar} & \text{longitudinal} \\
 \frac{I_\omega}{I_0} = 2,08 (\varphi_k^p + \alpha) & \frac{I_\omega}{I_0} = 2,08 (-\varphi_k^p + \alpha) \\
 \frac{I_{2\omega}}{I_0} = 1,72 (\epsilon_k^p + \alpha) & \frac{I_{2\omega}}{I_0} = -1,72 (-\epsilon_k^p + \alpha)
 \end{array} \quad (5.4)$$

Die wesentlich empfindlichere Methode ist die Null-Ellipsometrie (Abb. 5.3 unten), bei der der Polarisationszustand des linear polarisierten Lichtes nicht moduliert wird. Das senkrecht polarisierte Licht fällt nach dem Durchtritt durch eine Linse auf die Probe und wird reflektiert. Nach dem Durchtritt durch das $\lambda/4$ -Plättchen und den Analysator (A) wird der Strahl mittels einer Linse auf die Photodiode fokussiert. Die Achsen des $\lambda/4$ -Plättchens und des Analysators (A) schließen einen kleinen Winkel α bzw. β mit der Einfallsebene des Lichtes ein. Zur Einstellung dieser Winkel werden Polarisator und Analysator bei $\beta = 0$ zur Auslöschung gebracht. Danach wird der Winkel α variiert, bis ein Minimum der Intensität erreicht ist. Zur weiteren Minimierung der Intensität wird der Winkel β verändert. Durch sukzessive Änderung von α und β wird so ein absolutes Minimum der Lichtintensität erzielt. α ist danach so eingestellt, daß das elliptisch polarisierte Licht bei nicht angelegtem Feld nach dem Durchtritt durch das $\lambda/4$ -Plättchen linear polarisiert ist. Der Winkel β ist so eingestellt, daß dieses linear polarisierte Licht senkrecht zur Polarisationsachse des Analysators steht. Da eine Änderung der Magnetisierung der Probe durch das externe Feld in dieser Einstellung unabhängig von der Magnetisierungsrichtung zu einer Intensitätserhöhung führt, wird der Analysator um einen kleinen Winkel $\vartheta_{fex} \approx 25$ mrad aus der Auslöschung herausgedreht. In dieser Anordnung können Hysteresekurven gemessen und die Kerr-Elliptizität bestimmt werden. Diese ergibt sich nach [156] zu

$$\epsilon_K = \frac{\Delta I}{\bar{I} - I_G} \frac{\vartheta_{fex}}{4} \quad (5.5)$$

mit dem Intensitätsunterschied bei angelegtem Feld ΔI , der gemittelten Intensität $\bar{I}$ bei ϑ_{fex} und des Signals bei minimaler Intensität I_G .

Zur Ermittlung der Suszeptibilität [155] wird das angelegte Feld durch den Lock-In-Verstärker mit einer Frequenz $\omega \approx 500$ Hz und einer Amplitude zwischen 100 und 500 mOe moduliert. Die Änderung der Kerr-Elliptizität wird phasensensitiv mit dem Lock-In-Verstärker gemessen. Bei Variation der Temperatur kann die Änderung des Quotienten $\tilde{\chi} = \Delta M / \Delta H$ bestimmt werden. Für kleine Amplitude ΔH entspricht dieser Quotient der Suszeptibilität χ

$$\lim_{\Delta H \rightarrow 0} \frac{\Delta M}{\Delta H} = \frac{\partial M}{\partial H} = \chi. \quad (5.6)$$

Im Experiment ist $\tilde{\chi}$ in der Regel komplex. Der Imaginärteil resultiert aus dissipativen Anteilen. Diese setzen sich aus der Zeitverzögerung, mit der die Magnetisierung dem äußeren Feld folgen kann und dem Hystereseeffekt zusammen. Hystereseeffekte entstehen nahe der Curie-Temperatur, weil hier bereits kleine Felder zum Durchlaufen einer Hysteresekurve führen [79]. Darüber hinaus hängen diese Beiträge auch von der Form und der Größe der einzelnen Domänen ab [80]. Für eine ausführliche Diskussion dieser Effekte sei auf die Referenzen [79, 80, 156] verwiesen. Zur Bestimmung der Curie-Temperatur wurde der Imaginärteil der Suszeptibilität gemessen. Dieser zeigt bei kleinem ΔH wie der Realteil bei der Curie-Temperatur ein Maximum. Der Einfluß von Hystereseeffekten wurde durch die Variation der Amplitude des äußeren Feldes bei konstanter Modulationsfrequenz überprüft und ist in Abb. 5.2 dargestellt. Bei

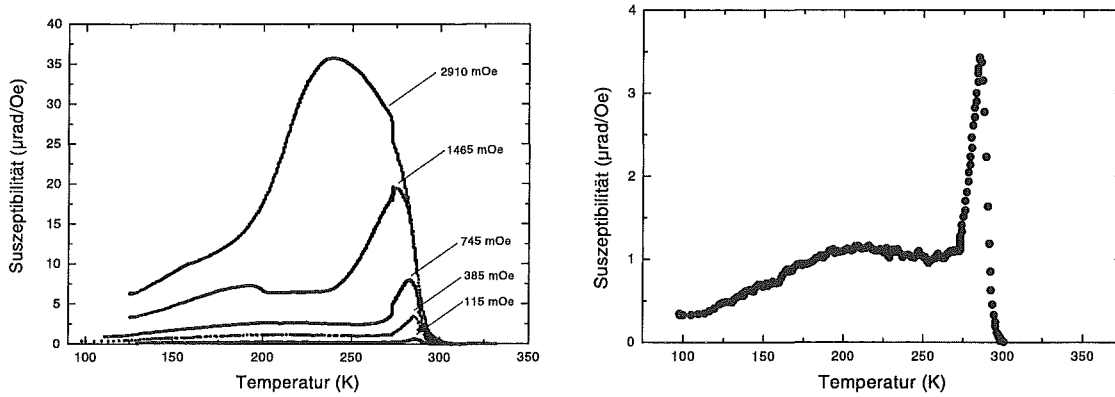


Abb. 5.2: Abhängigkeit der Suszeptibilität von der Amplitude des externen Feldes und der Temperatur

Abhängigkeit des Imaginärteils der Suszeptibilität von der Temperatur und der Oszillationsamplitude (links). Mit abnehmender Amplitude verringert sich das Signal und das Maximum verschiebt sich zur Curie-Temperatur. Bei einer kleinen Amplitude (385 mOe, rechts) kann die Curie-Temperatur durch die Bestimmung des Maximums ermittelt werden. Die Messung wurde an einem TT-Eisenfilm auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ mit einer Schichtdicke von 2,6 ML durchgeführt, der bei 150 K deponiert und auf 300 K angelassen worden war.

großer Amplitude wird bereits bei kleiner Temperatur ein Anstieg der Suszeptibilität durch Hystereseeffekte beobachtet. Mit kleiner werdender Amplitude verschiebt sich das Maximum zur Curie-Temperatur. Bei kleiner Amplitude wird ein scharfes Maximum beobachtet, daß eine Bestimmung der Curie-Temperatur auf ± 5 K zuläßt.

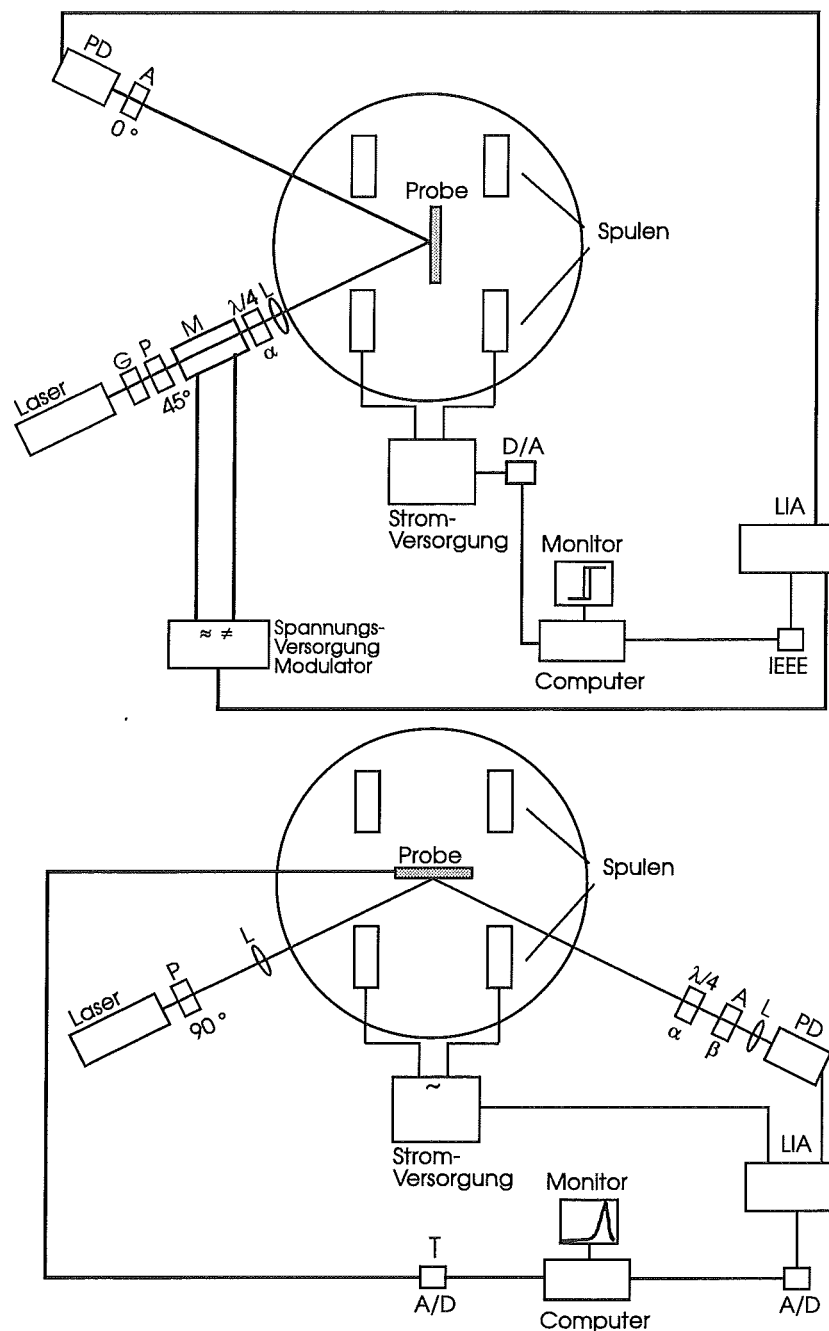


Abb. 5.3: Aufbau zur Messung des magnetooptischen Kerr-Effekts

Oben: Strahlengang für den polaren Effekt mit Modulationstechnik, unten: Strahlengang für die Messung der longitudinalen Suszeptibilität mit der Nullellipsometrie. Die Aufbauten bestehen aus einem He-Ne-Laser ($\lambda = 632,8 \text{ nm}$), einem Graukeil G, einem Polarisator P, einem Modulator M, einem $\lambda/4$ -Plättchen, einer Linse L und einer Photodiode PD. Die Winkel der einzelnen Komponenten mit der Einfallsebene des Lichtes sind angegeben. Bei der Modulationstechnik wird das Signal der Photodiode durch den Lock-In-Verstärker (LIA) fourier-analysiert und von einem Computer aufgezeichnet. Der Computer steuert über einen D/A-Wandler die Stromversorgung des Helmholtzspulenpaares. Bei der Messung der Suszeptibilität mittels Nullellipsometrie wird der Strom mit fester Amplitude und Frequenz sinusförmig durch den LIA moduliert und die Änderung des Signals der Photodiode fourier-analysiert. Dieses Signal und die Temperatur der Probe werden in den Computer eingelesen.

5.3 Präparation

5.3.1 Präparation der Einkristalle

Als Substrate dienten ein Cu(100)- und ein Cu_3Au (100)-Einkristall. Die Atome der geordneten Cu_3Au -Legierung sind in einer kfz Zelle angeordnet, bei der die Ecken mit Au-Atomen und die übrigen Plätze mit Cu-Atomen besetzt sind (Abb. 5.4). Neben ei-

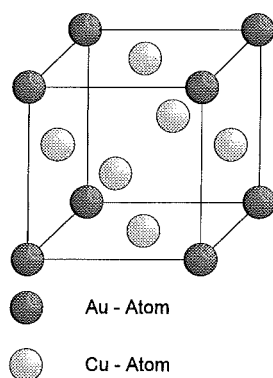


Abb. 5.4: Kristallstruktur der geordneten Cu_3Au -Legierung

Die Ecken der kfz Zelle sind mit Au-Atomen, die übrigen Plätze mit Cu-Atomen besetzt.

ner Cu_3Au -Legierung existiert bei Raumtemperatur auch eine stabile CuAu-Legierung [158].

Die Kristalle wurden mit Funkenerosion geschnitten. Der Cu-Kristall hat einen Durchmesser von 10 mm und eine Dicke von 2 mm, der Cu_3Au -Kristall einen Durchmesser von 7 mm und eine Dicke von 3 mm. Beide wurden durch Polieren auf $0,1^\circ$ genau in [100]-Richtung orientiert; die Bestimmung der Fehlorientierung erfolgte mittels eines Röntgendiffraktometers. Zur Reduktion von Verunreinigungen wurden die Kristalle in einem Gasstrom aus 96 % Argon und 4 % Wasserstoff geglüht. Nach dem Einbau der Proben in die UHV-Kammer wurden sie durch Zyklen mehrmaligen Ionenätzens und Heizens gereinigt. Das Ionenätzen erfolgte unter senkrechtem Einfall durch Beschuß mit Ionen einer Energie von 2 keV bei einem Probenstrom von $2 \mu\text{A}$ und einem Druck von $6,5 \cdot 10^{-5} \text{ Pa}$.

Entstandene Defekte wurden durch Anlassen des Cu-Kristalls auf 955 K ausgeheilt. Die Reinheit des Kristalls wurde mit Augerelektronenspektroskopie kontrolliert. Die Reinigungszyklen wurden so oft wiederholt, bis eine Kontamination der Oberfläche unterhalb der Nachweisgrenze für Sauerstoff und Schwefel von 0,2 % bzw. für Kohlenstoff von 2 % lag. Abb. 5.5 zeigt das Augerspektrum des Cu(100)-Kristalls nach der Präparation.

Oberhalb einer Temperatur von 663 K besetzen die Cu- und Au-Atome statistisch die Plätze des Gitters, die Legierung ist dann ungeordnet. In Abb. 5.6 sind die LEED-Bilder der geordneten Legierung bei 300 K im Vergleich zur ungeordneten bei 663 K

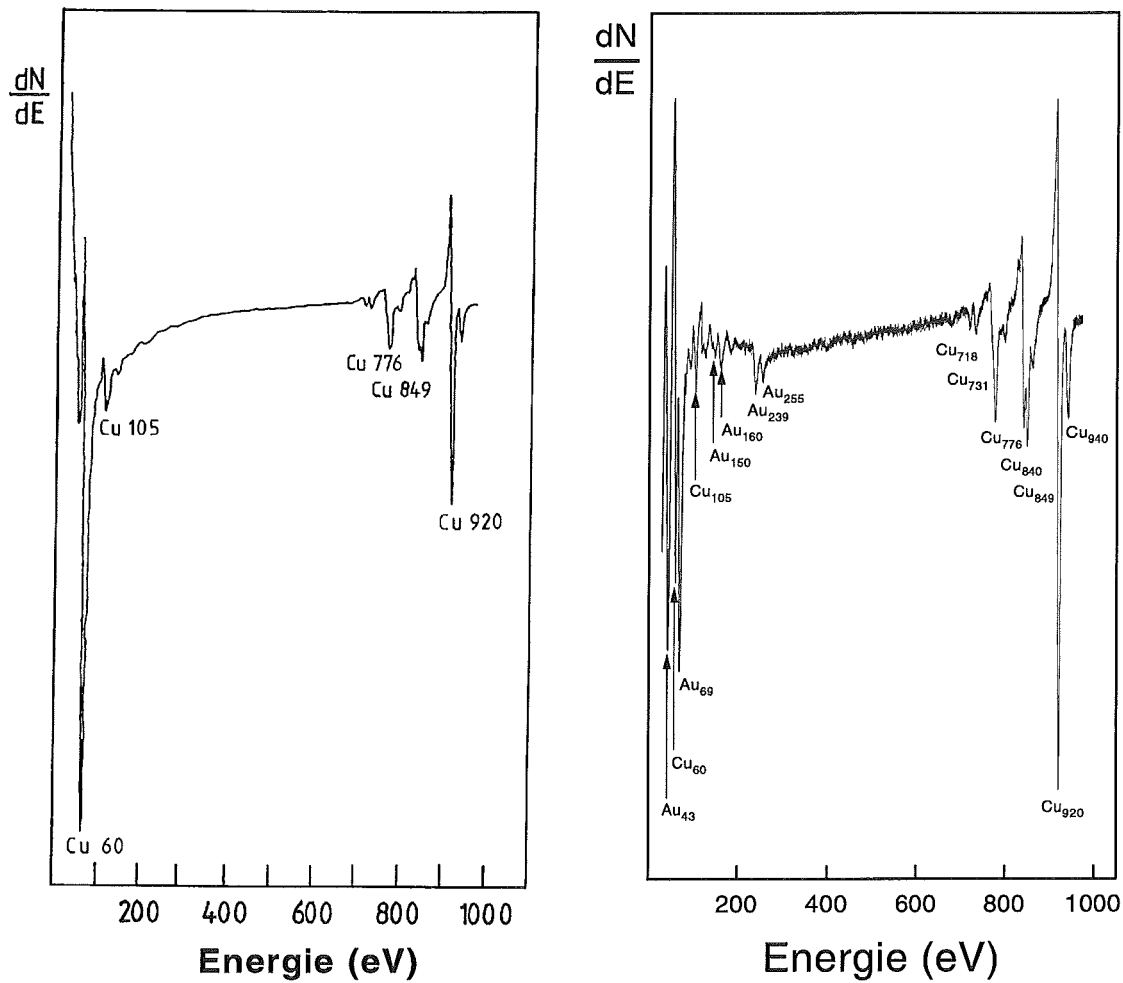


Abb. 5.5: Augerspektren des präparierten Cu(100)- und Cu₃Au(100)-Kristalls

gezeigt. Bei der geordneten Legierung sind zusätzliche Beugungsreflexe an den $(\frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ -Positionen im Vergleich zur ungeordneten Legierung erkennbar. Sie resultieren aus dem unterschiedlichen Streuvermögen der Cu und Au Atome. Für die Bezeichnung der Überstrukturen wird von der Einheitszelle der ungeordneten Legierung ausgegangen. Der Ordnungs-Unordnungs-Übergang war Gegenstand mehrerer Untersuchungen für die (110)- [159–161] und die (100)-Orientierung [162–170]. Zur Ermittlung des Präparationsvorgangs des Cu₃Au-Einkristalls wurden zunächst die Konzepte mehrerer Arbeitsgruppen für die (100)-Orientierung ermittelt [162–173].

Sundaram et al. [163, 164] präparierten den Kristall durch Anlassen auf 1023 K für 45 Minuten und anschließendes Ätzen der Oberfläche mit Argon-Ionen (340 eV). Zur Präparation ätzten Macedo et al. [173] den Cu₃Au(100)-Kristall mit Argon-Ionen

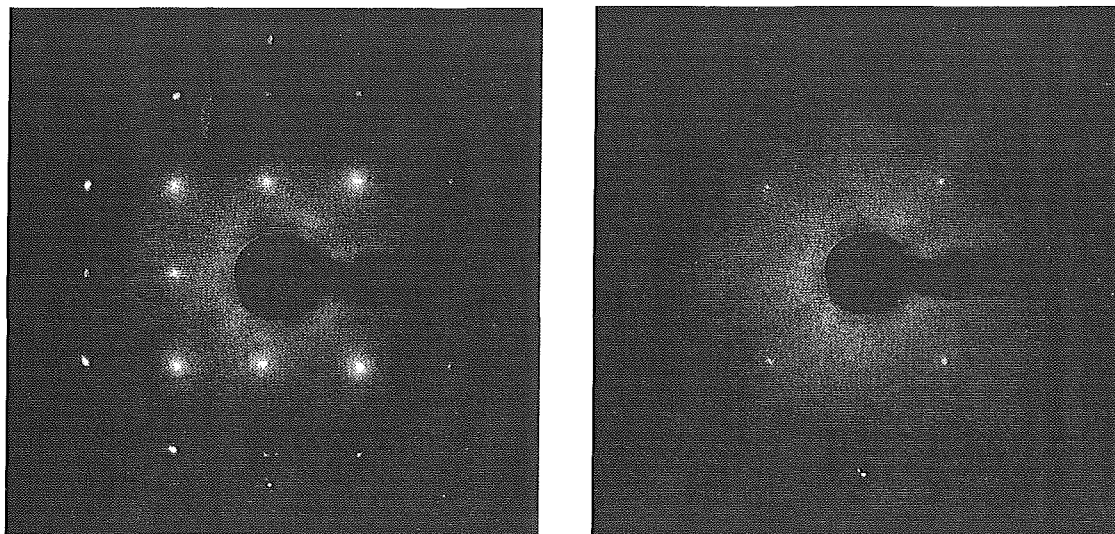


Abb. 5.6: **LEED-Bilder der geordneten und ungeordneten $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ -Legierung**
 Links: geordnete Legierung bei $T=300\text{ K}$ ($E=134\text{ eV}$), rechts: ungeordnete Legierung bei 670 K ($E=134\text{ eV}$).

(500 eV) bei 470 K und ließen ihn danach auf 720 K für 30 – 60 Minuten an.

Buck et al. [165] fanden mittels Streuung niederenergetischer Neon-Ionen und LEED eine langreichweitige Ordnung bei Raumtemperatur. Nach dem Anlassen des Kristalls auf 473 K über Nacht war die Oberfläche mit Au angereichert. Bei 823 K wurde auch in der 2. Lage Au gefunden.

Jamison et al. [166] ätzten den Kristall mit Argon-Ionen (750 eV) für 20 Minuten bei Raumtemperatur und ließen ihn 20 Minuten auf 773 K an; danach wurde er 45 Minuten knapp unterhalb der Temperatur für den Ordnungs-Unordnungsübergang gehalten. Eine Ausdehnung dieses Zeitraums auf bis zu 40 Stunden führte nicht zu einer Verbesserung des LEED-Bildes.

Dosch et al. [168] reinigten den Kristall durch Ionenätzen und Anlassen auf höhere Temperaturen, machten jedoch keine näheren Angaben über Energie und Art der Ionen sowie die Anlaßtemperatur.

Dodt [172] und Rochow et al. [174] ätzten den Kristall zunächst mit Neon-Ionen der Energie 2 keV und danach für 5–10 Minuten mit einer reduzierten Energie von 1,5 keV. Anschließend wurde der Kristall eine Stunde auf 800 K angelassen und dann auf 370 K abgekühlt. Schließlich wurde er erneut für 20 Minuten auf 520 K angelassen und danach auf RT abgekühlt.

Niehus und Achete [171] präparierten den Kristall durch Ätzen mit Argon-Ionen der Energie 1 keV und ließen ihn danach auf 800 K an. Schließlich wurde die Probe 10 Stun-

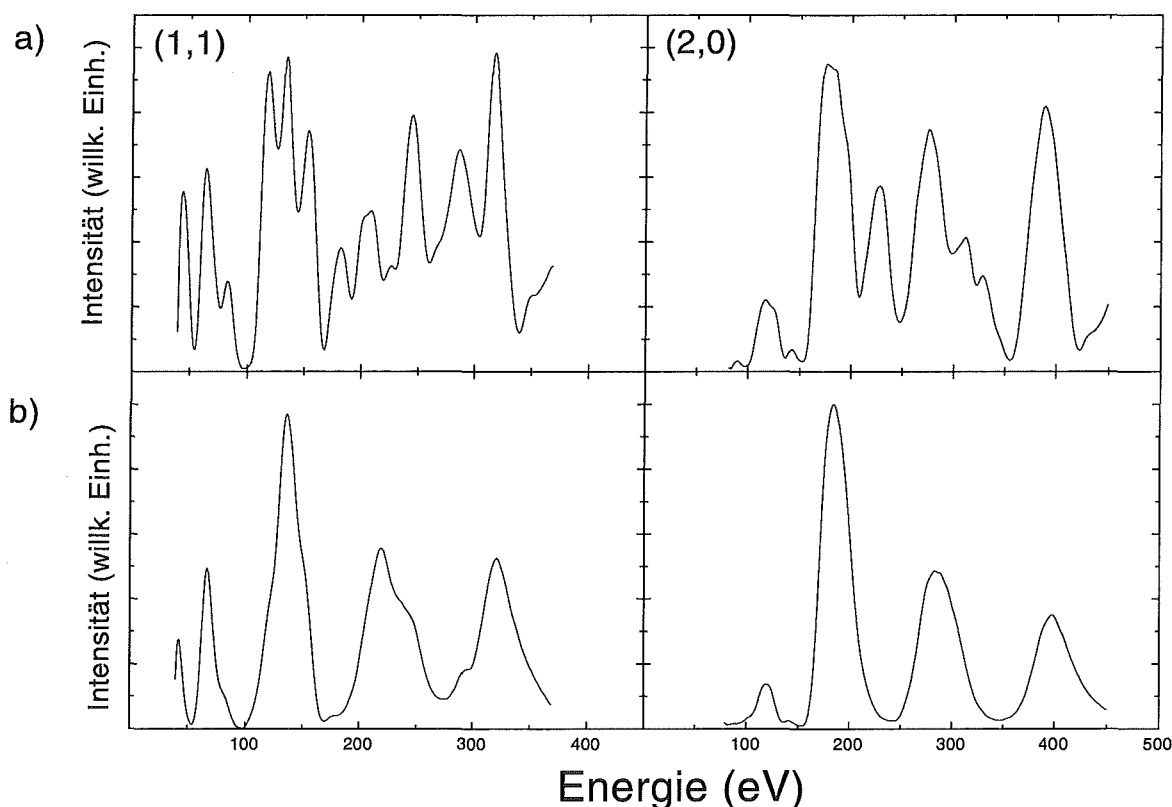


Abb. 5.7: LEED I(E)-Spektren der reinen Substratoberfläche für verschiedene Präparationsbedingungen

(a) präparierte Oberfläche, (b) nach 15 minütigem Ionenätzen bei 300 K.

den bei ca. 500 K zur Ordnung der Oberfläche gehalten.

Mc Rae et al. [159–162] ätzten den Kristall mit Argon-Ionen (500 eV) bei einem Einfallswinkel von 45° und einer Temperatur von 473 K für eine Stunde. Sie fanden nach dem Einkühlen auf RT eine Cu-reiche Oberfläche [162], die nach dem Anlassen auf 650 K mit Au terminiert ist. Weiteres Anlassen oder Einkühlen des Kristalls führten zu keiner Änderung der Zusammensetzung der Oberfläche. Sie schlugen daher eine Anlaßtemperatur knapp unterhalb des Ordnung-Unordnungsübergangs vor.

Die vorgestellten Präparationszyklen der verschiedenen Gruppen ergeben kein einheitliches Bild, wie der Kristall zu präparieren ist. Deshalb wurde der Präparationszyklus so optimiert, daß die Beugungsreflexe, die aus den unterschiedlichen Streuvermögen der Cu- und Au-Atome resultieren, maximal intensiv und scharf waren. Nach dem Ätzen mit Argon-Ionen (2 keV) bei 300 K wurde der Cu_3Au -Kristall mit Ionen einer Energie von 1 keV für 10 Minuten bei 490 K geätzt. Anschließend wurde er zum Ausheilen auf 770 K und danach 20 Minuten auf 630 K angelassen. Zur Überprüfung der Reproduzierbarkeit der Präparation wurden LEED I(E)-Kurven nach mehreren Präparationen gemessen und miteinander verglichen. Es wurden keine Abweichungen festgestellt. Zusätzlich wurden auch LEED I(E)-Kurven für andere Präparationsbe-

dingungen aufgenommen. Ein Vergleich der LEED I(E)-Kurven (Abb. 5.7) einer bei 300 K geätzten Oberfläche mit einer Oberfläche, die 5 Minuten auf 770 K und dann 20 Minuten auf 660 K angelassen wurde, zeigt erhebliche Unterschiede in der Anzahl der Maxima. Eine quantitative Analyse der LEED-Kurven war bis zum heutigen Zeitpunkt nicht erfolgreich. Ähnliche Versuche von Lu et al. [175] führten ebenfalls zu keinem Ergebnis. Aufgrund der endlichen Eindringtiefe der Elektronen ist daher eine quantitative Analyse der Metallfilme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ unterhalb ca. 3 ML mittels LEED I(E)-Spektren nicht möglich.

Zur Bestimmung der Oberflächenstruktur des Cu_3Au -Substrats geben Augermessungen der präparierten und Ionen-geätzten Oberfläche einen Hinweis. Für die erste wird ein Augerverhältnis der $\text{Cu}_{60\text{eV}}$ - zur $\text{Au}_{69\text{eV}}$ -Linie von 2 und der $\text{Cu}_{60\text{eV}}$ - zur $\text{Au}_{43\text{eV}}$ -Linie von 2,6 gemessen; für letztere ergaben sich 3,8 bzw. 3,2. Dies bedeutet, daß die präparierte Substratoberfläche im Vergleich zur geätzten mit Au angereichert ist. Dieses Ergebnis stimmt mit Experimenten von Niehus [171], Sundaram [163, 164] und Reichert [176, 177] überein. Niehus ermittelte mit Hilfe des Rastertunnelmikroskops und niederenergetischer Ionenstreuung (NICISS: low-energy ion scattering with detection of neutrals) ebenfalls eine Anreicherung der Oberfläche mit Gold. Reichert et al. [176, 177] fanden bis zu 20 ML tiefe, temperaturabhängige Oszillationen in der Konzentration des Goldes. Lateral ordnet sich die Legierung nur sehr langsam, senkrecht zur Oberfläche dagegen „ultraschnell“ [177].

5.3.2 Präparation der Filme

Fe-Filme wurden auf Cu(100) bei Substrattemperaturen von 300 und 100 K mit einer Aufdampftrate zwischen 0,3 und 2,0 ML/Min aufgedampft. Bei 100 K deponierte Filme wurden anschließend für 10 Minuten auf 300 K angelassen, um die strukturelle Ordnung zu verbessern und die Rauigkeit der Filmoberfläche zu verringern.

Um sicherzustellen, daß das Anlassen nicht die Zusammensetzung der Filme ändert, wurden Diffusionsexperimente durchgeführt. In derartigen Experimenten wurden Eisenfilme mit unterschiedlichen Schichtdicken bei 100 K aufgedampft. Danach wurde die Temperatur in Schritten von 30 bis 50 K erhöht. Unmittelbar nach Erreichen einer höheren Temperatur wurde das Intensitätsverhältnis der $\text{Cu}_{60\text{eV}}$ - und der $\text{Fe}_{47\text{eV}}$ -Linie gemessen und mit jenen vor dem Anlassen verglichen. Nach 20 Minuten bei konstanter Temperatur wurde das Intensitätsverhältnis erneut bestimmt. Ein Anstieg des Augerverhältnisses entweder durch Temperaturerhöhung oder Anlassen bei konstanter Temperatur läßt auf eine Diffusion des Kupfers zur Filmoberfläche schließen. Tabelle 5.1

d (ML)	T_{niedrig} (K)	T_{diff} (K)
2,7	380	410
8,7	400	460
10,0	410	460
14,4	470	510

Tab. 5.1: Diffusion der Tieftemperatur-Eisenfilme

T_{niedrig} ist die höchste gemessene Temperatur ohne Cu-Diffusion; T_{diff} die Temperatur, die zur Diffusion führt (weitere Details siehe Text).

zeigt die höchste gemessene Temperatur ohne Cu-Diffusion (T_{niedrig}) und die Temperatur (T_{diff}), bei der eine Änderung des Augerverhältnisses gemessen wurde. Da T_{niedrig} oberhalb Raumtemperatur liegt, führt eine Anlaßtemperatur von 300 K zu einer vernachlässigbaren Segregation von Kupfer zur Filmoberfläche.

Fe-Filme wurden auf dem Cu_3Au -Substrat bei 300 und 150 K deponiert. Bei 150 K aufgedampfte Filme wurden zur Verbesserung der strukturellen Ordnung und der Verminderung der Rauigkeit der Filmoberfläche für 10 Minuten auf 300 K angelassen.

Das Wachstum der Filme wurde mittels mittlereenergetischer Elektronenbeugung (MEED = Medium Energy Electron Diffraction) charakterisiert. Für Fe-Filme auf Cu(100) wurden Oszillationen zwischen 5 und 11 ML [141–143, 178] in mehreren Reflexen, für Fe-Filme auf Cu_3Au (100) im $(1, \bar{1})$ -Reflex gefunden. Dies ermöglicht eine genaue Kalibrierung des Auger-Intensitätsverhältnisses aus der $\text{Fe}_{703\text{eV}}$ - und der $\text{Cu}_{920\text{eV}}$ -Linie.

Eine entsprechende Eichung wurde für Fe/Cu(100) von Thomassen, May und Feldmann [142, 143, 178] und für Fe/Cu₃Au(100) im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt [179]. Dazu wurden die Auger-Intensitätsverhältnisse, die aus der Periodizitätslänge der MEED-Oszillationen ermittelt wurde, in Abhängigkeit der Schichtdicke ermittelt. Für das System Fe/Cu₃Au(100) wurden zunächst MEED-Kurven aufgenommen und die Aufdampfrate berechnet. In weiteren Versuchen wurde Fe sukzessive aufgedampft und die Auger-Verhältnisse wurden bestimmt. Abschließend wurde erneut eine Eichung der Aufdampfrate mittels MEED-Oszillationen vorgenommen. Beide Eichungen sind in Abb. 5.8 dargestellt.

Die Eisenfilme wurden mit einer homogenen Schichtdickenverteilung oder in einer

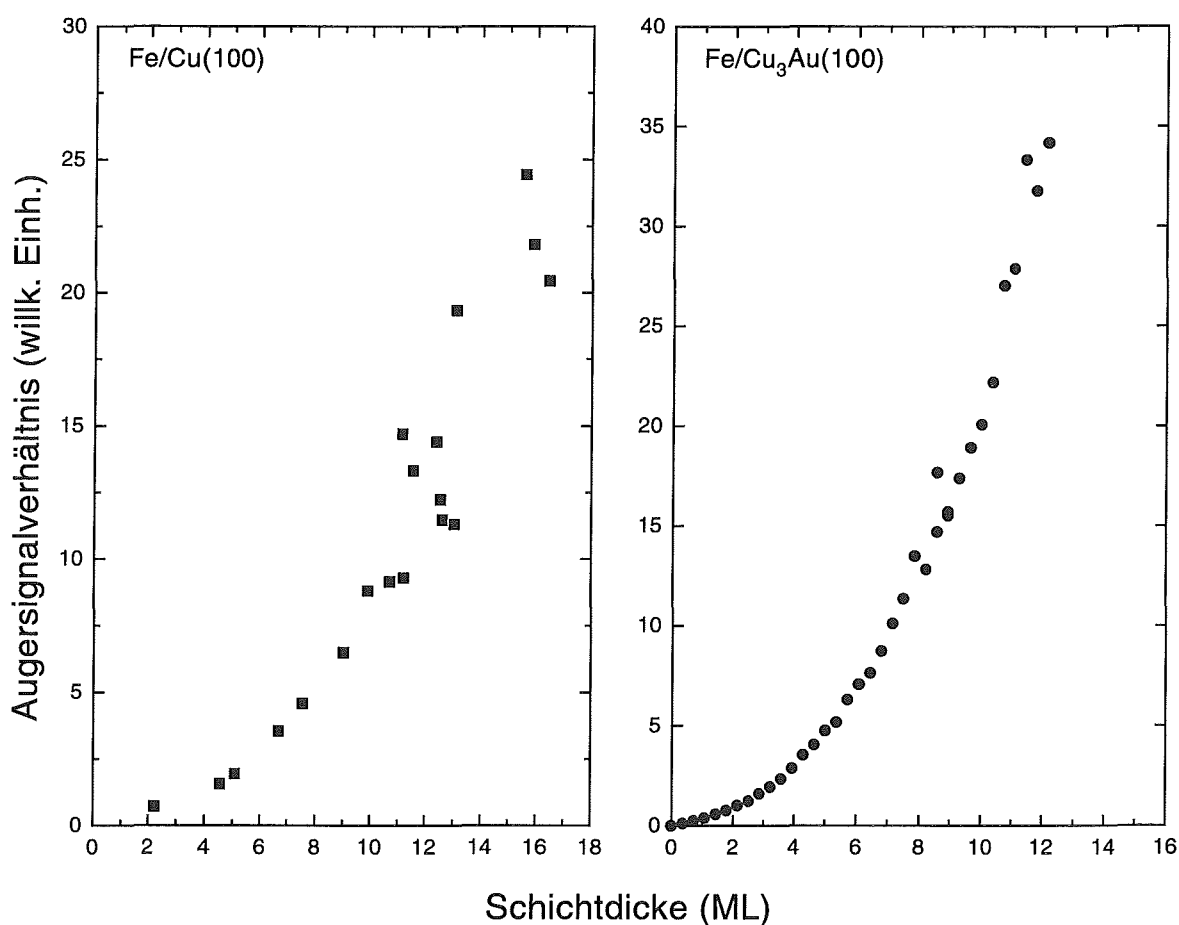


Abb. 5.8: **Abhängigkeit der Auger-Intensitätsverhältnisse von der Schichtdicke**

Das Auger-Intensitätsverhältnis der Fe_{703eV}- zur Cu_{920eV}-Linie wurde mittels MEED-Oszillationen in Abhängigkeit der Schichtdicke geeicht.

Links: Eichung nach Thomassen [142] für Fe/Cu(100), rechts: Eichung für Fe/Cu₃Au(100).

Keil-ähnlichen Form in z-Richtung deponiert. Der maximale Gradient (ML/mm) mit dem das Schichtdickenprofil über den Probendurchmesser anwächst, liegt für das Cu-Substrat bei $(0,08 \pm 0,02)$ 1/mm und für das Cu₃Au-Substrat bei $(0,10 \pm 0,02)$ 1/mm $\times$

dem dicksten Teil des Keils (ML). Das Schichtdickenprofil wurde durch die Augerverhältnisse bestimmt, die an unterschiedlichen Positionen des Keils aufgenommen wurden. Diese Vorgehensweise erlaubt eine Zuordnung der Filmeigenschaften zur Schichtdicke. Der besondere Vorteil dieser Methode liegt in der Ermittlung der Eigenschaften des Films bei kontinuierlicher Schichtdickenänderung; die Änderung der strukturellen, magnetischen und morphologischen Eigenschaften kann so innerhalb eines kleinen Schichtdickenbereichs untersucht werden. Um sicherzustellen, daß diese Änderungen nicht durch die keilförmige Schichtdickenverteilung beeinflußt werden, wurden zum Vergleich Filme mit einer homogenen Schichtdickenverteilung über die Probe präpariert und analysiert. Es wurden bei diesem Vergleich keine signifikanten Unterschiede zwischen keilförmigen und homogenen Filmen detektiert.

Mn-Filme wurden auf dem Cu_3Au -Substrat nur mit homogener Verteilung der Schichtdicke deponiert. Die Aufdampftrate lag zwischen 0,1 und 0,4 ML/Min. Die Schichtdicke wurde durch Oszillationen in den MEED-Wachstumskurven bestimmt. Die Depositionstemperatur wurde zwischen 100 und 300 K variiert.

Kapitel 6

Experimente an ultradünnen Eisenfilmen

Seit der Untersuchung epitaktisch gewachsener Eisenschichten auf einkristallinen Substraten war ein Ziel die Stabilisierung der kfz-Phasen des Eisens [17]. Deshalb wurden die magnetischen Eigenschaften von Eisenfilmen auf verschiedenen Substraten untersucht. Zur Untersuchung der Stabilität dieser Phasen wäre es von Vorteil, die Substratgitterkonstante kontinuierlich variieren zu können. In der Regel ist die Substratgitterkonstante durch die Wahl des Materials jedoch fest vorgegeben. Eine Ausnahme bilden Legierungen, wie z.B. die $\text{Cu}_x\text{Au}_{1-x}$ Legierung [17, 175, 180], bei der die Gitterkonstante vom Mischungsverhältnis x abhängt. Ein größerer Bereich der Variation der Substratgitterkonstanten erschließt sich durch die Verwendung von Halbleitern [29]. Zur Identifizierung der Phase des Eisens ist zum einen die Bestimmung des magnetischen Grundzustands notwendig, um die AF kfz von der FM krz bzw. FM kfz Phase unterscheiden zu können. Zur Unterscheidung der FM Phasen ist zusätzlich eine quantitative Analyse der Struktur erforderlich. Die Strukturparameter dieser Phasen können aus den bekannten Werten des Volumens berechnet werden. Dazu sind die Gitterfehlpassung, das c/a -Verhältnis, das atomare Volumen und der Interlagenabstand für die verschiedenen strukturellen Phasen des Fe auf unterschiedlichen Substratoberflächen berechnet worden (Tab. 6.1). Durch den Vergleich der Spannungsenergien und der Differenz der totalen Energie (Abb. 3.2) wird für das $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ - und alle anderen Substrate mit größerer Gitterkonstante die Stabilisierung der krz(100)-Phase vorhergesagt. Aus Tabelle 6.1 und Abb. 3.2 ist ersichtlich, daß insbesondere das Kupfer als Substrat aufgrund der geringen Gitterfehlpassung dazu geeignet sein sollte, die ferromagnetische und die antiferromagnetische Phase des Eisens zu stabilisieren. Die Mehrzahl der Untersuchungen wurde daher an diesem Substrat in (110)-, (111)- und vorwiegend in (100)-Orientierung vorgenommen. Die Beiträge zu Eisenfilmen auf einem $\text{Cu}(100)$ -Substrat umfassen allein bereits mehr als 500 Veröffentlichungen [181]. Eine vollständige Diskussion aller Aspekte der Filmeigenschaften innerhalb dieses Rahmens ist nicht möglich. Es wurde daher eine Auswahl an Arbeiten getroffen, die in einem engeren Zusammenhang mit den hier untersuchten Eigenschaften steht.

Substrat Gitterkonstante	Fe Phase	f (%)	c/a	V_{Atom} ($\text{\AA}^3$)	d ($\text{\AA}$)
Ni(100) 3,52 $\text{\AA}$	krz	13,3	1,36	10,50	1,70
	AF kfz	1,6	1,48	11,39	1,83
	FM kfz	3,8	1,56	12,06	1,95
Cu(100) 3,61 $\text{\AA}$	krz	11,1	1,29	10,73	1,64
	AF kfz	-0,8	1,38	11,51	1,77
	FM kfz	1,3	1,47	12,19	1,87
Cu ₃ Au(100) 3,745 $\text{\AA}$	krz	7,7	1,19	11,06	1,58
	AF kfz	-4,6	1,26	11,69	1,66
	FM kfz	-2,3	1,33	12,37	1,76
Rh(100) 3,80 $\text{\AA}$	krz	6,3	1,15	11,20	1,55
	AF kfz	-6,2	1,21	11,75	1,63
	FM kfz	-3,8	1,29	12,45	1,72
Pd(100) 3,89 $\text{\AA}$	krz	4,2	1,10	11,41	1,51
	AF kfz	-8,6	1,14	11,87	1,57
	FM kfz	-6,3	1,21	12,57	1,66
Au(100) 4,08 $\text{\AA}$	krz	-0,5	0,99	11,87	1,43
	AF kfz	-14,0	1,01	12,11	1,46
	FM kfz	-11,5	1,07	12,82	1,54

Tab. 6.1: Berechnete Strukturparameter für die unterschiedlichen magnetischen und strukturellen Phasen des Fe auf verschiedenen einkristallinen Substraten

Angegeben sind die Gitterfehlpassung f, das c/a-Verhältnis, das atomare Volumen V_{Atom} und der Interlagenabstand d für die strukturellen und magnetischen Phasen des Eisens auf einkristallinen Metallsubstraten mit steigender Gitterkonstante. Abweichend von Abb. 3.3 wurden zum Vergleich experimentell bestimmte Werte für die Gitterkonstanten aus Tab. 3.1 zugrundegelegt (AF kfz: $a_0 = 3,58 \text{ \AA}$, FM kfz: $a_0 = 3,66 \text{ \AA}$, FM krz $a_0 = 2,87 \text{ \AA}$).

6.1 Ultradünne Eisenfilme auf Cu(100)

Im folgenden Abschnitt werden frühere Ergebnisse zu ultradünnen Eisenfilmen auf Cu(100) zusammengefaßt. Dazu werden zunächst Ergebnisse aus Untersuchungen anderer Arbeitsgruppen vorgestellt. Danach wird im Detail auf die bisherigen Ergebnisse der eigenen Arbeitsgruppe eingegangen [64, 114, 141–143, 178, 182, 183].

In der Mehrzahl der Experimente wurden Eisenfilme bei Raumtemperatur auf Cu(100) deponiert (Tab. 6.2).

Pescia et al. [184] fanden mittels spinpolarisierter Photoemission eine senkrechte Ma-

Ref.	Meßtechnik	Schichtdicke Depositionstemperatur	magnetischer Grundzustand Curie- oder Néel-Temperatur	magnetische Anisotropie
[184]	spinpolarisierte Photoemission	1, 3, 5 ML, 300 K	ferromagnetisch (300 K)	3, 5 ML : $\perp$ für $T < 30$ K
[185] [186]	MOKE	1-8 ML, 110 -350 K	ferromagnetisch	$d \leq 6$ ML: $\perp$ $d > 6$ ML: $\parallel$
[187]	spinpolarisierte Photoemission MOKE	bis 20 ML, 420-460 K	ferromagnetisch (>420 K)	$\parallel$
[188]	spinpolarisierte Photoemission	bis 20 ML, 300 K	ferromagnetisch (≈ 300 K) für $d < 14$ ML, > 500 K für $d > 14$ ML)	$d < 14$ ML: $\perp$ $d > 14$ ML: $\parallel$
[189]	Brillouin Streuung	bis 20 ML, 300 K	$d < 6$ ML und $d > 17$ ML: ferromagnetisch (350 K) $6 \text{ ML} < d < 17 \text{ ML}$: paramagnetisch	$d < 6$ ML: $\perp$ $d > 17$ ML: $\parallel$
[190] [173]	Mössbauer Spektroskopie	10-17 ML, 473 K	antiferromagnetisch (65 K)	-
[191]	Mössbauer Spektroskopie	4 ML, 300 K	antiferromagnetisch (40 K)	-
[15] [16]	Mössbauer Spektroskopie	5 ML, 300 K	50 % antiferromagnetisch 50 % ferromagnetisch	$\parallel$

Tab. 6.2: Übersicht über experimentelle Ergebnisse aus Untersuchungen an Eisen-schichten auf Cu(100)

Die Tabelle ist Ref. [64, 142] entnommen ($\perp$: Magnetisierung senkrecht zur Oberfläche, $\parallel$: Magnetisierung parallel zur Filmoberfläche).

gnetisierung für 3 und 5 ML Filme, die bei Raumtemperatur aufgedampft worden waren. Eine systematische Untersuchung der Abhängigkeit der magnetischen Eigenschaften [185] von Liu et al. ergab eine senkrechte Magnetisierung zwischen 1 und 6 ML für Depositionstemperaturen zwischen 100 und 350 K. Oberhalb 8 ML waren die Filme in der Ebene magnetisiert. Ferromagnetische Ordnung wurde auch für Wachs-

tumstemperaturen von 420 K bis zu einer Schichtdicke von 20 ML gefunden [187]. In anderen Untersuchungen an Filmen, die bei 300 K deponiert wurden, wurde, abweichend von den vorher erwähnten Messungen, eine senkrechte Magnetisierung bis 14 ML mit einer Curie-Temperatur von ≈ 300 K und eine parallele Magnetisierung oberhalb 14 ML mit einer Curie-Temperatur größer als 500 K ermittelt [188]. Nach Ergebnissen von Xhonneux mittels Brillouin-Streuung [189] sind die gleichen Schichten unterhalb 6 und oberhalb 17 ML ferromagnetisch geordnet und zeigen dazwischen paramagnetisches Verhalten. Schließlich bewiesen Messungen mittels Mössbauerspektroskopie von Macedo et al. [190] und Hallbauer et al. [191] an 4 ML dicken Schichten, daß die Spins der Eisenfilme antiferromagnetisch geordnet sind. Bei 5 ML [16] liegt sowohl ein antiferromagnetischer als auch ein ferromagnetischer Zustand mit paralleler Magnetisierung vor. In dem gleichen Schichtdickenbereich (5 – 7 ML) fanden Pappas et al. [192] jedoch einen ferromagnetischen Zustand eines Films, der bei 110 K aufgedampft und auf 300 K angelassen worden war. In diesem Schichtdickenbereich ändert sich die Magnetisierungsrichtung in Abhängigkeit der Temperatur von senkrecht nach parallel. Der Stabilitätsbereich der senkrechten Magnetisierung verringert sich mit steigender Temperatur.

Die Komplexität der magnetischen Eigenschaften kann Kennzeichen einer ausgeprägten Abhängigkeit des Magnetismus von den Präparationsbedingungen sein. Sie verlangt allerdings auch eine eingehende Analyse der strukturellen Eigenschaften. Ursprünglich wurde angenommen, daß das Eisen mit einer verspannten kfz Struktur unterhalb einer kritischen Dicke aufwächst und sich oberhalb dieser Dicke krz Fe bildet [193–195]. Während Pescia et al. [184] eine obere Grenze für das pseudomorphe Wachstum von 7 bis 8 ML feststellten, wurden von Darici [194] mehr als 10, von Lu [175] 18 und von Kief [196] 21 ML angegeben. Die Struktur der Filme wurde jedoch in den meisten Fällen nicht quantitativ bestimmt. Jesser [193] fand Anzeichen für die Bildung von krz(110)-Fe in Nishiyama-Wassermann-Orientierung [197] auf kfz(111)-Facetten oder in Pitsch-Orientierung [198] auf (100)- oder (110)-Facetten. Ergebnisse aus Röntgenphotoelektronenstreuung [199] zeigen die Bildung von krz Fe mit einer (100)-Orientierung nahezu parallel zur Oberflächennormalen.

Diese Ergebnisse lassen keine eindeutige Schlußfolgerung auf die Orientierung der krz Phase bei großen Schichtdicken zu.

Auch für die Struktur bei kleineren Schichtdicken zeichnet sich ein komplexes Bild. In LEED- und HREELS-Untersuchungen [137, 200, 201] wurde eine Abhängigkeit des LEED-Beugungsbildes von der Schichtdicke beobachtet. So wurde zwischen 2 und 4 ML eine (4×1) -Überstruktur und zwischen 6 und 7 ML eine (2×1) p2mg-Überstruktur gefunden. Die (2×1) -Phase des Eisens wurde durch eine quantitative Analyse von LEED-I(E)-Spektren [202] bestimmt. Das Ergebnis dieser Analyse ist in Abb. 6.1 (rechts) dargestellt. Die Struktur ist durch eine antiparallele Auslenkung nebeneinander liegender atomarer Reihen der obersten Lage in [011]-Richtung gekennzeichnet.

Das LEED-Beugungsbild entsteht durch die Überlagerung zweier Domänen, die um 90° gegeneinander gedreht sind. In der LEED-Analyse wurden die ersten drei Interlagenabstände d_{12} , d_{23} , d_{34} sowie die Auslenkung SD in der Filmebene optimiert. Die beste Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment mit einem Pendry-R-Faktor von 0,25 wurde für folgende Struktur gefunden:

$$SD = 0,14 \pm 0,09 \text{ \AA}$$

$$d_{12} = 1,88 \pm 0,02 \text{ \AA}$$

$$d_{23} = 1,81 \pm 0,03 \text{ \AA}$$

$$d_{34} = 1,77 \pm 0,04 \text{ \AA}.$$

Die oberste Eisenlage ist damit nicht nur rekonstruiert, sondern der erste Interlagenabstand auch beträchtlich expandiert. Dieses Verhalten ist ungewöhnlich, da für die meisten nicht magnetischen Metalle in der Regel eine Kontraktion des ersten Lagenabstandes beobachtet wird [203]. Quantitative Analysen der I(E)-Spektren dünner Eisenfilme anderer Gruppen [175, 183, 194, 202] ergaben zwischen 6 und 12 ML ähnliche Werte für den Interlagenabstand (Tabelle 6.3).

Mit den Modellen einer idealen kfz Struktur konnte in einer voll-dynamischen Analyse

Schichtdicke	Referenz	T_{Exp}	d_{12} (Å)	d_{23} (Å)	d_b (Å)
5 ML	[195]	300	$1,88 \pm 0,02$	$1,92 \pm 0,02$	$1,92 \pm 0,02$
12 ML	[175]	300	$1,84 \pm 0,03$	$1,76 \pm 0,03$	$1,77 \pm 0,03$
10 ML	[194]	300	$1,81 \pm 0,02$	$1,78 \pm 0,02$	$1,78 \pm 0,02$
6 ML	[202]	90	$1,88 \pm 0,02$	$1,81 \pm 0,03$	$1,77 \pm 0,03$
8 ML	[183]	300	$1,85 \pm 0,02$	$1,80 \pm 0,03$	$1,77 \pm 0,03$
8 ML		170	$1,87 \pm 0,02$	$1,80 \pm 0,03$	$1,77 \pm 0,03$
11 ML		300	$1,85 \pm 0,02$	$1,80 \pm 0,03$	$1,77 \pm 0,03$

Tab. 6.3: Vergleich der experimentell bestimmten Interlagenabstände für Fe-Filme auf einem Cu(100) Substrat

Alle Filme wurden bei Raumtemperatur aufgedampft. T_{Exp} ist die Temperatur, bei der die I(E)-Spektren gemessen wurden. Alle Filme zeigten eine (1×1) -Überstruktur, ausgenommen Ref. [202], in der die $(2 \times 1)p2mg$ -Überstruktur analysiert wurde. (Tabelle nach Referenz [64, 142])

von I(E)-Spektren für 1 und 3 ML dicke Filme [175] keine ausreichende Übereinstimmung erzielt werden, was auf eine Abweichung der Struktur der Eisenfilme von einem idealen kfz Kristall schließen läßt. In die gleiche Richtung weisen SEXAFS (Surface Extended X-Ray Adsorption Fine Structure)-Messungen [204] für kleine Schichtdicken. Diese Messungen an Schichten, die bei Raumtemperatur deponiert wurden, zeigten, daß die Eisenatome bis 4 ML ähnlich der kfz Struktur, jedoch mit einer beträchtlichen

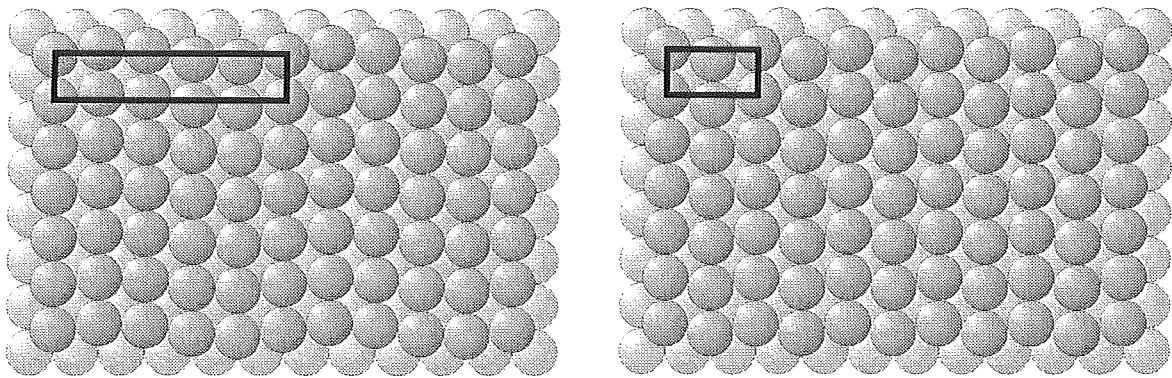


Abb. 6.1: Modelle der Überstrukturen in den Bereichen I und II

Nach dem Modell von Daum [137] für die (5×1) (links) und die $(2 \times 1)p2mg$ (rechts) sind die Oberflächenatome des Films sinusförmig in $[011]$ -Richtung ausgelenkt. Das Modell der $(2 \times 1)p2mg$ wurde durch eine quantitative Analyse von $I(E)$ -Spektren bestätigt [202].

vertikalen Unordnung angeordnet sind. Diese Unordnung verursacht die gemessene Verbreiterung der Maxima der Radialverteilungsfunktionen. Oberhalb 4 ML wurden schärfere Maxima der Radialverteilungsfunktion gefunden. Die atomaren Abstände und die ermittelte Koordination waren charakteristisch für unverzerrtes kfz Fe.

(4×1) -, (5×1) - und (2×1) -Überstrukturen wurden in derselben Reihenfolge auch von anderen Gruppen beobachtet. Egawa et al. [205] fanden eine (4×1) -Überstruktur bei 3 und eine (2×1) -Überstruktur bei 8 ML; eine (4×1) - (5×1) -Überstruktur wurde von Pappas [206] unterhalb von 4,4 ML beobachtet. Für die (4×1) - und (5×1) -Überstruktur sind verschiedene Modelle vorgeschlagen worden. Pappas erklärte die Überstruktur mit der Existenz von Terrassen in $[011]$ - und $[0\bar{1}1]$ -Richtung mit einer mittleren Länge von 4 bis 5 nächsten Nachbarabständen. Für die (4×1) - bzw. die (5×1) -Struktur wurde von Daum [137] in Anlehnung an die $(2 \times 1)p2mg$ eine sinusförmige Auslenkung nebeneinander liegender atomarer Reihen der Oberfläche in $[011]$ -Richtung vorgeschlagen (Abb. 6.1 links). Kief et al. [196] schlugen als Realraummodell für die (5×1) -Struktur eine Rekonstruktion der Oberfläche vor, wie sie bei der kfz Ir-, Pt- und Au-Oberfläche beobachtet wird.

Ferner ist oberhalb 10 ML eine (3×1) -Überstruktur gefunden worden [205], zu deren Erklärung noch kein Strukturmodell vorgeschlagen worden ist.

Das Wachstum der Eisenschichten ist ebenfalls kontrovers diskutiert worden. Dies betrifft insbesondere den Wachstumsmodus bei sehr kleiner Schichtdicke. In früheren Studien [137, 184, 200] wurde lagenweises Wachstum durch die Existenz von Knicken im Verlauf des Auger-Signals in Abhängigkeit der Depositionszeit bestimmt. Eine kombinierte Auger- und Rutherford-Rückstreu-Analyse (RBS) [207] zeigte dagegen, daß die ersten beiden Knickpunkte auf die Komplettierung von Bilagen zurückzuführen sind. Die Bestimmung der Knickpunkte durch die unterschiedliche Steigung der Auger-

Verhältnisse läßt sich mit wachsender Schichtdicke nur schwer feststellen. Röntgenphotoelektronenbeugung und Reflektionsbeugung hochenergetischer Elektronen (RHEED) [208] zeigten, daß das Eisen bereits bei Raumtemperatur bis 4 ML agglomeriert. Rastertunnelmikroskopuntersuchungen [209,210] bestätigten Abweichungen vom lagenweisen Wachstum unterhalb 2 ML. Oberhalb dieser Bedeckung wächst das Eisen nahezu perfekt lagenweise.

Neben dem Wachstumsmodus war auch das Interdiffusionsverhalten von Eisen- und Substratatom gegenstand mehrerer Experimente. Aufnahmen mit dem Rastertunnelmikroskop [209,210] demonstrierten, daß die meisten Eisenatome unterhalb 0,2 ML in Form planarer Einschlüsse in die Oberfläche des Substrats diffundieren [209–214]. Neuere Experimente mittels niederenergetischer Ionenstreuung (LEIS) [215] zeigten, daß bei einer Depositionstemperatur von 140 K Fe-Atome bei einer Bedeckung von 0,1 ML in die Substratoberfläche diffundieren. Eine Defektdichte, die mit jener bei Raumtemperatur deponierter Filme vergleichbar ist, wurde nach einem Anlassen der Schichten auf 300 K oberhalb 3 ML gefunden. Zur Unterdrückung der Interdiffusion der Fe-Filme ist es daher geboten, Eisen bei tiefer Temperatur ≈ 100 K zu deponieren und auf 300 K anzulassen. Diese Präparation der Filme wurde zur Reduktion der Diffusion von Kupferatomen auf den Eisenfilm von Steigerwald et al. [208,216,217] vorgeschlagen.

Die ausgeprägte Abhängigkeit der Eigenschaften der Eisenfilme von den Präparationsbedingungen und die Widersprüchlichkeit der Ergebnisse veranlaßten Wuttig, Thomassen, May und Feldmann [64,141–143,178,182,183] eine in-situ-Untersuchung des Wachstums, der Struktur und des Magnetismus der Eisenschichten, die bei Raumtemperatur auf einem Cu(100)-Substrat deponiert wurden, vorzunehmen. Zur Charakterisierung des Wachstums wurden MEED-Kurven aufgenommen (Abb. 6.2). Bei 2 ML liegt ein Maximum der Intensität vor, bei 4 ML steigt die mittlere Intensität an. Oberhalb dieser Dicke sind MEED-Oszillationen mit kleiner Amplitude bis ca. 11 ML sichtbar, die charakteristisch für ein lagenweises Wachstum der Schichten sind. Dieser Verlauf der Kurven ist konsistent zu Ref. [217]. Eine Berechnung der MEED-Kurve aus RTM-Messungen [209,210,213,214] bestätigt ebenfalls diesen Verlauf. Oberhalb 11 ML fällt die Intensität steil ab, was auf ein 3D-Wachstum schließen läßt. Damit läßt sich das Intensitätsverhalten in drei Bereiche aufteilen (I: 0 bis 4 ML, II: 5 bis 11 ML, III: größer als 11 ML).

Der Übergang von Bereich II zu Bereich III läßt sich durch eine Kontamination der Filmoberfläche bei einem CO-Partialdruck von $7 \cdot 10^{-8}$ Pa zu größeren Schichtdicken hinauszögern. Mit dem Übergang ist die Bildung von Versetzungen und damit ein Verlust an struktureller Ordnung verbunden [141]. Die Bildung der Versetzungen wurde durch Diffusionsmessungen bewiesen, bei denen Kupferatome im Bereich III bereits bei einer Anlaßtemperatur von 577 K vom Substrat zur Filmoberfläche diffundieren, während im Bereich II bei dieser Temperatur keine Diffusion beobachtet wurde. Beim

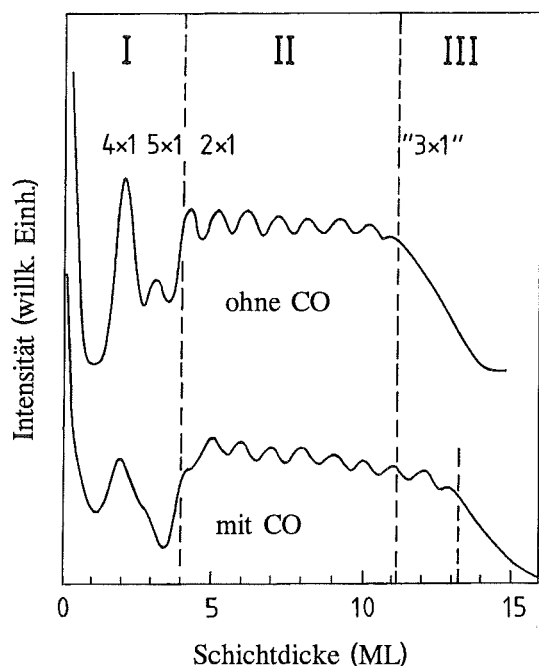


Abb. 6.2: MEED-Kurven des (0,0)-Reflexes bei 300 K

Dargestellt ist die Intensität des (0,0)-Reflexes in Abhängigkeit der Schichtdicke. Die Kurven wurden bei einer Elektronenenergie von 3 keV und einem Einfallswinkel von $81,1^\circ$ gegen die Oberflächennormale und einem azimuthalen Winkel von 4° aus der $k_{\text{FZ}}[001]$ -Richtung aufgenommen. Das Intensitätsverhalten läßt sich in drei Bereiche (I: 0 bis 4 ML, II: 5 bis 11 ML, III: > 11 ML) aufteilen (obere Kurve). Dabei läßt sich der Existenzbereich des Bereichs II durch eine Erhöhung des CO-Partialdruckes auf 7×10^{-8} Pa (untere Kurve) zu größeren Schichtdicken ausdehnen. Mit wachsender Bedeckung werden vier verschiedene Überstrukturen beobachtet (Ergebnisse aus [64, 142, 178]).

Übergang von II nach III wurden Streifen in $k_{\text{FZ}}[011]$ -Richtung im LEED-Bild beobachtet. In einem möglichen Modell [141, 142] bilden sich diese Versetzungen zum Abbau der Verspannungen im Film. Vollständige oder Partialversetzungen führen zu Stapelfehlern und der Bildung von Stufenkanten in $k_{\text{FZ}}[011]$ -Richtung, die eine bevorzugte Position zur Kondensation von Adatomen darstellen. Als Folge davon bilden sich „Wälle“ in $k_{\text{FZ}}[011]$ -Richtung. Mit der Bildung der Versetzungen ist das Auftauchen einer „(3 × 1)“ ähnlichen Überstruktur verbunden, die innerhalb weniger Monolagen oberhalb des Übergangs aufgrund des diffus werdenden Beugungsbildes nicht mehr beobachtet werden kann. Interessanterweise bildet sich diese Struktur oberhalb 9 ML irreversibel auch nach dem Einkühlen des Films auf 170 K und nach kurzzeitigem Ätzen mit Argon-Ionen.

Im Bereich I wurde bei ca. 2 ML eine (4×1) - und bei 4 ML eine (5×1) -Überstruktur (Abb. 6.3 links) und zwischen 6 und 7 ML die $(2 \times 1)p2mg$ (Abb. 6.3 rechts) gefunden. Damit besteht eine eindeutige Koinzidenz zwischen dem Existenzbereich der Überstrukturen und dem MEED-Intensitäts- bzw. dem Wachstumsverhalten der Eisenschichten bei Raumtemperatur (Abb. 6.2). Im nächsten Schritt wurde die Struktur der Eisenfilme im Bereich II und III durch die Analyse von $I(E)$ -Spektren quantitativ bestimmt [183]. Für den Bereich III wurde angenommen, daß sich möglicherweise eine $krz(100)$ -Phase des Eisens bildet. Für diese Phase konnte jedoch keine ausrei-

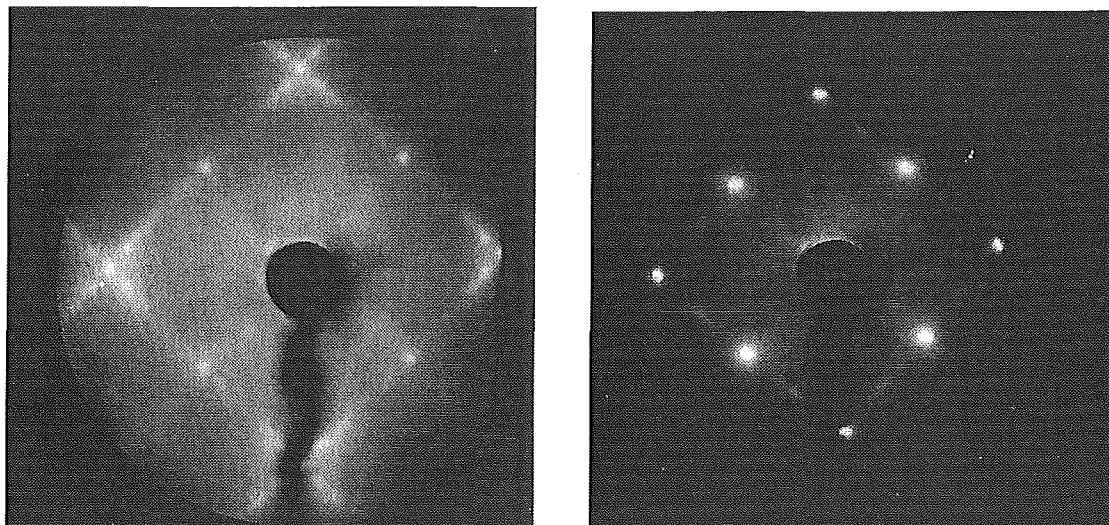


Abb. 6.3: **LEED-Bilder von RT-Eisenfilmen auf Cu(100)**

Links: (5×1) , 4 ML, $E = 164$ eV; rechts: $(2 \times 1)p2mg$, 6 ML, $E = 140$ eV (Beugungsbilder aus Ref. [142, 143]).

chende Übereinstimmung zwischen den berechneten und experimentell ermittelten $I(E)$ -Spektren erreicht werden. Dasselbe gilt für Fe-Filme im Übergangsbereich, bei denen sich die „ (3×1) “-Struktur nach dem Einkühlen gebildet hatte. Im Bereich II ergab die quantitative Analyse, daß das Eisen verspannt in einer kfz Phase aufwächst, bei der der erste Interlagenabstand beträchtlich expandiert ist (Tab. 6.3). Eine kleinere Expansion wird auch für den zweiten Interlagenabstand ermittelt.

Sich an diese Messung anschließende Untersuchungen der magnetischen Eigenschaften in Abhängigkeit der Schichtdicke mittels des magnetooptischen Kerr-Effekts beschäftigten sich mit der Frage, inwieweit magnetische und strukturelle Eigenschaften korrelieren. Die Ergebnisse aus diesen Experimenten sind in Abb. 6.4 gezeigt. Im Bereich I und III steigt die Magnetisierung mit der Schichtdicke linear an, was für eine homogene Magnetisierung des gesamten Films charakteristisch ist. Im Bereich II ist das Kerr-Signal hingegen bedeutend kleiner und konstant. Daher kann nicht der ganze Film ferromagnetisch sein. Da eine Kontamination der Oberfläche mit CO mit $0,5$ Langmuir ($1 \text{ L} = 10^{-6} \text{ Torr} \cdot \text{s}$) die Curie-Temperatur um 40 K absenkt, ist der Magnetismus an oder nahe der Oberfläche des Films lokalisiert. Diese Eigenschaft des Films korreliert mit der Struktur der Eisenfilme im Bereich II, die durch die Expansion des ersten Lagenabstandes gekennzeichnet ist. Die Eigenschaften der Eisenfilme im Bereich II sind damit ein gutes Beispiel für eine Lokalisierung des Magnetismus an der Oberfläche des Films aufgrund der reduzierten Koordinationszahl der Oberflächenatome. Dieser

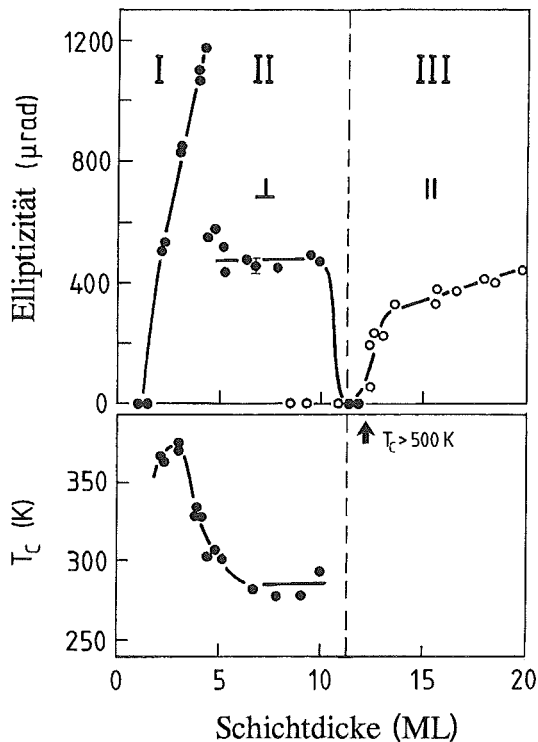


Abb. 6.4: Abhängigkeit der Kerr-Elliptizität und der Curie-Temperatur der RT-Filme von der Schichtdicke

Obere Kurve: Kerr-Elliptizität in Sättigung extrapoliert zu 0 K. Die offenen und gefüllten Symbole bezeichnen Messungen in polarer beziehungsweise longitudinaler Geometrie. Es werden zwei Bereiche mit unterschiedlicher magnetischer Anisotropie beobachtet. In Bereich I und III steigt das Signal linear an, im Bereich II ist es konstant.

Untere Kurve: Curie-Temperatur in Abhängigkeit der Schichtdicke.

Effekt wird als *magnetic live surface layer* [182] bezeichnet.

Die Änderungen der Filmeigenschaften mit den Übergängen zeigen sich auch in der Curie-Temperatur. Im Bereich I, in dem der Film homogen magnetisiert ist, ist ein Maximum bei 3 ML erkennbar. Im Bereich II konstanter Magnetisierung ist auch die Curie-Temperatur konstant. Beim Übergang von II nach III schließlich springt sie auf Werte oberhalb 500 K. Im Bereich I und II ist die Magnetisierung senkrecht zur Oberfläche orientiert, im Bereich III parallel. Die parallele Magnetisierungsrichtung ist mit der Umordnung des Films von II nach III verknüpft. Dies zeigt sich darin, daß der Stabilitätsbereich der senkrechten Anisotropie genau wie jener des lagenweisen Wachstums in Abb. 6.2 durch eine Kontamination mit CO expandiert werden kann und die Bildung von Streifen im LEED-Bild vermieden werden kann. Ein Einkühlen des Films führt zur Bildung von Streifen im LEED-Bild und zu einer Hysteresekurve im longitudinalen Kerr-Effekt. Die senkrechte Magnetisierung ist somit für den Bereich II charakteristisch, während die longitudinale Magnetisierung nur im Bereich III auftritt. Da nur eine konstante Anzahl an Lagen ferromagnetisch ist, steigt die Formanisotropieenergie nicht mit wachsender Schichtdicke an. Dies erklärt, warum bei der Kontamination mit CO bis zum Abbruch des lagenweisen Wachstums eine senkrechte Magnetisierung gemessen wird, reicht jedoch nicht zur Erklärung der Änderung der Magnetisierungsrichtung beim Übergang von II nach III aus. Ein struktureller Übergang von Bereich II nach III ist daher als Ursache für die Bildung der longitudinalen

Magnetisierung und der Streifen im LEED-Bild plausibel.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Untersuchung der magnetischen, strukturellen und morphologischen Eigenschaften fortgesetzt. Dabei wurde zur Überprüfung des konstanten Verhaltens der Magnetisierung im Bereich II eine bessere Auflösung der magnetischen Eigenschaften von der Schichtdicke angestrebt. Weitere Ziele waren eine quantitative strukturelle Analyse der Filme in den Bereichen I und III und eine eingehende Charakterisierung der magnetischen Eigenschaften im Bereich I. Darüber hinaus wurde die Abhängigkeit der Filmeigenschaften von den Präparationsbedingungen untersucht. Dazu wurden die Fe-Schichten nicht nur bei 300 K (RT-Filme), sondern auch bei 100 K aufgedampft. Die bei der tieferen Temperatur präparierten Lagen wurden zur Verbesserung der strukturellen Ordnung und zur Verringerung der Rauigkeit der Filme für 10 Minuten auf 300 K angelassen (TT-Filme).

6.1.1 Magnetismus

Zur genaueren Ermittlung der Abhängigkeit der magnetischen Eigenschaften von der Schichtdicke wurden Messungen an keilförmigen Schichtdickenverteilungen bei einer konstanten Temperatur von 166 K vorgenommen. Die Ergebnisse zu den RT-Filmen (Deposition bei 300 K) sind in Abb. 6.5 dargestellt. Das Diagramm zeigt die bereits in Abb. 6.4 vorgestellte, typische Abhängigkeit des Kerr-Signals von der Schichtdicke. Zwischen 2,0 und 3,5 ML steigt es linear mit einem Gradienten von $235 \pm 15 \mu\text{rad}/\text{ML}$ bis auf einen maximalen Wert von $860 \mu\text{rad}$ an. Zwischen 3,5 und 5 ML fällt es auf $320 \mu\text{rad}$ ab. Im Bereich II ist das Signal im wesentlichen konstant. Ab etwa 9,5 ML entwickelt sich ein longitudinales Kerr-Signal, das mit zunehmender Schichtdicke schnell ansteigt und oberhalb 12 ML mit einem Gradienten von $27 \pm 2 \mu\text{rad}/\text{ML}$ anwächst. Das polare Signal fällt dagegen innerhalb 1 ML auf einen nicht mehr meßbaren Wert ab. Eine außergewöhnliche Änderung zeigt sich im Verlauf der Koerzitivfeldstärke. Unterhalb etwa 3,5 ML ist sie mit etwa 60 Oe nahezu konstant. Oberhalb dieser Schichtdicke steigt sie jedoch um einen Faktor 12,5 auf Werte über 1000 Oe bei etwa 4,8 ML an. Schließlich fällt sie bis auf 300 Oe bei 6 ML ab und bleibt dann im Bereich II annähernd konstant. Im Übergangsbereich zwischen II und III steigt die polare Koerzitivfeldstärke erneut, jedoch nur auf einen Wert von 360 Oe an. Die longitudinale Koerzitivfeldstärke zeigt in diesem Bereich ein Maximum von 400-500 Oe und fällt dann monoton auf einen Wert von ca. 70 Oe bei 20 ML ab. Die ausgeprägte Abhängigkeit der longitudinalen Koerzitivfeldstärke von der Schichtdicke könnte durch eine Änderung der longitudinalen Anisotropie hervorgerufen werden. Zur Überprüfung dieser These, wurden Hysteresekurven in $k\text{fz}[001]$ -, $[011]$ - und unter einem Winkel von $9,8^\circ$ zur $[001]$ -Richtung gemessen (Abb. 6.6). Alle Kurven zeigen ein Maximum der longitudinalen Koerzitivfeldstärke im Übergangsbereich von II nach III mit vergleichbaren Werten der Koerzitivfeldstärke. Das Auftreten dieses Maximums ist daher unabhängig von der Richtung, in die das externe Feld angelegt wird. Das Maximum wird nicht durch die Anisotropie hervorgerufen.

Die Vergrößerung des Stabilitätsbereichs der senkrechten Magnetisierung und des lagenweisen Wachstums durch eine Kontamination mit CO (Abb. 6.2) und die Beobachtung eines longitudinalen Kerr-Signals durch Einkühlen der Filme auf 170 K oberhalb 9 ML sind charakteristisch für eine empfindliche Abhängigkeit der Eigenschaften der Eisenfilme von den Präparationsbedingungen. Zur Ermittlung des Einflusses der Präparationsbedingungen auf die magnetischen Eigenschaften wurden Filme untersucht, die bei 100 K deponiert und auf 300 K angelassen wurden (TT-Filme). In Abb. 6.7 sind dazu die Sättigungsmagnetisierung, die Remanenz, die Koerzitivfeldstärke und die Curie-Temperatur als Funktion der Bedeckung gezeigt. Zwei Bereiche mit unterschiedlichen magnetischen Eigenschaften können eindeutig unterschieden werden. Oberhalb 5,8 ML (B) werden ausschließlich Hysteresekurven in longitudinaler Geometrie, jedoch keine

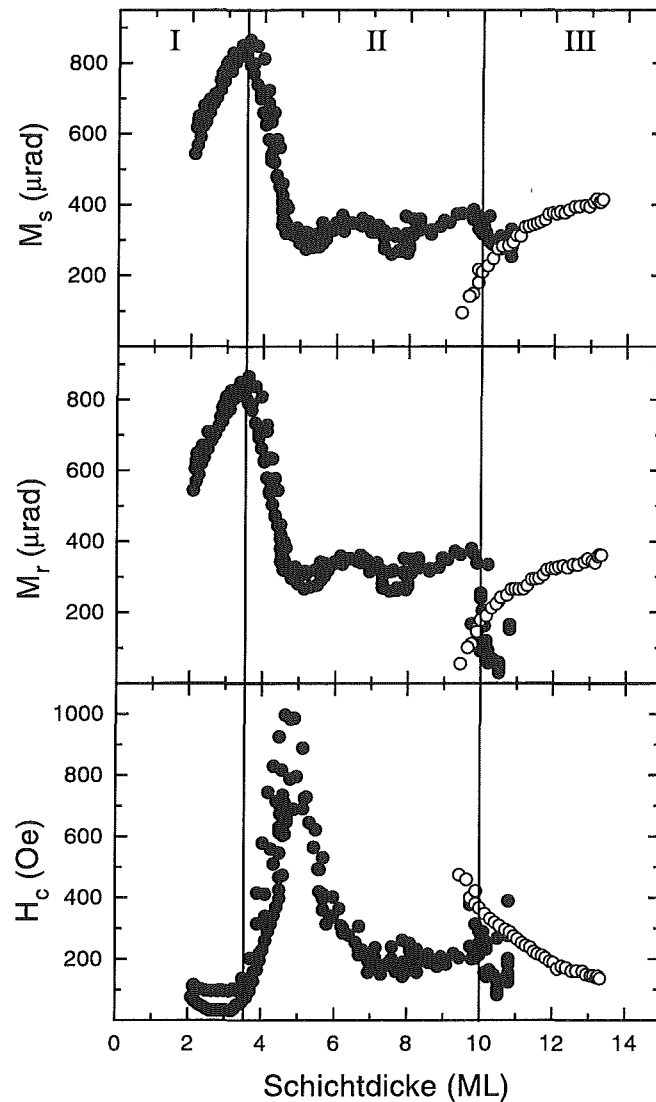


Abb. 6.5: Abhängigkeit der magnetischen Eigenschaften der RT-Filme von der Schichtdicke

Abgebildet sind die Kerr-Elliptizität in Sättigung (M_s) und in Remanenz (M_r) sowie die Koerzitivfeldstärke (H_c) in Abhängigkeit der Schichtdicke. Die magnetischen Eigenschaften lassen sich analog zu Abb. 6.4 in drei Bereiche aufteilen.

in polarer Geometrie gemessen. Die Sättigungsmagnetisierung wächst linear mit der Schichtdicke ($29 \pm 2 \mu\text{rad}/\text{ML}$); der Film ist homogen magnetisiert. Bei Filmen unterhalb 4,5 ML (A) werden nur Hysteresekurven in polarer Geometrie gemessen. Wiederum steigt die Kerr-Elliptizität linear mit der Schichtdicke ($271 \pm 15 \mu\text{rad}/\text{ML}$) an. Damit ist auch im Bereich A der gesamte Film ferromagnetisch. Die Magnetisierung ändert zwischen 4,5 und 5,8 ML ihre Richtung von senkrecht nach parallel.

Der konstante Verlauf der Magnetisierung, wie er für die RT-Filme (Abb. 6.4) zwischen 5 und 10 ML gefunden worden ist, wird nicht beobachtet; der Stabilitätsbereich der

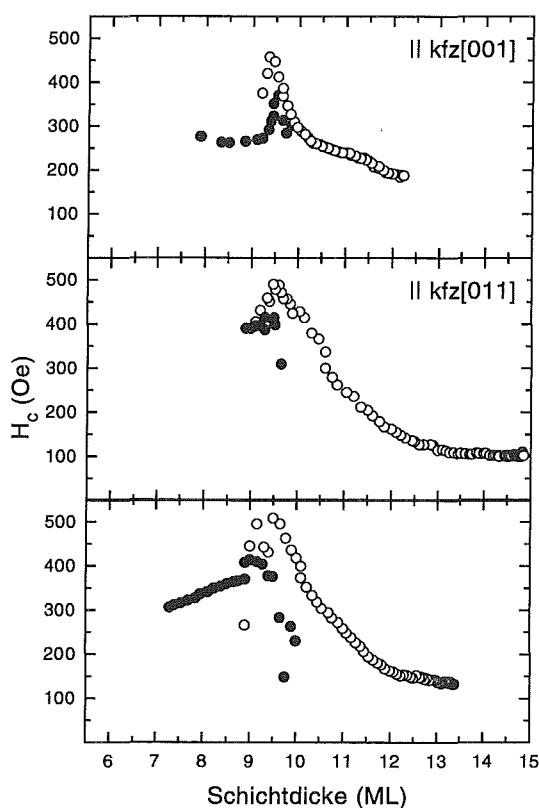


Abb. 6.6: Verlauf der Koerzitivfeldstärke beim Übergang von II nach III. Die polare (gefüllte Symbole) und longitudinale Koerzitivfeldstärke (offene Symbole) wurden bei einem angelegten, äußeren Feld in kfz[001]- (oben), kfz[011]- (Mitte) und $9,8^\circ$ aus der kfz[001]-Richtung (unten) in Abhängigkeit der Schichtdicke bestimmt.

senkrechten Anisotropie ist reduziert.

Zur weiteren Analyse der Unterschiede zwischen RT- und TT-Filmen wurde die Curie-Temperatur der TT-Filme bestimmt. Die polare Curie-Temperatur fällt von 465 K bei 2,2 ML auf 360 K bei 4,0 ML ab, bevor die longitudinale oberhalb 5,5 ML steil anzusteigen beginnt. Im Gegensatz zu den TT-Filmen ist bei den RT-Filmen die Curie-Temperatur T_c mit ca. 380 K bei 3 ML (Abb. 6.4) maximal. Im Bereich A setzt eine Diffusion von Kupfer oberhalb 380 K ein, was die Zuverlässigkeit der Angabe über die Curie-Temperatur in diesem Schichtdickenbereich einschränkt. Das gleiche gilt für Schichtdicken größer als 6,5 ML im Bereich B, weil die Curie-Temperatur oberhalb dieser Bedeckung größer als T_{diff} (Tabelle 5.1) ist. Bei Filmen um 4,5 ML setzt die Kupferdiffusion erst oberhalb 400 K ein, so daß das Minimum der Curie-Temperatur nicht durch die Diffusion des Kupfers hervorgerufen wird. Die Curie-Temperatur der TT-Filme, die kontinuierlich im Bereich A abfällt, ist deutlich höher als die der RT-Filme im Bereich I. Zwischen 4,5 und 8 ML wird im Gegensatz zu den RT-Filmen keine konstante sondern eine kontinuierlich ansteigende Curie-Temperatur gemessen.

Ein weiterer, sehr deutlicher Unterschied zwischen beiden Präparationen zeigt sich in der Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke von der Filmdicke. Die polare Koerzitivfeldstärke der TT-Filme fällt von 140 Oe bei 2,5 ML auf 20 Oe bei 5 ML ab. Beim Übergang von A nach B zeigt weder die polare Koerzitivfeldstärke einen erheblichen

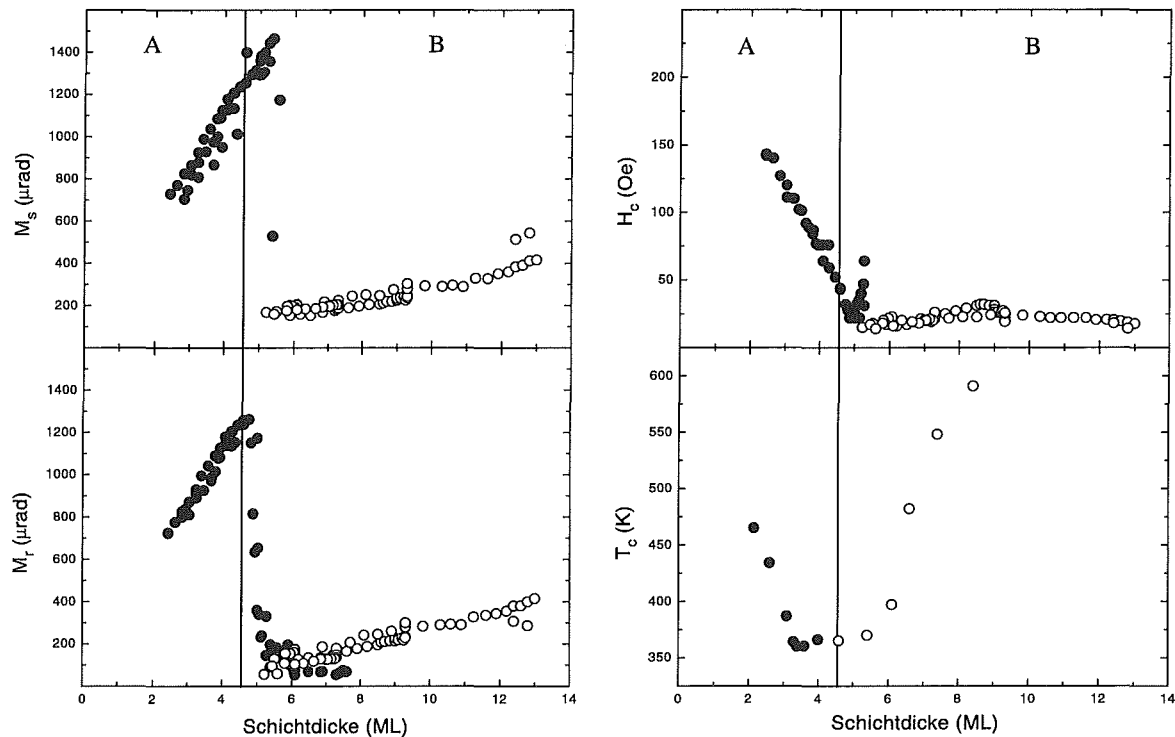


Abb. 6.7: Magnetismus der TT-Filme

Abhängigkeit der Kerr-Elliptizität in Sättigung M_s , der Koerzitivfeldstärke H_c , der Kerr-Elliptizität in Remanenz M_r und der Curie-Temperatur T_c für Eisenfilme, die bei 100 K deponiert und anschließend auf 300 K angelassen wurden. Die Hysteresekurven wurden bei 166 K aufgenommen. Die offenen und gefüllten Symbole geben jeweils die Werte von Hysteresekurven in longitudinaler und polarer Geometrie an. T_c wurde durch Extrapolation von M_s auf 0 K ermittelt. Die magnetischen Eigenschaften lassen sich in zwei Bereiche (A und B) aufteilen.

Anstieg, noch weicht die longitudinale erheblich von Werten bei großen Schichtdicken ab. Letztere bleibt bei 20 Oe eher konstant. Ein unverhältnismäßig starker Anstieg der Koerzitivfeldstärke wie beim Übergang von Bereich I nach II (Abb. 6.5) oder II nach III (Abb. 6.6) wird damit nicht gefunden.

Dieses Ergebnis zeigt den weitreichenden Einfluß der Präparationsbedingungen auf die magnetischen Eigenschaften des Films. Damit ergibt sich die Frage, was die Ursachen für die Unterschiede zwischen RT- und TT-Filmen sind. Dazu wurden beide Präparationsschritte der TT-Filme, die Deposition und das Anlassen, getrennt analysiert. Im besonderen wurden die Sättigungsmagnetisierung, die Remanenz und die Koerzitivfeldstärke von Filmen, die bei 100 K aufgedampft wurden, gemessen, ohne sie auf 300 K angelassen zu haben (Abb. 6.8). Aus dem linearen Anstieg der Kerr-Elliptizitäten kann auf eine homogene Magnetisierung des Films im gesamten Schichtdickenbereich geschlossen werden. Aufgrund der Anisotropien kann dieser Bereich in zwei Schichtdickenbereiche mit einer senkrechten Magnetisierung bis 3,8 ML und einer longitu-

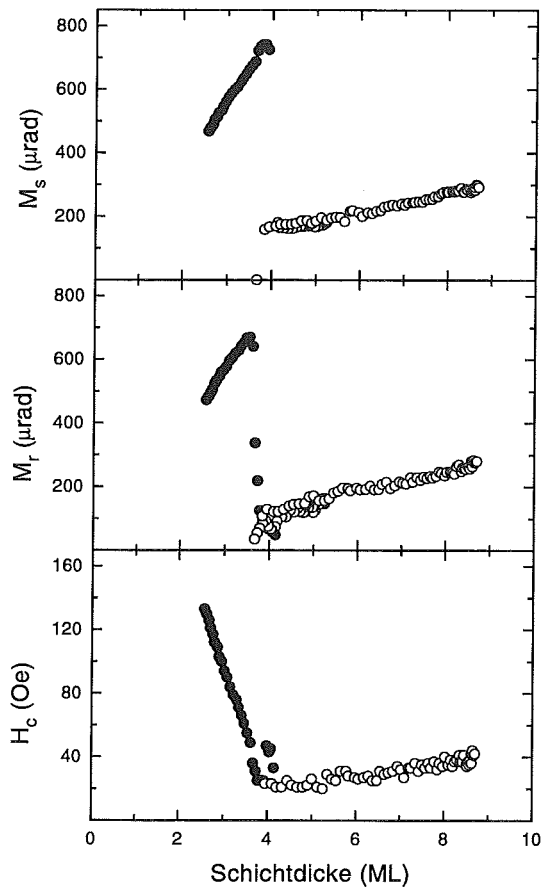


Abb. 6.8: Magnetismus nicht angelassener TT-Filme

Abhängigkeit der Sättigungsmagnetisierung M_s , der Remanenz M_r und der Koerzitivfeldstärke H_c von der Schichtdicke für Fe-Filme, die bei 100 K aufgedampft wurden. Die Hysteresekurven wurden bei 100 K ohne vorheriges Anlassen auf 300 K aufgenommen.

dinalen oberhalb 4,5 ML aufgeteilt werden. Dieses Verhalten ist dem der auf 300 K angelassenen Filme sehr ähnlich, obwohl die Schichtdicke für die Reorientierung der Filme etwas kleiner ist. Der Gradient der longitudinalen Elliptizität ($28 \pm 2 \mu\text{rad}/\text{ML}$) ist dem der angelassenen Filme ($29 \pm 2 \mu\text{rad}/\text{ML}$) ähnlich. Auch das Verhalten der Koerzitivfeldstärke gleicht dem der angelassenen Filme. Nur der Gradient der polaren Elliptizität ($195 \pm 15 \mu\text{rad}/\text{ML}$) ist kleiner als der Gradient der angelassenen Filme ($271 \pm 15 \mu\text{rad}/\text{ML}$). Dies kann auf die Filmrauhigkeit nach der Deposition bei 100 K zurückzuführen sein und weist auf einen möglichen Einfluß der Morphologie des Films hin.

In Zusammenfassung zeigen bei 100 K aufgedampfte Filme vor und nach dem Anlassen auf 300 K ein sehr ähnliches Verhalten. Sie unterscheiden sich jedoch erheblich von den Eigenschaften, die für RT-Filme gefunden worden sind.

6.1.2 Morphologie

Um ein komplettes Bild der Morphologie der Eischichten zu erhalten, wurden RT-Filme und Filme, die bei 100 K aufgedampft wurden, vor und nach dem Anlassen auf 300 K untersucht. Zunächst wurde die MEED-Intensität verschiedener Beugungsreflexe während der Deposition bei 100 K aufgenommen. Alle Reflexe zeigen einen exponentiellen Abfall der Intensität, der charakteristisch für ein dreidimensionales Wachstum ist. Ein schwaches Maximum wird für die Mehrzahl der Reflexe bei ca. 2 ML gefunden, was möglicherweise auf eine Bevorzugung doppelagiger Inseln im Anfangsbereich des Wachstums zurückzuführen ist. Im LEED-Bild ist eine diffuse (1×1)-Struktur sichtbar, die eine Oszillation der Reflexbreite mit der Energie aufweist. Dies ist ein weiterer Beweis für eine raue Oberfläche. Da sich die Reflexe isotrop verbreitern, scheint keine kristallographische Richtung für die Stufen der Inseln bevorzugt zu sein. Oberhalb 4,6 ML wird das LEED-Bild zusätzlich diffus und die Reflexe sind energieunabhängig verbreitert. In diesem Schichtdickenbereich ist daher der Film zudem noch ungeordnet. Nach dem Anlassen der Filme auf Raumtemperatur können zwei Schichtdickenbereiche klar unterschieden werden. Unterhalb 4,6 ML (Bereich A) sind die Beugungsreflexe sehr scharf und es wird keine energieabhängige Verbreiterung beobachtet (Abb. 6.13 oben links und rechts). Das Anlassen der Filme führt daher zu einer beträchtlichen Reduktion der Rauigkeit und erzeugt innerhalb der Transferweite des LEED-Gerätes eine glatte Filmoberfläche. Auf der anderen Seite verbessert das Anlassen die Qualität des LEED-Bildes oberhalb dieser Schichtdicke (B) nur wenig (Abb. 6.13 Mitte links und rechts). Dies gilt auch für dicke Filme (20 ML), die auf 473 K angelassen wurden (Abb. 6.13 unten links). Diese Filme sind daher kurzreichweitig geordnet und bleiben nach dem Anlassen rau, wie von der energieabhängigen Verbreiterung der Reflexe abgeleitet werden kann.

Diese Eigenschaften unterscheiden sich von denen der RT-Filme. Das wird sehr gut an dem Vergleich dicker Filme (≈ 20 ML) deutlich. Im Gegensatz zu den TT-Filmen führt ein Anlassen der RT-Filme auf 473 K zu einer beträchtlichen Verbesserung des LEED-Bildes (vergleiche Abb. 6.13 links unten zu Abb. 6.14 links unten und oben rechts). Nach dem Anlassen sind die Reflexe der RT-Filme in die h z[011]-Richtung verbreitert, während das Beugungsbild der TT-Filme sehr diffus bleibt. Im Gegensatz zu den ungeordneten TT-Filmen oberhalb 5 ML zeigen die MEED-Oszillationen (Abb. 6.2) im Bereich II die für lagenweises Wachstum charakteristischen Oszillationen der Intensität. Die verhältnismäßig kleine Amplitude der Oszillationen im Vergleich zur mittleren Intensität impliziert eine kleine Änderung der Stufendichte mit steigender Bedeckung. Zur quantitativen Analyse der Rauigkeit der Filmoberfläche wurde die energieabhängige Verbreiterung des (0,0)-Reflexes mit SPALEED vermessen. Im Bereich II ist die Form des (0,0)-Reflexes rund (Abb. 6.10 links). Dies indiziert, daß keine kristallographische Orientierung der Stufenkanten bevorzugt wird. Die Änderung der Halbwertsbreite mit

dem Impulsübertrag ist in Abb. 6.9 (oben) gezeigt. Der Verlauf der Halbwertsbreite bei

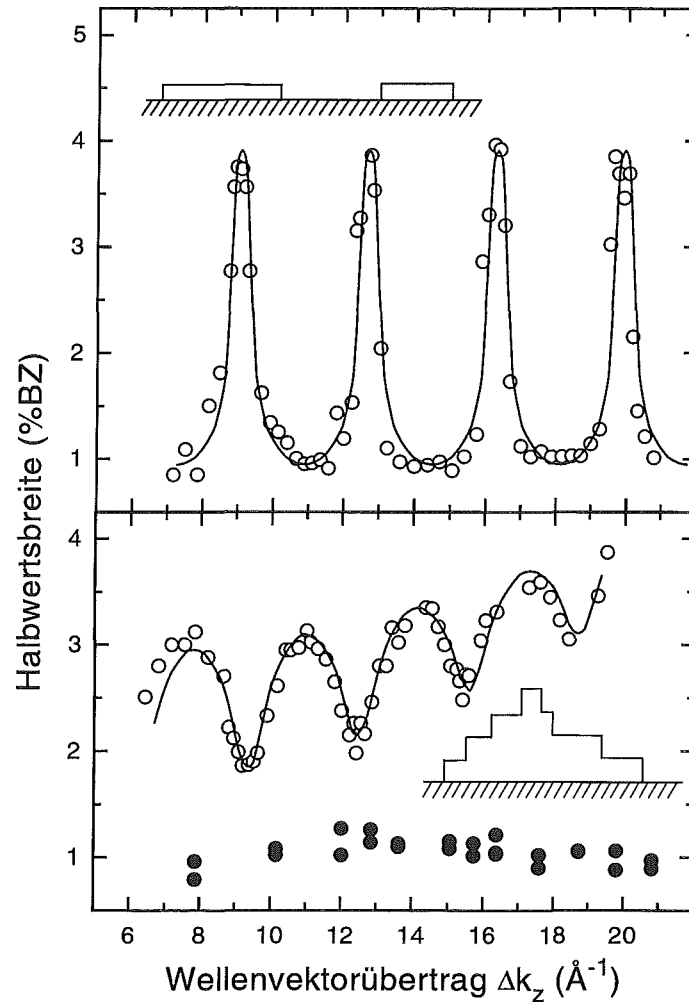


Abb. 6.9: Morphologie eines 10 und eines 21 ML dicken RT-Eisenfilmes auf Cu(100)

Dargestellt sind die gemessenen Halbwertsbreiten des (0,0)-Reflexes in Abhängigkeit vom Wellenvektorübertrag Δk_z für einen 10 ML Film (oben) und einen 21 ML Film (unten). Zum Vergleich sind die Werte für den präparierten Cu-Einkristall (gefüllte Symbole) dargestellt. Der dickere Film wurde zunächst durch Aufdampfen bei 300 K und anschließendem Anlassen auf 473 K hergestellt. Dies führt zu einem scharfen (3×1) -Beugungsbild. Danach wurde der Film auf 170 K eingekühlt und es wurden zusätzlich 0,5 ML zur Erhöhung der Stufendichte aufgedampft. Die gemessenen Werte wurden quantitativ analysiert (durchgezogene Linien, siehe Angaben im Text). Die sich ergebende Rauigkeit der Filme aus der quantitativen Analyse ist schematisch dargestellt.

10 ML ist durch scharfe Maxima und breite Minima gekennzeichnet. Dieses Verhalten ist typisch für ein System mit zwei Niveaus, wie es für lagenweises Wachstum erwartet wird. Eine quantitative Analyse der Änderung der Halbwertsbreiten mit der Domänen-Matrix-Methode [152] ergibt eine hohe Wahrscheinlichkeit, daß auf eine Aufstufe eine

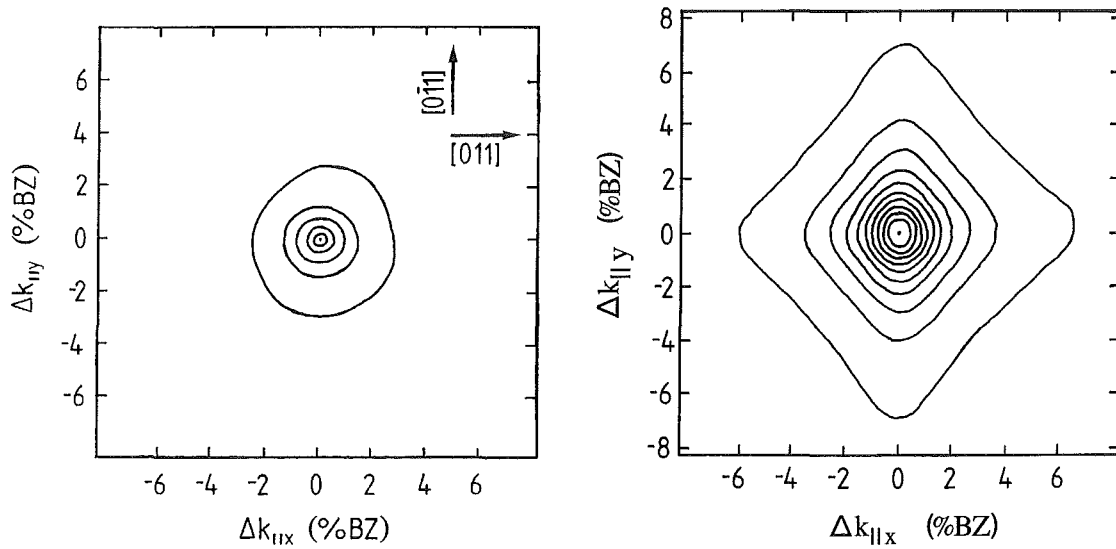


Abb. 6.10: **Form des (0,0)-Reflexes der RT-Eisenfilme auf Cu(100)**

Gemessene Reflexform eines 21 ML RT-Films bei 60 eV nach dem Anlassen auf 473 K für 10 Minuten (rechts) und eines 10 ML RT-Films im Bereich II bei 55 eV (links). Die Profile wurden bei 92 K gemessen. Der (0,0)-Reflex des angelassenen Films ist anisotrop in die [011]-Richtungen verbreitert.

Abstufe folgt. Für eine geometrische Verteilung der Inselgröße wird eine mittlere Terrassenlänge von 40 Atomabständen (102 Å) ermittelt.

Der exponentielle Abfall der MEED-Intensität beim Übergang von II nach III (Abb. 6.2) weist auf ein 3D-Wachstum der Eisenfilme hin. Zur Untersuchung der Morphologie dicker RT-Schichten wurden diese zur Verbesserung der Qualität des Beugungsbildes auf 473 K für 10 Minuten angelassen. Der (0,0)-Reflex der so präparierten Schichten (Abb. 6.10) ist in die $k_{\parallel}z[011]$ -Richtung verbreitert. Dies ist charakteristisch für eine anisotrope Ordnung des Films. Möglich wären streifenförmige Domänen in $k_{\parallel}z[011]$ - und $k_{\parallel}z[0\bar{1}1]$ -Richtung, die sich im Beugungsbild überlagern. Darüber hinaus ist die Halbwertsbreite des (0,0)-Reflexes bei allen Energien größer als im Bereich II. Dies ist in Abb. 6.9 durch den Vergleich der minimalen Halbwertsbreiten des 10 und 21 ML Films erkennbar und ein weiterer Indikator für einen Verlust an struktureller Ordnung des Films. Die Minima in der Halbwertsbreite steigen mit wachsendem Impulsübertrag an. Dieser Anstieg ist charakteristisch für die Bildung von Mosaikkristallen im Film (Abb. 4.2 rechts unten). Aus der Steigung der Meßwerte kann ein Mosaikwinkel von $(0,18 \pm 0,02)^\circ$ ermittelt werden. Dieser Wert wurde zur quantitativen Analyse der Rauigkeit aus der Halbwertsbreite berücksichtigt. Für die Anpassung der Lagenverteilung mit der Domänen-Matrix-Methode ergibt sich eine hohe Wahrscheinlichkeit für

eine Abfolge des gleichen Stufentyps (Auf- bzw. Abstufe), was für ein dreidimensionales Wachstum typisch ist. Qualitativ ergibt sich dieses Ergebnis bereits aus dem Verlauf der Halbwertsbreite, die im Gegensatz zur Kurve im Bereich II durch scharfe Minima und breite Maxima gekennzeichnet ist. Bei einer geometrischen Verteilung der Terrassenlängen wurde eine mittlere Länge von 20 Atomabständen ($51 \text{ \AA}$) bestimmt [114]. Zusammenfassend ändert sich beim Übergang von II nach III die Rauigkeit der Filmoberfläche und die strukturelle Ordnung im Volumen infolge der Bildung von Mosaikkristallen erheblich.

Zur orts aufgelösten Analyse der Eigenschaften der Oberfläche und zum Vergleich mit der Analyse der SPALEED-Daten wurde in einer Zusammenarbeit mit dem Institut für Experimentalphysik der Ruhr-Universität Bochum (Prof. Dr. H. Neddermeyer) der Übergang von II nach III mittels Rastertunnelmikroskopaufnahmen eingehend untersucht. Abb. 6.11 zeigt ein Rastertunnelmikroskopbild eines 8 ML dicken Fe-Films. In dem $(950 \times 600) \text{ \AA}^2$ großen Ausschnitt lassen sich, wie erwartet, große zweidimensionale Inseln und Terrassen erkennen. Zusätzlich sind jedoch auch längliche Inseln mit einer

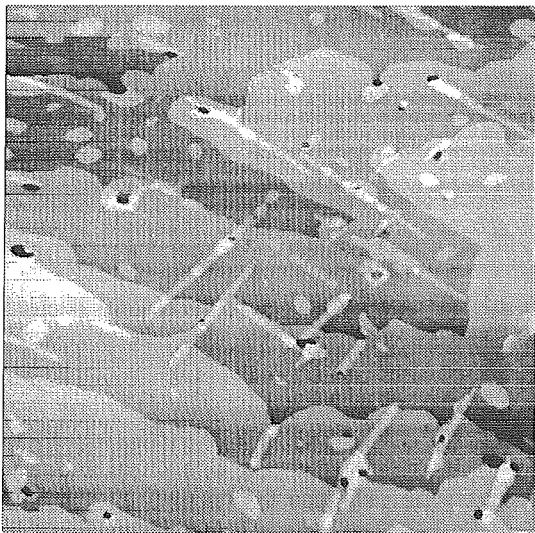


Abb. 6.11: **Rastertunnelmikroskopbild eines RT-Films im Bereich II**

Gezeigt ist eine Rastertunnelmikroskopaufnahme eines 8 ML dicken Fe-Films auf Cu(100), der bei 300 K aufgedampft und auf 370 K angelassen wurde. Das LEED-Bild zeigt eine für den Bereich II typische (1×1) -Struktur. Die an die Probe angelegte Spannung betrug -6 mV , der Tunnelstrom $I=0,5 \text{ nA}$. Das Bild zeigt einen $(950 \times 600) \text{ \AA}^2$ (Breite $\times$ Höhe) großen Ausschnitt.

Ausdehnung von ca. $30 \times 600 \text{ \AA}^2$ erkennbar. Diese Inseln kreuzen monoatomare Stufen, ohne mit ihnen zu wechselwirken. Übersichtsbilder 8 ML dicker Filme über große Bereiche der Oberfläche zeigen, daß diese hervorstehenden Streifen einer $[011]$ -Richtung folgen und einen Bereich von etwa 3 % bedecken. Die Höhe dieser Stufen liegt zwischen $0,8$ und $1,0 \text{ \AA}$ im Gegensatz zu einer ermittelten Stufenhöhe von ca. $1,8 \text{ \AA}$ für die Inseln. Mit wachsender Bedeckung erhöht sich die Zahl der Streifen und die Oberfläche wird zunehmend rauher. In Abb. 6.12 ist das Rastertunnelmikroskopbild eines 16 ML dicken Eisenfilms auf Cu(100) gezeigt. Dieser Film ist vorher für 25 Minuten auf 375 K und für 20 Minuten auf 500 K angelassen worden und zeigte im LEED-Bild eine „ (3×1) “ ähnliche Struktur, wie sie in Abb. 6.14 gezeigt ist. Anstelle eines lagenweisen Wachstums

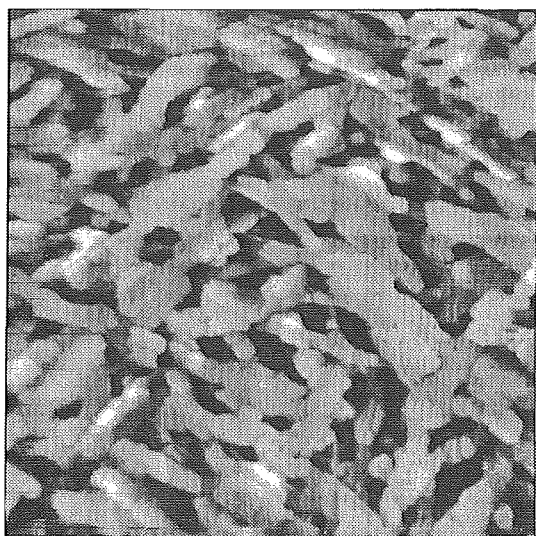


Abb. 6.12: **Rastertunnelmikroskopbild eines RT-Films im Bereich III**

Rastertunnelmikroskopaufnahme bei konstantem Strom für einen 16 ML dicken Eisenfilm mit einer (3×1) -Struktur im LEED-Beugungsbild nach dem Aufdampfen bei 300 K und anschließendem Anlassen auf 370 und 500 K ($U = 1$ mV, $I = 0,5$ nA, Fläche: ca. $(1900 \times 2200) \text{ \AA}^2$ (Breite $\times$ Höhe)). Die Graustufenskala erstreckt sich über einen Bereich von 15 Å. Die Diagonale des Bildes entspricht der $k_{\text{Fz}}[011]$ -Richtung.

wird die Bildung von Inseln mit einer Orientierung in die $[011]$ -Richtung beobachtet. Die Höhenvariation dieser Inseln (10-15 Å) entspricht etwa 5-6 Lagen. Das bedeutet, daß das Kupfersubstrat in Bereichen mit kleinerer Schichtdicke nicht offenliegt. Eine detailliertere Analyse des Bildes ergibt, daß die oberste Terrasse flach ist, in einigen Fällen aber eindeutige linienförmige Vertiefungen in der Mitte vorhanden sind. Diese Vertiefungen sind in die $k_{\text{Fz}}[011]$ -Richtungen orientiert. In vielen Fällen sind die Stufenkanten der Inseln gerade; die neuen, bevorzugten Richtungen entsprechen jedoch nicht den Symmetrierichtungen der Cu(100)-Oberfläche. Das Auftreten dieser Orientierungen ist daher ein Kennzeichen für eine strukturelle Phasenänderung des Films.

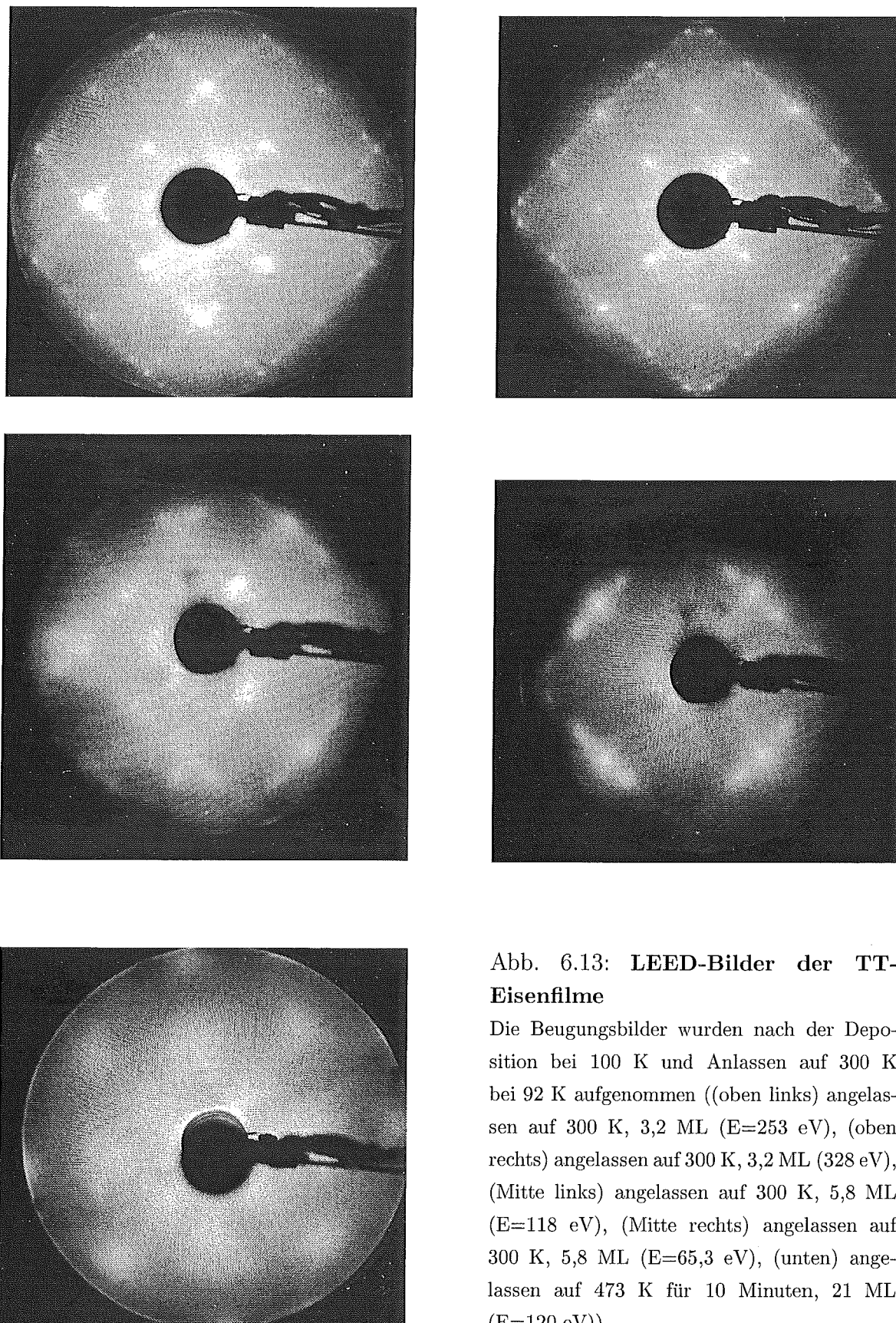


Abb. 6.13: **LEED-Bilder der TT-Eisenfilme**

Die Beugungsbilder wurden nach der Deposition bei 100 K und Anlassen auf 300 K bei 92 K aufgenommen ((oben links) angelassen auf 300 K, 3,2 ML ($E=253$ eV), (oben rechts) angelassen auf 300 K, 3,2 ML (328 eV), (Mitte links) angelassen auf 300 K, 5,8 ML ($E=118$ eV), (Mitte rechts) angelassen auf 300 K, 5,8 ML ($E=65,3$ eV), (unten) angelassen auf 473 K für 10 Minuten, 21 ML ($E=120$ eV)).

6.1.3 Struktur

Zur vollständigen Charakterisierung der strukturellen Eigenschaften der Fe-Filme wurden die Beugungsbilder der RT-Filme auf das Auftreten von Überstrukturen untersucht. Abb. 6.14 und 6.3 zeigen die zugehörigen LEED-Bilder nach der Präparation der RT-Filme. Eine (4×1) - und eine (5×1) -Struktur werden im Bereich I beobachtet. Die

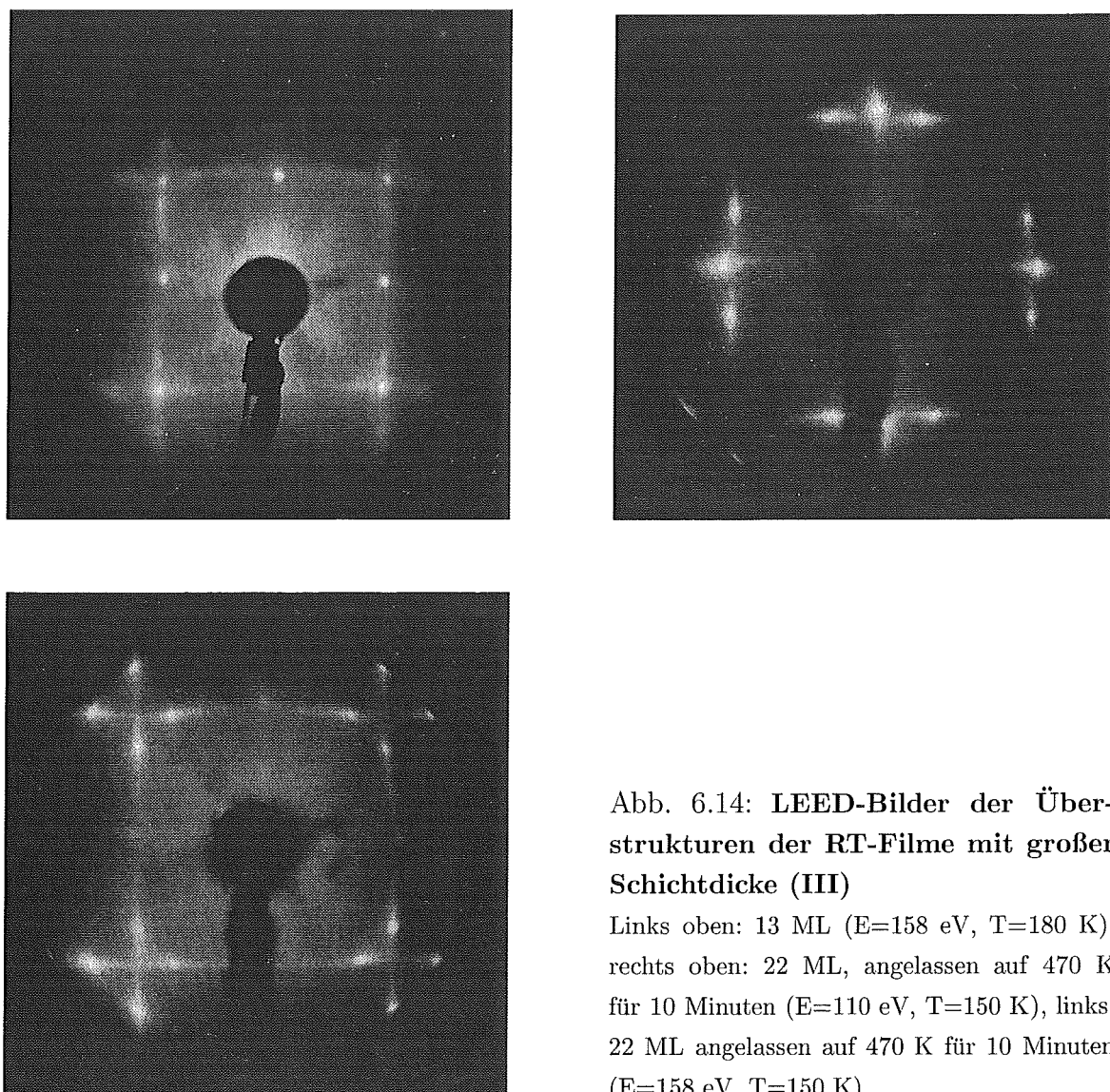


Abb. 6.14: LEED-Bilder der Überstrukturen der RT-Filme mit großer Schichtdicke (III)

Links oben: 13 ML ($E=158$ eV, $T=180$ K), rechts oben: 22 ML, angelassen auf 470 K für 10 Minuten ($E=110$ eV, $T=150$ K), links: 22 ML angelassen auf 470 K für 10 Minuten ($E=158$ eV, $T=150$ K).

(4×1) -Struktur bildet sich zwischen 2 und 2,5 ML und die (5×1) -Struktur zwischen 3,5 und 4,5 ML (Abb. 6.3 links). Mit dem Übergang von I nach II ist die Bildung der $(2 \times 1)p2mg$ Überstruktur (Abb. 6.3 rechts) verknüpft, die zwischen 6 und 7 ML bei Raumtemperatur sichtbar ist. Nach dem Einkühlen des Films auf 150 K ist sie im

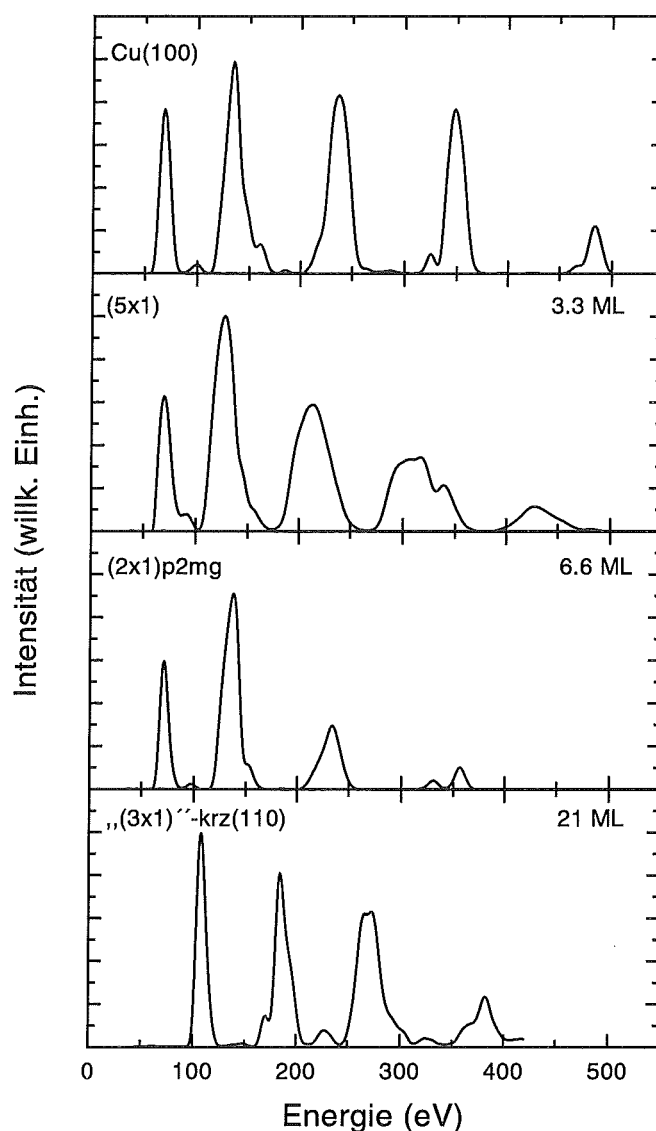


Abb. 6.15: LEED I(E)-Kurven für den (1,0)-Reflex der RT-Eisenfilme in den verschiedenen Schichtdickenbereichen

Im Diagramm sind die LEED I(E)-Spektren des (1,0)-Reflexes für das Cu(100)-Substrat, die (5×1) bei 3,3 ML, die $(2 \times 1)p2mg$ bei 6,6 ML und die (3×1) bei 21 ML nach dem Anlassen auf 473 K dargestellt.

gesamten Bereich II zu beobachten; die Schärfe der Überstrukturereflexe nimmt jedoch mit zunehmender Bedeckung ab. Im Übergang zum Bereich III entwickeln sich neue, streifenförmige Beugungsreflexe im LEED-Bild (Abb. 6.14 links oben). Die Streifen verlaufen in die $[011]$ - und die $[0\bar{1}1]$ -Richtung und ihre Intensität ist um Positionen zentriert, die denen einer (3×1) -Überstruktur ähnlich sind. Mit steigender Schichtdicke verstärkt sich die Intensität dieser Reflexe. Gleichzeitig wird das Beugungsbild zunehmend diffuser. Zur Verbesserung der strukturellen Ordnung wurden Eisenfilme

mit großer Schichtdicke (>20 ML) auf 473 K angelassen, was zu einer beträchtlichen Verbesserung des LEED-Bildes führt (Abb. 6.14 rechts oben und unten links). Die Position der Überstrukturefflexe änderte sich im Vergleich zu den nicht angelassenen Filmen nicht. Wie im folgenden gezeigt wird, handelt es sich bei diesem Beugungsbild nicht um eine Überstruktur, deshalb wird die Bezeichnung „ (3×1) ” in Anführungsstriche gesetzt.

Zum qualitativen Vergleich der Strukturen wurden LEED-Spektren in den drei Bereichen aufgenommen und mit den Spektren des Cu(100)-Substrats verglichen. Dahinter steht die Idee, daß die Streuung der Elektronen an den Cu- und Fe-Atomen so ähnlich ist, daß die lokale atomare Position der Fe-Atome direkt durch einen Vergleich der $I(E)$ -Spektren charakterisiert werden kann. Der Vergleich der Spektren (Abb. 6.15) zeigt, daß die größte Übereinstimmung in der Lage der Maxima zwischen dem Cu-Substrat und der $(2 \times 1)p2mg$ besteht. Die Struktur der Eisenfilme ist folglich einer idealen kfz Struktur sehr ähnlich. Der prinzipiell ähnliche Verlauf der $I(E)$ -Spektren der (5×1) -Phase impliziert, daß die lokale atomare Position der Fe-Atome in diesem Schichtdickenbereich der des Cu-Substrats ähnlich ist. Die Position der Maxima in den $I(E)$ -Kurven ist jedoch zu kleineren Energien verschoben. Innerhalb der kinematischen Näherung kann dieser Effekt mit einem vergrößerten Interlagenabstand im Film relativ zum Cu(100)-Kristall erklärt werden. Darüber hinaus werden die Intensitätsmaxima mit zunehmender Energie breiter. Dies weist auf eine ausgeprägte Variation im Lagenabstand hin, die man auch als eine *vertikale Unordnung* bezeichnen könnte. Da ähnliche Spektren auch für die (4×1) -Überstruktur bei kleinerer Schichtdicke gemessen wurden, ist die lokale atomare Anordnung in beiden Phasen sehr ähnlich.

Die $I(E)$ -Spektren der „ (3×1) ”-Phase zeigen keine systematische Ähnlichkeit mit den anderen Spektren. Dies führt zu der Schlußfolgerung, daß die Struktur des Films in diesem Schichtdickenbereich wesentlich von der kfz Struktur abweicht.

Zur quantitativen Analyse der Struktur wurden die Abstände im reziproken Raum mittels des SPALEED-Gerätes vermessen. In Abb. 6.16 ist die gemessene Intensitätsverteilung um die $(1,0)$ -Position des Cu(100)-Substrats dargestellt. Es sind drei verschiedene Reflexe zu sehen; zwei von ihnen sind in $[011]$ -, der dritte in $[0\bar{1}1]$ -Richtung ausgedehnt. Folglich liegt die entsprechende Überstruktur mindestens in zwei unterschiedlichen Orientierungen an der Oberfläche vor. Des weiteren ist erkennbar, daß der mittlere Reflex nicht auf der $(1,0)$ -Position des Kupfersubstrats liegt. Er ist in $[01\bar{1}]$ -Richtung verschoben. Das gleiche gilt für die beiden „Überstrukturefflexe”. Das Intensitätsmaximum des mittleren Reflexes liegt nicht auf der Verbindungslinie der beiden anderen. Es wäre daher nicht richtig, dieses Beugungsbild als eine „ (3×1) ”-Überstruktur zu bezeichnen. Eine schematische Ansicht des Beugungsbildes ist in Abb. 6.17 gezeigt. Der in Abb. 6.16 gemessene Bereich ist hervorgehoben. Der ermittelte Winkel für β beträgt $(72,1 \pm 0,7)^\circ$. Die Ausdehnung der Ellipsen zeigt die Richtung der Verbreiterung der Reflexe an. Offene und gefüllte Symbole geben die zwei unterschiedlichen Domänen-

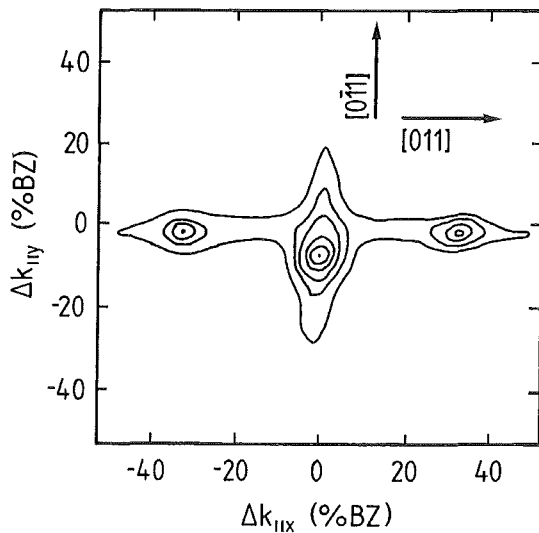


Abb. 6.16: Intensitätsverteilung des LEED-Bildes um die Position des (1,0)-Reflexes in Bereich III

Dargestellt ist die Intensitätsverteilung des LEED-Bildes ($E=180$ eV, $T=120$ K) nach der Deposition von 22 ML bei 300 K und anschließendem Anlassen auf 470 K für 20 Minuten. Der reziproke Raum wurde auf das Cu(100)-Substrat normiert; die Lage des (1,0)-Reflexes des Cu-Substrates befindet sich an der Position $\Delta k_{||x} = \Delta k_{||y} = 0$. Der (0,0)-Reflex (Abb. 6.10 rechts) liegt in $[0\bar{1}1]$ -Richtung. Die Richtung der Verbreiterung der drei LEED-Reflexe indiziert die Existenz zweier verschiedener Domänenorientierungen (siehe auch Abb. 6.17).

orientierungen für jede Richtung an. Reflexe, die zu beiden Domänenorientierungen gehören, sind halb gefüllt. Die beiden reziproken Gittervektoren $\underline{b}_1$ und $\underline{b}_2$, die die Einheitszelle aufspannen, wurden vermessen. Aus mehreren SPALEED-Experimenten wurden $|\underline{b}_1|$ und $|\underline{b}_2|$ zu $(0,772 \pm 0,042) \text{ \AA}^{-1}$ und $(0,769 \pm 0,042) \text{ \AA}^{-1}$ und der Winkel β zwischen $\underline{b}_1$ und $\underline{b}_2$ zu $(72,1 \pm 0,7)^\circ$ bestimmt. Das zugehörige Realraummodell ist in Abb. 6.18 gezeigt. Die beiden Vektoren, die die Einheitszelle aufspannen, betragen $(2,50 \pm 0,04) \text{ \AA}$ ($\underline{a}_1$) und $(2,51 \pm 0,04) \text{ \AA}$ ($\underline{a}_2$). Der Winkel zwischen beiden Vektoren beträgt β . Für eine (110)-Orientierung eines krz Einkristalls ist $a_1 = a_2 = 2,485 \text{ \AA}$ und $\beta = 70,5^\circ$. Die resultierende Geometrie der Eisenfilme ist damit der atomaren Struktur der krz(110)-Oberfläche sehr ähnlich. Im Gegensatz zu einer (100)-Orientierung der krz Phase, die einen Interlagenabstand von $1,44 \text{ \AA}$ besitzt und der kfz Phase ($1,77 \text{ \AA}$) wird für die (110)-Orientierung ein deutlich vergrößerter Wert von $2,03 \text{ \AA}$ erwartet. Zur Überprüfung der Richtigkeit des Modells wurden die Interlagenabstände mittels der Henzlerformel (Gleichung 4.2) durch Auswertung der Extrema der Halbwertsbreite in Abb. 6.9 bestimmt. Die Energien für Maxima und Minima sind in Tabelle 6.4 eingetragen. Für den Bereich II ergibt sich der für kfz(100)-Fe typische Wert von $(1,74 \pm 0,04) \text{ \AA}$, der nahe bei dem erwarteten Wert von $1,76 \text{ \AA}$ (Tabelle 6.1) liegt. Für den Bereich II wird ein Interlagenabstand von $(2,02 \pm 0,04) \text{ \AA}$ ermittelt, der exzellent mit dem Wert für die Stufenhöhe der (110)-Orientierung des Eisens ($2,03 \text{ \AA}$) übereinstimmt. Zur zusätzlichen Charakterisierung wurden LEED I(E)-Spektren eines 20 ML Films gemessen, der nach der Deposition 5 Minuten auf 473 K angelassen worden war und auf 170 K ein-

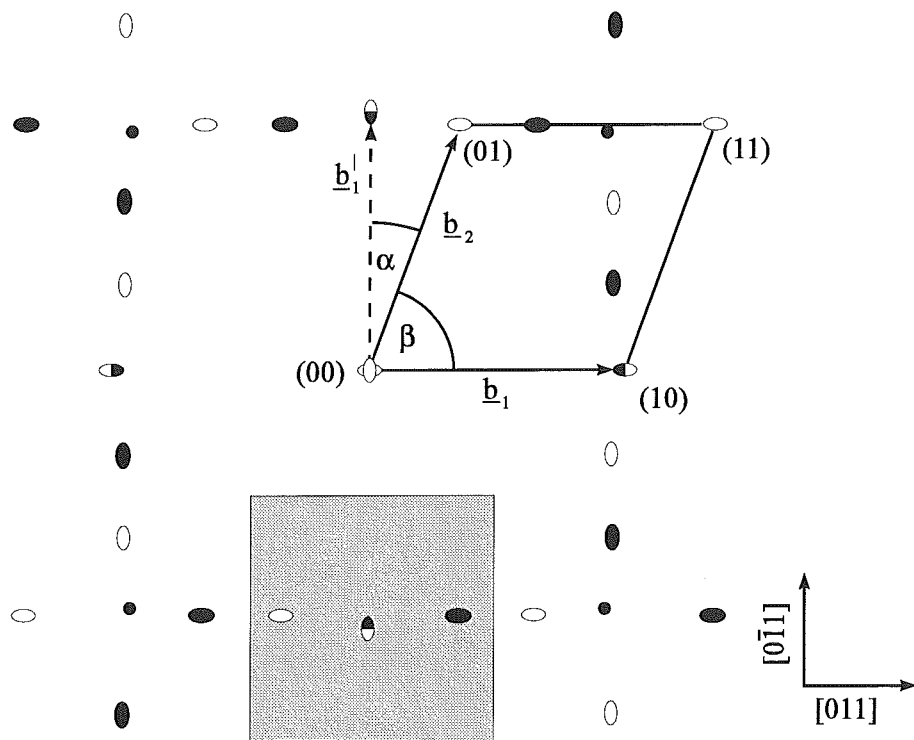


Abb. 6.17: Schematisches LEED-Bild dicker Fe-Filme auf Cu(100)

Die Ellipsen repräsentieren die Positionen der LEED-Reflexe. Die große Achse der offenen und gefüllten Ellipsen zeigt in Richtung der Verbreiterung der LEED-Beugungsreflexe (Abb. 6.14 rechts oben und links). Offene und gefüllte Ellipsen werden zur Unterscheidung der beiden unterschiedlichen Domänenorientierungen verwendet. LEED-Reflexe mit Beiträgen aus zwei Domänen sind halb gefüllt. Eine der vier unterschiedlichen Domänenorientierungen ist durch die reziproken Gittervektoren $\underline{b}_1$ und $\underline{b}_2$ markiert worden. Die kleinen gefüllten Kreise geben die Position der (1,1)-Reflexe des Cu(100)-Substrats an. Die angegebenen Richtungen entsprechen dem des Cu(100)-Substrats. Der gemessene Bereich in Abb. 6.16 ist hervorgehoben.

geköhlt wurde (Abb. 6.19). Nach der Notation in Abb. 6.17 wurden die Spektren für die (1,0)-, (0,1)- und (1,1)-Reflexe aufgenommen. Ein Vergleich mit den $I(E)$ -Spektren der (110)-Oberfläche des Eisens (Abb. 3 und 4 in Ref. [218]) zeigt eine große Ähnlichkeit im Kurvenverlauf. Dies unterstützt zusätzlich die Ergebnisse der Stufenhöhenbestimmung und der Messung der reziproken Gitterabstände. Kleine Unterschiede zwischen den $I(E)$ -Kurven resultieren aus der Tatsache, daß die LEED-Spektren nicht bei senkrechtem Einfall, sondern mit einem kleinen Tilt gemessen wurden.

Mittels dieses Ergebnisses ist man in der Lage, zusätzliche Informationen über die Bildung der krz Phase aus Rastertunnelmikroskopaufnahmen von Eisenfilmen mit großer Schichtdicke zu erhalten. Dazu ist zunächst ein Rastertunnelmikroskopbild der reinen Cu(100) Oberfläche gezeigt (Abb. 6.20). Die vierfache Symmetrie der (100)-Oberfläche und die [011]-Richtungen entlang der Diagonalen der Abbildung sind klar erkennbar.

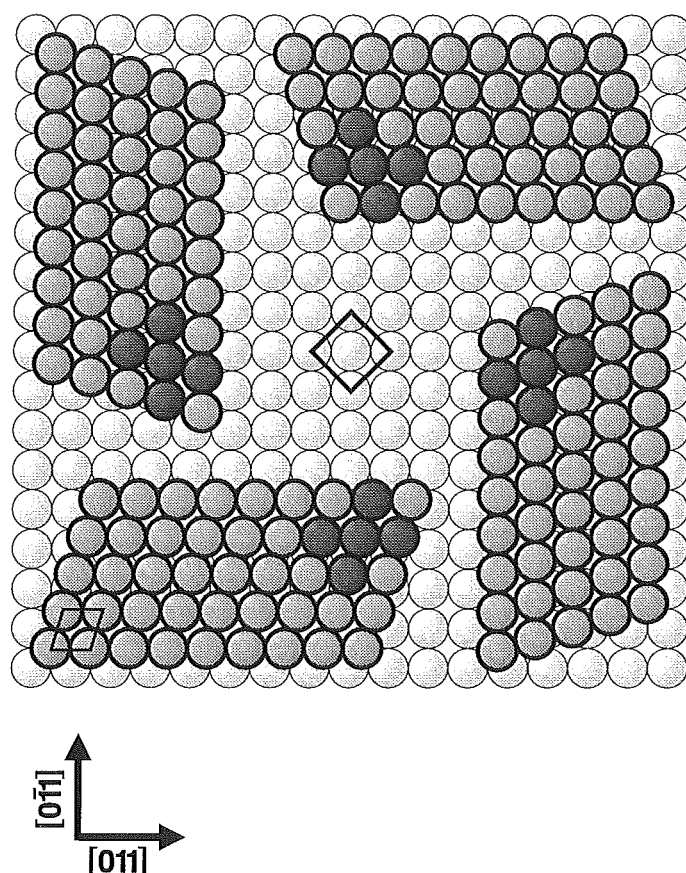


Abb. 6.18: **Realraummodell des krz(110)-Eisens auf dem Cu(100)-Substrat**

Die heller schattierten Kreise repräsentieren die Cu-Atome des Substrats, während die dunkleren die der Fe-Atome darstellen. Die kfz Zelle der Cu(100)-Oberfläche und die Zelle des krz(110)-Films sind zusammen mit den kristallographischen Orientierungen des Cu(100)-Substrats gezeigt.

Die nicht vollkommen quadratische Form der Einheitszelle resultiert aus leichten Abweichungen des piezoelektrischen xy -Systems von der Orthogonalität und aus möglichen Drifteffekten. In Abb. 6.21 ist eine der größeren Inseln aus Abb. 6.12 dargestellt. Durch eine Analyse der Orientierung der atomaren Reihen ist ersichtlich, daß die atomaren Reihen zwar in $[011]$ -, nicht aber in $[0\bar{1}1]$ -Richtung orientiert sind, wie es für eine (100)-Orientierung des Films zu erwarten wäre. In Abb. 6.22 ist eine schematische Anordnung der Atome aus Abb. 6.21 gezeigt. Die Orientierung der Einheitszellen auf beiden Seiten der Vertiefung in Abb. 6.21 entspricht nicht der einer (100)-Oberfläche, sondern einer (110)-Orientierung, wie sie in Abb. 6.18 dargestellt ist. Die krz Modifikation wächst in vier verschiedenen Orientierungen auf dem Substrat (Abb. 6.18). Die beiden Orientierungen in Abb. 6.21 können durch eine Spiegelung an der Vertiefung ineinander überführt werden. Die Bildung der krz(110)-Phase erfolgt daher wahrscheinlich zu einem großen Anteil über die Bildung von Zwillingskristallen, die in $kfz[011]$ -Richtung langreichweitig geordnet sind. Diese bessere Ordnung des Films führt zu dem verhält-

S	2,5	3,0	3,5	4,0	4,5	5,0	5,5	6,0
II	80	114	156	204	258	318	385	-
III	57	83	116	152	197	230	285	336

Tab. 6.4: Energien, bei denen die Halbwertsbreiten des (0,0)-Reflexes in den Bereichen II und III extremal werden

Experimentell bestimmte Energien (eV) aus Abb. 6.9, bei denen der (0,0)-Reflex aufgrund der Interferenz von gebeugten Elektronen benachbarter Terrassen scharf (ganzzahliges S) oder diffus wird (halbzahliges S). Der Einfallswinkel beträgt $82,5^\circ$. Aus den angegebenen Energien wird für den Bereich III eine Stufenhöhe von $(2,02 \pm 0,04) \text{ \AA}$ und den für den Bereich II von $(1,74 \pm 0,04) \text{ \AA}$ nach Gleichung 4.2 ermittelt.

nismäßig scharfen LEED-Bild nach dem Anlassen dicker RT-Filme auf 473 K.

Das LEED-Bild eines TT-Films großer Schichtdicke bleibt jedoch auch nach dem Anlassen auf 473 K diffus (Abb. 6.13 unten), was möglicherweise auf die Stabilisierung des Fe in einer anderen Struktur hinweist. Zur Charakterisierung der strukturellen Eigenschaften des Films wurden daher LEED-Bilder von TT-Filmen in Abhängigkeit

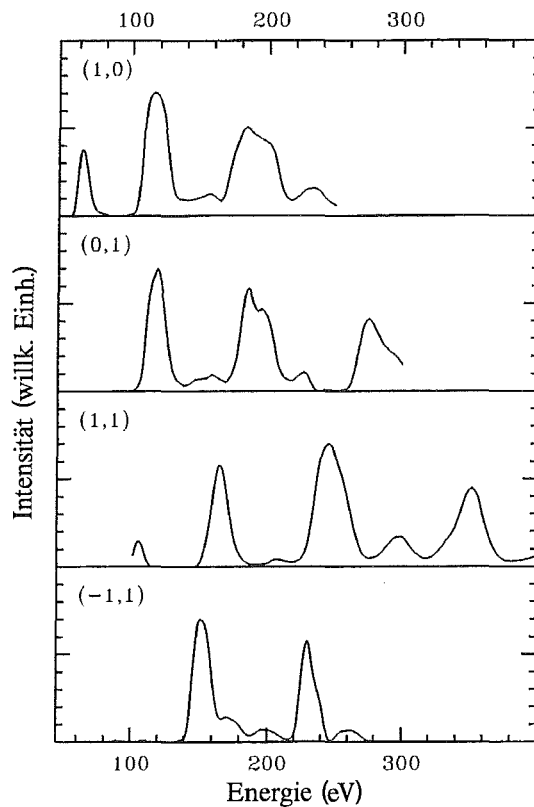


Abb. 6.19: LEED I(E)-Spektren eines 20 ML Fe-Films auf Cu(100)

Die Notation der Reflexe ergibt sich aus Abb. 6.17. Die Spektren zeigen eine große Ähnlichkeit mit bereits gemessenen Kurven nach Shih et al. [218] der reinen Fe(110)-Oberfläche.

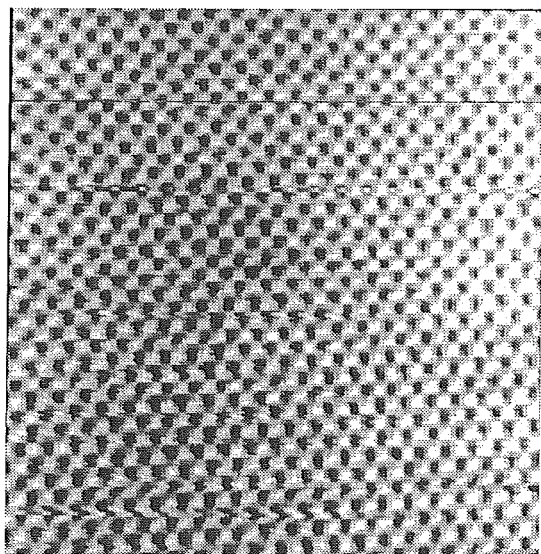


Abb. 6.20: Rastertunnelmikroskopaufnahme der Cu(100)-Oberfläche

Die Abbildung zeigt eine Aufnahme bei konstantem Strom ($U = -4$ mV, $I = 6$ nA). Die Fläche ist $70 \times 70 \text{ \AA}^2$ groß.

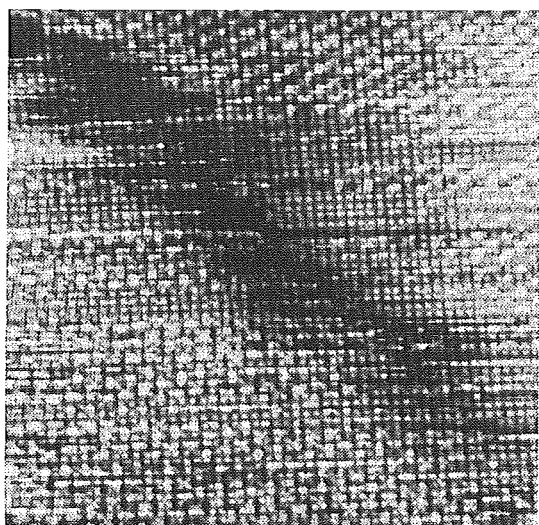


Abb. 6.21: Atomar aufgelöstes RTM-Bild des krz Eisens auf Cu(100) im Bereich III

Rastertunnelmikroskopaufnahme bei konstantem Strom ($U = -1$ mV, $I = 15$ nA). Die Fläche beträgt $75 \times 75 \text{ \AA}^2$. Das LEED-Bild zeigte nach der Deposition bei 300 K und anschließendem Anlassen auf 370 und 500 K eine „ (3×1) “-Struktur. Die Aufnahme zeigt einen atomar aufgelösten Ausschnitt aus Abb. 6.12.

der Bedeckung aufgenommen (Abb. 6.13). Mit steigender Bedeckung sind drei Überstrukturen erkennbar, eine (4×1) - und eine (5×1) -Überstruktur (Abb. 6.13 oben links und rechts) sowie eine (3×1) -ähnliche Phase (Abb. 6.13 Mitte). Die (4×1) - und (5×1) -Überstruktur werden zwischen 2 und 4,5 ML beobachtet. Beide Strukturen zeigen eine sehr ähnliche Abhängigkeit der Reflexintensität von der Energie. Die Strukturen dieser Phasen sind daher sehr ähnlich. Abb. 6.13 (oben links und oben rechts) zeigt das LEED-Bild der (4×1) -Struktur nach der Deposition von 3,2 ML. Die Beugungsreflexe der Überstruktur sind im Gegensatz zu den RT-Filmen sogar bis 328 eV gut sichtbar. Das bedeutet, daß der Eisenfilm in diesem Bereich gut geordnet ist. Die (4×1) - und die (5×1) -Überstruktur reagieren auf eine Kontamination

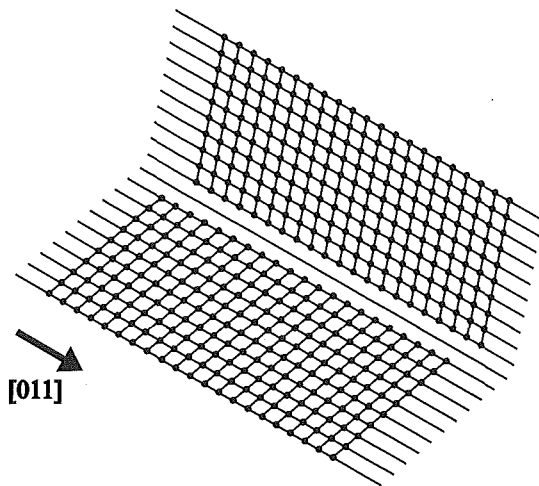


Abb. 6.22: Schematische Darstellung der Domänenstruktur in Abb. 6.21

Das Eisen bildet sich in langen Domänen in [011]-Richtung in Form von Zwillingskristallen.

empfindlich. Sie sind insbesondere auf eine Kontamination mit CO empfindlich, die zu einem diffuseren LEED-Bild führt. Nach einer Deposition von mehr als 4,5 ML ändert sich das Beugungsbild. Zwischen 4,5 und 5,6 ML werden die Beugungsreflexe diffus und die Untergrundintensität steigt an. Diffuse Streifen in einer [011]- bzw. $[0\bar{1}1]$ -Richtung entstehen im Beugungsbild (Abb. 6.13 Mitte links und rechts). Ihre Intensität ist nahe der einer „ (3×1) “-Überstruktur zentriert. Eine nähere Inspektion zeigt kleine Abweichungen von den Positionen einer idealen „ (3×1) “-Struktur. Das Beugungsbild ist dem der „ (3×1) “-Struktur, die bei RT-Filmen beobachtet wird, sehr ähnlich. Dies weist darauf hin, daß die Fe-Filme, die bei 100 K deponiert werden, bereits oberhalb 5,5 ML in der krz(110)-Struktur vorliegen. Bei dieser Bedeckung sind die (1,1)-Reflexe des Cu(100)-Substrats oder der (4×1) - und (5×1) -Phase nicht mehr sichtbar. Der gesamte Film sollte daher eine krz ähnliche Anordnung besitzen. Der Film ist in diesem Bereich jedoch schlecht geordnet; die LEED-Reflexe bei 5,5 ML sind sehr diffus und die Intensität des Untergrundes ist hoch (Abb. 6.13 Mitte). Die Beschreibung der Abhängigkeit des LEED-Bildes von der Schichtdicke reicht zur vollständigen Charakterisierung der strukturellen Eigenschaften nicht aus. Um dies zu erreichen und im besonderen den Übergang von der (5×1) - zur krz Phase zu verstehen, wurden $I(E)$ -Spektren mehrerer unterschiedlicher Reflexe mit steigender Schichtdicke gemessen. In Abb. 6.23 (oben und Mitte) werden dazu die $I(E)$ -Spektren des (0,1)-Reflexes unterhalb einer Bedeckung von 4 ML mit dem des Cu(100)-Substrats verglichen. Alle Kurven zeigen eine ähnliche Abfolge der Maxima, die für eine ähnliche, geometrische Anordnung der Atome charakteristisch ist. Diese Ähnlichkeit bestätigt den visuellen Eindruck, daß die Energieabhängigkeit der LEED-Reflexintensitäten für die (4×1) - und (5×1) -Struktur sehr ähnlich ist. Durch einen Vergleich mit den Spektren des Cu(100)-Substrats und krz Eisenfilme kann gefolgert werden, daß die Filme in einem Bereich zwischen 2,2 und 4,5 ML in Richtung einer krz ähnlichen Anordnung verzerrt

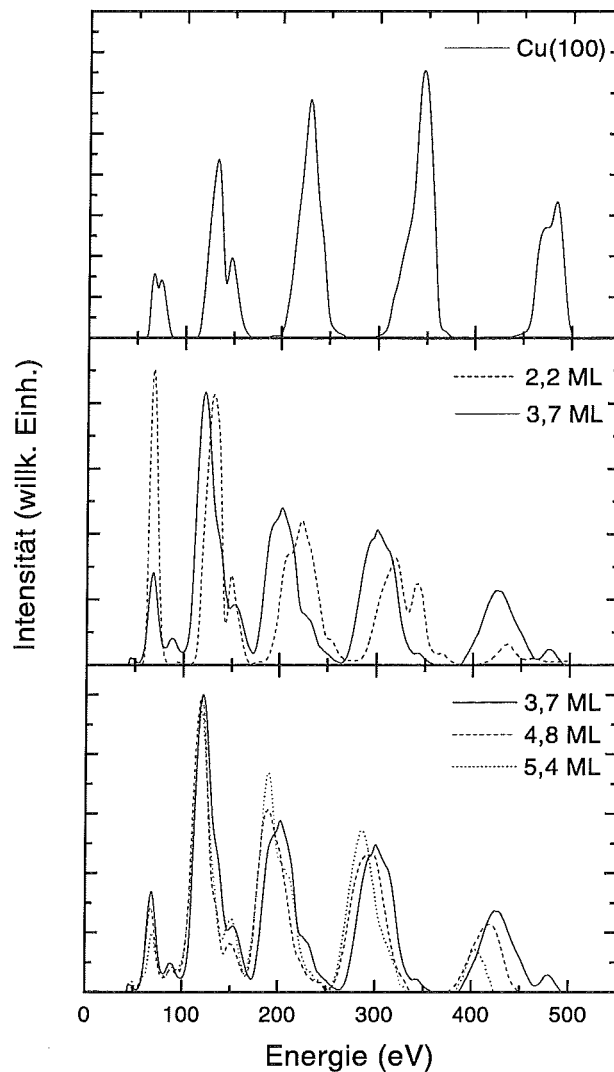


Abb. 6.23: LEED $I(E)$ -Spektren der (0,1)-Reflexe der TT-Filme bei kleiner Schichtdicke

Oben: präparierte Cu(100)-Oberfläche, Mitte: (4×1) - (5×1) -Struktur bei 2,2 ML (gestrichelte Linie) und 3,7 ML (durchgezogene Linie).

Unten (Übergangsbereich): 3,7 ML (durchgezogene Linie), 4,8 ML (gestrichelte Linie), 5,4 ML (punkt-tierte Linie).

sind, jedoch noch keine $\text{krz}(110)$ -Struktur besitzen. Dies wird durch eine Beobachtung des LEED-Bildes unterstützt, die zeigt, daß die Eisenfilme in diesem Bereich pseudomorph auf dem Cu-Substrat aufwachsen und nicht das charakteristische LEED-Bild eines $\text{krz}(110)$ -Filmes aufweisen. Die Änderungen in den Spektren weisen trotzdem auf eine erhebliche Verzerrung der atomaren Anordnung von einer idealen $\text{krz}(100)$ -Struktur hin. Analog zu den RT-Filmen sind die Intensitätsmaxima im Vergleich zum Cu-Substrat zu niedrigeren Energien verschoben. Dieses Ergebnis kann durch einen

expandierten Interlagenabstand im Vergleich zum Cu(100) erklärt werden. Eine mit steigender Energie zunehmende Breite der Intensitätsmaxima, wie es für die (5×1) -Struktur beobachtet wird, kann durch eine vertikale Unordnung, d.h. einen atomaren Abstand zwischen den Lagen, der nicht gut definiert ist, hervorgerufen werden. Eine Korrugation der Fe-Lagen kann eine plausible Erklärung für eine solche Beobachtung sein.

I(E)-Spektren in einem Schichtdickenbereich, in dem die (5×1) - in die krz(110)-Struktur übergeht, sind in Abb. 6.23 (unten) dargestellt. Die charakteristischen Maxima, die für die kfz Phase der RT-Filme in Bereich II gefunden werden (Abb. 6.15), werden bei TT-Filmen nicht beobachtet. Stattdessen verschieben sich die Maxima mit zunehmender Schichtdicke zu kleineren Energien. Dies weist auf eine allmähliche Änderung von der (5×1) -Struktur zur krz Eisenphase hin. Die strukturelle Anordnung der (5×1) -Phase steht daher in enger Beziehung zur krz(110)-Phase, die bei höherer Bedeckung gebildet wird. Da die (5×1) - und die krz(110)-Struktur bei Raumtemperatur- und Tieftemperaturdeposition stabilisiert werden kann, wurden die I(E)-Spektren dieser Phasen verglichen (Abb. 6.24). Die zugrundeliegenden Strukturen zeigen nur eine schwache Abhängigkeit von der Depositionstemperatur, wie durch die Ähnlichkeit der I(E)-Spektren für RT- und TT-Filme bestätigt wird. Es sind nur kleine Unterschiede in der Position der Maxima sichtbar. Die Transformationswege zur krz Phase unterscheiden sich jedoch für beide Depositionstemperaturen. RT-Filme ordnen sich von der (5×1) -Struktur in die (2×1) p2mg-Phase um. Erst bei 11 ML wird der Übergang zur krz Phase beobachtet. Auf der anderen Seite findet ein direkter Übergang von der (5×1) -Phase zur krz(110)-Struktur für TT-Filme statt. Zur Ermittlung des Weges der strukturellen Umwandlung muß jedoch die Struktur der (5×1) -Phase zunächst quantitativ bestimmt werden. In Zusammenarbeit mit dem Lehrstuhl für Festkörperphysik der Universität Erlangen-Nürnberg (Prof. Dr. K. Heinz) wurde versucht, die Wechselbeziehung zwischen den magnetischen und strukturellen Eigenschaften dieser Phase aufzuzeigen. Die (5×1) -Struktur wurde durch eine volldynamische Berechnung von I(E)-Spektren mittels TensorLEED bestimmt [219]. Da die Überstrukturreflexe nahe den Hauptstrukturreflexen $((1, \frac{1}{5}), (1, \frac{4}{5})$ und $(1, \frac{6}{5}))$ die Gruppe der intensivsten Reflexe darstellt, ist die Anzahl möglicher Strukturmodelle begrenzt. Eine sinusförmige Auslenkung der Oberflächenatome in der Ebene, wie sie von Daum [137, 200] vorgeschlagen wurde (Abb. 6.1), kann die Intensitätsunterschiede in den Überstrukturreflexen erklären. Zur Verbesserung der Übereinstimmung zwischen den Berechnungen und den experimentell gemessenen Spektren mußte jedoch nicht nur eine laterale, sinusförmige Auslenkung der obersten Lage sondern auch tiefer liegender Lagen angenommen und der Interlagenabstand variiert werden. Dabei ergab sich die beste Übereinstimmung mit einem Pendry-R-Faktor von 0,45 für eine Expansion des Interlagenabstands um 5 % im Vergleich zum idealen Volumenwert des kfz Fe von 1,78 Å. Danach wurde eine vertikale Unordnung aller Lagen in Form einer sinusförmigen Korrugation zugelassen, die

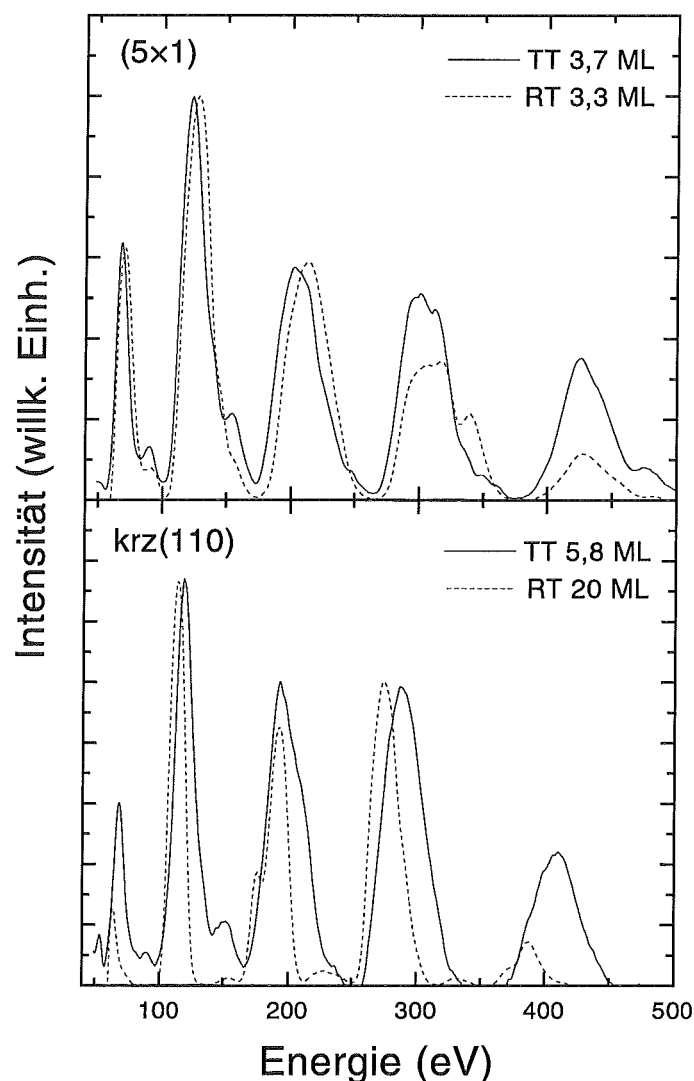


Abb. 6.24: Vergleich der LEED $I(E)$ -Spektren von RT- und TT-Filmen

RT Filme (gestrichelte Linie), TT-Filme (durchgezogene Linie). Der obere Teil der Abbildung zeigt die Spektren der (5×1) -Struktur bei 3,7 ML (TT) und 3,3 ML (RT), der untere Teil die krz Phase bei 20 ML für RT und 5,8 ML für TT-Präparation.

den Pendry-R-Faktor auf 0,36 verringerte. Schließlich wurden Korrugation und laterale Auslenkung für jedes Atom in den Lagen variiert. Insgesamt wurden 10^5 Strukturen überprüft. Die beste Übereinstimmung mit einem Pendry-R-Faktor von 0,14 wurde für das Modell gefunden, dessen Werte in Tabelle 6.5 und dessen räumliche Anordnung in Abb. 6.25 zu sehen sind. Die Analyse zeigt, daß die Atome des 4 ML Films in einer stark verzerrten kfz Struktur angeordnet sind. Diese Verzerrung erstreckt sich auf den gesamten Film, wie man an der beträchtlichen vertikalen und horizontalen Rekonstruktion jeder Lage erkennen kann. Der gemittelte Interlagenabstand beträgt $1,87 \text{ \AA}$. Dies entspricht einem atomaren Volumen von $12,19 \text{ \AA}^3$, das gegenüber dem der kfz Phase

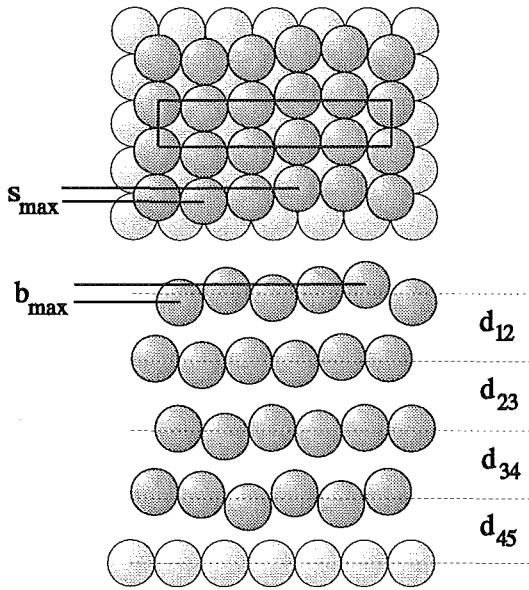


Abb. 6.25: Optimierte Struktur der Eisenfilme im Bereich I und A

Strukturmodell der (5×1) für einen 4 ML Eisenfilm auf Cu(100). In der Aufsicht (oben) ist nur eine Lage des Films gezeigt, während in der Seitenansicht (unten) alle Lagen nach Tabelle 6.5 dargestellt sind. Zur Verdeutlichung sind die Korrugationsamplitude b_{max} und die Auslenkungsamplitude der Atome in der Ebene s_{max} um einen Faktor 2 vergrößert dargestellt. d_{ij} , $(i, j \in \{1 \dots 5\}; j = i + 1)$ sind die Interlagenabstände zwischen der i -ten und j -ten Lage nach [219].

der RT-Filme im Bereich II ($d_b = 1,78 \text{ \AA}$; $V = 11,6 \text{ \AA}^3$) beträchtlich erhöht ist.

Damit sind die strukturellen Eigenschaften ultradünner Eisenfilme auf einem Cu(100)-Substrat vollständig analysiert.

Zusammen mit den Ergebnissen aus den magnetischen und morphologischen Untersuchungen ist man in der Lage, die Korrelation der Eigenschaften der Filme aufzuzeigen.

$d_{12} \text{ (\AA)}$	$1,86 \pm 0,02$	$d_{12}/d_0 \text{ (\%)}$	$4,5 \pm 1,1$
$d_{23} \text{ (\AA)}$	$1,90 \pm 0,02$	$d_{23}/d_0 \text{ (\%)}$	$6,5 \pm 1,1$
$d_{34} \text{ (\AA)}$	$1,85 \pm 0,03$	$d_{34}/d_0 \text{ (\%)}$	$4,0 \pm 1,1$
$d_{45} \text{ (\AA)}$	$1,78 \pm 0,06$	$d_{45}/d_0 \text{ (\%)}$	$0,0 \pm 3,3$
$b_{max1} \text{ (\AA)}$	$0,28 \pm 0,02$	$s_{max1} \text{ (\AA)}$	$0,40 \pm 0,10$
$b_{max2} \text{ (\AA)}$	$0,11 \pm 0,02$	$s_{max2} \text{ (\AA)}$	$0,30 \pm 0,15$
$b_{max3} \text{ (\AA)}$	$0,12 \pm 0,03$	$s_{max3} \text{ (\AA)}$	$0,30 \pm 0,20$
$b_{max4} \text{ (\AA)}$	$0,21 \pm 0,05$	$s_{max4} \text{ (\AA)}$	$0,40 \pm 0,30$

Tab. 6.5: Strukturelle Parameter der besten Übereinstimmung zwischen den Berechnungen und dem Experiment für die (5×1) -Überstruktur

d_{ij} ist der Interlagenabstand zwischen i -ter und j -ter Lage, $d_0 = 1,78 \text{ \AA}$ der mittlere Interlagenabstand der Eisenfilme im Bereich II, s_{maxi} , b_{maxi} die Amplitude der sinusförmigen Auslenkung in der Filmebene bzw. senkrecht zur Filmebene.

6.1.4 Korrelation magnetischer, struktureller und morphologischer Eigenschaften

Eisen wächst in zwei kfz Modifikationen in (100)-Orientierung und der krz Phase in (110)-Orientierung auf dem Cu(100)-Substrat auf. Bei TT- und RT-Präparation der Filme wird die (4×1) - (5×1) -Struktur bei kleinen Schichtdicken stabilisiert. Diese Struktur ist durch einen expandierten Interlagenabstand ($d=1,87 \text{ \AA}$) und ein größeres atomares Volumen ($V=12,19 \text{ \AA}^3$) gekennzeichnet. In Übereinstimmung mit der Theorie [36, 43] und extrapolierten Werten [10] ist dieses vergrößerte Volumen die Ursache für den Ferromagnetismus im *gesamten* Film. Dies stimmt mit dem Experiment, dem linearen Anstieg der Kerr-Elliptizität bei kleinen Schichtdicken für RT- und TT-Filme (Bereich I (Abb. 6.5) und A (Abb. 6.7)), überein. Das c/a -Verhältnis beträgt 1,47.

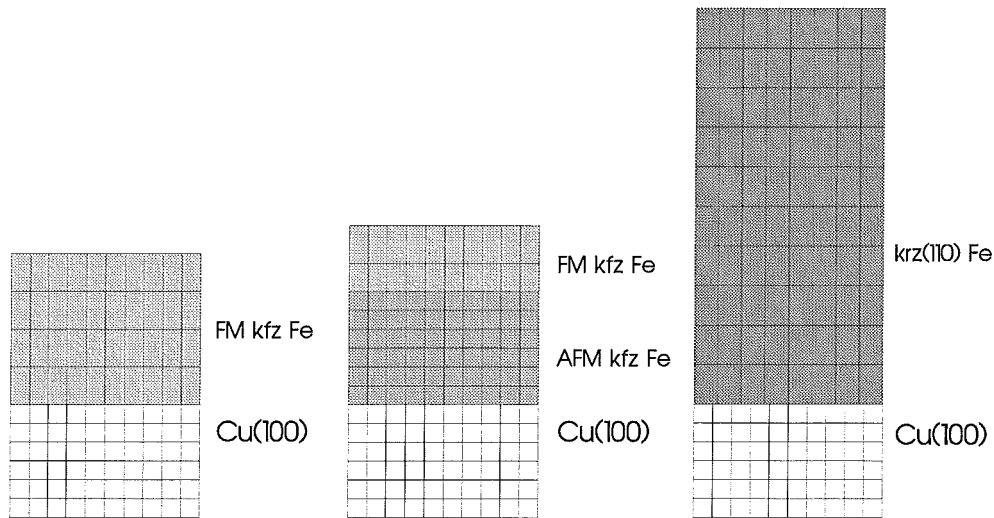


Abb. 6.26: Strukturelle und magnetische Phasen des Fe auf einem Cu(100)-Substrat

Die ferromagnetische kfz Phase ist durch einen expandierten Interlagenabstand ($d=1,87 \text{ \AA}$) und ein vergrößertes atomares Volumen ($V=12,19 \text{ \AA}^3$) gekennzeichnet. Die paramagnetische bzw. antiferromagnetische Phase des kfz Eisens (Mitte) liegt für RT-Filme zwischen 5 und 11 ML vor. Atomares Volumen ($V=11,6 \text{ \AA}^3$) und Interlagenabstand ($d=1,78 \text{ \AA}$) sind kleiner als der des Cu-Substrats und die FM kfz Phase. In den beiden Oberflächenlagen des Films liegt lokal die FM kfz Phase vor. Bei großer Schichtdicke (rechts) wächst das Eisen in der krz Modifikation in Pitsch-Orientierung [198] inkommensurabel auf dem Substrat auf.

Mittels der elastischen Konstanten der paramagnetischen Phase (Gleichung 3.5 und Tab. 3.1) können die Gitterkonstante und das atomare Volumen einer unverspannten FM kfz Struktur mit $c/a = \sqrt{2}$ zu $a_0 = 3,66 \text{ \AA}$ und $V_{Atom} = 12,25 \text{ \AA}^3$ berechnet werden. Dieser Wert weicht nur wenig von dem extrapolierten Wert von Wassermann ($3,64 \text{ \AA}$) [10] (Abb. 2.5) und dem Wert der theoretischen Berechnungen von Asada et al. [43] ($3,67 \text{ \AA}$) mittels GGA ab. Er ist nur wenig größer als der mit der LSD-Nähe-

rung berechnete Wert von Moruzzi et al. [36] ($3,62 \text{ \AA}$, Abb. 2.6). Da die LSD-Näherung die atomaren Abstände um wenige Prozent unterschätzt, ist dieser Wert eine untere Grenze für die FM kfz Phase.

Die Existenz zweier strukturelle verschiedener Zustände des kfz Eisens war der wesentliche Bestandteil einer Hypothese von Weiss [30], um den INVAR-Effekt, das heißt Anomalien in der thermischen Ausdehnung und anderer physikalischer Größen zu erklären [17, 220]. Die Stabilisierung des zweiten, FM Zustands des kfz Eisens auf dem Cu(100)-Substrat unterstützt die Hypothese von Weiss [30]. Die Rekonstruktion aller Lagen des FM kfz Eisens (Abb. 6.25) impliziert, daß diese Phase strukturell instabil ist. Dieses Ergebnis stimmt mit theoretischen Berechnungen [112, 221] überein, die zeigten, daß die FM kfz Phase des Eisens instabil ist. Im besonderen zeigt die Energie des Eisens als eine Funktion des c/a -Verhältnisses kein Minimum bei $\sqrt{2}$. Das Fehlen dieses Minimums steht in enger Beziehung zum Schermodul, insbesondere zum Verschwinden des Moduls für Verscherungen von (110)-Ebenen [105]. Damit stellt sich die Frage, wie die FM kfz Phase auf dem Cu-Substrat stabilisiert werden kann, wenn die vergleichbare Phase im Volumen instabil ist. Bei den Eisenfilmen spielt das Substrat eine entscheidende Rolle. Die atomare Anordnung der Cu(100)-Oberfläche stabilisiert die FM kfz Modifikation des Eisens, indem sie eine Verscherung der Eisenatome behindert. Folglich wird eine Transformation zu einer anderen strukturellen Phase nur oberhalb einer kritischen Schichtdicke beobachtet.

Auf dem Cu(100)-Substrat beträgt diese Schichtdicke 4 ML. Oberhalb dieser Bedeckung können die Fe-Filme in Abhängigkeit der Präparationsbedingungen in zwei verschiedenen strukturellen Phasen des Fe stabilisiert werden. Bei RT-Präparation sind alle Fe-Lagen, mit Ausnahme der obersten Lage, unrekonstruiert ($d=1,78 \text{ \AA}$, $V=11,6 \text{ \AA}^3$). Die Atome der obersten Lage sind rekonstruiert und der oberste Interlagenabstand auf $1,87 \text{ \AA}$ expandiert; das entspricht einem lokalen atomaren Volumen von $V=12,19 \text{ \AA}^3$. Dieses Volumen ist mit dem der FM kfz Modifikation bei kleinerer Schichtdicke identisch. Im Bereich II ist daher die FM kfz Modifikation lokal an der Oberfläche des Fe-Films stabilisiert. Die antiparallele Auslenkung der atomaren Reihen in kfz[011]-Richtung (Abb. 6.1 rechts) hat wahrscheinlich ihre Ursache in der strukturellen Instabilität der FM kfz Phase gegen Verscherungen in kfz[011]-Richtung. Da diese Phase nur an der Oberfläche stabilisiert ist, sind ausschließlich die obersten Lagen ferromagnetisch. Dies stimmt mit der konstanten Magnetisierung, die einem Signal von ca. 2 ML entspricht und der Curie-Temperatur in Abb. 6.5 überein. Die Momente im Volumen des Films mit dem kleineren Interlagenabstand sind paramagnetisch oder antiferromagnetisch geordnet. Der AF Zustand im Volumen der RT-Eisenfilme wurde von Keune et al. mittels Mössbauer-Spektroskopie nachgewiesen [222, 223].

Eine Ursache für die Stabilisierung der FM kfz Phase an der Oberfläche des Films ist die Moment-Volumen-Instabilität des Eisens. Aufgrund der Reduktion der Koordinationszahl ist das magnetische Moment an der Oberfläche des Fe-Films erhöht. Die

Erhöhung des magnetischen Moments führt aufgrund der Moment-Volumen-Instabilität des Eisens zu einer Expansion der Lagenabstände an der Oberfläche und der lokalen Stabilisierung der FM kfz Phase. Prinzipiell ist die Existenz dieser Phase auch an der Grenzfläche Aufdampfmaterial/Substrat möglich. Aufgrund der Hybridisierung zwischen den Orbitalen des Cu und denen des Fe sind jedoch die Eigenschaften der Fe/Cu-Grenzfläche gegenüber der der Fe/Vakuum-Grenzfläche modifiziert, so daß an der Fe/Cu-Grenzfläche der Film nicht ferromagnetisch sein muß. Berechnungen des magnetischen Grundzustands eines pseudomorphen Eisenfilms auf Cu(100) mit einer Schichtdicke zwischen 4 und 12 ML von Kraft et al. [224] ergeben eine Verengung der Bänder in den obersten vier Lagen, die um so stärker ausgeprägt ist, je näher sich die Lage an der Oberfläche befindet. In der obersten Lage ist das Majoritätsband voll besetzt und das magnetische Moment beträgt $2,80 \mu_B$. In Übereinstimmung mit den strukturellen Analysen (Tab. 6.3) berechneten sie eine ferromagnetische Kopplung zwischen der ersten und zweiten Lage und eine Expansion des ersten Interlagenabstands um 3,9 %.

Für RT- und TT-Filme ist die Struktur des Eisens bei großer Schichtdicke kubisch raumzentriert mit einer (110)-Orientierung der Oberfläche. Im Detail unterscheiden sich die Wege der strukturellen Umordnung von einer im Volumen unrekonstruierten Phase der RT-Filme (II) und von der rekonstruierten FM kfz-Phase der TT-Filme (A) zur krz-Struktur. Bei den TT-Filmen bestimmt das Rekonstruktionsmuster der (5×1) wahrscheinlich den strukturellen Umwandlungsweg zum krz Fe. Eine nähere Inspektion der atomaren Position der (5×1) - und der krz Phase (Abb. 6.27) zeigt, daß eine Ähnlichkeit in der strukturellen Anordnung besteht. Eine Vergrößerung der Scheramplitude

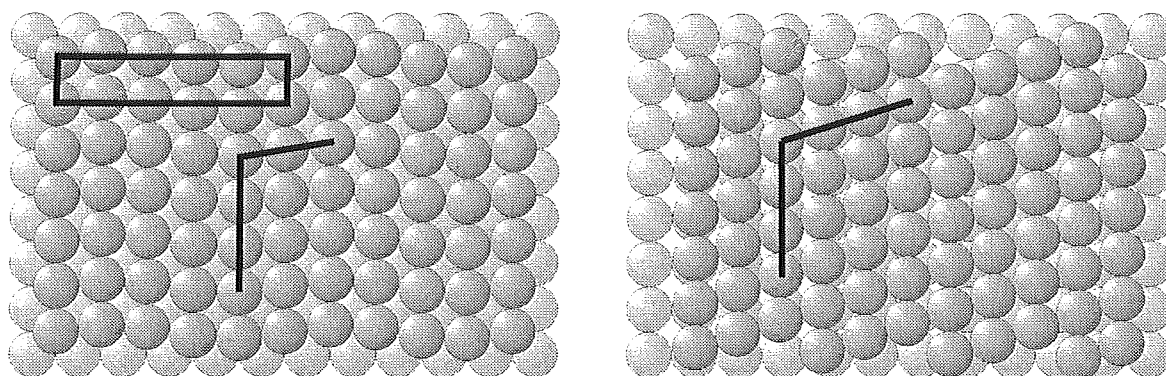


Abb. 6.27: Modell für den strukturellen Übergang von der FM kfz(100)- zur krz(110)-Phase des Fe für TT-Filme

Realraummodell der (5×1) -Struktur (links) und der krz(110)-Phase (rechts) auf der Cu(100)-Oberfläche. Es ist die Fe-Lage an der Grenzfläche Fe/Substrat dargestellt. Zur Verdeutlichung sind die atomaren Auslenkungen der (5×1) -Struktur um einen Faktor zwei vergrößert.

und eine Expansion des Interlagenabstands können die Eisenatome in die Positionen der krz Struktur bewegen. Diese Bewegung würde nur zu langen, schmalen Domänen

des krz Eisens führen, da die (5×1) -Struktur durch eine sinusförmige Verscherung, d.h. eine Auslenkung, die ihr Vorzeichen ändert, gekennzeichnet ist. Ein solch lokaler Mechanismus der Umordnung führt zu einer kurzreichweitigen Ordnung der krz(110)-Struktur des Films.

Prinzipiell ist der strukturelle Weg der Umordnung von Bereich II nach III für die RT-Filme ähnlich. Auch hier kann durch eine Verscherung nebeneinander liegender, atomarer Reihen in $kfz[0\bar{1}1]$ -Richtung die krz(110)-Phase gebildet werden. Die Metastabilität des Films nahe des Übergangsbereichs zeigt sich durch die Bildung der „ (3×1) “-Struktur im LEED nach dem Einkühlen auf 170 K oder dem kurzzeitigen Ätzen mit Argonionen (600 eV) [142]. Diese Ergebnisse implizieren, daß der strukturelle Umwandlungsprozeß eines Teils des Films auf einer kleinen Zeitskala stattfindet und die Phase mit wachsender Schichtdicke instabiler wird. Auf der anderen Seite kann der Existenzbereich dieser Phase durch Kontamination des Films mit CO zu größeren Schichtdicken expandiert werden [142, 178] (Abb. 6.2), was jedoch offensichtlich nicht für die FM kfz Phase gilt.

Anders als bei den TT-Filmen umfaßt die strukturelle Umwandlung der RT-Filme jedoch mehr Lagen. Trotzdem zeigt die bessere Qualität eines angelassenen RT-Films (Abb. 6.14 links und oben rechts) im Vergleich zu einem TT-Film (Abb. 6.13 unten links) bei 20 ML die Bildung größerer krz Domänen. Daraus läßt sich schließen, daß zur Bildung des krz Eisens eine größere Anzahl an Atomen über große Abstände kollektiv verschert wird als bei den TT-Filmen. Dies steht im Einklang mit den Rastertunnelmikroskopaufnahmen (Abb. 6.12, 6.21 und 6.22), die eine homogene krz Phase über mehrere atomare Abstände zeigen. Die Bildung der krz Domänen geschieht dabei vorzugsweise längs der $[011]$ -Richtungen, die als Phasengrenzen für die Bildung von Zwillingskristallen dienen. Die Bildung dieser großen Domänen ist möglich, da die Atome der antiferromagnetischen bzw. paramagnetischen Phase die Plätze eines epitaktischen und möglicherweise gespannten kfz Gitters besetzen. Keine Rekonstruktion im Volumen des Films, wie dies bei der (5×1) -Phase der Fall ist, behindert die kollektive Verscherung über große atomare Abstände.

Mit der Bildung des krz Eisens ist eine Änderung der morphologischen Eigenschaften verknüpft. Oberhalb 2 ML und unterhalb 11 ML wächst das Eisen bei 300 K lagenweise auf $[209, 210, 212-214, 225]$. Dieses Verhalten erklärt, warum in den MEED-Kurven (Abb. 6.2) Oszillationen in der Intensität beobachtet werden. Oszillationen sind in den Bereichen I und II deutlich erkennbar, die mittlere Intensität im Bereich I ist jedoch geringer als in II. Hervorgerufen wird diese Absenkung der mittleren Intensität zum einen durch den größeren Interlagenabstand der FM kfz Phase und zum anderen durch die Korrugation jeder Fe-Lage. Als Folge davon sinkt die mittlere Intensität trotz lagenweisen Wachstums ab.

Die Aktivierungsbarriere für den Interlagenmassentransport der kfz Phasen wird bei 300 K von Fe-Atomen auf den Inseln leicht überwunden. Kürzlich durchgeführte Stu-

dien von Albrecht [226] zeigen, daß für das Wachstum des Eisens auf der krz Fe(110)-Oberfläche eine große Barriere für den Interlagenmassentransport existiert. Als Konsequenz daraus wird bei einer Wachstumstemperatur von 200 K eine Facettierung der Oberfläche beobachtet, die für dreidimensionales Wachstum charakteristisch ist. Erst nach einem Anlassen auf 600 K [226] erhält man eine glatte Filmoberfläche. Diese Ergebnisse erklären, warum die Bildung der krz Struktur der Fe-Filme zu einem Anstieg der Rauigkeit des Films führt.

Diese Schlußfolgerung bestätigt sich auch aus den Untersuchungen an den TT-Filmen; diese zeigen nach dem Anlassen auf 300 K unterhalb 4,5 ML ein scharfes LEED-Bild (Abb. 6.13 oben links und rechts), in dem eine energieabhängige Verbreiterung der Hauptstruktureflexe nicht festgestellt werden konnte. Die Oberfläche der Filme ist daher innerhalb der Transferweite des LEED-Gerätes glatt. Mit der Bildung des krz Eisens oberhalb 4,5 ML ist jedoch eine Verbreiterung der Reflexe charakteristisch für eine rauher werdende Oberfläche des Films.

Alle Änderungen der magnetischen Eigenschaften der Fe-Filme stehen mit wachsender Schichtdicke in enger Wechselbeziehung zu den strukturellen Übergängen. Mit der Transformation zu krz Fe steigt die Curie-Temperatur sprunghaft an (Abb. 6.4 und 6.7) und die Magnetisierung ändert ihre Richtung in die Filmebene. Für krz Eisenfilme mit der (110)-Ebene parallel zu einem W(110)-Substrat wurde die Existenz einer magnetischen Oberflächenanisotropie in der Filmebene gezeigt [72]. Magnetoelastische Effekte spielen für diese Filme, die mit nahezu intrinsischer lateraler Gitterkonstanten des Eisens aufwachsen nur eine marginale Rolle. Deshalb kann die Schlußfolgerung gezogen werden, daß eine longitudinale Anisotropie Kennzeichen eines unverspannten krz Fe-Films mit (110)-Orientierung ist.

Die (5×1) -Phase ist dagegen durch eine senkrechte magnetische Anisotropie gekennzeichnet. Folglich ist die Reorientierung der Magnetisierung eine direkte Konsequenz des strukturellen Übergangs zu krz Fe für die TT-Filme. Aus Abb. 6.7 ist ersichtlich, daß zwischen 4,6 und 5,7 ML Hysteresekurven in polarer und longitudinaler Geometrie gemessen werden. Darüber hinaus ist die Form der Hysteresekurven bis etwa 9 ML eher sigmoidal als rechteckig. Offensichtlich kann das Verhalten in diesem Bereich durch eine unvollständige Umwandlung zu krz Eisen interpretiert werden. Diese Schlußfolgerung wird durch das LEED-Bild nach der Deposition bei 100 K und dem Anlassen der Filme auf 377 K für 10 Minuten bestätigt. Im Beugungsbild wird eine Superposition von kfz und krz Beugungsreflexen bis 9,5 ML beobachtet. Dies scheint ein Indikator für die Bildung von kfz Domänen zu sein. Oberhalb dieser Dicke werden nur noch Beugungsreflexe der krz(110) Phase beobachtet. Die $I(E)$ -Spektren in diesem Bereich sind den Spektren der krz Phase sehr ähnlich (Abb. 6.19). Dies erklärt möglicherweise, warum rechteckige Hysteresekurven für TT-Filme nur oberhalb 9,5 ML gemessen werden.

Das Umklappen der Magnetisierung bei RT-Filmen ist auf die gleiche Weise mit der Bildung von krz Fe verknüpft. Die senkrechte Magnetisierung im Bereich II ist charak-

teristisch für die an der Oberfläche des Films lokalisierte FM kfz Phase. Da nur eine konstante Anzahl an Lagen ferromagnetisch ist, kann die Formanisotropieenergie mit steigender Bedeckung nicht größer werden und die senkrechte Magnetisierungsrichtung bleibt im gesamten Bereich II erhalten.

Der strukturelle Übergang von der (5×1) zur $(2 \times 1)p2mg$ führt nicht zu einer Änderung der Richtung der Magnetisierung, sondern zu einer Verringerung des polaren Signals zwischen 3,7 und 4,5 ML (Abb. 6.5). Die Umordnung ist von einer starken Änderung der Koerzitivfeldstärke begleitet. In Zusammenarbeit mit Dr. A. Berger wurde ein Modell für die Ursache dieses Maximums entwickelt. Die Koexistenz zwischen der FM kfz Phase (I) und der antiferromagnetischen bzw. paramagnetischen kfz Phase mit FM, kfz Oberflächenschichten (II) führt zu einer Erhöhung der Koerzitivfeldstärke. Da die Domänenwandenergie näherungsweise proportional zur Wandfläche ist, besitzen die Domänenwände in Phase II eine sehr viel geringere Energie. Während der strukturellen Umwandlung wirken die Bereiche der Phase II als Haftzentren (*pinning*-Zentren) für die Domänenwände, was zu einem Anstieg der Koerzitivfeldstärke führt. Zur Berechnung der Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke von der Schichtdicke wird von einem geradlinigen Verlauf der Domänenwände mit endlicher Breite w ausgegangen, was für ultradünne Filme nicht zwangsläufig erfüllt sein muß. Die Volumenenergiedichte soll gleichmäßig auf die Wandbreite verteilt sein (E_W). Weiterhin soll der Zeemanenergieterm (E_Z) unabhängig von der Delokalisierung der Wandenergiedichte sein [157]. Als Modell wird der Fall quadratisch geformter, struktureller Domänen im Abstand s mit der Diagonalen $2d$ betrachtet (Abb. 6.28). b ist der prozentuale Anteil der Phase II an der Filmoberfläche. d_I und d_{II} sind die Dicken der ferromagnetischen Schicht. Für den Bereich $0 \leq b < 0,5$ liegt die Domänenwand zur Minimierung der Energie in der Mitte der Phase II-Inseln. Für $0,5 \leq b \leq 1$ liegt sie am Rand der Phase I Inseln. Während des Aufmagnetisierens durchläuft die Domänenwand die Strecke x .

Für die Gesamtenergie des Systems, die sich aus der Zeemanenergie und der Wandenergie zusammensetzt, gilt

$$\begin{aligned} E_{ges} &= E_Z + E_W \\ &= [-2M_s H (d_I s x - 2\delta d x + \delta x^2)] + [\epsilon_W d_I s - 2\epsilon_W \delta (d - x)]. \end{aligned} \quad (6.1)$$

mit der Sättigungsmagnetisierung M_s , dem angelegten Feld H , der Wandenergiedichte ϵ_W und dem Unterschied der Anzahl ferromagnetischer Lagen der Phase I und II $\delta = d_I - d_{II}$. Durch Minimierung der Gesamtenergie und anschließender Bestimmung der maximalen Feldstärke erhält man mit $A = (\epsilon_W \delta) / (M_s s)$ die Koerzitivfeldstärke H_c

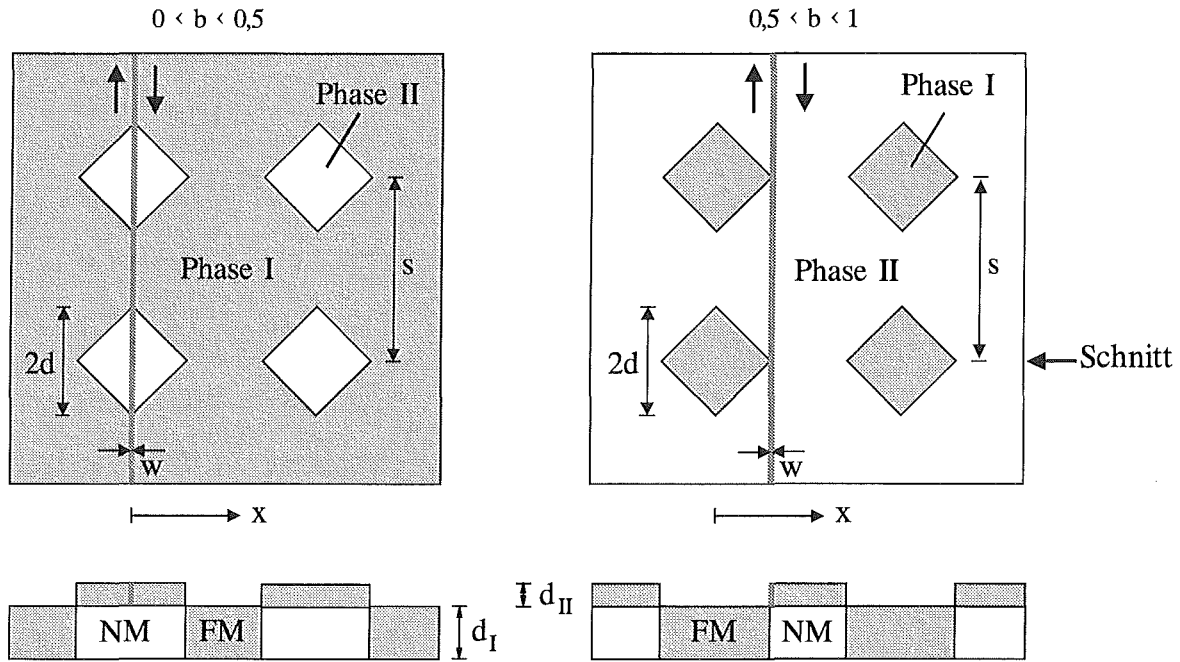


Abb. 6.28: Modell für eine dünne magnetische Schicht mit zweiphasiger Magnetstruktur

Der obere Teil zeigt eine Aufsicht auf die Filmoberfläche, der untere einen Schnitt durch den Film in angegebener Richtung für einen prozentualen Oberflächenanteil der Phase II (b) für $0 \leq b < 0,5$ (links) und $0,5 \leq b \leq 1$ (rechts). Ferromagnetische Bereiche (FM) sind dunkel, paramagnetische, bzw. antiferromagnetische (NM) hell gekennzeichnet. w ist die Breite der magnetischen Domänenwand, s der Abstand der zwei Domänen einer strukturellen Phase; $2d$ die Diagonale der strukturellen Domäne, d_I bzw. d_{II} die Anzahl der ferromagnetischen Lagen in Phase I bzw. II, x ist die Richtung der Aufmagnetisierung.

für vier verschiedene Bereiche von b :

$$\begin{aligned}
 H_c &= \frac{1}{2} A \frac{s}{w} \frac{\sqrt{2b}}{d_I + \delta \frac{w}{s} - \delta \sqrt{2b}} & \text{für } 0 \leq b \leq 2 \left(\frac{w}{s} \right)^2 \\
 H_c &= A \frac{1}{d_I + \delta \frac{w}{s} - \delta \sqrt{2b}} & \text{für } 2 \left(\frac{w}{s} \right)^2 \leq b \leq \frac{1}{2} \\
 H_c &= A \frac{1}{d_{II} + \delta \frac{w}{s}} & \text{für } \frac{1}{2} \leq b \leq 1 - 2 \left(\frac{w}{s} \right)^2 \\
 H_c &= \frac{1}{2} A \frac{s}{w} \frac{\sqrt{2(1-b)}}{d_{II} - \delta \frac{w}{s} + \delta \sqrt{2(1-b)}} & \text{für } 1 - 2 \left(\frac{w}{s} \right)^2 \leq b \leq 1.
 \end{aligned} \tag{6.2}$$

Zur Berechnung des Maximums der Koerzitivfeldstärke wurde für d_I das Maximum der Koerzitivfeldstärke von 3,7 ML und d_{II} eine Dicke der ferromagnetischen Schicht von

2 ML angenommen (Abb. 6.29 (oben)). Mit steigender Bedeckung wächst der Anteil der Phase II im Film und die Koerzitivfeldstärke steigt auf ein Maximum oberhalb von $b = 0,5$ an. Die asymmetrische Lage des Maximums ist darauf zurückzuführen, daß

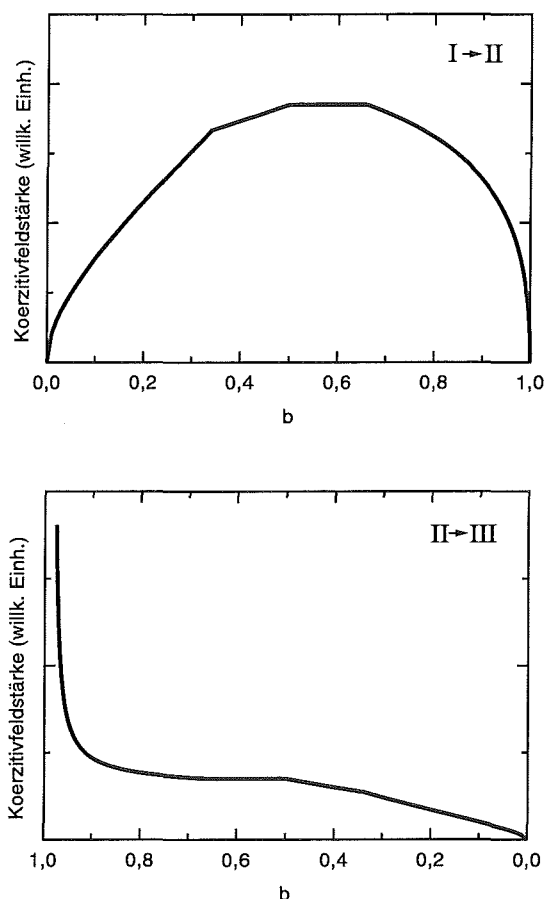


Abb. 6.29: Modell für die Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke vom Anteil der Phase II

Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke von dem Oberflächenanteil der Phase II (b). Das Modell wurde nach Gleichung 6.2 für den Übergang von I nach II (oben) mit den Werten $d_I = 3,7$ ML, $d_{II} = 2$ ML und $w/s = 33/80$ und für den Übergang von II nach III mit den Werten $d_I = 11$ ML und $d_{II} = 2$ ML und $w/s = 33/80$ berechnet.

der maximale Wert der Koerzitivfeldstärke für $b > 0,5$ am Rand der Phase I-Domänen, wie in Abb. 6.28 (rechts) gezeigt, erreicht wird, für $b \leq 0,5$ dagegen in der Mitte der Phase II Domänen (Abb. 6.28 (links)). Für $b > 0,5$ hängt die Koerzitivfeldstärke damit im wesentlichen nicht von der Größe der Phase I-Bereiche ab. Der prozentuale Anteil bei der maximalen Koerzitivfeldstärke muß daher in dem hier vorgestellten Modell mit zwei magnetischen Phasen immer größer oder gleich 0,5 sein. Die genaue Lage des Maximums hängt von der Inselform und der Breite der Domänenwände im Verhältnis zur Ausdehnung der Inseln ab. Die Asymmetrie des Maximums ist jedoch prinzipieller Natur und unabhängig von der Inselform.

Das Modell erklärt gut die prinzipielle Abhängigkeit der Koerzitivfeldstärke beim Übergang von I nach II (Abb. 6.5) von der Schichtdicke. Die Breite des Koerzitivfeldstärkenmaximums von 3,7 bis 5,7 ML stimmt mit dem Bereich der strukturellen Umordnung, die sich über 2 ML erstreckt, überein. Dies erklärt möglicherweise auch, warum die

$(2 \times 1)p2mg$ Überstruktur oberhalb von 6 ML am besten sichtbar ist.

Da beim Übergang von II nach III ebenfalls eine inhomogene, magnetische Struktur vorliegt, läßt sich auch hier das Modell mit $d_I = 11$ ML und $d_{II} = 2$ ML anwenden (Abb. 6.29 unten). Sowohl der hohe Wert als auch die starke Abnahme der longitudinalen Koerzitivfeldstärke von II nach III, die unabhängig von der Richtung des angelegten Feldes beobachtet wird (Abb. 6.6), werden durch das Modell erklärt.

Für die TT-Filme wird dagegen keine starke Änderung der Koerzitivfeldstärke beobachtet (Abb. 6.7). Grund dafür ist, daß die FM kfz Phase direkt in die $krz(110)$ -Phase übergeht. Bereits kleine Anteile paramagnetischen oder antiferromagnetischen Eisens müßten nach dem Modell zu einer signifikanten Änderung der Koerzitivfeldstärke führen. Im Übergangsbereich von A nach B liegen damit zwar zwei strukturelle Phasen, aber nur ein ferromagnetischer Zustand vor. Die Koerzitivfeldstärke steigt daher nur wenig an.

Eine äußerst wichtige Frage, die es zu beantworten gilt, ist, warum sich die AF Phase für RT-Filme oberhalb 5 ML, nicht aber für TT-Filme bildet. Obwohl dazu keine endgültige Antwort gegeben werden kann, gibt es drei mögliche Ursachen.

Unabhängig von der Depositionstemperatur kann die ferromagnetische Phase mit der charakteristischen (4×1) - und (5×1) -Überstruktur im LEED Bild nur bis etwa 4 ML stabilisiert werden. Oberhalb dieser Bedeckung vermag der Einfluß des Substrats die Phase nicht mehr zu stabilisieren und es existieren zwei Optionen. Die eine ist eine Vergrößerung der Scheramplitude und des Interlagenabstands, die zur Bildung von krz Fe führt. Die zweite ist ein Verschwinden der sinusförmigen Auslenkung der Atome und eine Verringerung des Interlagenabstands. Dies führt zur AF Phase. Energetische, kinetische und die Zusammensetzung des Films betreffende Gründe können für die verschiedenen Szenarien ursächlich sein.

Nimmt man energetische Unterschiede als Hauptursache für die Unterschiede an, kann man argumentieren, daß sich die Aktivierungsbarrieren für die Umwandlung zu krz oder AF Fe für die TT- (5×1) - und die RT- (5×1) -Phase unterscheiden. Diese verschiedenen Barrieren könnten durch kleine Unterschiede in der atomaren Position zwischen RT- und TT-Filmen hervorgerufen sein. Eine genauere Betrachtung der Abb. 6.24 (oben) ergibt z.B., daß die Intensitätsmaxima der $I(E)$ -Spektren der TT-Filme zu etwas kleineren Energien verschoben sind als die der RT-Filme. Dies würde einen größeren Interlagenabstand der TT-Filme bedeuten und den größeren Gradienten der Kerr-Elliptizität in Sättigung erklären. Für die TT-Filme wäre dann die Aktivierungsenergie zur krz Phase geringer, während für die RT-Filme ein Übergang zur AF-Phase bevorzugt wäre. Nimmt man kinetische Ursachen an, könnte man argumentieren, daß die Aktivierungsbarriere für beide Filme gleich ist, sich die Randbedingungen aber unterscheiden [227]. Für martensitische Umwandlungen in dünnen Filmen ist bekannt, daß die Aktivierungsenergie von der Schichtdicke abhängt und für dickere Filme größer wird [228]. Folglich mag das Anlassen eines 5 bis 6 ML TT-Films für 10 Minuten auf 300 K leichter zur

Bildung von krz Fe führen als eine Deposition von 8 ML bei RT mit einer Depositionsrate von 1 ML/Min. Für diese Hypothese gibt es einen indirekten Beweis durch RTM-Aufnahmen von Giergiel et al. [229], die zeigen, daß bei einer RT-Deposition ein kleiner Anteil der Oberfläche bereits von der idealen kfz Struktur oberhalb 4,6 ML abweicht. Dieser Anteil entwickelt sich mit wachsender Schichtdicke zu krz Fe-Präzipitaten. Es wäre aufschlußreich, die Bildung des krz Eisens für TT-Filme mittels RTM zu untersuchen und zu zeigen, daß bei kleiner Schichtdicke ein größerer Anteil dieser Präzipitate vorliegt.

Schließlich könnten auch Unterschiede in der Zusammensetzung im Volumen oder an der Grenzfläche des Films unterschiedliche Energiebarrieren hervorrufen. Es ist bekannt, daß bis 2 ML bei einer Depositionstemperatur von 300 K kleine Mengen an Cu in den Fe-Film diffundieren. Dies kann die AF kfz Fe Phase im Gegensatz zur krz Fe Phase stabilisieren. Durch RTM Untersuchungen [209–211, 213] wurde gezeigt, daß die Zusammensetzung des RT-Films im Vergleich zu den TT-Filmen vor allem an der Grenzfläche zwischen Substrat und Aufdampfmaterial modifiziert ist. Diese Interdiffusion kann zu einer unmagnetischen Fe/Cu-Grenzfläche führen. Ein direkter Hinweis für diese These ergibt sich aus Mössbauer Experimenten von Keune et al. [223], die bei Messungen an RT-Filmen eine unmagnetische Eisenlage an der Fe/Cu-Grenzfläche gefunden haben. Eine vergleichbare Messung an TT-Filmen könnte Aufschluß darüber geben, ob die Eisenlage der TT-Filme an der Grenzfläche Fe/Cu ebenfalls unmagnetisch ist. Eine durch die Interdiffusion modifizierte Grenzfläche kann zu einer Änderung der Grenzflächenanisotropie führen. Indirekte Hinweise für diese These ergeben sich aus einem Vergleich der Koerzitivfeldstärken und der Curie-Temperatur der TT-Filme (Abb. 6.7) und der RT-Filme (Abb. 6.5 und 6.4). Die Koerzitivfeldstärke kann bei kleiner Schichtdicke als ein Maß für die Größe der Grenzflächenanisotropieenergie aufgefaßt werden. Die Koerzitivfeldstärke der TT-Filme nimmt mit steigender Schichtdicke ab, was auf den wachsenden Einfluß der Formanisotropie zurückzuführen ist. Da trotz dieses Abfalls die Koerzitivfeldstärke der TT-Filme größer als die der RT-Filme ist, ist die Grenzflächenanisotropieenergie der TT-Phase möglicherweise größer als die der RT-Phase. Nach den Berechnungen von Politi et al. [86] stabilisiert diese Anisotropie den Ferromagnetismus in ultradünnen Schichten besser als die Formanisotropie (Abb. 2.11). Daraus läßt sich schließen, daß für die Tieftemperaturfilme die Curie-Temperaturen höher sein sollten. Dies wird durch den Vergleich der RT-Filme (Abb. 6.4) und der TT-Filme (6.7) bestätigt. Die Curie-Temperaturen der TT-Filme liegen alle oberhalb der der RT-Filme. Das Maximum der Curie-Temperatur der TT-Filme befindet sich unterhalb oder bei 2 ML, das der RT-Filme bei 3 ML. Da die größere Grenzflächenanisotropie der TT-Filme den Ferromagnetismus besser stabilisiert als die der RT-Filme, tritt aufgrund der Instabilität der FM kfz Phase bei steigender Schichtdicke möglicherweise in Abhängigkeit des magnetischen Zustands der Fe/Cu-Grenzfläche ein Übergang zu verschiedenen Phasen des Eisens ein. Bei den TT-Filmen induziert eine möglicher-

weise ferromagnetische Fe/Cu-Grenzfläche den Übergang zur FM krz Phase und bei den RT-Filmen eine unmagnetische Grenzfläche zur krz-Phase.

6.1.5 Vergleich mit anderen Arbeiten

Mit den hier vorgestellten Ergebnissen ist man in der Lage eine Reihe von scheinbar widersprüchlichen Ergebnissen anderer Arbeitsgruppen zu erklären. Parallel zu diesen Messungen wurden weitere Experimente von anderen Gruppen zu magnetischen, morphologischen und strukturellen Eigenschaften der Eisenfilme auf einem Cu(100)-Substrat durchgeführt, deren Resultate in wesentlichen Punkten mit den hier vorgestellten Ergebnissen übereinstimmen und weitere Informationen über Eigenschaften der Eisenfilme geben.

Der Wachstumsmodus der RT-Filme wurde ursprünglich sehr kontrovers diskutiert. Anfangs wurde davon ausgegangen, daß die Eisenfilme bei 300 K mit Beginn des Wachstums lagenweise aufwachsen [184,200]. Photoelektronenbeugungs- und RHEED-Experimente bewiesen jedoch eine Agglomeration des Fe bei Raumtemperatur [208] in Übereinstimmung mit dem Bauer-Kriterium (Gleichung 4.1). Der Verlauf der MEED-Intensitäten in Abb. 6.2 und Ref. [217] bei kleinerer Schichtdicke scheint dies zu bestätigen. Experimente mit dem RTM und niederenergetischer Ionenstreuung [209,210,215] wiesen jedoch nur bis ca. 2 ML eine Agglomeration nach. Oberhalb dieser Dicke wurde mittels RTM [209,210] ein nahezu perfektes lagenweises Wachstum gefunden. Die Experimente erklären damit die Intensitätsmaxima bei 2 und 3 ML in den MEED-Kurven der RT-Filme (Abb. 6.2). Der Anstieg der mittleren Intensität bei ca. 4 ML kann damit nicht durch das Wachstum, sondern durch die strukturelle Änderung von der rekonstruierten FM kfz Phase mit vertikaler Unordnung zur $(2 \times 1)p2mg$ Struktur erklärt werden.

Ausgehend von Experimenten von Thomassen et al. [182] (Abb. 6.2), in denen der Stabilitätsbereich der Phase II durch eine Zugabe von CO während des Wachstums expandiert werden konnte, werden mittlerweile die Eisenfilme gezielt kontaminiert und eine Ausweitung des Stabilitätsbereichs auf mehr als 30 ML erreicht [230,231].

Die strukturelle Analyse der Filme in den Bereichen I und A (Abb. 6.25) und II (Tabelle 6.3) erklären Ergebnisse aus SEXAFS-Messungen [204], die bei kleinen Schichtdicken eine vertikale Unordnung und oberhalb 5 ML eine unrekonstruierte Anordnung der Atome im kfz Gitter fanden. Interessanterweise führt eine Abdeckung der Schichten mit Cu zu einer beträchtlichen Verminderung der Rekonstruktion der Schichten. Dies kann bedeuten, daß entweder die FM kfz Phase durch die zweite Fe/Cu-Grenzfläche strukturell stabilisiert wird oder die Fe-Filme in die AF bzw. PM Phase übergehen. Da bei den nicht abgedeckten Filmen die Verminderung der Rekonstruktion mit dem Übergang zur AF bzw. PM Eisenphase verknüpft ist, ist eine Stabilisierung der FM kfz Phase durch das Cu unwahrscheinlich. Einen experimentellen Nachweis des Antiferromagnetismus der Eisenschichten ermöglicht die Konversionselektronen-Mössbauer-Spektroskopie (CEMS), mit der Eisenfilme von Keune et al. untersucht wurden [14–16,173,190,222,223,232,233]. Experimente von Fuest et al. [233] mittels

Mössbauer-Spektroskopie zeigen, daß durch die Postdeposition eines 3 ML Eisenfilms mit 2 ML Cu ein Teil des Films in einen paramagnetischen Zustand übergeht. Dies weist auf die Bildung der AF Phase hin. Die Fe/Vakuum Grenzfläche spielt daher eine wichtige Rolle bei der Stabilisierung der FM kfz Phase. Dies erkennt man auch daran, daß im Bereich II die FM kfz Phase des Eisens an der Oberfläche stabilisiert ist. Eine Abdeckung eines 6 ML RT-Films mit 60 ML Cu [234] führt zu einem Verschwinden des ferromagnetischen Kerr-Signals. Beweise, daß der Film in diesem Bereich an der Grenzfläche zwischen Fe und Cu unmagnetisch ist, ergeben sich aus Messungen mittels Mössbauer-Spektroskopie von Keune et al. [223].

Im Volumen des Films sind die Momente des Eisens antiferromagnetisch geordnet. Dies geht aus Messungen mittels CEMS [222] und MOKE [235] hervor. In Übereinstimmung mit den hier vorgestellten Ergebnissen fanden Ellerbrock et al. [222] unabhängig von der Präparationsbedingung (Deposition bei 100 oder 300 K) im Bereich I und A eine FM Phase mit einem hohen Moment und einem c/a -Verhältnis größer als $\sqrt{2}$. Im Bereich II ermittelten sie einen paramagnetischen Zustand bei 300 K und einen antiferromagnetischen mit kleinem Moment ($\mu_{Fe} \leq 0,7\mu_B$) bei niedriger Temperatur ($T \leq 45$ K) im Volumen des Films. Dieses Ergebnis steht in Einklang mit dem kleineren atomaren Volumen im Inneren des Films (siehe Tabelle 6.3). Die Experimente von Ellerbrock et al. bestätigen nicht die Vermutung von Li et al. [235], die für den Bereich II eine bisher nicht beobachtete antiferromagnetische Phase mit großem Moment ($\mu_{Fe} > 0,7\mu_B$) postulierten. Li et al. fanden an keilförmigen Schichten mittels MOKE eine Oszillation der Kerr-Elliptizität in Sättigung in Abhängigkeit der Schichtdicke, deren Amplitude mit kleiner werdender Temperatur ansteigt. Sie schlossen daraus auf eine antiferromagnetische Kopplung der Lagen mit einer Néel-Temperatur von 200 K, die erheblich größer ist, als für die AF kfz Phase erwartet werden kann. Beide Gruppen schlugen für den Bereich B der TT-Filme die Existenz einer tetragonal verzerrten kfz Struktur mit $c/a > \sqrt{2}$ vor. Die hier vorgestellten Ergebnisse zeigen dagegen, daß der Übergang zur krz Phase des Eisens bei 4,5 ML beginnt.

Die Stabilisierung der antiferromagnetischen Phase im Volumen des Films mit einer kleinen Néel-Temperatur erklärt die Beobachtung eines antiferromagnetischen Zustands für RT-Filme in einem mittleren Schichtdickenbereich mittels Mössbauer-Spektroskopie [15,16,190,191] bzw. eines paramagnetischen Zustands mittels Brillouin-Streuung [189]. Die Beobachtung einer senkrechten Magnetisierung oberhalb ca. 5 ML [188] ist charakteristisch für die Struktur des Eisens im Bereich II. Die longitudinale Magnetisierung bei noch größeren Schichtdicken weist auf die krz(110)-Struktur im Bereich III [188] hin.

Im gesamten Bereich II konnte von Heinz et al. [236,237] die Übereinstimmung zwischen berechneten und experimentell gemessenen $I(E)$ -Spektren durch die Annahme einer lokalen $(2 \times 1)p2mg$ -Rekonstruktion verbessert werden. Das Eisen wächst nach diesen Ergebnissen lateral nicht mit der Gitterkonstanten des Cu (2,55 Å) sondern

inkommensurabel mit $2,52 \text{ \AA}$ auf. Nach neueren Ergebnissen von Müller et al. [238] ist auch die Cu(100)-Substratgitterkonstante lateral um 1 % auf $2,53 \text{ \AA}$ relaxiert. Ein pseudomorphes Wachstum des Fe auf dem Cu(100)-Substrat erscheint daher wieder wahrscheinlich.

RTM-Messungen beschäftigten sich mit den Prozessen während der Strukturumwandlungen zur krz(110)-Phase. Oberhalb von 5 ML wurde von Giergiel et al. [229] die Bildung hervorstehender Streifen in kfz[011]-Richtung beobachtet, die sich beim Übergang von II nach III zu krz-Eisen umordnen.

Kalki et al. [239] ermittelten, daß der Transformationsprozeß martensitischer Natur ist. Dabei wird kollektiv eine große Anzahl an Atomen der kfz Phase in [011]-Richtung mit sehr hoher Geschwindigkeit verschert. Es entstehen in diesem Prozeß krz(110)-Domänen in Form von *Nadeln* in Pitsch-Orientierung (Abb. 6.18) auf dem Cu(100)-Substrat, deren Länge $500 - 1000 \text{ \AA}$ und deren Längen- zu Breitenverhältnis $10 - 15$ beträgt [239]. Da auf der krz(110)-Phase das Fe dreidimensional aufwächst [226], entstehen bei weiterer Deposition auf den Nadeln wallförmige Inseln, deren Existenz von Thomassen et al. [64, 141, 142] postuliert worden ist. Bei genauerer Analyse der RTM-Bilder [239] bestehen diese Wälle jedoch aus noch kleineren Inseln, die in krz[001]-Richtung langgestreckt sind. Diese Ausdehnung der Inseln wurde auch von Albrecht [226] bei dem homoepitaktischen Wachstum von Fe auf einem Fe(110)-Kristall gefunden.

In einem martensitischen Übergang sind die Flächen der krz Phase zu denen der kfz Phase orientiert [239]. Z.B. kann die kfz(001)-Fläche parallel zur krz(011)-Ebene liegen. Diese Orientierung der beiden Ebenen führt nicht zu einem Mosaikwinkel zwischen dem kfz und krz Kristall. Möglich ist auch eine Orientierung der kfz(111)-Ebene parallel zur krz(011)-Ebene, bei der die Oberflächen der krz(110)- und der kfz(100)-Phase einen Mosaikwinkel von $5,3^\circ$ einschließen [240]. Hinweise auf die Bildung eines Mosaikwinkels ergeben sich aus RTM-Aufnahmen [239]. Die Bildung von Mosaikkristallen im Bereich III wird durch die linear ansteigende Halbwertsbreite des (0,0)-Reflexes bei konstruktiver Interferenz an Stufen (Abb. 6.9) bestätigt. Durch den martensitischen Transformationsprozeß liegt die krz Phase fast unverzerrt vor und die zugehörigen I(E)-Spektren (Abb. 6.19) weichen nur wenig von den Spektren der idealen krz Struktur ab. Im Übergangsbereich von II nach III setzen sich die I(E)-Spektren aus Beiträgen der krz und der kfz Phase zusammen. Dies erklärt, warum unter der Annahme einer krz(100)-Struktur für die Filme im Übergangsbereich keine Übereinstimmung zwischen experimentellen und berechneten Spektren [142, 183] erzielt werden konnte. Eine quantitative Berechnung von LEED-Spektren [241] bestätigt die Richtigkeit des in Unterabschnitt 6.1.3 vorgestellten Strukturmodells einer unverspannten krz(110)-Phase in Pitsch-Orientierung für die RT-Filme mit großer Schichtdicke.

Nachfolgende Untersuchungen der magnetischen Anisotropie mittels MOKE und Magnonen-Lichtstreuung [242] beschäftigten sich mit dem Einfluß der martensitischen Um-

wandlung zur $\text{krz}(110)$ -Struktur auf die magnetischen Eigenschaften. Die Messungen ergaben, daß bei einem 25 ML dicken Film abweichend von einem $\text{krz}(110)$ -Kristall nicht, wie erwartet, nur eine leichte Achse in $\text{krz}[001]$ - sondern auch eine mittlere in $\text{krz}[1\bar{1}0]$ - und zwei harte in $\text{krz}[1\bar{1}1]$ -Richtung vorliegen. Durch die Bildung langgestreckter Zwillingsdomänen in $\text{krz}[1\bar{1}0]$ -Richtung können beide Domänen magnetisch gekoppelt sein, so daß eine mittlere leichte Achse der Magnetisierung in die $\text{krz}[1\bar{1}0]$ -Richtung entsteht [242].

Das Wachstum der Eisenfilme bei 100 K ist bereits mit mehreren Methoden untersucht worden [225]. Egelhoff et al. [243] folgerten aus dem exponentiellen Abfall der Intensität und der Abwesenheit von Oszillationen, daß das Fe dreidimensional wächst. Die hier vorgestellten MEED-Daten mit ihrem deutlichen Abfall der Intensität bestätigen diese Ergebnisse.

Untersuchungen der Inselgröße und Mobilität von Adatomen mittels SPALEED [244] zeigten eine ringförmige Verbreiterung des $(0,0)$ -Reflexes bei 100 K, die auf einen mittleren Inselabstand von 10 atomaren Abständen schließen läßt. Thermisch aktivierte Diffusion setzt nach diesen Ergebnissen bei ≈ 150 K ein. Experimente mit niederenergetischer Ionenstreuung [215] ergaben, daß einige Atome sogar bei 140 K Plätze in der obersten Lage des Cu-Substrats besetzen. Eine Deposition bei 100 K kann diese Tendenz verringern. Eine Defektdichte vergleichbar zu den RT-Filmen wurde bei Schichtdicken oberhalb 3 ML nach dem Anlassen auf 300 K ermittelt [215]. Dies stimmt mit der Beobachtung einer scharfen (4×1) - (5×1) -Überstruktur oberhalb 2,8 ML (Abb. 6.13 oben links und rechts) überein.

Obwohl einige Gruppen eine (4×1) - (5×1) -Überstruktur nach dem Anlassen eines TT-Films bei kleinen Bedeckungen beobachtet haben [243, 245, 246], war bisher die Charakterisierung der Überstrukturen der TT-Filme mit wachsender Schichtdicke nicht vollständig.

Durch die quantitative Analyse der (5×1) -Phase (Abb. 6.25) können die vorgeschlagenen Modelle von Kief und Egelhoff [196], daß die Oberflächenatome wie die der $\text{kfz}(100)$ -Ir-, Pt- und Au-Oberfläche angeordnet sind, und von Pappas [206], daß die Überstruktur aus der Bildung von Stufen mit einer Breite von 4 bis 5 Atomen resultiert, widerlegt werden. Statt dessen ist diese Struktur mit dem Ferromagnetismus im gesamten Film und der senkrechten, magnetischen Anisotropie verknüpft. Eine senkrechte Magnetisierung für Filme, die bei 100 K aufgedampft wurden, ist bereits in anderen Studien beobachtet worden [185, 186]. Diese Untersuchungen zeigten auch, daß die senkrechte Magnetisierung für Filme, die bei 100 K deponiert und nicht angelassen werden, bei 6 ML in die Ebene dreht [185]. Dieses Ergebnis ist der Änderung der Magnetisierungsrichtung (Abb. 6.8) ähnlich. Eine der interessantesten Eigenschaften der TT-Eisenschichten ist das temperaturabhängige, reversible Umklappen der senkrechten Magnetisierung im Übergangsbereich von A nach B [245, 247]. Die hier vorgestellten Ergebnisse zeigen sehr klar, daß die strukturelle Änderung für die Reorientierung der

Magnetisierung mit wachsender Schichtdicke eine wichtige Rolle spielt. Das Umklappen der Magnetisierung korreliert offensichtlich mit dem Übergang zur $\text{krz}(110)$ -Phase. Dieser Übergang führt zu einem Multidomänenzustand, der mit einem Rasterelektronenmikroskop mit Auflösung der Spinorientierung [247] beobachtet wurde. Die Existenz einer großen Anzahl magnetischer Domänen ist in Abb. 6.7 an einer remanenten Magnetisierung bis ca. 6 ML erkennbar, die beträchtlich unterhalb der Sättigungsmagnetisierung liegt. Es muß noch belegt werden, ob die Reorientierung der Magnetisierung mit der Temperatur auch mit einer (reversiblen) strukturellen Umordnung verknüpft ist. Diese Aufgabe ist mittels einer Berechnung der LEED $I(E)$ -Spektren nicht einfach zu lösen, da die Unterschiede in den Spektren zwischen der (5×1) - und der krz Phase nicht sehr ausgeprägt sind. Deshalb ist eine Koexistenz beider Phasen schwierig festzustellen. Das Ergebnis wird zusätzlich durch kürzlich durchgeführte Experimente kompliziert [248], die einen Einfluß des angelegten magnetischen Feldes auf die Filmeigenschaften zeigen. Dieses Ergebnis ist in Zusammenhang mit magnetoelastischen Effekten diskutiert worden, die ebenfalls auf eine enge Korrelation zwischen dem Magnetismus und der Struktur ultradünner Eisenfilme hinweisen.

Nach umfangreichen Untersuchungen ergibt sich nun ein konsistentes Bild für die Eigenschaften ultradünner Eisenfilme auf einem $\text{Cu}(100)$ -Einkristall. Durch das Aufzeigen der Wechselbeziehung zwischen den magnetischen, strukturellen und morphologischen Eigenschaften dieser Filme ist man jetzt in der Lage verbliebene, offene Fragen präzise zu stellen und durch die geeignete Wahl eines Experiments zu beantworten.

6.2 Ultradünne Eisenfilme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$

Im vorhergehenden Abschnitt wurde gezeigt, daß es möglich ist, die ferromagnetische kubisch flächenzentrierte Phase des Eisens mit einem großen atomaren Volumen, $V_{\text{Atom}} = 12,19 \text{ \AA}^3$, in einem begrenzten Schichtdickenbereich bis ca. 4,5 ML auf einem $\text{Cu}(100)$ -Substrat zu stabilisieren. In Übereinstimmung mit theoretischen Berechnungen [112] ergibt die quantitative Bestimmung der Struktur, daß diese Phase instabil gegen Verscherungen in die $\text{kfz}[011]$ -Richtung ist und wesentlich durch die Fe/Vakuum-Grenzfläche stabilisiert wird. Aufgrund der negativen Gitterfehlpassung erreicht das c/a -Verhältnis 1,47, welches größer als das einer idealen kubisch flächenzentrierten Modifikation mit $\sqrt{2}$ ist. Um die Abhängigkeit dieser Phase von der lateralen Spannung zu untersuchen, wurde $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ ($a = 3,745 \text{ \AA}$) als Substrat gewählt. Aufgrund der Gitterfehlpassung von -2,3 % (Tabelle 6.1) sollte dies unter der Annahme einer kubischen Phase zu einer lateralen Expansion und einer Kontraktion des Interlagenabstands der ferromagnetischen, kubisch flächenzentrierten Phase führen. Dieses Substrat hat den weiteren Vorteil, daß die Gitterfehlpassung für die antiferromagnetische Phase (-4,6 %) und die kubisch raumzentrierte Phase (7,7 %) deutlich größer ist. Deshalb kann möglicherweise das epitaktische Wachstum des ferromagnetischen, kubisch flächenzentrierten Eisens zu größeren Schichtdicken möglich sein, als auf dem $\text{Cu}(100)$ -Substrat. Unberücksichtigt bleiben darf jedoch nicht, daß auch ein inkommensurables Wachstum des Eisens in $\text{krz}(110)$ -Orientierung möglich ist.

Schließlich stellt nach den Berechnungen zu dem Stabilitätsbereich der kubisch flächenzentrierten Phasen (Abb. 3.2) das $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ -Substrat einen interessanten Grenzfall dar, auf dem in Abhängigkeit des Energieunterschieds zwischen der kubisch raumzentrierten und kubisch flächenzentrierten Phase das Wachstum der $\text{krz}(100)$ -Phase trotz der großen Gitterfehlpassung möglich sein sollte [106]. Frühere Messungen von Rochow et al. [174] an einer 250 ML dicken Eisenschicht scheinen dies durch eine kinematische Auswertung der Intensitätsmaxima des (0,0)-Reflexes zu bestätigen.

Die Ergebnisse für kleinere Schichtdicken differieren teilweise. Während Lu et al. [175] mit Elektronenbeugung beobachteten, daß Eisenfilme nur bis 3 ML mit einer akzeptablen Ordnung aufwachsen, ergaben Untersuchungen von Rochow et al. [174] an Filmen, die bei Raumtemperatur deponiert wurden, daß das Eisen pseudomorph in der kubisch flächenzentrierten Struktur bis 7 ML aufwächst. Darüber hinaus fanden sie eine longitudinale, remanente Magnetisierung oberhalb 3,6 ML bei Raumtemperatur. Da sie mit dem verwendeten experimentellen Aufbau eine senkrechte Magnetisierung nicht messen konnten, vermuteten sie unterhalb dieser Schichtdicke eine senkrechte Magnetisierung. Keune et al. [16, 173] untersuchten die magnetischen Eigenschaften von Eisenfilmen, die bei 473 und 309 K deponiert wurden, mittels Mössbauer-Spektroskopie. In Übereinstimmung mit den Ergebnissen von Rochow et al. [174] ermittelten sie bei 5 ML eine Magnetisierungsrichtung in der Ebene. Aus den großen Werten des Hyperfein-

des schlossen sie auf einen Zustand mit einem großen magnetischen Moment. Die Untersuchungen an den Eisenfilmen auf einem Cu(100)-Substrat ergaben, daß die Filmeigenschaften empfindlich von der Depositionstemperatur abhängen. Unterschiede zwischen RT- und TT-Filmen resultieren auch aus der Interdiffusion von Adsorbat- und Substratatomen bei einer Depositionstemperatur von 300 K [212, 214, 215]. Für Eisenfilme auf Cu₃Au(100) wurden von Rochow et al. [174] Hinweise auf eine Diffusion von Substratatomen zur Filmoberfläche bis 7 ML nach einer Deposition bei Raumtemperatur gefunden. Zunächst wurde deshalb das Diffusionsverhalten der Filme, die bei Raumtemperatur aufgedampft wurden, charakterisiert. Danach wurde eine Depositions- und Anlaßtemperatur ermittelt, bei der eine Interdiffusion oder Segregation vernachlässigbar ist. Schließlich wurden das Wachstum, der Magnetismus und die Struktur der Filme analysiert, um die magnetischen und strukturellen Phasen des Eisens auf dem Cu₃Au-Substrat zu identifizieren.

6.2.1 Morphologie

Um zu überprüfen, ob und bei welcher Temperatur eine Diffusion von Kupfer- oder Goldatomen einsetzt, wurden zunächst Filme bei Raumtemperatur deponiert. Nach der Deposition wurde die Intensität der Auger-Übergänge mit niedriger Energie ($\text{Fe}_{47\text{ eV}}$, $\text{Cu}_{60\text{ eV}}$ und $\text{Au}_{69\text{ eV}}$) und hoher Energie ($\text{Fe}_{703\text{ eV}}$, $\text{Cu}_{920\text{ eV}}$) gemessen und die Verhältnisse zwischen den Auger-Intensitäten bestimmt. Anschließend wurde die Temperatur um 30 K erhöht. Nach 20 Minuten bei konstanter Temperatur wurden die Auger-Verhältnisse erneut bestimmt. Eine Änderung des Verhältnisses durch das Anlassen auf eine bestimmte Temperatur kennzeichnet das Einsetzen der Diffusion. Bei den kleinen Schichtdicken blieb das $\text{Fe}_{703\text{ eV}}/\text{Cu}_{920\text{ eV}}$ -Verhältnis konstant, während die Verhältnisse der niederenergetischen Auger-Übergänge sich aufgrund der einsetzenden Diffusion änderten. Die niederenergetischen Auger-Elektronen sind aufgrund ihrer geringen Austrittslänge besonders oberflächenempfindlich. Die Temperaturen, bei denen eine Diffusion einsetzt (T_{diff}), sind in Abb. 6.30 dargestellt. Die höchste Temperatur, bei

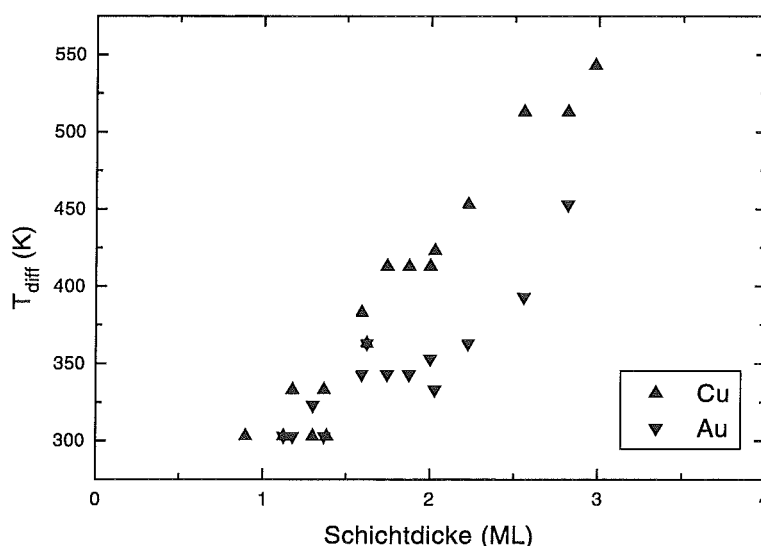


Abb. 6.30: Temperaturen für das Einsetzen der Diffusion in Abhängigkeit der Schichtdicke

T_{diff} ist die Temperatur, bei der sich das Augerverhältnis niedriger Energie nach einer Anlaßzeit von 20 Minuten ändert. Die Werte für die Diffusion von Cu (nach oben zulaufende Dreiecke) sind größer als die des Au (nach unten zulaufende Dreiecke). Bei etwa 1 bis 1,5 ML wird für beide Elemente eine Temperatur von 300 K erreicht.

der keine Diffusion beobachtet wurde, liegt 30 K unterhalb der Werte, die in Abb. 6.30 dargestellt sind. Wie erwartet, reduziert sich mit wachsender Schichtdicke die Tendenz der Substratatome, zur Oberfläche zu diffundieren. Das Diffusionsverhalten des Kupfers ist vergleichbar mit dem Verhalten von TT-Filmen auf Cu(100) (Tab. 5.1). Gold diffundiert innerhalb des untersuchten Schichtdickenbereiches bei beträchtlich niedrigeren

Temperaturen als Kupfer. Sogar ohne ein weiteres Anlassen des Films scheinen Substratome während der Deposition des Eisens bei Raumtemperatur auf die Oberfläche des Films zu diffundieren. Diese These wird durch einen niedrigen Wert von 300 K für T_{diff} bei kleiner Schichtdicke unterstützt. Ein Indiz für eine bevorzugte Diffusion der Au-Atome ist die Beobachtung, daß das $\text{Au}_{69\text{ eV}}$ -Signal mit wachsender Schichtdicke langsamer abnimmt als das $\text{Cu}_{60\text{ eV}}$ -Signal. Während das niederenergetische Signal des Kupfers bei 1,8 ML verschwindet, kann das Goldsignal bis 4,4 ML detektiert werden. Deshalb muß angenommen werden, daß eine Diffusion von Goldatomen für Schichtdicken bis zu 4,4 ML die Filmeigenschaften beeinflusst. Um zu verstehen, unter welchen Bedingungen eine Diffusion bevorzugt ist, muß man sich die Faktoren vergegenwärtigen, die die Segregation beeinflussen [255]. Diese sind die unterschiedliche Größe der Atome, die Unterschiede in der Oberflächenenergie und die Tendenz zur Legierungsbildung. Die Goldatome sind größer als die Eisenatome, was die Segregation der Goldatome bevorzugt. Durch die kleinere Oberflächenenergie des Goldes ($1,5\text{ mJ/m}^2$) und Kupfer ($1,78\text{ mJ/m}^2$) im Vergleich zu α -Eisen ($2,41\text{ mJ/m}^2$) [256] ist eine Benetzung mit Au-Atomen bevorzugt. Schließlich zeigt das binäre Phasendiagramm von Eisen und Kupfer und von Eisen und Gold [257] eine vernachlässigbare Löslichkeit des Kupfers und Goldes in Eisen. Aufgrund der kleineren Oberflächenenergie und des größeren Atomdurchmessers ist die Tendenz zur Segregation für die Au-Atome stärker ausgeprägt als für die Cu-Atome. Die Diffusion der Substratome kann möglicherweise auch die Grenzflächeneigenschaften Fe/Substrat ändern, da die Eisenatome Plätze in der Substratoberfläche besetzen können, die durch die Segregation der Goldatome frei geworden sind.

Bei größerer Schichtdicke konnte auch nach dem Anlassen der Filme auf 573 K keine Diffusion von Substratomen zur Oberfläche festgestellt werden. Daher liegt im Film keine große Dichte an Defekten vor, die bei dieser Temperatur eine Diffusion von Substratomen zur Filmoberfläche ermöglicht.

Zur Vermeidung der Diffusion von Substratomen bei kleiner Schichtdicke wurde Fe bei einer Temperatur von 150 K deponiert. Danach wurde die Abhängigkeit der Augerintensität von der Schichtdicke vor und nach dem Anlassen auf 300 K für 30 Minuten bestimmt. Sowohl das niederenergetische Cu- als auch das Au-Signal verschwinden vor und nach dem Anlassen bei einer nahezu vergleichbaren Schichtdicke von 1,6 bzw. 1,9 ML vor und nach dem 30-minütigen Anlassen auf 300 K. Im Vergleich zu einer Deposition bei Raumtemperatur ist dieser Wert für das Au beträchtlich kleiner und für das Cu ähnlich. Folglich ist eine Diffusion von Cu- und Au-Atomen bei einer niedrigen Depositionstemperatur von 150 K vernachlässigbar. Deshalb zeigen diese Filme die intrinsischen Eigenschaften der Fe-Filme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$. Das Verschwinden der niederenergetischen Cu- und Au-Signale bei 1,8 ML zeigt auch, daß das Substrat oberhalb dieser Schichtdicke vollständig mit Fe bedeckt ist.

Für eine komplette Charakterisierung des Wachstums wurde die MEED-Intensität ver-

schiedener Reflexe simultan während der Deposition gemessen (Abb. 6.31). Die hier vorgestellten MEED-Daten ergeben keinen eindeutigen Hinweis auf ein lagenweises Wachstum des Films. Bei der Interpretation der MEED-Kurven muß zudem berück-

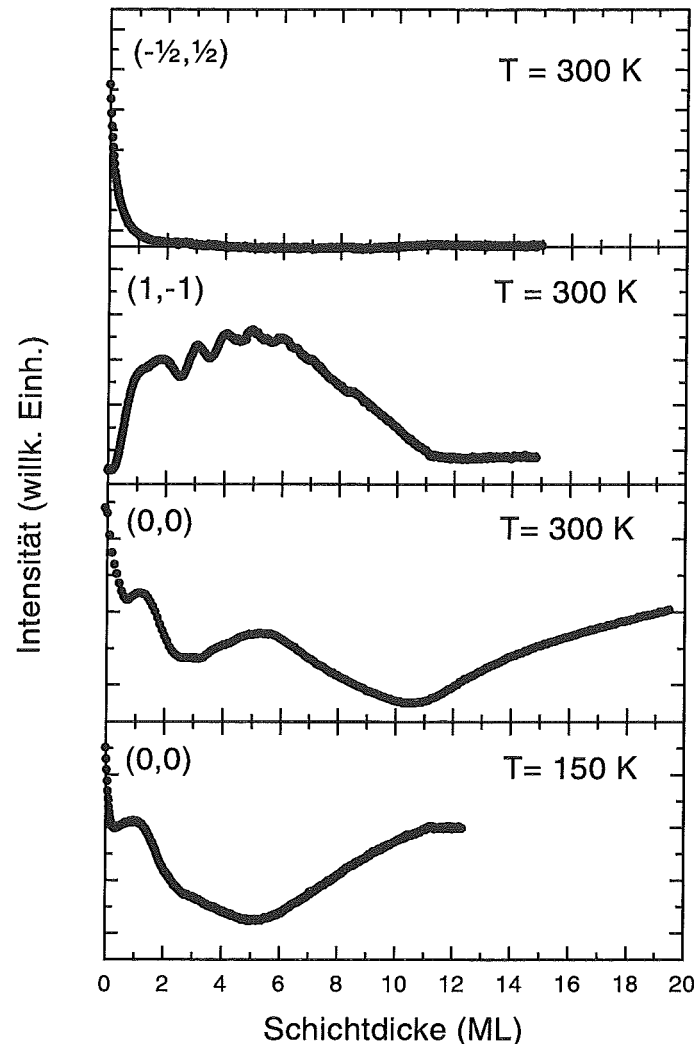


Abb. 6.31: MEED-Wachstumskurven verschiedener Reflexe für TT- und RT-Filme. Die Reflexintensität wurde in Abhängigkeit der Schichtdicke bei 300 und 150 K aufgenommen. Die Depositionsrates bei der Messung der Intensität des $(-\frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ - und der $(0, 0)$ -Reflexe betrug 1,2 ML/Min, bei der des $(1, -1)$ -Reflexes 0,9 ML/Min.

sichtigt werden, daß nicht nur der Wachstumsmodus, sondern auch die Struktur des Films die MEED-Intensität beeinflussen. Darüber hinaus hängt der Verlauf der Kurven von den Streubedingungen ab [141].

Die Intensität des $(-\frac{1}{2}, \frac{1}{2})$ -Reflexes, die aus dem unterschiedlichen Streuvermögen der Cu- und Au-Atome resultiert, fällt exponentiell ab und verschwindet innerhalb von 1,5 ML bei einer Depositionstemperatur von 150 und 300 K. Die Intensität des $(1, -1)$ -Reflexes, der nahezu parallel zur Oberfläche gebeugt wird, steigt bis etwa 1 ML steil an.

Ursache dafür ist eine kurzreichweitigere Ordnung der Filmoberfläche im Vergleich zur Substratoberfläche, die zu einer Verbreiterung des reziproken $(1,-1)$ -Gitterstabes und damit zur Intensitätserhöhung führt. Nach einer Schulter bei etwa 1 ML sind Oszillationen mit konstanter Periodizitätslänge bis etwa 6 ML sichtbar. Diese sind Indikator für eine Oszillation der Stufendichte während der Deposition und damit charakteristisch für einen dem lagenweisen Wachstum ähnlichen Modus bis 6 ML. In der Intensität des $(0,0)$ -Reflexes konnte nur eine schwach ausgeprägte Oszillation der Intensität bis 3 ML bei Depositionsraten unterhalb 1 ML/Min beobachtet werden. Oberhalb 6 ML nimmt die Intensität des $(1,-1)$ -Reflexes linear bis 11 ML ab. Erkennbare Änderungen der Intensität werden bei den gleichen Schichtdicken wie beim $(1,-1)$ - auch im $(0,0)$ -Reflex beobachtet. Bei beiden Depositionstemperaturen ändert sich nach einem steilen Abfall mit einem lokalen Maximum bei 1 – 1,3 ML die Steigung der Kurven bei etwa 2,5 ML. Bei den Tieftemperaturfilmen ist der Abfall bis etwa 5,0 ML weniger steil. Bei den RT-Filmen steigt die Intensität oberhalb dieser Schichtdicke bis 6 ML an und fällt dann nahezu linear bis 11 ML ab. Oberhalb dieser Schichtdicke wird ein erneuter Intensitätsanstieg beobachtet. Bei den TT-Filmen setzt dieser Anstieg bereits oberhalb 5 ML ein. Das lokale Maximum der mittleren Intensität des RT-Films bei ca. 6 ML stimmt mit dem des $(1,-1)$ -Reflexes überein. Oberhalb dieses Maximums verschwinden die Oszillationen in der Intensität des $(1,-1)$ -Reflexes oberhalb dieser Bedeckung überein. Die $(0,0)$ -Reflexintensität der TT-Filme besitzt ihr absolutes Minimum dagegen bei 5 ML. Ein ähnlicher Intensitätsverlauf zwischen 2,4 und 11 ML wie bei den RT-Filmen wird damit bei den TT-Filmen nicht beobachtet.

Dies wird auch in der Entwicklung des MEED-Bildes deutlich. Bis 2,4 ML wird das MEED-Beugungsbild der RT-Filme diffuser und die Intensität der Beugungsreflexe nimmt ab. Bis 6 ML steigt die Intensität für der RT-Filme wieder an. Zwischen 6 und 10 ML werden die MEED-Reflexe zusätzlich unschärfer und verschwinden wie z.B. der $(1,-1)$ -Reflex nahezu völlig. Neue, sehr breite Reflexe an etwas anderen Positionen werden im MEED-Beugungsbild sichtbar. Mit wachsender Bedeckung werden sie intensiver und verursachen den Intensitätsanstieg in den $(0,0)$ -Reflexen.

Eine ähnliche Entwicklung des MEED-Bildes wird auch bei den TT-Filmen beobachtet. Hier entstehen jedoch die neuen Reflexe bereits oberhalb 5 ML.

Die ausgeprägten Änderungen werden auch im LEED-Bild beobachtet. Unterhalb 1 ML wird visuell eine energieabhängige, ringförmige Verbreiterung der Hauptstruktureflexe festgestellt. Die ausgeprägtesten Ringe werden nach der Deposition bei 150 K beobachtet (Abb. 6.33 oben links). Nach der Deposition bei Raumtemperatur ist der Durchmesser des Rings kleiner. Die Verringerung dieses Durchmessers ist ein Indiz für die Bildung größerer Inseln bei RT-Deposition. Oberhalb 1 ML (RT) ist die energieabhängige Verbreiterung weniger ausgeprägt, was auf eine Änderung der morphologischen Eigenschaften hinweist (Abb. 6.35 links). Oberhalb ca. 3 ML entstehen zusätzliche Streifen in die $k_{\text{fz}}[001]$ -Richtung, die durch die Hauptstruktureflexe verlaufen (Abb. 6.35

rechts) und mit wachsender Schichtdicke und Energie intensiver werden. Darüber hinaus nimmt die Intensität des Untergrundes bei diesen Energien zu. Bis 5,8 ML ändert sich dieses LEED-Bild nicht. Oberhalb dieser Schichtdicke verschwinden die Streifen in $k_fz[001]$ -Richtung und es entwickelt sich eine diffuse Intensität um die Position der Hauptstruktureflektre, die mit wachsender Schichtdicke intensiver wird. Das Auftauchen der diffusen Intensität ist mit dem Intensitätsverhalten der MEED-Reflektre korreliert. Im LEED-Bild nimmt die Intensität der scharfen Hauptstruktureflektre innerhalb der diffusen Intensität oberhalb 6 ML ab und die Hauptstruktureflektre verschwinden bei etwa 9 ML. Die Untergrundintensität steigt beträchtlich an. Oberhalb dieser Schichtdicke bleibt das Beugungsbild sehr diffus und ändert sich bei weiterer Deposition nicht mehr. Die Reflektre, einschließlich des (0,0)-Reflektres, sind unabhängig von der Energie sehr breit. Dies ist für eine hohe Defektdichte oder eine kurzreichweitige Ordnung der Oberflächenlagen charakteristisch. Um zu überprüfen, inwieweit die Rauigkeit der Oberfläche zur diffusen Intensität oberhalb 5,8 ML beiträgt, wurden die Filme auf höhere Temperatur angelassen und das Beugungsbild beobachtet (Abb. 6.36). Oberhalb 20 ML wird eine erhebliche Verringerung der Halbwertsbreite durch ein Anlassen des Films auf 470 K erreicht (Abb. 6.36 unten links). Nach dem Anlassen werden keine Hinweise auf eine Facettierung der Oberfläche im Beugungsbild gefunden. Das bedeutet, daß das diffuse LEED-Bild vor dem Anlassen auch durch eine erhöhte Rauigkeit hervorgerufen wird. Ein Anlassen des Films auf 400 K reicht jedoch nicht aus, um ein schärferes Beugungsbild zu erzeugen. Für eine Glättung des Films ist im wesentlichen eine Erhöhung des Interlagenmassentransportes Voraussetzung. Aus diesem Anlaßversuch folgt damit, daß der Interlagenmassentransport zwischen 400 und 470 K einsetzt. Zwischen 10 und 20 ML bleiben die Hauptstruktureflektre einschließlich des (0,0)-Reflektres energieunabhängig sogar nach dem Anlassen auf 570 K breit (Abb. 6.36 Mitte links), wobei sie mit wachsender Bedeckung schärfer werden (Abb. 6.36 Mitte rechts). Folglich sind die Filme oberhalb 6 ML kurzreichweitiger geordnet als bei sehr großer Schichtdicke. Diese Schlußfolgerung ergibt sich auch aus dem Verlauf der MEED-Intensität (Abb. 6.31), die bis 50 ML kontinuierlich ansteigt.

Das prinzipielle Verhalten der TT-Filme ist dem der RT-Filme ähnlich. Lediglich in einigen Details ergeben sich Unterschiede. TT-Filme zeigen unterhalb 3 ML ein schärferes LEED-Bild als RT-Filme, was charakteristisch für eine bessere Ordnung in diesem Schichtdickenbereich ist (Abb. 6.33 oben rechts und Mitte links). Oberhalb dieser Bedeckung wird das Beugungsbild innerhalb 1,5 ML bis 4,8 ML diffus (Abb. 6.33 unten links). Oberhalb 5 ML ähnelt das Beugungsbild dem der RT-Filme oberhalb 9 ML. Folglich tritt bei den TT-Filmen bei niedrigerer Schichtdicke ein Verlust an Ordnung ein. Ein Anlassen der Filme auf 470 K führt bis 4,8 ML zu einem schärferen LEED-Bild, oberhalb 5 ML bis zu Schichtdicken oberhalb 20 ML jedoch nicht zu einer signifikanten Verbesserung des LEED-Bildes. Diese Ähnlichkeit zwischen RT- und TT-Filmen zeigt, daß die Verbreiterung unterhalb 4,8 ML nur aufgrund der Rauigkeit des Films,

oberhalb 5 ML jedoch auch durch eine Änderung der strukturellen Ordnung des Films hervorgerufen wird.

Zur systematischen Überprüfung des Einflusses der Depositionstemperatur auf den Verlauf der MEED-Kurven wurden Filme bei unterschiedlichen Temperaturen deponiert. Das sehr breite Maximum bei 5,5 ML, das bei 300 K beobachtet wird, ist mit

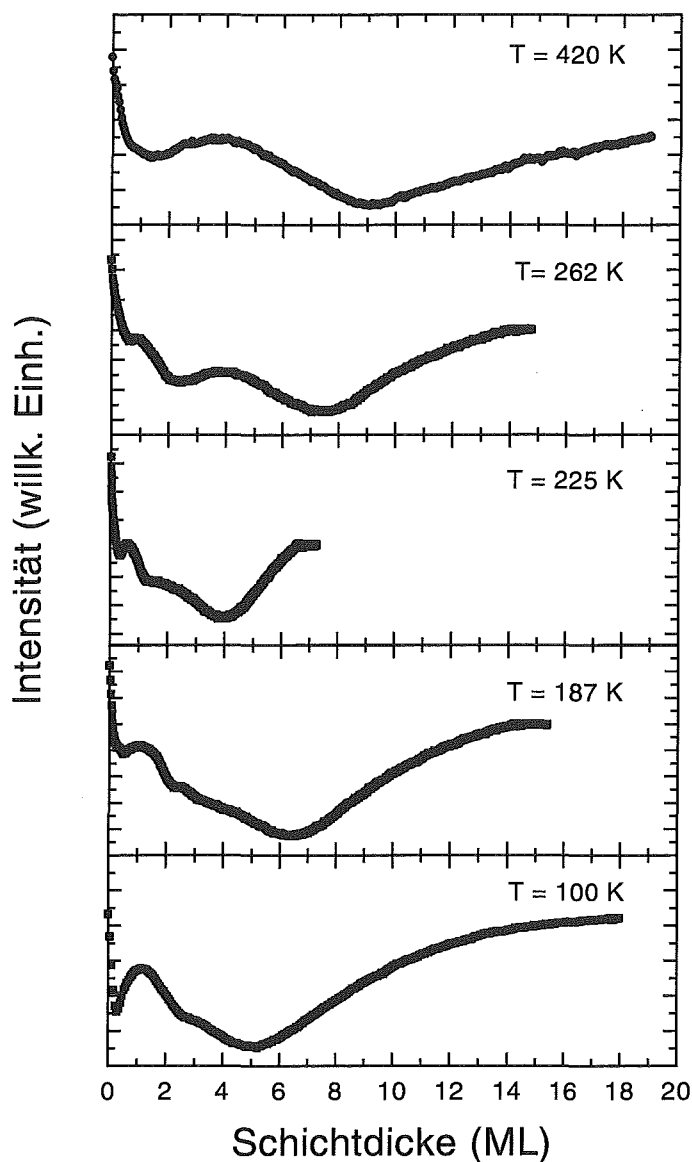


Abb. 6.32: MEED-Kurven des (0,0)-Reflexes bei verschiedenen Depositionstemperaturen

Die Depositionsrate lag zwischen 1,2 und 1,4 ML/Minute.

abnehmender Depositionstemperatur weniger ausgeprägt. Das Maximum verschwindet zwischen 225 K und 187 K. Diese beiden Werte können als eine grobe Abschätzung für einen Übergang von einem mehr lagenweise geprägten Wachstumsmodus zu einem

rein dreidimensionalen Wachstum der Filme dienen.

Die Bedeckung für das Einsetzen des Intensitätsanstiegs bei großen Schichtdicken nimmt mit abnehmender Temperatur ab. Auf der anderen Seite führt eine Erhöhung der Depositionstemperatur nicht zur Verzögerung des Intensitätsanstiegs zu größerer Schichtdicke.

Wie bereits ausgeführt worden ist, ist auch die Diffusion der Substratome temperaturabhängig und kann möglicherweise Unterschiede in den MEED-Kurven hervorrufen. Ein erstes Indiz gegen diese These ist jedoch, daß die MEED-Kurve der Filme, die bei 420 K deponiert worden sind, der der RT-Filme sehr ähnlich ist, obwohl bei dieser Temperatur Au zu einem größeren Anteil zur Filmoberfläche diffundieren kann. Zur Überprüfung dieser These wurde die folgende Filmpräparation gewählt: Zunächst wurden 2 ML bei 150 K deponiert, um eine Diffusion des Au zu verhindern. Nach dem Anlassen auf 300 K wurden weitere Fe-Lagen bei 300 K deponiert. Das Wachstum dieses Films wurde durch die Aufnahme von MEED-Kurven charakterisiert. Das Auftauchen neuer Reflexe und der Intensitätsanstieg in der MEED-Kurve bei einer anderen Schichtdicke als bei den RT-Filmen würde auf einen bedeutenden Einfluß der Goldsegregation hinweisen. Die MEED-Intensität zeigt jedoch den gleichen Verlauf wie die der RT-Filme. Der Intensitätsanstieg erfolgt bei größerer Schichtdicke (≈ 10 ML) als bei dem TT-Film. Folglich verursacht die Segregation nicht das unterschiedliche Verhalten der MEED-Intensität. Untersucht wurde auch, ob die Eigenschaften dieser Filme von denen der RT-Filme abweichen. Unterhalb 3 ML ist das LEED-Beugungsbild dem der TT-Filme ähnlich. Folglich ist der Film besser geordnet als nach einer Deposition direkt bei Raumtemperatur. Oberhalb dieser Schichtdicke werden keine Abweichungen von den RT-Filmen beobachtet.

Schließlich wurde überprüft, ob eine Kontamination der Filmoberfläche mit CO das Wachstum der Eisenfilme modifiziert. Zu diesem Zweck wurde das Substrat zunächst auf 100 K eingekühlt und 20 Minuten bei einem Druck von $5 \cdot 10^{-7}$ Pa gehalten. Danach wurde das Substrat auf 300 K angelassen und Eisen wurde bei gleichem Druck deponiert. Die resultierende MEED-Kurve zeigt keine Abweichung von Kurven, die bei guten Vakuumbedingungen aufgenommen worden sind. Folglich ist festzustellen, daß eine Kontamination keine wesentlichen Auswirkungen auf die Filme hat.

Bei der Untersuchung der anderen Eigenschaften muß daher der Einfluß der Depositionstemperatur und der Au-Diffusion berücksichtigt werden. Dies gilt besonders für den Magnetismus, da er bei kleinen Schichtdicken entscheidend von den Eigenschaften der Grenzfläche abhängt. Zur Untersuchung der magnetischen Eigenschaften wurden daher sowohl TT- als auch RT-Filme präpariert.

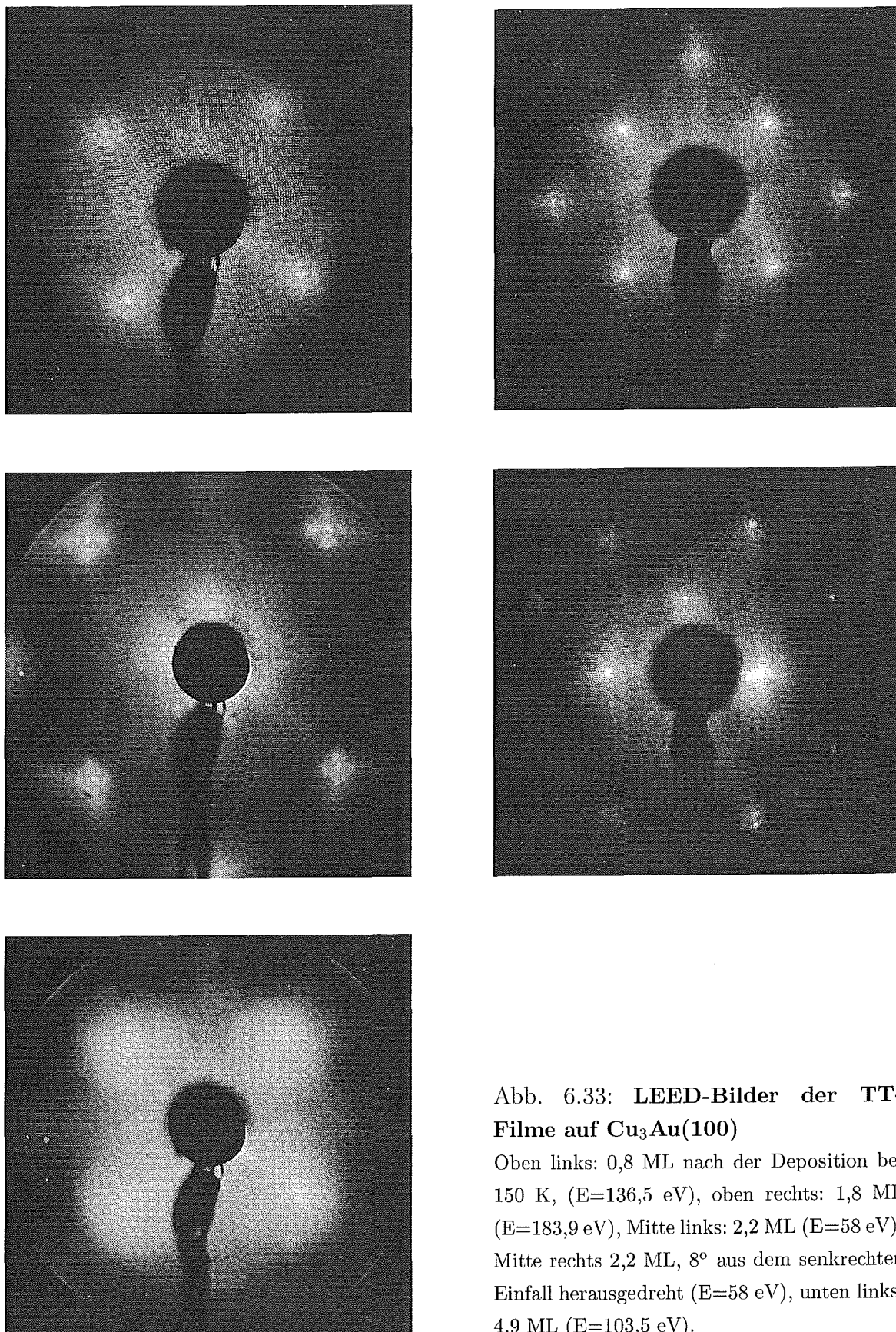


Abb. 6.33: LEED-Bilder der TT-Filme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$

Oben links: 0,8 ML nach der Deposition bei 150 K, ($E=136,5$ eV), oben rechts: 1,8 ML ($E=183,9$ eV), Mitte links: 2,2 ML ($E=58$ eV), Mitte rechts 2,2 ML, 8° aus dem senkrechten Einfall herausgedreht ($E=58$ eV), unten links: 4,9 ML ($E=103,5$ eV).

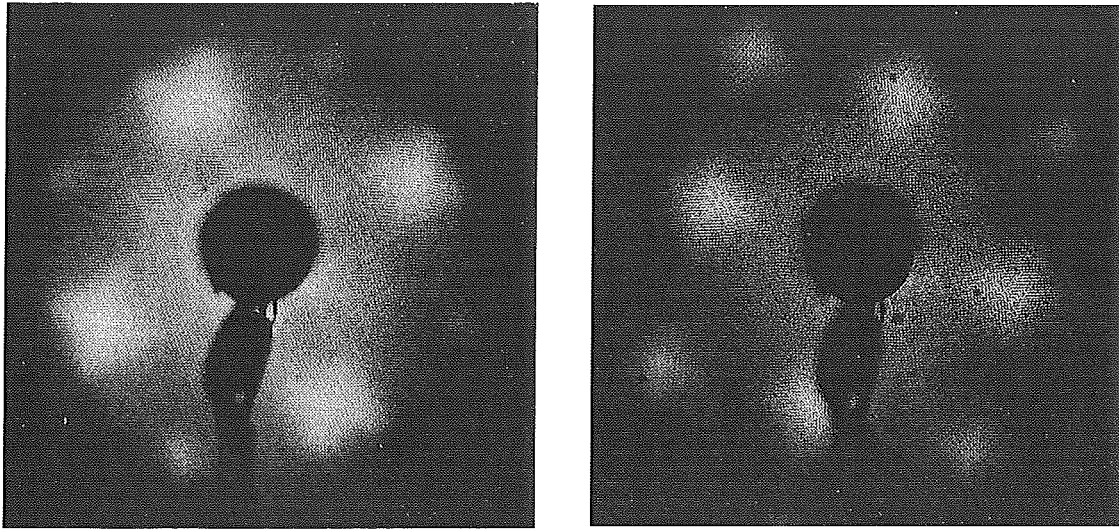


Abb. 6.34: LEED-Bilder angelassener TT-Filme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$

Links: 8,5 ML, angelassen auf 570 K ($E=166$ eV), rechts: 8,8 ML, angelassen auf 570 K ($E=94,8$ eV).

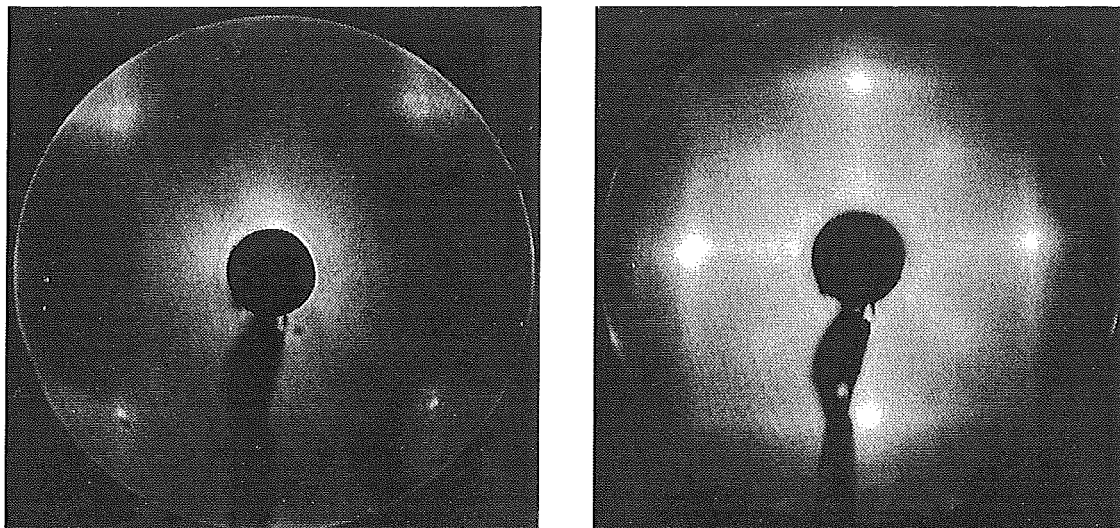


Abb. 6.35: LEED-Bilder der RT-Filme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$

Links: 2,7 ML ($E=50$ eV), rechts: 5 ML ($E=150$ eV).

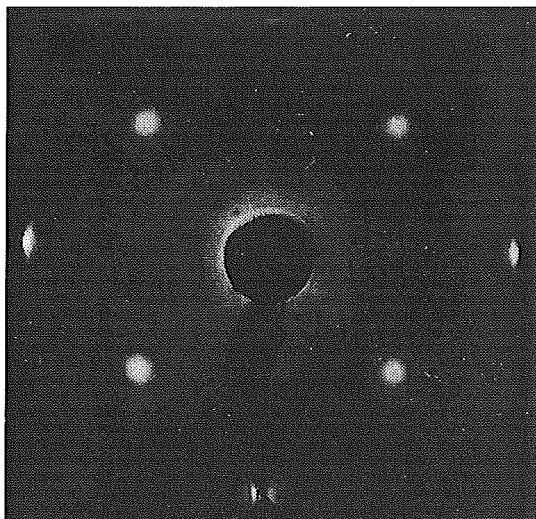
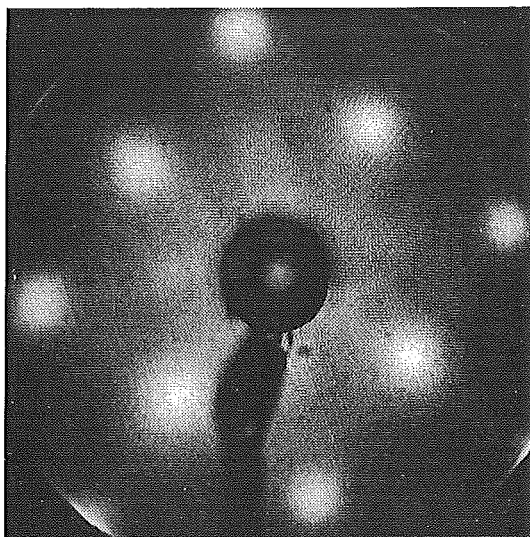
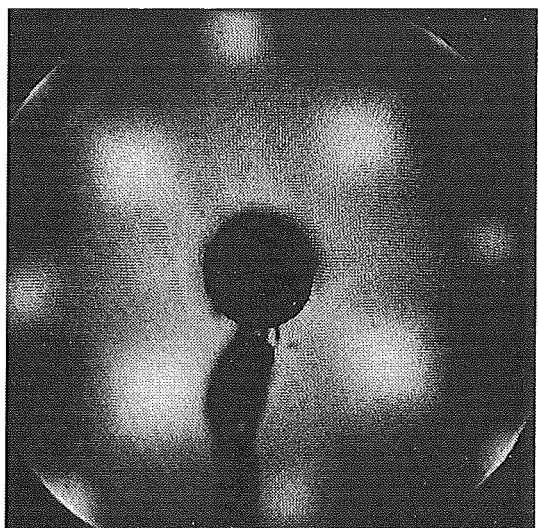
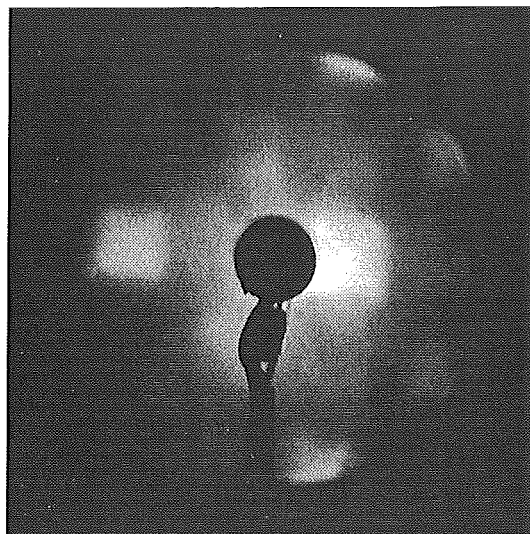
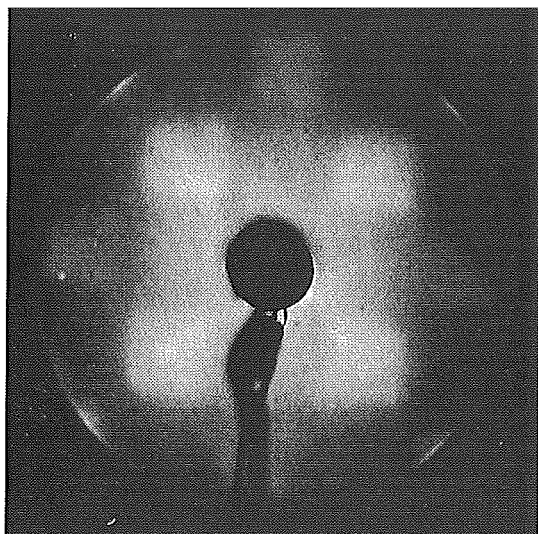


Abb. 6.36: **LEED-Bilder angelassener RT-Filme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$**

Oben links: 6,6 ML angelassen auf 570 K, ($E=93$ eV),

oben rechts: 6,6 ML angelassen auf 570 K, 8° aus dem senkrechten Einfall herausgedreht, ($E=93$ eV),

Mitte links: 12 ML angelassen auf 570 K, ($E=97$ eV),

Mitte rechts: 14 ML angelassen auf 570 K, ($E=94$ eV),

unten links: 53 ML angelassen auf 470 K, ($E=57$ eV).

6.2.2 Magnetismus

Für beide Präparationsbedingungen wurden polare und longitudinale Hysteresekurven bei 166 K aufgenommen. Die Kerr Elliptizität in Sättigung und in Remanenz sowie die Koerzitivfeldstärke wurden für unterschiedliche Schichtdicken bestimmt (Abb. 6.37 und 6.38). Für beide Präparationsbedingungen wird ein sehr ähnlicher Verlauf gefunden.

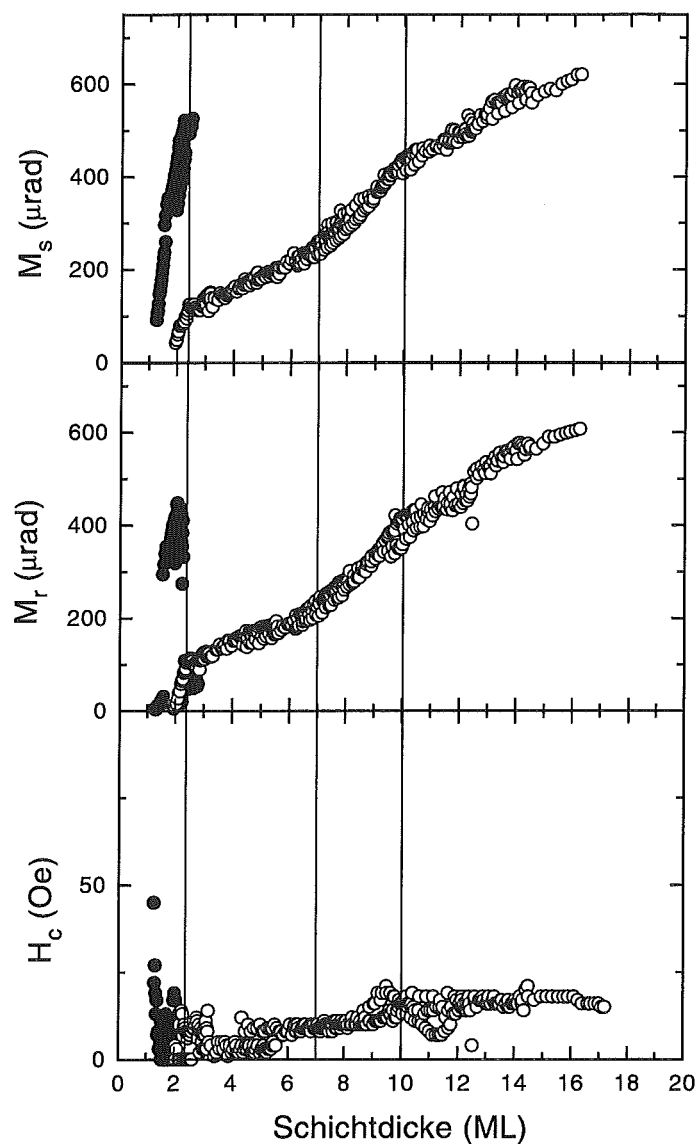


Abb. 6.37: Magnetische Eigenschaften der RT-Filme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$

Dargestellt ist die Abhängigkeit der Kerr Elliptizität in Sättigung M_s und in Remanenz M_r sowie der Koerzitivfeldstärke H_c von der Schichtdicke. Die Filme wurden bei 300 K deponiert. Offene und geschlossene Symbole bezeichnen die Werte, die in longitudinaler und polarer Geometrie aufgenommen worden sind. Die longitudinalen Messungen wurden in $k_fz[001]$ -Richtung aufgenommen.

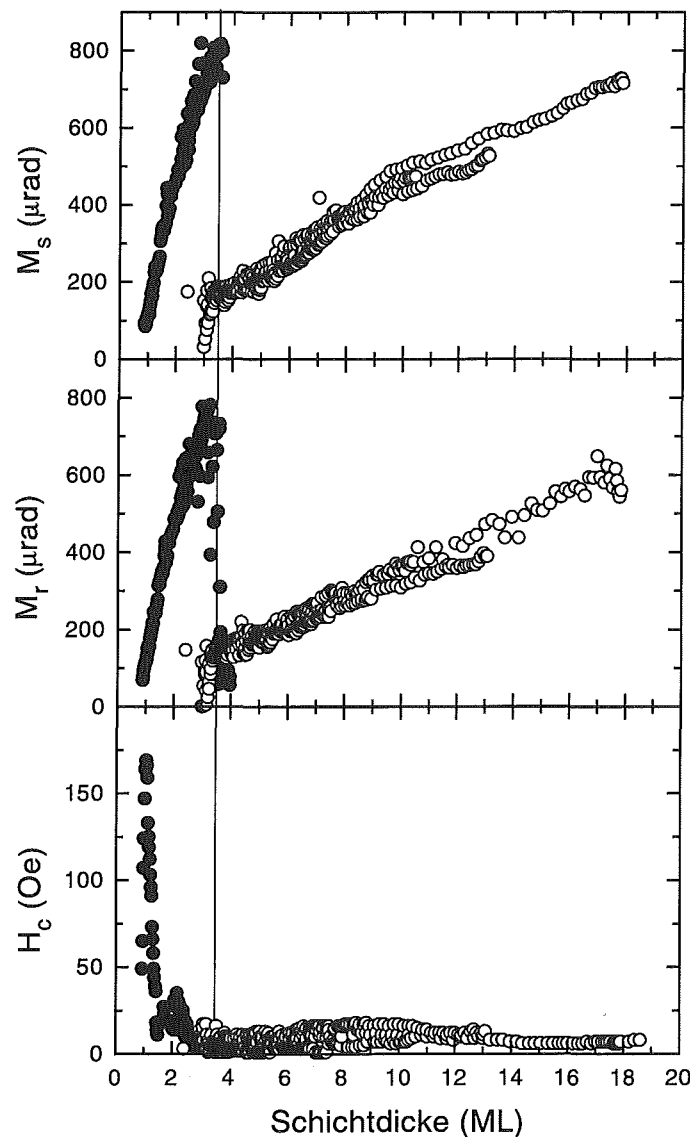


Abb. 6.38: **Magnetische Eigenschaften der TT-Filme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$**

Die Filme wurden nach der Deposition bei 150 K auf 300 K angelassen. Zur Bezeichnung der Symbole siehe Abb. 6.37.

Keine Hysteresekurven können unterhalb 0,9 ML für TT- und 1,1 ML für RT-Filme gemessen werden. Oberhalb dieser Schichtdicken sind die Filme senkrecht zur Oberfläche magnetisiert. Die Magnetisierung steigt linear mit der Schichtdicke an. Der lineare Verlauf ist charakteristisch für eine homogene Magnetisierung des Films. Die Form der Hysteresekurven ist rechteckig und daher charakteristisch für einen eindomänen Zustand des Films. Bei einer kritischen Schichtdicke orientiert sich die Magnetisierung in die Ebene und steigt erneut linear an. Folglich ist auch bei diesen Schichtdicken der Film homogen magnetisiert. Der abfallende Verlauf der polaren Koerzitivfeldstärke ist für beide Präparationsbedingungen ähnlich (Abb. 6.37 und 6.38). Die Koerzitivfeldstärke

der TT-Filme fällt jedoch von einem höheren Wert (170 Oe bei 0,9 ML) als bei den RT-Filmen (40 Oe bei 1,1 ML) auf 5 Oe ab. Die longitudinale Koerzitivfeldstärke bleibt bei kleinen Werten mit wachsender Schichtdicke konstant. Die longitudinale Koerzitivfeldstärke zeigt daher keine stark ausgeprägte Abhängigkeit von der Schichtdicke.

Für eine Untersuchung der magnetischen Anisotropie in der Ebene wurden Hysteresekurven mit einer Orientierung des angelegten Feldes in verschiedene kristallographische Richtungen aufgenommen. Unterhalb 6 ML sind die Kurven nahezu rechteckig und es wird nur eine schwache Abhängigkeit der Form der Kurven von der Richtung in der Ebene gefunden. Die Unterschiede der Anisotropiekonstanten in der Ebene sind daher nicht sehr groß. Oberhalb 10 ML für RT- und 6 ML für TT-Filme ist die Form der Hysteresekurven in $kfz[001]$ -Richtung eher sigmoidal und bleibt in $kfz[011]$ -Richtung rechteckig. Dieser Effekt verstärkt sich mit wachsender Schichtdicke und führt zu kleineren Werten der Remanenz in $kfz[001]$ -Richtung im Vergleich zur Sättigungsmagnetisierung (Abb. 6.39 (rechts)). Eine kontinuierliche Variation des azimuthalen Winkels (Abb. 6.39

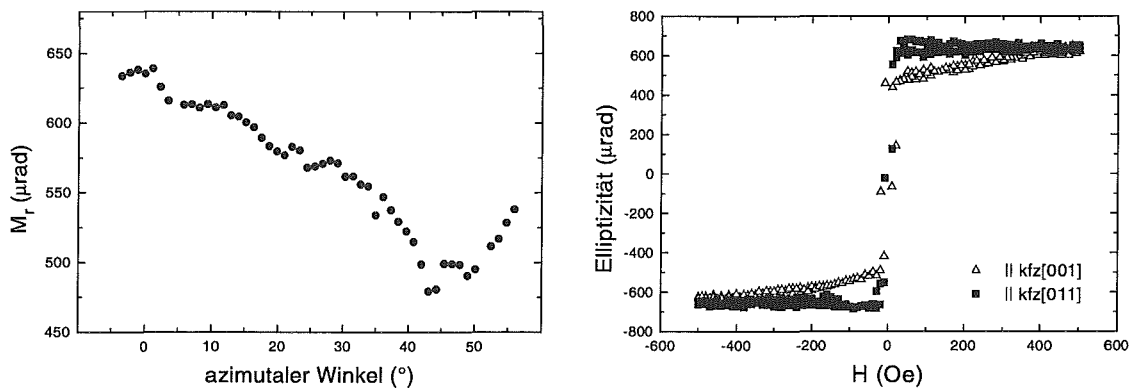


Abb. 6.39: Magnetische Anisotropie eines TT-Films mit großer Schichtdicke auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$

Links: Abhängigkeit der Remanenz M_r vom azimuthalen Winkel. Bei einem Winkel von 0° wird das äußere Feld in $kfz[011]$ -Richtung angelegt. Rechts: Vergleich der Form der Hysteresekurven in $kfz[001]$ - und $kfz[011]$ -Richtung. Die Schichtdicke beträgt 14 ML.

links) zeigt, daß die $kfz[001]$ -Richtung die harte und die $kfz[011]$ -Richtung die leichte Achse der Filme bei größerer Schichtdicke ist. Die Änderung der magnetischen Anisotropie von einer senkrechten zu einer parallelen Magnetisierung ist in Abb. 6.40 exemplarisch für den TT-Film gezeigt. Bei 2,8 ML ist die polare Hysteresekurve rechteckig. Mit zunehmender Schichtdicke wird sie jedoch S-förmig und die Remanenz sinkt ab. Bei 3,4 ML reicht schließlich das angelegte Feld nicht aus, um alle Momente senkrecht zur Filmebene auszurichten; erkennbar an dem linear ansteigenden Signal ist die

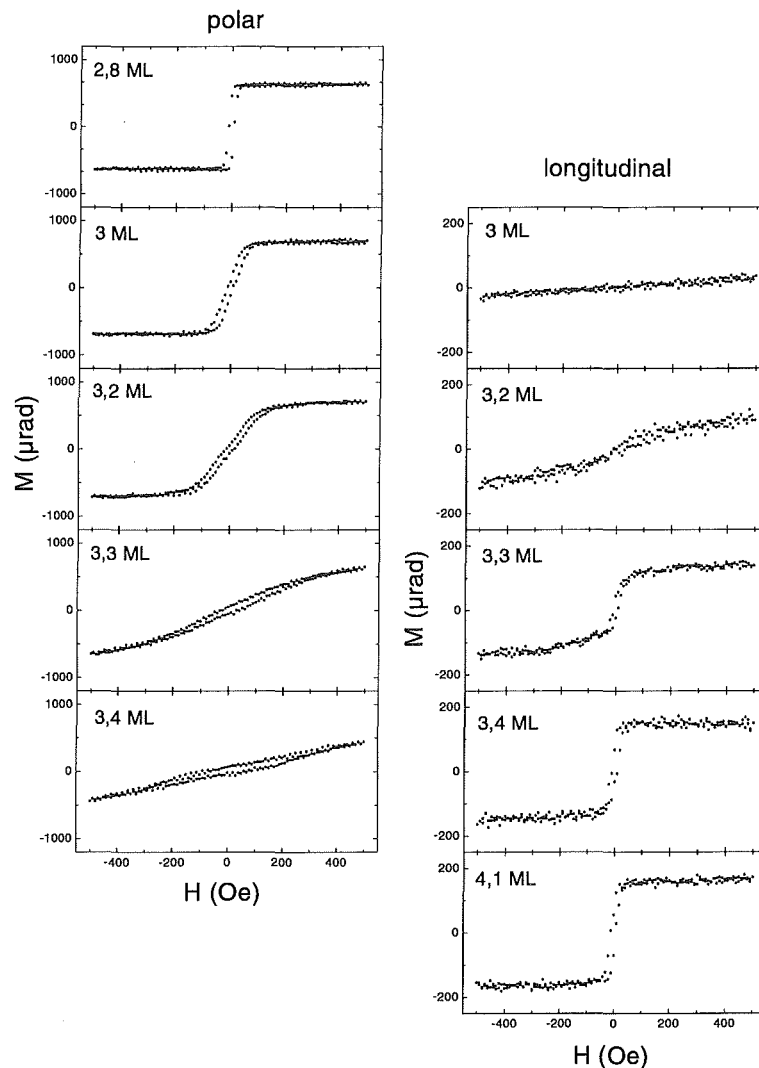


Abb. 6.40: Abfolge von Hysteresekurven bei der Drehung der senkrechten Magnetisierung in die Filmebene

Eine Abfolge gemessener Hysteresekurven im Bereich des Reorientierungsübergangs ist für einen TT-Film bei 166 K gezeigt.

Änderung der Magnetisierung vorwiegend durch reversible Drehprozesse bestimmt. Das genau umgekehrte Verhalten wird für die longitudinalen Hysteresekurven beobachtet. Hier steigt die Elliptizität zunächst linear an; mit zunehmender Bedeckung bildet sich eine Hysteresekurve, die bereits bei 3,4 ML rechteckig geformt ist. Die Abbildung zeigt, daß der Reorientierungsübergang bei konstanter Temperatur nur einen kleinen Schichtdickenbereich von etwa 0,5 ML umfaßt. Ein ähnliches Verhalten wurde auch für die RT-Filme gefunden. Ein Kennzeichen der Änderung der Magnetisierungsrichtung in die Ebene, des Reorientierungsübergangs, ist die kleiner werdende Remanenz im Vergleich zur Sättigungsmagnetisierung. Ermittelt man die Abweichung der polaren

Hysteresekurven von einer idealen rechteckigen Form in Abhängigkeit der Temperatur und der Schichtdicke, ergibt sich die Abhängigkeit des Reorientierungsübergangs von beiden Parametern. Das Ergebnis einer solchen Analyse ist in Abb. 6.41 gezeigt. Mit steigender Temperatur verringert sich die Schichtdicke, bei der die Reorientierung

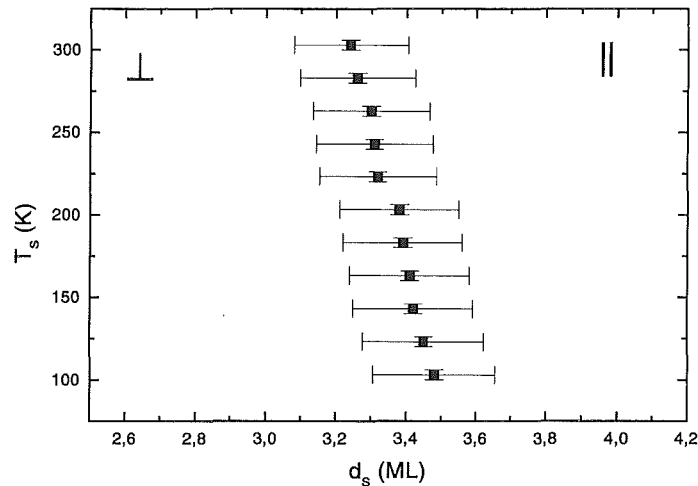


Abb. 6.41: Abhängigkeit des Reorientierungsübergangs der TT-Filme von der Temperatur und der Schichtdicke

Die Symbole bezeichnen die Temperatur T_s und der Schichtdicke d_s , bei der eine Abweichung der Hysteresekurven von einer idealen, rechteckigen Form festgestellt werden kann und gibt damit die Grenze zwischen dem Bereich senkrechter ($\perp$) und paralleler Magnetisierung ($\parallel$) an.

der Magnetisierung einsetzt. Die Abhängigkeit der Reorientierung von der Schichtdicke ist jedoch nicht ausgeprägt, da sie nur um etwa 0,5 ML zwischen 100 und 300 K variiert. Unterhalb etwa 3,1 ML wurde bis zum Verschwinden des polaren Signals durch Erhöhung der Temperatur keine Hysterese im longitudinalen Signal beobachtet. Die senkrechte Magnetisierung bleibt in diesem Bereich bis zum Erreichen der Curie-Temperatur stabil.

Die Abhängigkeit der Curie-Temperatur von der Schichtdicke wurde durch das Maximum der Suszeptibilität bestimmt (Abb. 6.42). Unterhalb ca. 1 ML wurde unabhängig von der Präparation kein Maximum der Suszeptibilität gemessen. Die Curie-Temperatur steigt von 275 K bei 1,2 ML für beide Präparationen auf 430 K bei 4,5 ML für TT- und 450 K bei 5,3 ML für RT-Filme an. Obwohl die Werte der TT-Filme im gesamten Bereich höher liegen, sind die Unterschiede zwischen beiden Präparationen nicht sehr ausgeprägt. Beide Kurven zeigen innerhalb 1 ML einen zusätzlichen, steilen Anstieg auf Werte oberhalb 570 K, wobei dieser bei den RT-Filmen erst bei größerer Schichtdicke einsetzt (RT: $> 5,5$ ML, TT: $> 4,5$ ML). Ein weiterer Unterschied zwischen beiden Präparationsbedingungen ist in Abb. 6.37 und 6.38 erkennbar. Der Stabilitätsbereich der senkrechten Magnetisierung erstreckt sich für TT-Filme bis 3,3 ML, für RT-Filme jedoch nur bis 2,3 ML. Die ist auch aus dem Maximum der polaren Magnetisierung

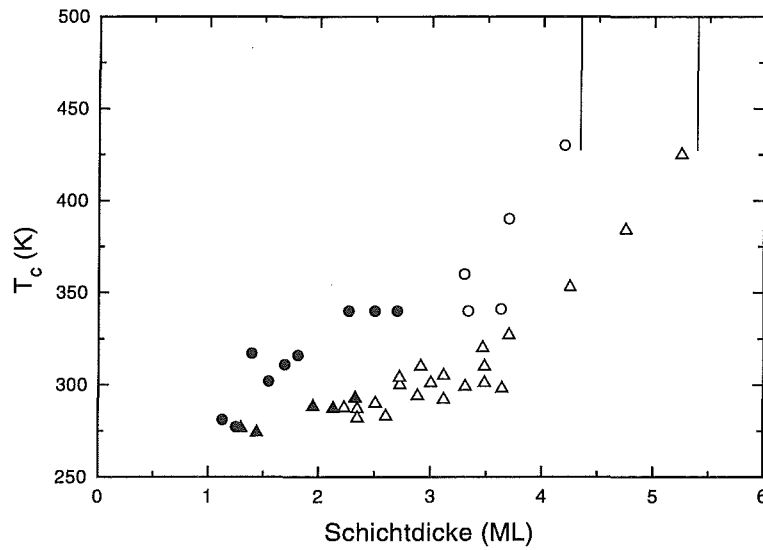


Abb. 6.42: Curie-Temperatur der Eisenfilme auf einem $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ -Substrat

Abgebildet ist die Abhängigkeit der Curie-Temperatur von der Bedeckung für RT- (nach oben zulaufende Dreiecke) und TT-Filme (Kreise). Die Temperaturen wurden durch die Messung der Suszeptibilität [155] bei einer Modulationsamplitude von 385 mOe bestimmt. Die gefüllten und offenen Symbole bezeichnen die Werte, die von den Kurven in polarer und longitudinaler Geometrie erhalten wurden. Die senkrechten Striche geben die Schichtdicken an, oberhalb derer die Curie-Temperatur größer als 570 K ist.

ersichtlich. Die Magnetisierung erreicht $808 \mu\text{rad}$ bei TT- und $520 \mu\text{rad}$ bei RT-Präparation. Dies ergibt eine mittlere Steigung von (240 ± 10) und $(223 \pm 10) \mu\text{rad/ML}$. In beiden Kurven steigt die Kerr-Elliptizität zwischen 1 und 1,7 ML mit einem sehr viel steileren Gradienten von ca. $400 \mu\text{rad/ML}$ an. Oberhalb dieser Schichtdicke entsprechen sie den mittleren Werten. Ein weiterer Unterschied zwischen beiden Präparationen zeigt sich in den Gradienten der longitudinalen Sättigungsmagnetisierung. Oberhalb 5 ML beträgt dieser $(42 \pm 5) \mu\text{rad/ML}$ für die TT-Filme. Die longitudinale Magnetisierung der RT-Filme zeigt einen komplizierteren Verlauf. Unterhalb 6 ML beträgt der Gradient $(35 \pm 5) \mu\text{rad/ML}$. Zwischen 6 und 10 ML steigt die Kerr-Elliptizität mit einem größeren Gradienten von $(60 \pm 7) \mu\text{rad/ML}$ an, wie aus Abb. 6.37 ersichtlich ist. Oberhalb 10 ML ist der Gradient $((41 \pm 5) \mu\text{rad/ML})$ mit dem der TT-Filme vergleichbar. Möglicherweise erklären Unterschiede in der Struktur, der Zusammensetzung des Films oder in der Rauigkeit der Filmoberfläche die beobachteten Unterschiede.

Im letzten Abschnitt wurde gezeigt, daß Unterschiede in den morphologischen Eigenschaften zwischen den RT- und TT-Filmen bestehen. Deshalb wurden mehrere Experimente durchgeführt, um den Einfluß dieser Größen auf die magnetischen Eigenschaften zu überprüfen. Zur Unterdrückung der Segregation von Au-Atomen wurde zunächst ein Film mit einer Schichtdicke von 2 ML bei 150 K deponiert. Anschließend wurde er für 10 Minuten auf 300 K angelassen. Danach wurde Fe mit einer keilförmigen Vertei-

lung der Schichtdicke aufgedampft. Die magnetischen Eigenschaften dieser Filme sind in Abb. 6.43 (oben) dargestellt. Wiederum wird eine senkrechte Magnetisierung bei kleiner und eine parallele bei größerer Schichtdicke beobachtet. Die senkrechte Magnetisierung erreicht einen maximalen Wert von $740 \mu\text{rad}$ bei 3,2 ML, der mit den TT-Filmen nicht aber den RT-Filmen vergleichbar ist. Die MEED-Wachstumskurve der postdeponierten Filme ist dagegen der der direkt bei RT aufgedampften Filme vergleichbar. Daher ist es wahrscheinlich, daß die Interdiffusion von Substrat und Adsorbatatomen oder die Segregation den Stabilitätsbereich der senkrechten Magnetisierung verringert. Dazu muß jedoch zunächst ausgeschlossen werden, daß die Rauigkeit des Films einen Einfluß auf die magnetischen Eigenschaften ausübt. Zur Überprüfung dieses Einflusses wurde ein Film bei 150 K deponiert. Danach wurden Hysteresekurven bei 150 K ohne vorheriges Anlassen der Filme aufgenommen (Abb. 6.43 (Mitte)). Die Sättigungsmagnetisierung erreicht einen maximalen Wert von $719 \mu\text{rad}$ bei 3,2 ML. Die kritische Schichtdicke, bei der die Magnetisierung umklappt ist mit der der TT-Filme vergleichbar. Folglich kann ein entscheidender Einfluß der Rauigkeit auf die kritische Schichtdicke ausgeschlossen werden. Es ist daher der Einfluß der Diffusion auf die kritische Schichtdicke von Bedeutung. Im Prinzip kann die Grenzfläche Fe/Vakuum oder Fe/Substrat durch die Diffusion modifiziert sein. Eine Diffusion von Goldatomen auf die Filmoberfläche kann zu einer Verkleinerung der Oberflächenanisotropie führen [75] und damit eine longitudinale Magnetisierung bevorzugen. Um zu entscheiden, welche von den Grenzflächen den entscheidenden Einfluß ausübt, wurde 1 ML Fe bei 300 K deponiert. Danach wurde zusätzlich Fe bei 150 K aufgedampft, um eine weitere Interdiffusion und Segregation von Substratomen auf die Filmoberfläche zu verhindern. Nach dem Anlassen des Films auf 300 K wurden polare und longitudinale Hysteresekurven bei 166 K aufgenommen (Abb. 6.43 unten). Die kritische Schichtdicke wird durch diese Behandlung kleiner und ist mit einem maximalen Wert von $544 \mu\text{rad}$ bei 2,2 ML mit dem der RT-Filme vergleichbar. Da die Substratome bei dieser Präparation nicht zur Filmoberfläche diffundieren können und die Grenzfläche Fe/Substrat vergleichbar zu den RT-Filmen ist, wird die kritische Schichtdicke im wesentlichen durch die Interdiffusion von Fe und Substratatomen an der Fe/Substrat Grenzfläche reduziert. Die größte Grenzflächenanisotropie liegt demnach bei den TT-Filmen vor, weil die Grenzfläche zwischen Substrat und Adsorbat chemisch schärfer ist als für die RT-Filme. Dieses Ergebnis ist in Übereinstimmung mit Experimenten an Co/Au-Multilagen [75], die eine kleinere magnetische Anisotropie bei einer rauen Grenzfläche ergaben. Diese Interpretation besitzt jedoch nur dann Gültigkeit, wenn das Umklappen der Magnetisierung nicht durch eine Änderung der Struktur hervorgerufen wird. Deshalb müssen die strukturellen Eigenschaften analysiert werden.

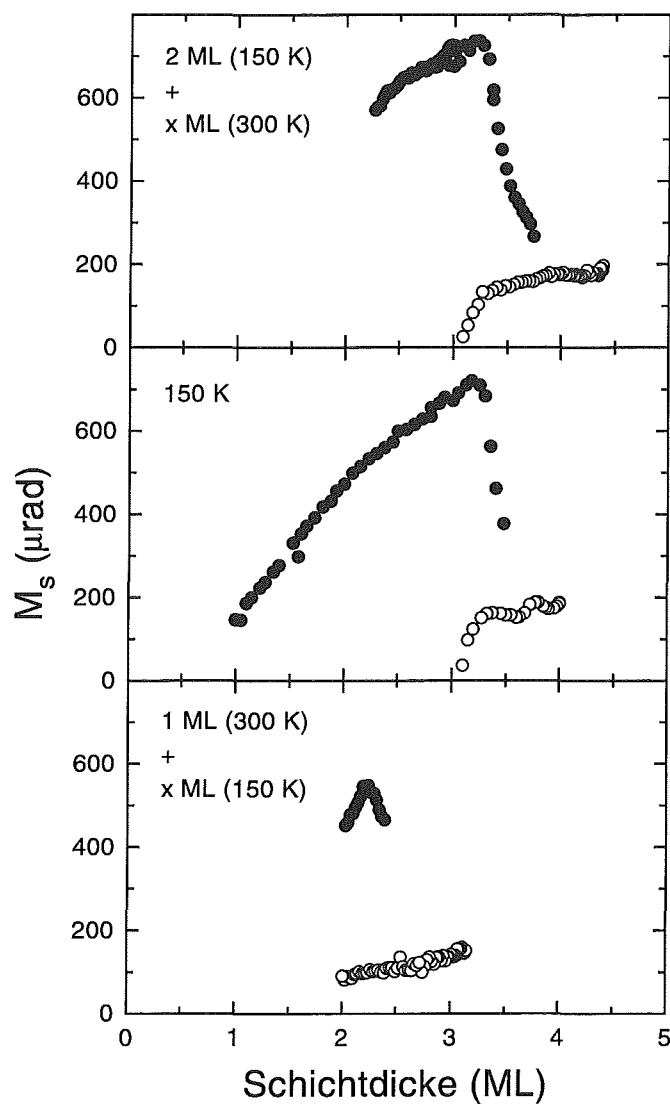


Abb. 6.43: Sättigungsmagnetisierung in Abhängigkeit der Schichtdicke nach unterschiedlichen Filmpräparationen

Oben: nach der Deposition von 2 ML bei 150 K, sich anschließendem Anlassen auf 300 K für 10 Minuten und weiterer Deposition bei 300 K (Messung bei 166 K).

Mitte: nach der Deposition bei 150 K ohne nachfolgendes Anlassen (Messung bei 150 K).

Unten: nach der Deposition von 1 ML bei 300 K und anschließender Deposition bei 150 K, gefolgt von einem Anlassen des Films auf 300 K (Messung bei 166 K).

6.2.3 Struktur

Die Struktur der Filme wurde in Abhängigkeit der Schichtdicke mittels des LEED-Bildes charakterisiert. Bis circa 4 ML werden bei den TT-Filme im Beugungsbild scharfe Hauptstrukturreflexe beobachtet. Oberhalb 1,2 ML (Abb. 6.33 oben rechts, Mitte links und rechts) entstehen Überstrukturreflexe, die ihre Position mit wachsender Energie nicht ändern. Damit kann ausgeschlossen werden, daß sie durch eine Facettierung der Filmoberfläche hervorgerufen werden. Bis 1,7 ML erhöht sich die Intensität der Überstrukturreflexe. Eine Analyse der Reflexprofile wurde bei mehreren Energien vorgenommen, um die Größe der Überstrukturzelle zu ermitteln (Abb. 6.44 unten). Die Analyse ergab, daß die Überstruktur entweder eine $(n\sqrt{2} \times \sqrt{2})R45$ - oder eine

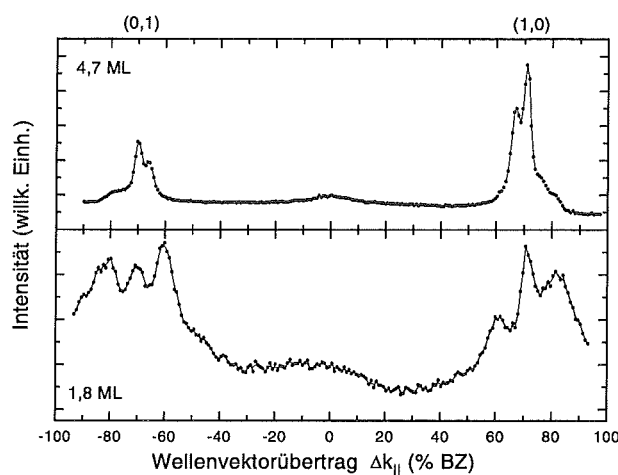


Abb. 6.44: Bestimmung der Überstruktur dünner Eisenfilme

Zur Bestimmung wurde die Intensität des LEED-Beugungsbildes vom (0,1)- zum (1,0)-Reflex vermessen.

Unten: 1,8 ML TT-Film, $E=75,8$ eV. Die Auswertung ergibt eine $(13\sqrt{2} \times \sqrt{2})$ bzw. $(13\sqrt{2} \times 13\sqrt{2})$ Oben: 4,7 ML RT-Film, $E=39,3$ eV. Die Überstrukturreflexe liegen näher an den Hauptstrukturreflexen als bei kleinerer Schichtdicke.

$(n\sqrt{2} \times n\sqrt{2})R45$ -Phase mit $n=13-14$ ist. Es treten nur Überstrukturreflexe $(k \pm \frac{1}{n}, l \pm \frac{1}{n})$ um die Hauptstrukturreflexe einschließlich des (0,0)-Reflexes (Abb. 6.33 Mitte links) auf. Mit wachsender Schichtdicke nähern sie sich den Hauptstrukturreflexen, wie exemplarisch am (1,0)- und (0,0)-Reflex beobachtet wurde. Dies weist auf eine Vergrößerung der Einheitszelle der Überstruktur mit steigender Bedeckung hin. Die Überstruktur ist stabil gegen eine Kontamination mit CO (0,5 L), und Anlassen auf 570 K und wird auch nach mehreren Tagen noch beobachtet. Infolge dieser Präparationen verlieren die Überstrukturreflex jedoch an Schärfe. Ein Verzögerung zwischen der Deposition und dem Anlassen der Filme auf 300 K von wenigen Stunden führt ebenfalls zu einer unschärferen Überstruktur. Oberhalb ca. 3 ML entwickelt sich eine diffuse Intensität

um die Hauptstruktureflexe, die mit wachsender Bedeckung ansteigt. (Abb. 6.33 unten links). Die scharfen Hauptstruktureflexe verschwinden bis 4,8 ML. Der Einfluß der Rauigkeit des Films auf die Ausprägung der Überstruktur wurde überprüft, indem das Beugungsbild direkt nach der Deposition bei 150 K beobachtet wurde. Oberhalb 1 ML wird die gleiche Überstruktur, wie sie für angelassene und bei 300 K deponierte Filme gefunden wurde, beobachtet. Die Überstruktureflexe sind jedoch nicht so intensiv und scharf, wie es für die anderen Präparationen der Fall ist. Aufgrund der rauher werdenden Oberfläche ist es nicht möglich, die Überstruktur oberhalb 3 ML zu beobachten.

Unterhalb 5,4 ML zeigt das LEED-Bild der RT-Filme ebenfalls eine $(n\sqrt{2} \times \sqrt{2})\text{R}45$ - oder eine $(n\sqrt{2} \times n\sqrt{2})\text{R}45$ -Überstruktur mit $n=13-14$ bei 4,8 ML, das auf $n=33$ bei 4,8 ML ansteigt (Abb. 6.35 links und 6.44 oben). Die Position der Überstruktureflexe kann bei ca. 5,5 ML nicht mehr von der der Hauptstruktureflexe aufgelöst werden. Die Überstruktureflexe bei kleiner Schichtdicke sind bei niedrigen Energien deutlich sichtbar und bei höherer Energie schwächer ausgeprägt als die der TT-Filme. Die TT-Überstruktur scheint daher in größeren Domänen vorzuliegen als bei den RT-Filmen. Oberhalb ca. 3 ML sind bei höherer Energie Streifen in $\text{kfz}[001]$ -Richtung sichtbar, deren Intensität mit steigender Energie und Bedeckung zunimmt (Abb. 6.35 rechts). Bei ca. 5,8 ML verschwinden die Überstruktureflexe und die Streifen und es entwickelt sich eine sehr breit verteilte Intensität um die Hauptstruktureflexe. Die entsprechende Intensität erhöht sich mit wachsender Bedeckung. Auf der anderen Seite reduziert sich die Intensität der Hauptstruktureflexe bis zum Verschwinden bei 8,6 ML. Oberhalb 9,5 ML bleiben sehr breite Reflexe zurück und das LEED-Bild ist dem der TT-Filme oberhalb 5 ML (Abb. 6.33 unten links) vergleichbar. Eine nähere Inspektion des LEED-Bildes ergibt, daß die Form der neuen Reflexe einem Quadrat mit einer Orientierung der Kanten in $\text{kfz}[001]$ -Richtung ähnelt. Auch um den $(0,0)$ -Reflex ist die Intensität in dieser Form verteilt. Ein Anlassen dieser Phase auf 570 K führt zu einem schärferen Beugungsbild mit quadratischen Beugungsreflexen, deren Intensität in den Ecken der Quadrate erhöht ist (Abb. 6.36 oben links und rechts). Die Mitten dieser Reflexe befinden sich nicht an den Positionen des $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ Substrats (Abb. 6.45). Das bedeutet, daß sich der laterale Abstand der Eisenatome verändert hat. Durch die Auswertung von Profilen kann eine Verkleinerung des reziproken Gittervektors in $\text{kfz}[011]$ -Richtung um $7,6 \pm 2$ % bestimmt werden. Der laterale, nächste Nachbarabstand ändert sich damit von 2,65 auf $2,87 \pm 0,07$ Å. In der Mitte der breiten Reflexe wird keine erhöhte Intensität beobachtet (Abb. 6.45 oben und 6.46). Die quadratischen Reflexe einschließlich des $(0,0)$ -Reflexes (Abb. 6.36 oben rechts) dehnen sich im k -Raum mit zunehmender Energie aus (Abb. 6.46). Deshalb kann dieses Beugungsbild nicht durch eine Überstruktur hervorgerufen sein. Facetten oder Mosaike können zu einer Verbreiterung der Reflexe mit zunehmender Energie führen (Abb. 4.2). Der entsprechende Winkel hat eine obere Grenze, die durch die Kanten der diffusen Intensität der quadratischen Re-

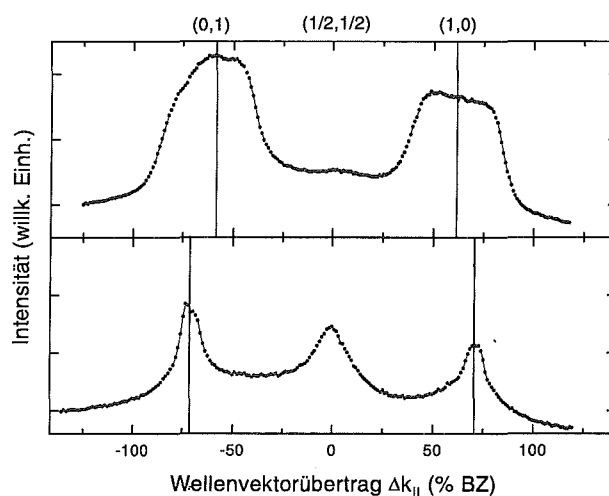


Abb. 6.45: Vergrößerung des lateralen nächsten Nachbarabstandes der RT-Filme oberhalb 5 ML

Reflexprofile eines 1,7 ML (unten) und eines 7,3 ML RT-Films (oben) bei 104,5 eV nach dem Anlassen auf 570 K für zehn Minuten. Der k -Raum wurde auf die reziproke Einheitszelle der $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ -Oberfläche normiert.

flexe bestimmt ist. Die Form und Intensitätsverteilung der Reflexe indiziert, daß der entsprechende maximale Winkel in $\text{kfz}[011]$ -Richtung um einen Faktor $\sqrt{2}$ größer ist als in $\text{kfz}[010]$ -Richtung. Dies könnte bedeuten, daß eine Facettierung oder die Bildung von Mosaiken mit einem größeren Winkel in $\text{kfz}[011]$ -Richtung bevorzugt ist und zu einer Intensitätserhöhung in den Ecken der Reflexe führt. Profile des (0,0)-, (1,0)- und (1,1)-Reflexes wurden bei verschiedenen Energien aufgenommen, um den Winkel zu bestimmen (Abb. 6.46). Die Analyse nach dem Anlassen der Filme ergab eine obere Grenze von ca. 11° in $\text{kfz}[011]$ - und 8° in $\text{kfz}[001]$ -Richtung. Der Winkel für die Intensitätsmaxima wurde zu $(3,4 \pm 0,9)^\circ$ bestimmt. Der maximale Winkel der nicht angelassenen RT-Filme beträgt 13° in $\text{kfz}[011]$ -Richtung.

Oberhalb 10 ML führt ein Anlassen der Filme zu signifikant schärferen, quadratischen Reflexen (Abb. 6.36 Mitte links und rechts). Abweichend von kleinerer Bedeckung wird keine Intensitätsverstärkung an den Ecken der Reflexe, sondern eine homogen verteilte Intensität innerhalb des Reflexes beobachtet. Mit wachsender Schichtdicke verringert sich die Halbwertsbreite (Abb. 6.36 Mitte links im Vergleich zu Mitte rechts). Die kleinere Ausdehnung der Reflexe bei vergleichbaren Energien wird durch kleiner werdende Facetten- bzw. Mosaikwinkel hervorgerufen. Schließlich werden bei sehr großen Schichtdicken (> 30 ML) runde und schärfere Reflexe bereits nach dem Anlassen auf nur 470 K beobachtet (Abb. 6.36 unten links).

Die Beugungsreflexe der TT-Filme sind nach dem Anlassen auf 570 K oberhalb 5 ML (Abb. 6.34) weniger ausgedehnt als die der angelassenen RT-Filme oberhalb 10 ML. Bei 8,8 ML (Abb. 6.34 rechts) ist ein LEED-Bild mit eher sternförmigen Reflexen nach

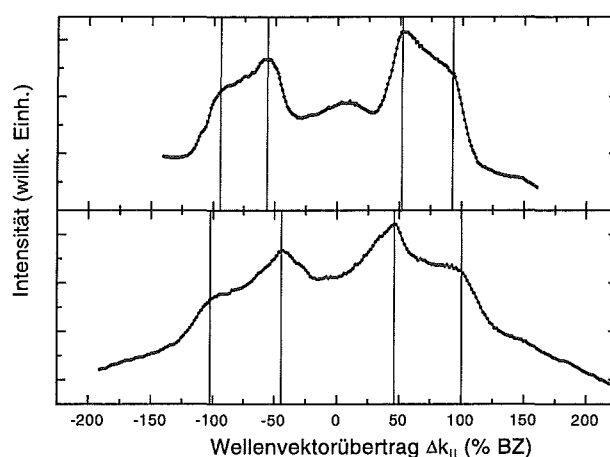


Abb. 6.46: Abhängigkeit der Reflexbreite angelassener RT-Filme zwischen 5 und 10 ML

Nach dem Anlassen eines 8,6 ML RT-Films auf 570 K wurden Profile vom (0,1)- zum (1,0)-Reflex bei 100,9 eV (oben) und 203,4 eV (unten) aufgenommen. Die Breite der Reflexe steigt mit zunehmender Energie an.

dem Anlassen sichtbar, das mit angelassenen RT-Filmen oberhalb 10 ML vergleichbar ist (Abb. 6.36 Mitte links). Dies zeigt, daß die Änderung des Beugungsbildes sich in einem kleineren Bereich der Schichtdicke vollzieht als bei den RT-Filmen.

Für eine quantitative Analyse der strukturellen Eigenschaften wurden LEED $I(E)$ -Spektren eines auf 470 K angelassenen Films bei 53 ML aufgenommen. Mehrere Reflexe einschließlich der (1,0)-, (1,1)-, (2,0)- und (2,1)-Reflexe wurden bei fast senkrechtem Einfall aufgenommen. Ein Vergleich der Spektren mit quantitativ analysierten Spektren [258, 259] des $\text{krz}(100)$ Fe ergab, daß die Struktur der Filme der einer $\text{krz}(100)$ -Struktur ähnlich ist. Zur quantitativen Verifizierung wurden volldynamische Berechnungen der LEED $I(E)$ -Spektren von M. Wuttig durchgeführt. Dazu wurde ein Minimum für alle drei R-Faktoren (R_P , R_{DE} , R_{ZJ}) ermittelt. Tab. 6.6 zeigt die optimierten Strukturparameter des ersten, zweiten und Volumen-Abstands der Lagen sowie des lateralen nächsten Nachbarabstands $a_{||}$. Die Werte für die R-Faktoren liegen in einem Bereich, der eine zufriedenstellende Übereinstimmung zwischen theoretisch berechneten und experimentellen Spektren anzeigt. Diese Übereinstimmung wird durch den visuellen Vergleich der $I(E)$ -Spektren bestätigt, die für die optimierten Parameter aus Tab. 6.6 berechnet worden sind (Abb. 6.47). Sowohl die Position als auch die Intensität der Maxima wird durch die Berechnung beschrieben. Die Genauigkeit der Bestimmung ergibt sich aus der Abhängigkeit des Pendry-R-Faktors von der Variation der strukturellen Parameter (Abb. 6.48). Die Kurven zeigen eindeutige Minima, die eine genaue Bestimmung der entsprechenden atomaren Abstände zuläßt. Die Werte der optimierten Strukturparameter (Tab. 6.6) beweisen, daß die angelassenen Filme bei großen Schichtdicken unverspannt in der krz Phase mit der (100)-Orientierung

Schichtdicke (ML)	d_{12} (Å)	d_{23} (Å)	d_b (Å)	$a_{ }$ (Å)	R_P	R_{DE}
53,0	1,48	1,47	1,46	2,84	0,27	0,30
18,7	1,46	1,48	1,47	2,83	0,33	0,29
4,7	1,53	1,53	1,53	2,65	0,36	0,36

Tab. 6.6: Beste Übereinstimmung zwischen experimentellen und berechneten I(E)-Spektren für ultradünne Eisenfilme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$

In Abhängigkeit der Schichtdicke sind die Werte für die beste Übereinstimmung des ersten d_{12} , zweiten d_{23} und des Volumenabstands d_b der Lagen sowie des lateralen nächsten Nachbarabstands $a_{||}$ eingetragen.

aufwachsen. Deshalb können die experimentellen Spektren als Referenzkurven verwendet werden, um Abweichungen der Struktur von der krz Phase festzustellen. Zunächst wurde dazu überprüft, ob auch die nicht angelassenen Filme bei größerer Schichtdicke in der krz Modifikation vorliegen. Dazu wurden I(E)-Spektren nicht angelassener RT-Filme bei 18,7 ML aufgenommen und von M. Wuttig mittels volldynamischer Berechnungen quantitativ analysiert. Abb. 6.49 zeigt die beste Übereinstimmung zwischen den theoretischen Berechnungen und den experimentellen Daten. Der Verlauf der experimentellen Kurven wird in ausreichender Weise durch die Berechnungen beschrieben. Lediglich in Details der Spektren sind Abweichungen festzustellen. Die optimierten atomaren Abstände (Tab. 6.6) zeigen, daß bereits im nicht angelassenen Zustand das Eisen in der krz(100)-Modifikation stabilisiert ist. Bei großer Schichtdicke wächst daher das Eisen nahezu unverspannt auf dem Substrat. Um festzustellen, bei welcher Schichtdicke diese Änderung der Filmeigenschaften einsetzt, wurden auch bei kleiner Schichtdicke LEED I(E)-Kurven aufgenommen. Allerdings verhinderten das hohe Untergrundsignal und die diffusen Reflexe eine quantitative Analyse der Spektren. Deshalb wurden diese Spektren qualitativ mit den analysierten Spektren verglichen. Abb. 6.50 (oben) zeigt einen solchen Vergleich für einen TT-Film bei 6,5 ML und zwei RT-Filme bei 8,6 und 14,4 ML.

Der Vergleich zeigt keine signifikanten Unterschiede zwischen den Spektren. Die Filme liegen daher bereits bei diesen Schichtdicken in einer nur wenig verspannten krz(100)-Struktur vor. Unterhalb 6 ML für RT- und 5 ML für TT-Filme werden jedoch Abweichungen von den Spektren des unverspannten krz(100)-Fe beobachtet (Abb. 6.50 Mitte und unten). Die Hauptmaxima der Kurven sind zu kleineren Energien verschoben. Die Verschiebung steigt mit wachsender Energie an. Dies kann durch einen vergrößerten Interlagenabstand im Vergleich zu unverspanntem krz(100)-Fe erklärt werden. Zur quantitativen Bestimmung der Struktur wurde ein RT-Film mit einer Bedeckung von 4,8 ML ausgewählt und dessen I(E)-Spektren von M. Wuttig analysiert. Abb. 6.51

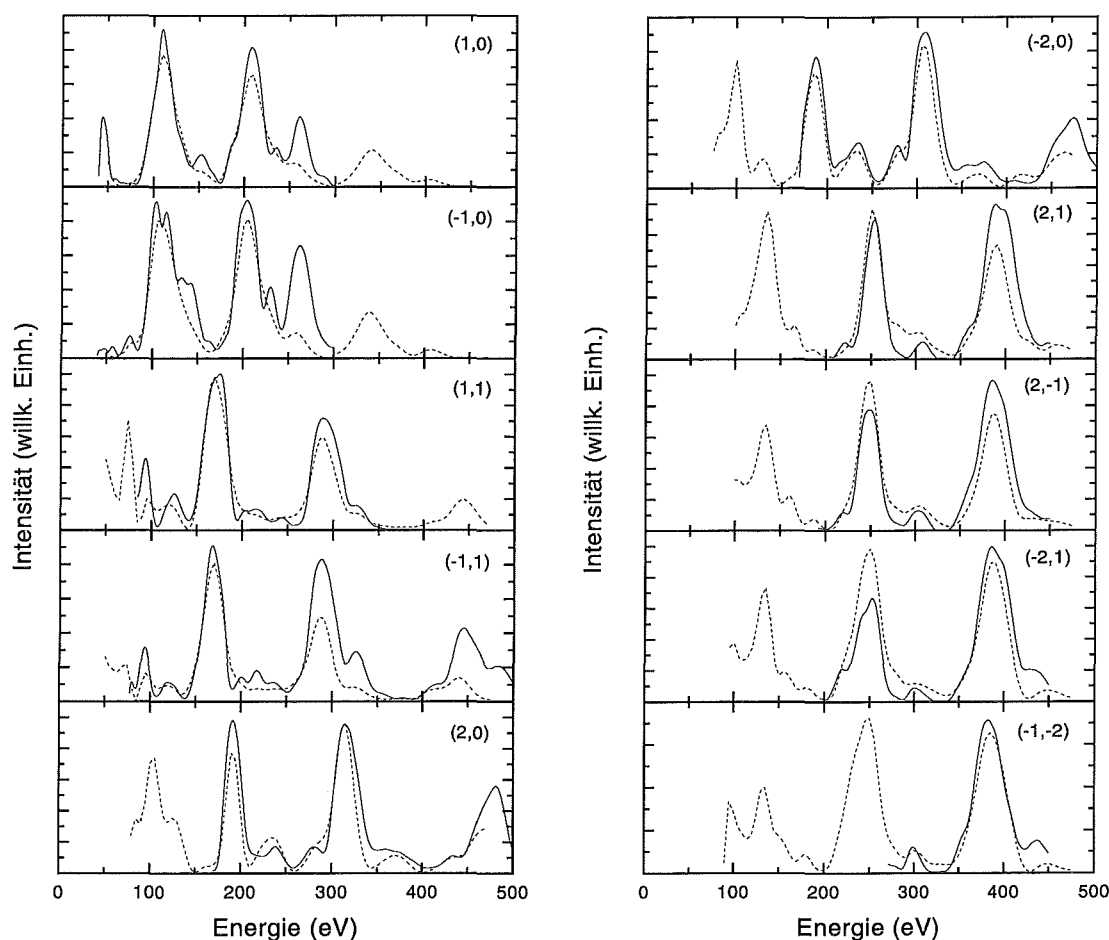


Abb. 6.47: Spektren für die beste Übereinstimmung zwischen experimentellen und theoretischen Werten eines 53 ML RT-Eisenfilms auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$

Vergleich der berechneten (gestrichelte Linie) und experimentellen Spektren (durchgezogene Linie) eines RT-Films mit einer Schichtdicke von 53 ML, der auf 470 K angelassen worden ist. Die Berechnung der Spektren erfolgte mit den Parametern aus Tabelle 6.6.

zeigt den Vergleich zwischen experimentell gemessenen und volldynamisch berechneten Kurven. Auch hier ergibt sich eine ausreichende Übereinstimmung zwischen den berechneten und experimentellen Spektren, da sowohl die Lage der Maxima als auch die Intensität der Beugungsreflexe durch das Modell beschrieben werden kann und nur in Details der Kurven Abweichungen zu erkennen sind. Die optimierten Strukturparameter (Tab. 6.6), mit denen die Spektren in Abb. 6.51 berechnet worden sind, zeigen, daß der Interlagenabstand im Vergleich zur unverspannten $\text{krz}(100)$ -Phase expandiert und der laterale Abstand kontrahiert ist. Folglich ändert sich oberhalb 5 ML das c/a -

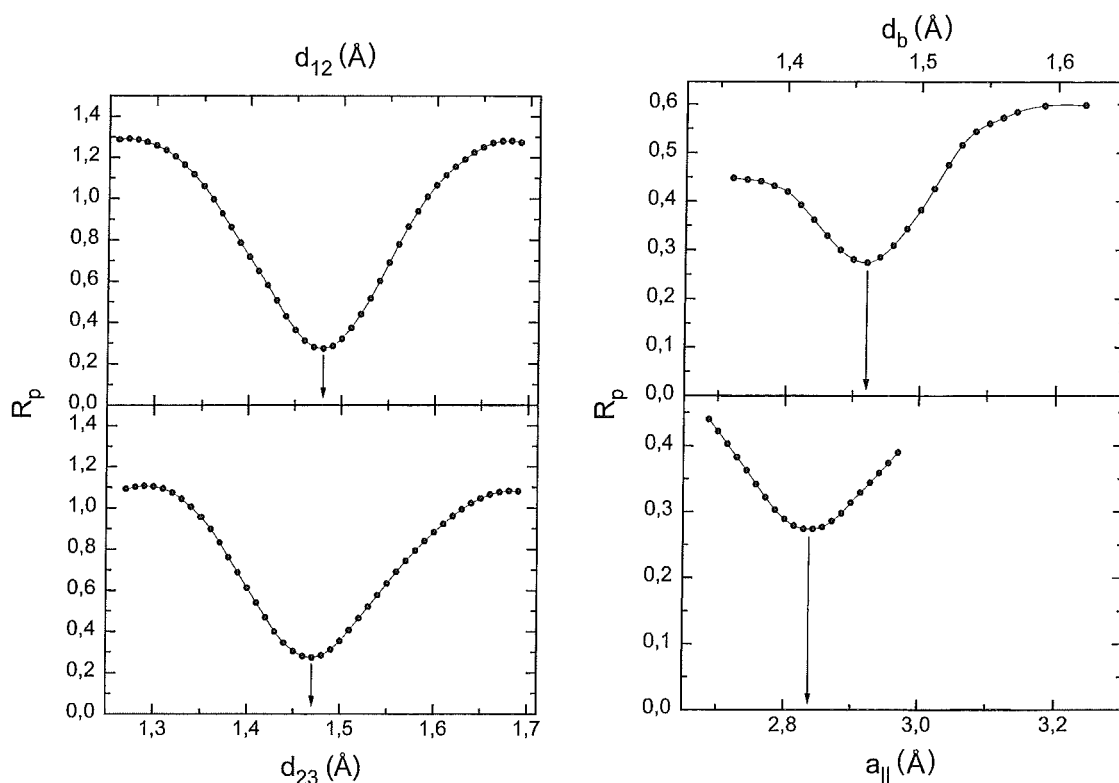


Abb. 6.48: **Einfluß der Variation der Strukturparameter auf den Pendry-R-Faktor**

Die Strukturparameter wurden für die Analyse der $I(E)$ -Spektren eines Fe-Films mit einer Schichtdicke von 53 ML (Abb. 6.47) variiert. Links oben: Variation von d_{12} bei festem d_{23} , links unten: Variation von d_{23} bei festem d_{12} , rechts oben: Variation von d_b bei festem lateralen Abstand $a_{||}$, rechts unten: Variation von $a_{||}$ bei festem d_b .

Verhältnis zu dem der unverspannten $\text{krz}(100)$ -Phase.

In einem nächsten Schritt wurde untersucht, ob auch bei sehr kleiner Schichtdicke ein struktureller Übergang zu beobachten ist. Dazu wurden LEED $I(E)$ -Spektren bei kleinen Schichtdicken gemessen und mit den quantitativ analysierten verglichen (Vergleich der Abb. 6.50 Mitte und unten im Vergleich zu oben). Die Spektren unterscheiden sich in einem Schichtdickenbereich von 1,5 bis 5 ML nicht wesentlich voneinander. Das gleiche wird auch bei einem Vergleich der $I(E)$ -Spektren der TT- und RT-Filmen zwischen 1,5 und 4,8 ML beobachtet (Abb. 6.50 Mitte und unten). Dies zeigt, daß nur sehr geringe Unterschiede in der Struktur zwischen RT- und TT-Filmen in diesem Schichtdickenbereich bestehen. Spektren von TT-, RT- und postdeponierten Filmen mit wenig unterschiedlichen Schichtdicken weichen ebenfalls nur wenig voneinander ab. Daraus kann gefolgert werden, daß die Diffusion von Au zur Filmoberfläche ebenfalls keinen

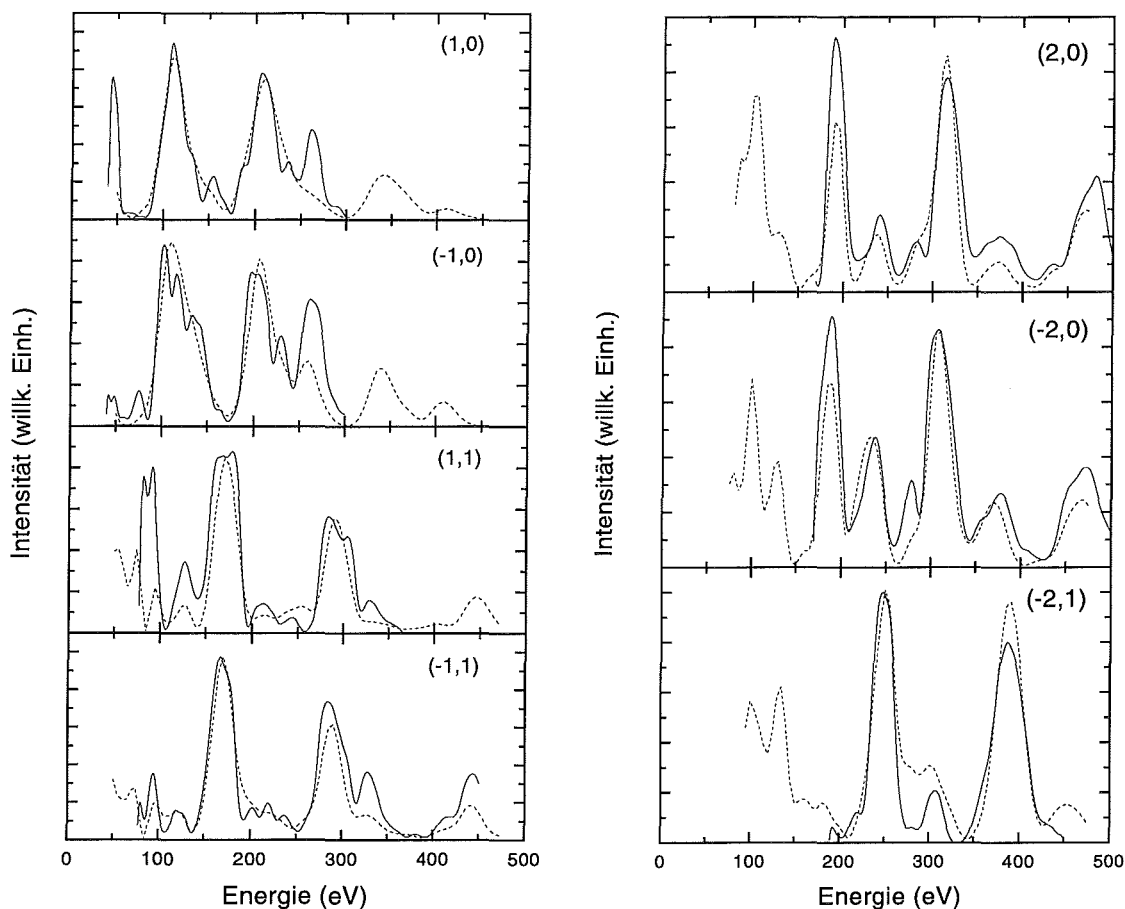


Abb. 6.49: Spektren für die beste Übereinstimmung zwischen den experimentellen und den theoretischen Werten eines 18,7 ML RT-Eisenfilms auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$

Vergleich der berechneten (gestrichelte Linie) und experimentellen (durchgezogene Linie) Spektren eines RT-Films mit einer Schichtdicke von 18,7 ML. Die Berechnung der Spektren erfolgte mit den Parametern aus Tabelle 6.6.

entscheidenden Einfluß auf die Struktur der Filme ausübt. Die Diffusion führt lediglich zu weniger ausgeprägten Überstruktureflexen, was auf eine kleinere Domänengröße hinweist. Dies wird durch das LEED-Bild von postdeponierten Filmen bestätigt, bei denen zunächst 2 ML bei 150 K und danach weitere Lagen bei 300 K deponiert wurden. Die Qualität der Überstruktur ist mit der der TT-Filme vergleichbar. Da sich für diese unterschiedlichen Präparationsbedingungen die Rauigkeit der Oberflächen unterscheidet, beeinflusst folglich die Rauigkeit die Struktur der Filme bis 5 ML nicht wesentlich. Oberhalb ca. 7 ML differieren die $I(E)$ -Kurven wenig von der unverspannten $\text{krz}(100)$ -Struktur. Da die Intensitätsmaxima zu etwas kleineren Energien verschoben

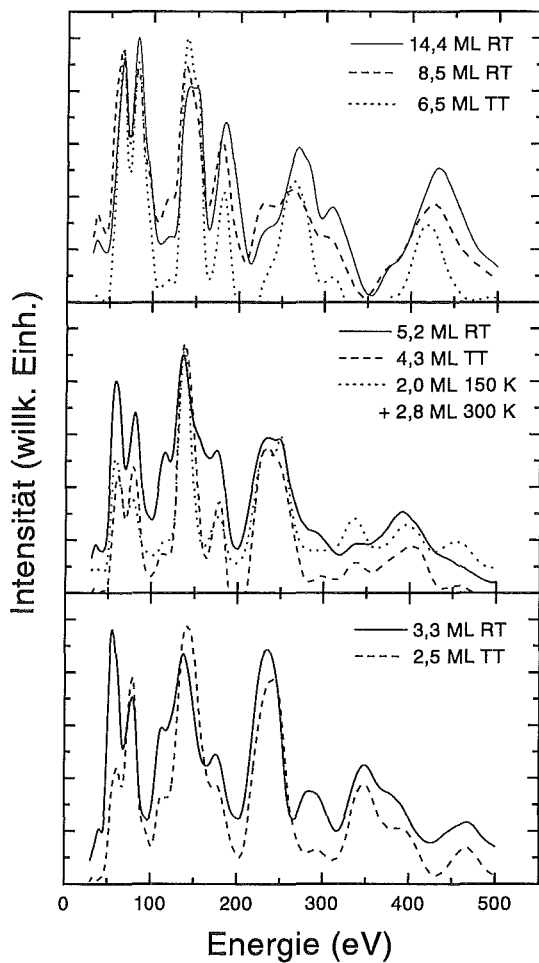


Abb. 6.50: Vergleich von $I(E)$ -Spektren des (0,0)-Reflexes bei verschiedenen Schichtdicken.

Oben: RT 14,4 ML (durchgezogene Linie), RT 8,5 ML (gestrichelte Linie), TT 6,5 ML (punktuierte Linie).

Mitte: RT 5,2 ML (durchgezogene Linie), TT 4,3 ML (gestrichelte Linie), postdeponierter Film: 2,0 ML 300 K + 2,8 ML 150 K (punktuierte Linie).

Unten: RT 3,3 ML (durchgezogene Linie), TT 2,5 ML (gestrichelte Linie).

sind, ist anzunehmen, daß der Interlagenabstand in einem mittleren Schichtdickenbereich etwas größer ist als der der unverspannten krz-Phase (Abb. 6.50 oben).

Eine der zukünftigen Aufgaben wird eine quantitative Analyse der Überstruktur bei kleiner Schichtdicke sein. Ein möglicher Ansatz ergibt sich aus der Beobachtung, daß die Überstrukturreflexe nur nahe der Hauptstrukturreflexe einschließlich des (0,0)-Reflexes intensiv sind (Abb. 6.33 oben rechts, Mitte links und Mitte rechts und Abb. 6.35 links). Diese Eigenschaft beschränkt die Anzahl der Modelle auf eine sinusförmige Auslenkung der Atome, z.B. einer Korrugation von n Atomen in $k_{\text{fz}}[001]$ -Richtung. Ein schematisches Modell ist dazu in Abb. 6.52 gezeigt.

Da die Überstrukturreflexe keine bevorzugte Verbreiterung in einer kristallographischen Orientierung zeigen, kann nicht entschieden werden, ob die Atome in Form von „Wellen“ nur in eine $k_{\text{fz}}[010]$ - oder in Form von „Hügeln“ in beide, $k_{\text{fz}}[010]$ - und $k_{\text{fz}}[001]$ -Richtung korrugiert sind. Aus einer kinematischen Berechnung der Intensitäten für beide Modelle (Abb. 6.52) kann die Korrugationsamplitude auf ca. 0,2 bis 0,3 Å abgeschätzt werden. Die Streifen, die in dem LEED-Beugungsbild bei größeren

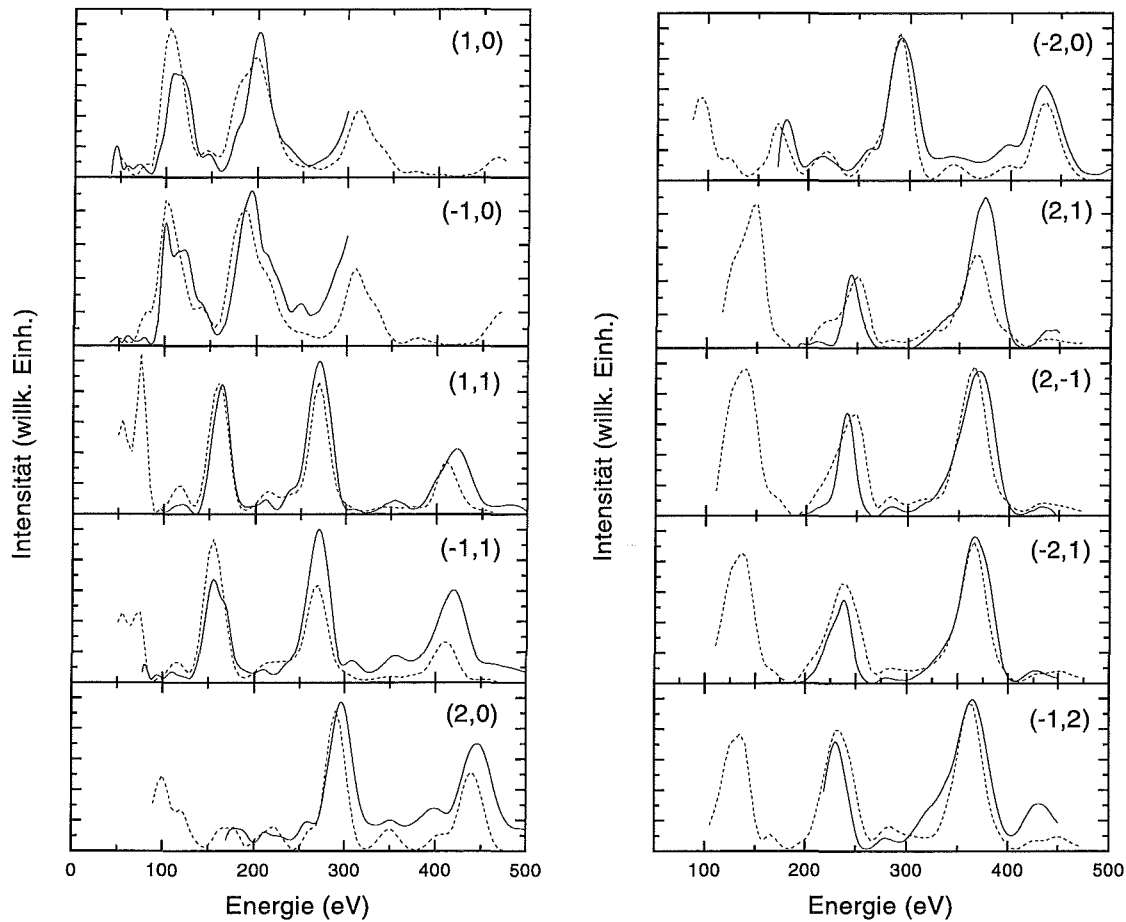


Abb. 6.51: Spektren für die beste Übereinstimmung zwischen experimentellen und theoretischen Werten eines 4,8 ML RT-Eisenfilms auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$

Vergleich der berechneten (gestrichelte Linie) und experimentellen (durchgezogene Linie) Spektren eines RT-Films mit einer Schichtdicke von 4,8 ML. Die Berechnung der Spektren erfolgte mit den Parametern aus Tabelle 6.6.

Energien in $k_fz[001]$ -Richtung entstehen (Abb. 6.35 rechts), unterstützen das „Wellenmodell“. Auf der Grundlage der bisherigen Informationen über die Überstruktur kann nicht entschieden werden, ob nur die Oberflächenatome oder alle Lagen korrigiert sind. Eine mögliche Ursache für die Korrigation ist ein inkommensurables Wachstum des krz Fe, bei der n Atome $n+1$ Gitterplätze des Cu_3Au Substrats besetzen. Ein solches Wachstum mit einer Periodizität von $n=33$ liegt innerhalb der Fehlergrenzen für die Bestimmung des lateralen Abstands $a_{||}$ bei 4,8 ML.

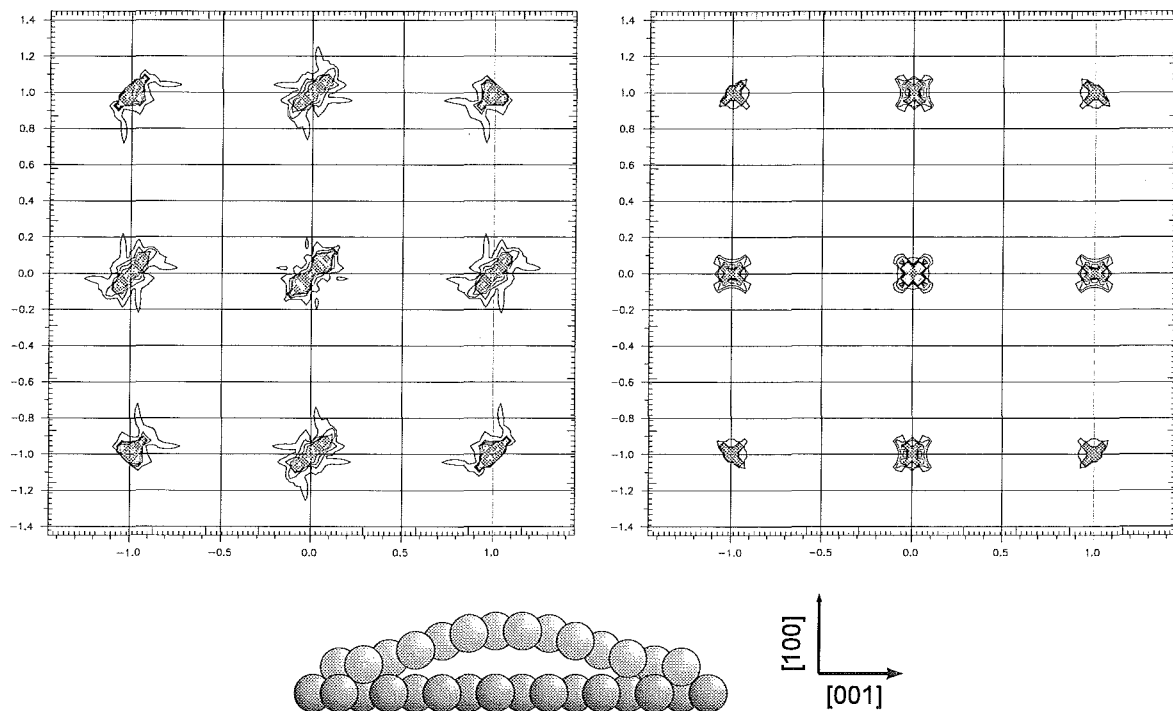


Abb. 6.52: Schematisches Realraummodell und berechnete LEED-Bilder für die Überstrukturen bei kleinen Schichtdicken

Unten: sinusförmige Korrugation der Eisenatome in $kfz[001]$ -Richtung über 13 Atome mit angegebenen, kristallographischen Richtungen.

Oben links: berechnetes Beugungsbild bei einer Korrugation in $[001]$ -Richtung („Welle“).

Oben rechts: berechnetes Beugungsbild bei einer Korrugation in $kfz[001]$ - und $[010]$ -Richtung („Hügel“).

In den oberen Bildern liegt die $kfz[001]$ -Richtung längs der Diagonalen.

Die Korrugationsamplitude beträgt in beiden Fällen $0,2 \text{ \AA}$.

6.2.4 Korrelation magnetischer, struktureller und morphologischer Eigenschaften

Prinzipiell ist das Wachstum des Fe auf dem Cu_3Au -Substrat in drei verschiedenen Modifikationen (AF kfz, FM kfz, FM krz) möglich (Tab. 6.1). Obwohl die Gitterfehlpassung der AF kfz Phase klein ist, kann ausgeschlossen werden, daß diese Modifikation auf dem Substrat stabilisiert wird. Ein Beweis dafür ist, daß die Fe Filme im untersuchten Schichtdickenbereich homogen magnetisiert sind. Bereits kleine Mengen AF oder PM kfz Eisens würden zu einer merklichen Erhöhung der Koerzitivfeldstärke führen (Abb. 6.28 und 6.29). Aus der Ähnlichkeit der Spektren mit kleiner Schichtdicke für TT- und RT-Filme (Abb. 6.50 Mitte und unten) geht hervor, daß sich die Struktur der Filme mit Beginn des Wachstums bis 5 ML nicht wesentlich ändert. Die $(n\sqrt{2} \times \sqrt{2})$ - bzw. $(n\sqrt{2} \times n\sqrt{2})$ -Überstruktur kann durch eine Korrugation der Eisennatome in die kfz[001]-Richtung hervorgerufen werden. Möglicherweise resultiert diese Korrugation aus einem inkommensurablen Wachstum des Eisens, bei der n Atome $n+1$ Gitterplätze ($n=13 \dots 33$) besetzen. Ein solches inkommensurables Wachstum liegt im Bereich der Fehlergrenzen der quantitativen Analyse der $I(E)$ -Spektren mit $n=33$ bei 4,7 ML (Tab. 6.6 und Abb. 6.51). Der optimierte Interlagenabstand von 1,53 Å weicht bei einem lateralen Abstand von 2,65 Å sowohl von dem berechneten Wert für die AF kfz (1,66 Å) als auch dem der FM kfz Phase (1,76 Å) ab. Eine Übereinstimmung wird dagegen bei einem Vergleich dieses Wertes mit der verspannten FM krz Phase (1,58 Å, Tab. 6.1) erzielt. Folglich wächst das Fe trotz der größeren Gitterfehlpassung von 7,7 % im Vergleich zu den kfz Phasen bei kleiner Schichtdicke verspannt auf dem Cu_3Au -Substrat auf. Dieses Ergebnis stimmt mit den Berechnungen in Abb. 3.2 überein, die für Substratgitterkonstanten größer als 2,58 Å die Stabilisierung der krz Phase in (100)-Orientierung vorhersagen. Da bereits bei dieser Gitterfehlpassung die krz(100)-Phase auf dem Substrat stabilisiert wird, wird das Wachstum dieser Modifikation auch auf Substraten mit einer größeren Gitterkonstanten erwartet.

Die beträchtliche epitaktische Spannung im Film hat auch Auswirkungen auf die magnetischen Eigenschaften bei kleiner Schichtdicke. Da der erste magnetoelastische Koeffizient des Eisens ein negatives Vorzeichen hat, führt eine laterale Kontraktion zusammen mit der magnetokristallinen Grenzflächenanisotropie des krz(100)-Fe zu einer Bevorzugung der senkrechten Magnetisierungsrichtung.

Die Magnetisierung setzt nahezu unabhängig von den Präparationsbedingungen bei ca. 1 ML ein, wie man durch den Vergleich der Abb. 6.37, 6.38 und 6.43 (Mitte) erkennt. Lediglich der Gradient der bei 150 K deponierten, nicht angelassenen Filme ($226 \pm 10 \mu\text{rad}/\text{ML}$) liegt im Vergleich unterhalb des Gradienten der auf 300 K angelassenen Filme ($241 \pm 10 \mu\text{rad}/\text{ML}$). Dies resultiert möglicherweise aus der Rauigkeit der nicht angelassenen Filme. Ein größerer Anteil an kleinen Inseln, die nicht ferromagnetisch sind, tragen nicht zur Kerr Elliptizität bei. Die Koaleszenz von Fe-Inseln

in diesem Schichtdickenbereich führt zu einem größeren Gradienten der Sättigungsmagnetisierung unterhalb 2 ML und der schärfer werdenden Überstruktur bis 1,8 ML. Da sich die Struktur der TT- und RT-Filme bis 5 ML im wesentlichen nicht ändert, bestimmt sich die Schichtdicke für den Reorientierungsübergang aus der Differenz zwischen der Summe aus der magnetokristallinen Grenzflächenanisotropie und der magnetoelastischen Energie einerseits und der Formanisotropie andererseits. Die Grenzflächenanisotropieenergie bevorzugt eine senkrechte Magnetisierung und kann durch eine Manipulation der Filmoberfläche oder der Fe/Substrat Grenzfläche modifiziert werden. Da TT-Filme, bei 150 K deponierte, nicht angelassene Filme und postdeponierte (2 ML bei 150 K + x ML bei 300 K) Schichten eine Schichtdicke von $3,2 \pm 0,2$ ML für das Umklappen der Magnetisierung in die Ebene aufweisen, wird sie durch die Rauigkeit der Filmoberfläche nicht wesentlich beeinflusst. Sie hängt dagegen empfindlich von den Eigenschaften Substrat/Grenzfläche ab. Dies wird durch das Umklappen der senkrechten Magnetisierung der RT-Filme und postdeponierten Filme (1 ML bei 300 K + x ML bei 150 K) bei $(2,3 \pm 0,2)$ ML deutlich. Daß sich die Eigenschaften der Fe/Substrat Grenzfläche der RT- und TT-Filme voneinander unterscheiden, zeigen die Diffusionsexperimente. Sie lassen darauf schließen, daß während der Deposition bei 300 K die Eisenatome Plätze in der Oberfläche des Substrats besetzen. Diese Plätze entstehen durch die Segregation von Au-Atomen auf die Filmoberfläche. Die entstehende Grenzfläche Substrat/Adsorbat ist nicht ideal und führt zu einer Reduktion des Beitrags zur magnetokristallinen Grenzflächenanisotropie und damit zur Reduktion der Schichtdicke für den Reorientierungsübergang der RT-Filme. Deshalb sind die TT-Filme dazu geeignet eine Aussage über die intrinsische, kritische Schichtdicke zu machen. Diese Schichtdicke variiert für die TT-Filme zwischen 100 und 300 K lediglich zwischen 3,4 und 3,1 ML (Abb. 6.41).

Eine Reduktion der magnetokristallinen Anisotropie an der Fe-Substrat Grenzfläche erklärt die geringeren Werte der Koerzitivfeldstärke für die RT-Filme im Vergleich zu den TT-Filmen. Da die Grenzflächenbeiträge den Ferromagnetismus bei sehr kleinen Schichtdicken stabilisieren [86], erklärt die kleinere magnetokristalline Grenzflächenanisotropie der RT-Filme möglicherweise auch den Unterschied in der Curie-Temperatur zwischen RT- und TT-Filmen.

Oberhalb ca. 5 ML steigt die Curie-Temperatur auf Werte größer als 570 K an. Dieser Anstieg fällt mit dem Einsetzen der strukturellen Umordnung von der epitaktisch verspannten krz zur unverspannten krz Phase zusammen. Bei den RT-Filmen erstreckt sich dieser Umordnungsbereich auf 5 bis 10 ML. Das Einsetzen der Umordnung ist an der Bildung von diffusen Reflexen im Beugungsbild erkennbar, die um einen reziproken Gitterabstand zentriert sind, der einer Gitterkonstanten von $2,87 \pm 0,07$ Å entspricht. Ein Maß für den Abschluß der Umordnung ist das Verschwinden der Reflexe an den Positionen des Cu_3Au Substrats bei 8,7 ML. Der Übergang führt zum Abfall der MEED-Intensität des (0,0)- und (1,-1)-Reflexes zwischen 5 und 10 ML. Er verur-

sacht auch eine Änderung der magnetooptischen Eigenschaften des Films. Während die Elliptizität der verspannten krz Phase um $35 \pm 5 \mu\text{rad}/\text{ML}$ unterhalb von 5,5 ML ansteigt, beträgt der Gradient der unverspannten Phase $41 \pm 5 \mu\text{rad}/\text{ML}$ oberhalb 10 ML. Im Übergangsbereich zwischen 5,5 und 10 ML liegt er bei $60 \mu\text{rad}/\text{ML}$.

Der Anstieg der MEED-Intensität des (0,0)-Reflex erfolgt erst nach der Umordnung zur unverspannten krz-Phase. Bei den TT-Filmen setzt er bereits bei 5 ML ein, was auf einen kleinen Schichtdickenbereich der strukturellen Umwandlung hinweist. Dies wird durch den Gradienten der longitudinalen Kerr-Elliptizität bestätigt, der oberhalb 5 ML bereits $42 \pm 5 \mu\text{rad}/\text{ML}$ beträgt. Der sich reduzierende Schichtdickenbereich für die strukturelle Umordnung ist auch aus den MEED-Kurven in Abhängigkeit der Depositionstemperatur (Abb. 6.32) ersichtlich, die mit abnehmender Depositionstemperatur ein Einsetzen des Intensitätsanstiegs bei kleiner werdender Schichtdicke zeigen. Der Intensitätsanstieg resultiert aus der zunehmenden Ordnung der krz Phase mit wachsender Schichtdicke. Da die Elektronen an den ersten Lagen des Films gebeugt werden, gilt diese Schlußfolgerung zumindest für die Oberflächenschichten. Die Unterschiede in dem Schichtdickenbereich der Umwandlung zeigen sich auch in den LEED-Bildern der TT- und RT-Filme oberhalb 5 ML. Die Intensität der Reflexe der TT-Filme ist bereits oberhalb 5 ML (Abb. 6.34 rechts) nach dem Anlassen auf 570 K eher sternförmig verteilt, während dies bei den RT-Filmen erst oberhalb 10 ML beobachtet wird (Abb. 6.36 Mitte links und rechts). Zwischen 5 und 10 ML wird bei den RT-Filmen nach dem Anlassen auf 570 K eine quadratische Reflexform beobachtet (Abb. 6.34 und 6.36 oben rechts und links). Da diese besondere Form nur in diesem Bereich auftritt, ist sie weder für unverspanntes krz(100) Fe, das bei sehr großer Schichtdicke stabilisiert wird, noch für verspanntes krz(100) Fe bei kleiner Schichtdicke charakteristisch. Für unverspanntes krz Fe bei großer Schichtdicke genügt bereits eine Anlaßtemperatur von 470 K, um die Breite der Reflexe zu verringern (Abb. 6.36 unten links). Dies steht in einer Wechselbeziehung zum lagenweisen Wachstum von Fe-Filmen auf einem Fe(100)-Substrat [131]. Dieser Modus wurde erst oberhalb 410 K beobachtet. Eine Anlaßtemperatur von bereits 470 K führt daher bei sehr großer Schichtdicke wahrscheinlich zu einem erheblichen Interlagenmassentransport. Da diese Temperatur zwischen 5 und 10 ML nicht zu einem vergleichbaren Beugungsbild führt, existiert möglicherweise eine höhere Barriere für den Interlagenmassentransport im Übergangsbereich. Diese höhere Barriere könnte eine Facettierung der Oberfläche hervorrufen. Eine mögliche Argumentation könnte diese Erhöhung auf die laterale Kontraktion der krz Phase zwischen 5 und 10 ML zurückführen. Dies ist aber insofern unschlüssig, als daß dann auch unterhalb von 5 ML ein Beugungsbild mit diffusen, quadratischen Reflexen beobachtet werden müßte, da das Eisen in diesem Bereich stärker verspannt aufwächst als im Umordnungsbereich. Dies wird jedoch weder im LEED-Beugungsbild beobachtet, noch weist die MEED-Intensitätskurve auf einen dreidimensionalen Wachstumsmodus hin. Deshalb ist nicht auszuschließen, daß sich aufgrund der großen Gitterfehlpassung auch

Mosaike im Film bilden.

Während des Umordnungsprozesses wird der laterale Abstand von 2,65 Å auf 2,87 Å expandiert und der Interlagenabstand von 1,53 auf 1,44 Å kontrahiert. Die damit verbundene Änderung der Oberflächendichte um 17 % müßte bei einer vollständigen Umwandlung des gesamten Films zu einem Massentransport von Fe Atomen aus dem Volumen auf die Oberfläche des Films führen. Induziert werden kann dieser Übergang durch die Bildung von Versetzungen, die die Spannungsenergie reduzieren. Damit ist die Bildung von Defekten, die mit der Umordnung verknüpft sind, sehr wahrscheinlich. Diese Defekte können das Wachstum der Schichten ebenfalls beeinflussen und erklären, warum man eine kurzreichweitige, strukturelle Ordnung bei Einsetzen der Umordnung beobachtet.

6.2.5 Vergleich mit anderen Arbeiten

Alle bisher untersuchten Fe-Filme auf einem $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ Substrat wurden bei 300 K oder höherer Temperatur deponiert [16, 173–175].

Gut geordnete Filme wurden von Lu et al. [175] nur bis 3 ML beobachtet. Deshalb wurden von den Autoren keine $I(E)$ -Spektren oberhalb dieser Schichtdicke aufgenommen. Diese Beobachtung steht möglicherweise in Beziehung zu dem Auftauchen der Streifen in $\text{kfz}[001]$ -Richtung im Beugungsbild der RT-Filme, die mit zunehmender Bedeckung und Energie intensiver werden (Abb. 6.35 rechts). Die Segregation von Au auf die Filmoberfläche, die Rekonstruktion des Films und der Einfluß des Substrats erklären möglicherweise, warum eine quantitative Analyse der LEED $I(E)$ Spektren [175] ergebnislos blieb.

Keune et al. [16] und Macedo et al. [173] untersuchten die Eigenschaften von Eisenfilmen auf einem $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ Substrat, die bei 473 K und 309 K deponiert worden waren, mit Mössbauer Spektroskopie. Bei 5 ML ist die Magnetisierungsrichtung in der Filmebene orientiert. Aus den großen Werten des Hyperfeinfeldes schlossen sie auf ein großes Moment des Fe. Dieses Ergebnis zeigt, daß die AF kfz Phase des Fe bei dieser Schichtdicke nicht stabilisiert wird.

Eine remanente Magnetisierung in der Filmebene wurde von Rochow et al. [174] und Dodt [172] bei 300 K nur oberhalb 3,6 ML mittels spinpolarisierter Elektronenenergieverlustspektroskopie detektiert. Dies kann durch den Verlauf der Curie-Temperatur (Abb. 6.42) erklärt werden, die unterhalb 3,6 ML weniger als 300 K beträgt. Durch die hier vorgestellten Messungen wurde eine Vermutung der gleichen Autoren bestätigt, daß die Magnetisierung unterhalb 3,6 ML senkrecht zur Filmebene orientiert ist. Bis 7 ML beobachteten sie eine scharfe (1×1) Struktur im LEED-Beugungsbild [174]. Aus einer kinematischen Analyse der Intensitätsmaxima des $(0,0)$ -Reflexes ermittelten sie einen Interlagenabstand von $1,75 \text{ \AA}$, aufgrund dessen sie auf die Stabilisierung der FM kfz Phase des Fe schlossen. Das c/a -Verhältnis dieser Struktur beträgt 1,41 und das atomare Volumen $13,2 \text{ \AA}^3$. Aus Tab. 6.1 ist ersichtlich, daß beide Werte für die FM kfz Phase zu groß sind. Die quantitative LEED-Analyse (Tab. 6.6 und Abb. 6.51) beweist dagegen, daß das Fe mit einem erheblich kleineren Interlagenabstand in der $\text{krz}(100)$ -Phase aufwächst. Oberhalb 10 ML beobachteten Rochow et al. [174] ein diffuser werdendes Beugungsbild, das bei 20 ML verschwand. Mit steigender Schichtdicke entwickelten sich neue Reflexe im LEED-Bild. Bei ca. 100 ML wurden die sehr breiten Reflexe mit wachsender Schichtdicke schärfer [174]. Die Eigenschaften dieser Schichten sind damit den hier vorgestellten prinzipiell ähnlich. Die größeren Werte der Schichtdicken im Vergleich zu den hier vorgestellten Daten weisen auf eine andere Eichung der Schichtdicke von Rochow et al. [174] hin.

Die gleichen Autoren [174] erklären die Unterschiede zu Ref. [175] mit den „anderen Bedingungen während der Deposition, wie z.B. der Aufdampftrate“. Dieses Argument

ist nicht schlüssig, da die Depositionsraten in Ref. [175] $1/11$ ML/Min und in Ref. [174] $0,2 \text{ \AA}/\text{Min}$ ($\approx 1/7 - 1/8$ ML/Min) sich nur wenig unterscheiden. Bei den hier durchgeführten Messungen wurden bei Depositionsraten zwischen $0,3$ und 2 ML/Min stets klar erkennbare Änderungen der Filmeigenschaften bei vergleichbaren Schichtdicken beobachtet. Folglich ist die Aufdampftrate nicht von entscheidender Bedeutung für die Filmeigenschaften. Bei niedriger Aufdampftrate wird jedoch eine stärkere Segregation von Au Atomen erwartet, was möglicherweise erklärt, warum von Rochow et al. [174] bis 7 ML Au auf der Filmoberfläche detektiert worden ist. Eine Besetzung von Plätzen in der Oberfläche des Substrats durch Eisenatome erklärt wahrscheinlich auch die „starken Änderungen in der Cu_3Au -Valenzband Emission“ bei $0,1$ ML, die von Rochow et al. und Dodt beobachtet wurden [172,174]. Eine kinematische Analyse der energetischen Position der Intensitätsmaxima des $(0,0)$ -Reflexes der gleichen Autoren bei 250 ML ergab, daß das Fe mit einer Gitterkonstante von $2,91 \text{ \AA}$ senkrecht zur Oberfläche und $2,85 \text{ \AA}$ parallel zur Filmoberfläche auf dem Substrat aufwächst. Diese Werte sind bis auf $0,02 \text{ \AA}$ mit denen des angelassenen 53 ML Films identisch (Tab. 6.6). Ein im Rahmen dieser Arbeit durchgeführter Versuch, das Ergebnis der kinematischen Analyse für den Interlagenabstand bei 53 ML zu reproduzieren, führte jedoch zu keinem eindeutigen Ergebnis. Die quantitative, volldynamische Analyse (Abb. 6.49 und 6.47, Tab. 6.6) beweist, daß das Fe bereits oberhalb 10 ML in der unverspannten $\text{krz}(100)$ -Struktur aufwächst.

6.3 Vergleich magnetischer, struktureller und morphologischer Eigenschaften ultradünner Eisenfilme auf einkristallinen Substraten

Im folgenden Abschnitt werden die Eigenschaften von Eisenfilmen auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ und $\text{Cu}(100)$ mit einer Auswahl an Experimenten ultradünner Eisenfilme auf anderen Substraten verglichen. Eisenfilme auf einkristallinen Substraten mit (100)-Orientierung und größerer Gitterkonstanten als $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ wurden auf $\text{Rh}(100)$ ($3,80 \text{ \AA}$) [260,261], $\text{Ag}(100)$ ($4,09 \text{ \AA}$) [262], $\text{Au}(100)$ ($4,08 \text{ \AA}$) [263] und $\text{Pd}(100)$ ($3,89 \text{ \AA}$) [106,264] deponiert. Die Magnetisierungsrichtung nahezu unverspannter $\text{krz}(100)$ -Filme auf $\text{Ag}(100)$ [262] und $\text{Au}(100)$ [263] ist oberhalb 100 K vom Einsetzen des Magnetismus an parallel zur Oberfläche orientiert. Nur bei Eisenfilmen auf $\text{Ag}(100)$ [262] und $\text{Pd}(100)$ [265] mit einer Schichtdicke kleiner als 3 ML steht die Magnetisierung unterhalb 100 K senkrecht zur Oberfläche. Bei den Eisenfilmen auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ ist die senkrechte Magnetisierung bis zur Curie-Temperatur stabil, was auf eine beträchtliche Stabilisierung der senkrechten Magnetisierung hinweist. Eisenfilme auf $\text{Au}(100)$ [265] sind nur direkt nach der Deposition bei 100 K senkrecht magnetisiert. Ein Anlassen auf 300 K oder eine Deposition bei 300 K führen zum Verschwinden oder Ausbleiben der senkrechten Magnetisierung. Dies steht möglicherweise mit der Interdiffusion von Fe- und Au-Atomen während des Wachstums oder Anlassens auf 300 K in Beziehung, die von Jiang et al. nachgewiesen wurde [266–268]. Insbesondere ermittelten sie, daß Au-Atome auf die Oberfläche des Eisenfilms diffundieren. Dies kann die Oberflächenanisotropiekonstante verkleinern [75] und zur Bevorzugung der parallelen Magnetisierung führen.

Begley et al. [261] fanden ein pseudomorphes Wachstum des Eisens auf $\text{Rh}(100)$ bis 9 ML. Eine quantitative Analyse von $I(E)$ -Spektren oberhalb 6 ML ergab einen Interlagenabstand von $1,56 \pm 0,03 \text{ \AA}$. Nach Ergebnissen der gleichen Arbeitsgruppe von Quinn et al. [264] an 12 ML Filmen auf $\text{Pd}(100)$ wächst das Fe pseudomorph mit einem Interlagenabstand von $1,53 \pm 0,03 \text{ \AA}$ auf dem Substrat auf. Die Struktur von Eisenfilmen auf einem $\text{Ni}(100)$ -Substrat wurde von Lu et al. [269] quantitativ analysiert. 10 ML Fe wachsen nach diesem Ergebnis wahrscheinlich in der FM kfz Phase mit einem Interlagenabstand von $1,94 \pm 0,05 \text{ \AA}$ auf. Allerdings wurde bei dieser Bedeckung eine der (4×1) -ähnliche Struktur beobachtet, die möglicherweise auf die Bildung von $\text{krz}(110)$ -Fe hinweist und nicht analysiert wurde. Ähnlich wie bei den Eisenfilmen auf $\text{Cu}(100)$ (Abb. 6.23 unten) verschieben sich auch hier die Intensitätsmaxima zwischen 1 und 4 ML zu kleineren Energien [269] mit wachsender Bedeckung, was auf eine kontinuierliche Zunahme des Interlagenabstands hinweist.

Zur Identifizierung der strukturellen Phasen des Eisens auf den verschiedenen Substraten können die Werte der strukturellen Analysen analog zu Abb. 3.3 mit den berechneten Werten in der tetragonalen Ebene und der epitaktischen Linie verglichen werden

(Abb. 6.53). Die Wertepaare für Eisenfilme auf Rh(100) (5) [261], Pd(100) (4) [264] und Cu₃Au(100) (5 ML (6), 18,7 ML (7), 53 ML (8), Tab. 6.6) weichen nur wenig von den berechneten Linien einer verspannten krz(100)-Phase ab. Der Unterschied der Struktur der Eisenfilme auf dem Cu₃Au(100) Substrat oberhalb 10 ML (7,8) zur unverspannten krz(100)-Phase ist, erkennbar an dem c/a -Verhältnis ($c/a \approx 1$), nur klein. Der Interlagenabstand im Volumen des Bereichs II von Eisenfilmen auf Cu(100) (3) liegt nahe bei dem Wert, der für die AF kfz Phase erwartet wird. Schließlich stimmen sowohl die Werte für die (5×1)-Phase (Tab. 6.5) als auch des 10 ML Fe-Films auf einem Ni(100)-Substrat [269] mit einer FM kfz Phase einer Gitterkonstanten von 3,66 Å überein.

Diese Ergebnisse zeigen, daß oberhalb einer Gitterkonstanten von 2,65 Å die krz(100)-Phase stabilisiert wird. Die Berechnungen zum Stabilitätsbereich der kfz-Phasen des Eisens (Abb. 3.2) stimmen daher gut mit den experimentellen Daten überein. Die Substratgitterkonstante, die die Stabilisierung der krz(100)-Phase von dem Wachstum der kfz Phase trennt, liegt zwischen 2,65 und 2,55 Å. Dies entspricht einer Differenz der totalen Energien beider Phasen, die zwischen 0,03 und 0,16 eV liegt. Beim Vergleich der Abb. 6.53 mit den theoretisch berechneten Gitterkonstanten von Asada (Abb. 3.3, Tab. 2.2) wird nur für den Verlauf des AF kfz Eisens eine nicht vernachlässigbare Abweichung von den experimentellen Werten festgestellt. Diese Abweichung resultiert aus dem berechneten Wert der Gitterkonstanten der AF kfz Phase, die nach den Berechnungen von Asada mit 3,53 Å um 0,05 Å kleiner als der experimentell bestimmte Wert (3,58 Å) (Abb. 2.5 und Ref. [21]) ist.

Im Gegensatz zu der Übereinstimmung der strukturellen Parameter der Fe-Filme auf einem Rh(100)-Substrat mit der krz(100)-Phase nach dem Ergebnis von Begley et al. [261] behaupteten Egawa et al. [260] aufgrund von Messungen mittels winkelaufgelöster Augerelektronenspektroskopie, daß das Fe bis 20 ML in der kfz Phase auf dem Rh(100)-Einkristall aufwächst. Zwischen 10 und 15 ML beobachteten sie im LEED-Bild breite, quadratische Hauptstrukturreflexe, deren Intensität in den Ecken verstärkt und deren Diagonale in kfz[011]-Richtung orientiert ist. Dieses Beugungsbild ähnelt jenen Bildern, die in Abb. 6.36 (oben rechts und links) für die RT-Filme auf Cu₃Au(100) beim Übergang in die unverspannte krz(100)-Phase gefunden worden sind. Die zugehörigen $I(E)$ -Kurven (Abb. 6.49 und 6.50) zeigen jedoch, daß diese Reflexform mit der Umordnung zur unverspannten krz(100)-Phase verknüpft ist. Die Bildung einer kfz Phase auf dem Rh(100)-Substrat ist daher nicht wahrscheinlich.

Zur Untersuchung der Eigenschaften anderer Flächen der kfz Phasen bietet sich aufgrund der kleinen Gitterfehlpassung das Cu-Substrat in der (110)- und (111)-Orientierung an. Eisenschichten auf Cu(111) wurden von Kümmerle und Gradmann [270, 271] untersucht. Sie fanden ein pseudomorphes Wachstum des Eisens und gaben einen Übergang von der γ - zur α -Phase unterhalb 10 Å bei Raumtemperatur und ein magnetisches Moment der γ -Phase von 0,58 μ_B /Atom an. In einem erweiterten Experiment [180]

wurde die Gitterkonstante des Substrats durch Veränderung der Zusammensetzung einer Cu/Au-Legierung kontinuierlich von 3,61 Å bis 3,77 Å variiert. Das magnetische Moment steigt mit wachsender Substratgitterkonstante von $0,6 \mu_B$ bei Cu(100) bis auf $2,6 \mu_B$ bei einer Gitterkonstante von 3,67 Å an.

Unabhängig von der Orientierung des Cu-Substrats wird von Kief et al. [196, 272] eine senkrechte Magnetisierung bei Eisenfilmen, die bei 80 K auf einem Cu(110)- bzw. Cu(111)-Substrat deponiert wurden, bis 6 bzw. 4,5 ML gefunden. Die senkrechte Magnetisierung steigt linear mit der Schichtdicke an; die Filme sind homogen magnetisiert. Folglich ist das Fe bei diesen Schichtdicken in der krz oder der FM kFz Phase stabilisiert. Interessanterweise ergeben Experimente von Tian et al. [273], daß die Bildung von unverspanntem krz Fe in Kurdjumov-Sachs-Orientierung oberhalb 5 ML einsetzt und daher mit dem Reorientierungsübergang zusammenfällt. Unterhalb dieser Schichtdicke wächst das Fe pseudomorph mit einem Interlagenabstand von $2,08 \pm 0,03$ Å auf dem Substrat auf. Für die FM kFz Phase wird ein Interlagenabstand von ca. 2,15 Å erwartet. An Eisenfilmen auf der (110)-Fläche des Kupfers konnte von Tian et al. [273] keine zuverlässige Strukturbestimmung durchgeführt werden, da sich auf dem Kristall (111)-Facetten bilden.

Die Ergebnisse der Experimente an Eisenfilmen auf anderen Substraten zeigen, daß zur Identifizierung der Phase des Eisens eine quantitative Analyse der Struktur und eine Charakterisierung der magnetischen Eigenschaften notwendig ist. Die kFz Phasen des Fe in (100)-Orientierung können nur unterhalb einer Substratgitterkonstanten von 2,65 Å stabilisiert werden. Die empfindliche Abhängigkeit der kFz Modifikation des Eisens von den Präparationsbedingungen erfordert eine detaillierte Charakterisierung der morphologischen Eigenschaften.

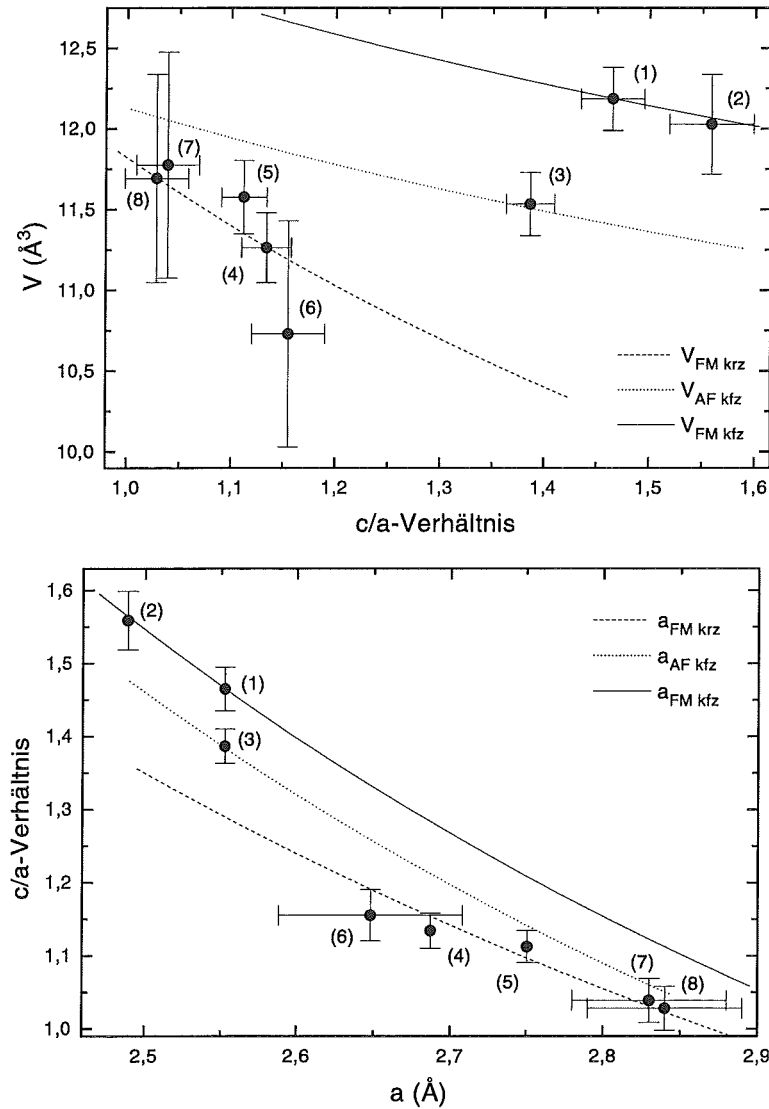


Abb. 6.53: Tetragonale Ebene und epitaktische Linie im Vergleich mit experimentellen Daten von Eisenfilmen auf unterschiedlichen Substraten

Für die FM kfz Phase wurde eine Gitterkonstante von $3,66 \text{ \AA}$, für die AF kfz Phase von $3,58 \text{ \AA}$ und für die krz Phase von $2,87 \text{ \AA}$ angenommen. Die experimentellen Daten stammen aus Tab. 6.5 ((5×1) (1)), aus Ref. [269] (10 ML Fe auf Ni(100) (2)), aus Tab. 6.3 (AF, kfz Fe-Filme im Bereich II (3)), aus Ref. [264] (12 ML Fe auf Pd(100) (4)), aus Ref. [261] (9 ML Fe auf Rh(100) (5)) und aus Tab. 6.6 (4,7 ML (6), 18,7 ML (7) und 53 ML (8) Fe auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$)).

Kapitel 7

Experimente an ultradünnen Manganfilmen auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$

Im Gegensatz zu den Fe-Filmen sind Untersuchungen an epitaktischen Mn-Filmen auf einkristallinen Substraten nicht so zahlreich. In den bisherigen Experimenten wurde das Mn sowohl in hexagonaler als auch in kubischer Struktur auf einkristallinen Substraten stabilisiert.

Mittels RHEED, AES und XPS fanden Arrott et al. [274] eine hexagonal dicht gepackte Struktur bis zu einer Schichtdicke von 2 ML auf einem $\text{Ru}(0001)$ Substrat. Sie klassifizierten diese Struktur als eine neue Phase des Mangans. Die Flächendichte der Struktur beträgt $6,31 \text{ \AA}^2/\text{Atom}$ und ist daher nur wenig kleiner als die der (111)-Fläche des AF kfz Mn mit $6,4 \text{ \AA}^2/\text{Atom}$, die aus Tab. 2.2 berechnet worden ist. Eine Bestimmung des Interlagenabstandes kann hier entscheiden, ob es sich um eine neue Phase handelt oder das Mn in der kfz Phase aufwächst.

Für eine pseudomorphe Mn-Monolage auf einem $\text{Cu}(100)$ -Substrat wurde von Blügel et al. ein antiferromagnetischer Grundzustand berechnet [275]. Auf dem $\text{Ni}(100)$ -Einkristall wurde dagegen von Heinrich et al. [276] eine komplexe Struktur des Mangans gefunden, die nicht genau bestimmt werden konnte.

Wuttig et al. ermittelten mittels LEED, Augerspektroskopie und SPALEED, daß das Mn bis zu 1 ML in einer quasi hexagonalen Anordnung unterhalb 270 K auf einem $\text{Cu}(100)$ - [63, 277] und einem $\text{Ni}(100)$ -Substrat [64, 278, 279] aufwächst. Die quasi hexagonale Struktur der Filme erzeugt im LEED-Bild eine $c(n \times 2)$ -Überstruktur [64] mit $n=8$ für Cu und $n=10$ für Ni. Die Flächendichte dieser Strukturen ist mit $7,3 \text{ \AA}^2$ für das Cu und $6,9 \text{ \AA}^2$ für das Ni größer als die der aus Tab. 2.2 bestimmten Werte der AF kfz(111)-Fläche ($6,4 \text{ \AA}^2$) und der AF krz(110)-Flächen (FM: $5,8 \text{ \AA}^2$, AF: $6,4 \text{ \AA}^2$). Ursache für die Bildung dieser Phase ist die verringerte Koordinationszahl. Sie führt zu einer Bandverengung und zur Erhöhung des magnetischen Momentes [64]. Als weiterer Effekt wird damit der energetische Überlapp zwischen Majoritäts- und Minoritätselektronen verringert. Im Extremfall verschwindenden energetischen Überlapps zwischen Majoritäts- und Minoritätselektronen sind alle bindenden und antibindenden Zustände der Majoritätsbänder besetzt. Als Folge davon wird der Beitrag der d-Bänder

zur Kohäsionsenergie kleiner und der interatomare Abstand größer [62, 64]. Bei dem Wachstum eines magnetischen Films auf einem Edelmetallsubstrat kann aufgrund der geringeren d-d-Hybridisierung folglich ein größeres atomares Volumen erwartet werden als auf einem magnetischen Substrat der d-Reihe [64]. Dies erklärt den größeren interatomaren Abstand des Mn auf dem Cu(100)-Substrat. Mit einer Vergrößerung des interatomaren Abstands und der damit verringerten d-d-Hybridisierung wird die Geometrie der Bindung ungerichtet und damit hexagonal [64]. Für größere Schichtdicken wird aufgrund der erhöhten Koordination und der d-d-Hybridisierung zwischen den Mn-Atomen ein kleineres atomares Volumen erwartet. Abstände der Mn-Atome von ca. 2,7 Å, wie sie für die Volumenphase des kfz Mn charakteristisch sind, wurden für Filme großer Schichtdicke auf Cu(111) [280] und Pd(111) [281] gefunden.

Für das Cu₃Au-Edelmetallsubstrat läßt sich vermuten, daß das Mn bis 1 ML in einer quasi hexagonalen Struktur aufwächst. Möglich ist aber auch, daß das Mn mit der (100)-Orientierung der kfz Phase aufwächst, da die Gitterfehlpassung dieser Orientierung auf dem Cu₃Au-Substrat mit ca. 1,7 % nur klein ist. Nach den Berechnungen in Abb. 3.2 sollte diese Orientierung auf Substraten mit einem lateralen nächsten Nachbarabstand unterhalb von 2,78 Å stabilisiert werden können. Die Stabilisierung dieser Phase wird folglich auch für ein Rh(100)- und Pd(100)-Substrat erwartet. In der krz Modifikation sollte das Mn dagegen auf einem Ag(100)-, Au(100)- oder Fe(100)-Substrat aufwachsen. Da das Mn in einer quasi hexagonalen Struktur auf dem Cu(100)-Substrat aufwächst, kann diese Gitterkonstante als eine untere Grenze für die Stabilisierung der kfz Phase aufgefaßt werden.

Tian et al. [282] fanden ein pseudomorphes Wachstum des Mn auf einem Pd(100)-Substrat bis 21 ML in einer neuen, krt Phase oder einer kfz Phase des Mn. In einer kurz darauf veröffentlichten Arbeit [283] korrigierten sie dieses Ergebnis dahingehend, daß es sich um eine verzerrte kfz Modifikation des Mn handelt.

Heinrich et al. [284] behaupteten aufgrund von Messungen an Mn-Filmen auf Fe(100) mittels ferromagnetischer Resonanz (FMR), daß das Mn in der krz Phase auf dem Substrat aufwächst. Nachfolgende Messungen von Jonker et al. [285] mit SQUID (superconducting quantum interference device), FMR und RHEED an Mn-Filmen auf einem Ag(100) Substrat ergaben dagegen eine nicht ferromagnetische, tetragonale Struktur, die der des γ -Mangans ähnelt. Mittels EXAFS wurde dagegen die krz Phase des Mn auf einem Ag(100)-Substrat zwischen 5 und 14 ML gefunden [286].

Oberhalb einer Depositionstemperatur von ca. 270 K wird die Bildung einer geordneten Legierung auf dem Cu(100)- und dem Ni(100)-Substrat beobachtet [64, 278, 279]. Die Bildung der Legierung führt zu einer $c(2 \times 2)$ -Überstruktur im LEED-Beugungsbild. Die Intensität der Überstrukturreflexe resultiert dabei vorwiegend aus der großen Korrugationsamplitude der Mn-Atome von 0,3 Å und nur wenig aus dem unterschiedlichen Streuvermögen der Mn- und Cu-Atome. Für Nickel als Substrat ist die Bildung einer geordneten Legierung im Volumen nach dem binären Phasendiagramm [287] zu

erwarten. Auf dem Ni(100)-Substrat erstreckt sich die geordnete Legierung daher über mehrere Lagen. Das Binärsystem Mn/Cu tendiert jedoch nicht zur Bildung einer geordneten Volumenlegierung. Das magnetische Moment des Mn ist treibende Kraft für die Korrugation und darüber hinaus die Stabilität der geordneten Legierung [288] an der Oberfläche. In einer paramagnetischen Legierung wären alle d-Bänder halb gefüllt. Damit wären alle bindenden Zustände besetzt und das Mn würde eine Geometrie mit einer großen Anzahl an Nachbarn bevorzugen. Deshalb wäre eine paramagnetische Legierung instabil gegen eine Interdiffusion [288]. Bei der Existenz eines magnetischen Moments ist das Majoritätsband in erster Näherung gefüllt, und der Anteil der d-Bänder an der Kohäsionsenergie wird geringer. Durch den Gewinn an magnetischer Energie erreicht die totale Energie jedoch durch die Ordnung der Spins einen kleineren Wert als bei einem paramagnetischen Zustand. Die geordnete Legierung ist folglich nur auf die Oberfläche beschränkt und eignet sich ausgezeichnet zur Untersuchung von Legierungsprozessen in zwei Dimensionen [289]. Die Existenz eines magnetischen Momentes führt zu einer Vergrößerung des atomaren Volumens und damit zur Korrugation [64, 288]. Totalenergieberechnungen [288] ergeben, daß der Grundzustand dieses Systems ferromagnetisch ist und das atomare Moment der Mn-Atome $3,75 \mu_B$ beträgt. Die Existenz eines großen magnetischen Momentes des Mangans in dieser Legierung wurde durch Messungen mittels Photoemission und inverser Photoemission [290] bestätigt.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde versucht, den magnetischen Grundzustand der $c(2 \times 2)$ - und $c(8 \times 2)$ -Überstruktur auf einem Cu(100)-Substrat zu bestimmen. Das Wachstum der Filme wurde dazu mittels MEED charakterisiert und die Überstrukturen mit LEED detektiert. Die gemessenen Wachstumskurven stimmen sehr gut mit bereits gemessenen Daten von Flores et al. [63, 277] überein. Daran anschließend wurde die Kerr-Elliptizität in Modulationstechnik und Nullellipsometrie sowie die Suszeptibilität der $c(2 \times 2)$ bei 0,5 ML und der $c(8 \times 2)$ zwischen 380 und 92 K gemessen. Für beide Überstrukturen wurden im untersuchten Schichtdicken- und Temperaturbereich aus den Messungen keine Hinweise auf einen ferromagnetischen Zustand gefunden. Dieses Ergebnis stimmt mit einer Vorhersage von S. Blügel überein [291], der die Curie-Temperatur dieser Phase auf 40 bis 50 K abgeschätzt hat.

Alle zitierten Arbeiten zu den epitaktisch gewachsenen Manganfilmen zeigen, wie eng die Wechselbeziehung zwischen der Struktur und dem Magnetismus der Schichten ist. Deshalb wurde auf eine eingehende Analyse der strukturellen Eigenschaften der Mn Filme auf dem Cu_3Au -Substrat Wert gelegt. Zur vollständigen Charakterisierung wurde zunächst die Morphologie der Manganfilme untersucht.

7.1 Morphologie

Bei der Wahl der Depositionstemperatur muß berücksichtigt werden, daß das Binärsystem Mn/Cu zur Bildung einer ungeordneten und das System Mn/Au zur Bildung einer geordneten Volumenlegierung tendiert [287]. Deshalb wurde zunächst das Diffusionsverhalten auf die gleiche Art wie bei den Eisenfilmen untersucht. Die Filme wurden zunächst bei 170 K aufgedampft und danach auf höhere Temperaturen angelassen. Tab. 7.1 zeigt die Temperaturen T_{diff} , bei denen eine Diffusion von Au- bzw. Cu-Atomen mittels Augerspektroskopie nachgewiesen werden konnte. Bereits knapp

Schichtdicke (ML)	$T_{diff}(K)$	
	Cu	Au
2,6	328	328
5,0	453	423
9,0	473	473
18,0	503	503

Tab. 7.1: Abhängigkeit der Diffusion von der Schichtdicke

T_{diff} ist die Anlaßtemperatur eines Films, der bei 170 K aufgedampft worden ist, die zu einer Änderung des $\text{Cu}_{60\text{ eV}}$ - oder $\text{Au}_{69\text{ eV}}$ -Augersignals führt. Diese Änderung indiziert ein Eintreten der Diffusion von Cu- oder Au-Atomen zur Oberfläche.

oberhalb Raumtemperatur setzt eine Diffusion der Substratome bei kleiner Schichtdicke ein. Eine Deposition bei 300 K oder höherer Temperatur führt zur Interdiffusion von Substratomen und Adsorbatatomen und der Segregation von Substratomen während des Aufdampfens. Zur Analyse der strukturellen Eigenschaften wurde daher Mn bei einer Substrattemperatur von 170 K deponiert und zur Verringerung der Rauigkeit und Erhöhung der Ordnung des Films auf 300 K angelassen. Mit wachsender Schichtdicke steigt erwartungsgemäß die Diffusionstemperatur an. Bis ca. 6 ML setzt die Diffusion von Au tendenziell bei geringerer Temperatur ein als von Cu. Mit wachsender Schichtdicke nimmt T_{diff} jedoch für beide Elemente gleiche Werte an. Diese liegen von 9 bis 18 ML zwischen 470 und 500 K und sind damit kleiner als man für eine Volumendiffusion der Substratome zur Oberfläche erwarten würde [142,143]. Es ist daher davon auszugehen, daß im Volumen des Films Defekte vorliegen, die von der Grenzfläche Mn/Substrat bis zur Filmoberfläche reichen. Da die Diffusionstemperatur auch bei 5 ML keine sehr großen Werte erreicht, ist es wahrscheinlich, daß diese Defekte bereits bei kleinerer Schichtdicke vorliegen.

Die Diffusion der Substratome zur Filmoberfläche führt bei großer Schichtdicke zur Bildung einer $c(2\times 2)$ -Überstruktur im LEED-Beugungsbild (Abb. 7.2 unten links).

Die gleiche Struktur wurde mit dem Einsetzen der Bildung der geordneten Legierung bei den ultradünnen Mn-Filmen auf Cu(100) [63] im Monolagenbereich und auf Ni(100) [63,278] gefunden. Da sowohl Cu- als auch Au-Atome zur Oberfläche diffundieren, ist nicht auszuschließen, daß sich eine geordnete Legierung auf der Filmoberfläche bildet.

Im Prinzip können die Defekte und die Segregation das Wachstum der Schichten bei einer höheren Depositionstemperatur beeinflussen. Zur Untersuchung dieses Einflusses und zur Charakterisierung des Wachstums wurden MEED-Kurven bei verschiedenen Depositionstemperaturen aufgenommen (Abb. 7.1). Die MEED-Intensität zeigt aus-

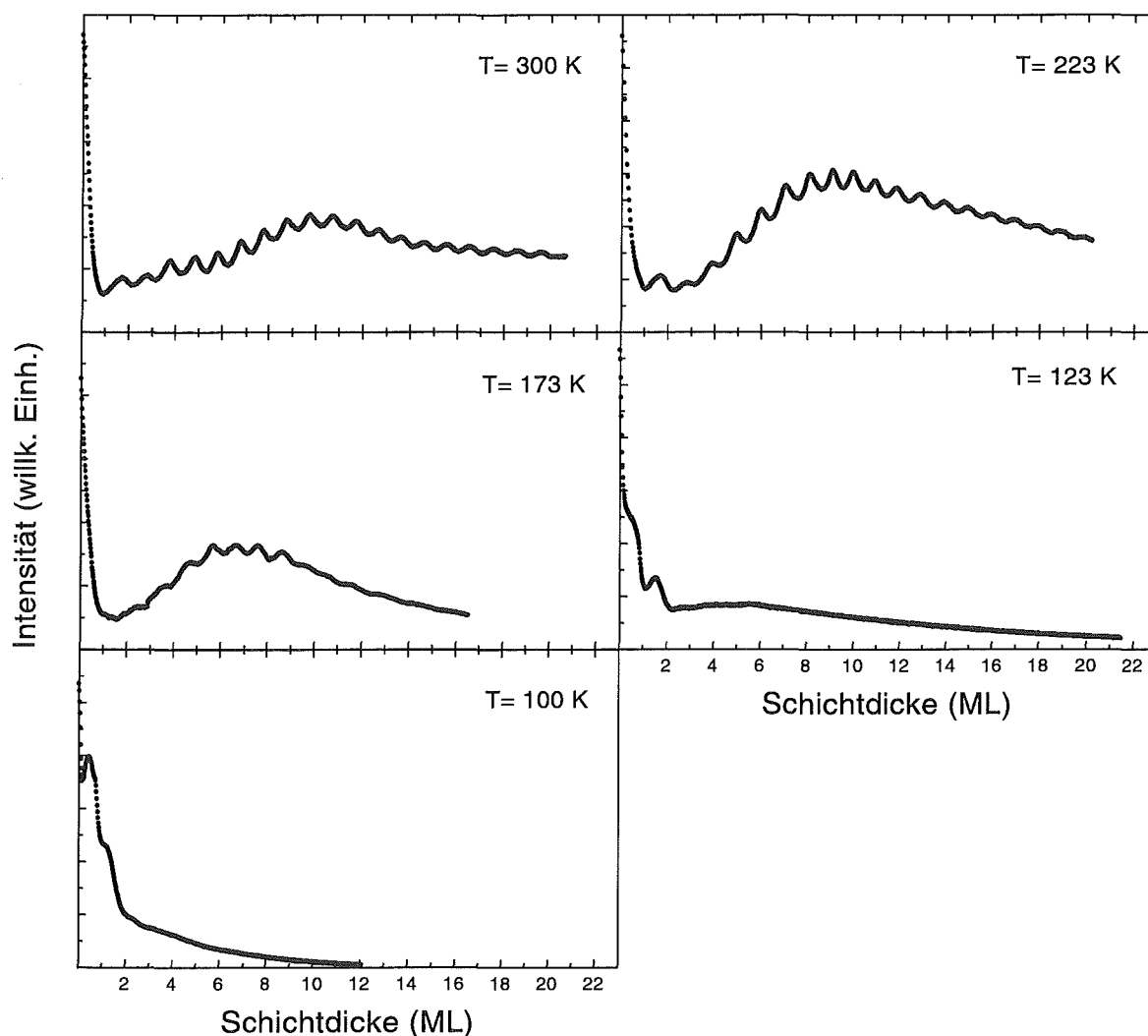


Abb. 7.1: MEED-Wachstumskurven der Manganfilme

Es ist die Abhängigkeit der Intensität des (0,0)-Beugungsreflexes von der Schichtdicke bei verschiedenen Depositionstemperaturen dargestellt.

geprägte Oszillationen bei 300 K, die charakteristisch für ein lagenweises Wachstum der Filme sind. Oszillationen bis zu sehr großer Schichtdicke werden auch noch bei

223 K beobachtet. Mit weiter abnehmender Temperatur sind die Oszillationen weniger ausgeprägt und auf die ersten zehn Atomlagen beschränkt. Unterhalb 160 K beobachtet man im wesentlichen eine kontinuierlich abfallende Intensität. Das Verschwinden der Oszillationen und die abfallende Intensität resultieren aus einem dreidimensionalen Wachstum in Folge der abnehmenden Beweglichkeit der Adatome. Eine Intensitätsvariation unterhalb 3 ML bei 100 und 123 K läßt auf eine periodische Änderung der Stufendichte im Anfangsbereich des Wachstums schließen.

Charakteristisches Merkmal der mittleren Intensität zwischen 173 und 300 K ist nach dem zunächst steilen Abfall bis etwa 1 ML eine niedrige Intensität bei kleiner Schichtdicke. Bei weiterer Deposition steigt die Intensität erneut an. Mit wachsender Bedeckung erreicht sie bei einer Depositionstemperatur von 173 K bei etwa 7 ML ein Maximum, das sich bis auf 10 ML bei 300 K verschiebt. Oberhalb dieses Maximums fällt die mittlere Intensität kontinuierlich ab. Da Oszillationen bereits bei kleiner Schichtdicke vorhanden sind, scheint die niedrige Intensität im Anfangsbereich nicht aus einer Agglomeration der Mn-Atome zu resultieren. Diese ist aus energetischen Gründen auch nicht zu erwarten, da die freie Oberflächenenergie des Mn kleiner als die des Cu und nur wenig größer als die des Au ist.

Eine mögliche Ursache für die niedrige mittlere Intensität wäre z.B. eine Rekonstruktion des Mn oder eine kurzreichweitige strukturelle Ordnung. Zur Überprüfung der Ordnung wurde das LEED-Bild bei wachsender Bedeckung beobachtet. Abb. 7.2 zeigt dazu LEED-Beugungsbilder verschiedener Schichtdicken. Bei 2,6 ML (Abb. 7.2 links oben) beobachtet man zusätzlich zu den scharfen Reflexen eine schwach ausgeprägte, energieunabhängige, diffuse Verbreiterung der Reflexe in die $k_fz[011]$ -Richtung. Bei 6,7 ML hat sich diese Verbreiterung in die $k_fz[001]$ -Richtung geändert (Abb. 7.2 rechts oben). Gleichzeitig hat sich die Untergrundintensität bis zu dieser Schichtdicke erhöht (Abb. 7.2 oben rechts) erhöht. Bei weiterer Deposition nimmt die Intensität des Untergrundes ab und die Halbwertsbreite der Reflexe verringert sich (Abb. 7.2 Mitte links und rechts). Aus der Änderung der LEED-Bilder läßt sich der Schluß ziehen, daß die Mn-Filme bei sehr geringer und sehr großer Schichtdicke längerreichweitig geordnet sind als in dem dazwischen liegenden Bereich. Damit steht die Änderung des Beugungsbildes in enger Beziehung zur Änderung der mittleren Intensität der MEED-Kurven. Überraschend ist, daß für die Bereiche mit besserer Ordnung die Intensität niedriger ist als im mittleren Bereich zwischen etwa 6 und 11 ML. Möglicherweise führt eine strukturelle Änderung zu dieser Abhängigkeit der MEED-Reflexintensität von der Schichtdicke. Zur Überprüfung dieser These wurden die strukturellen Eigenschaften der Mn-Filme charakterisiert und analysiert.

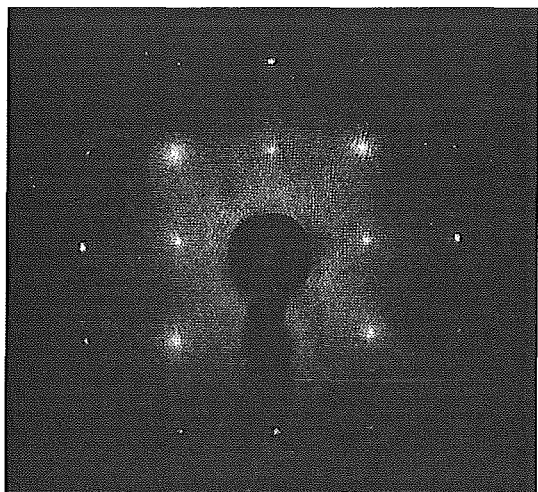
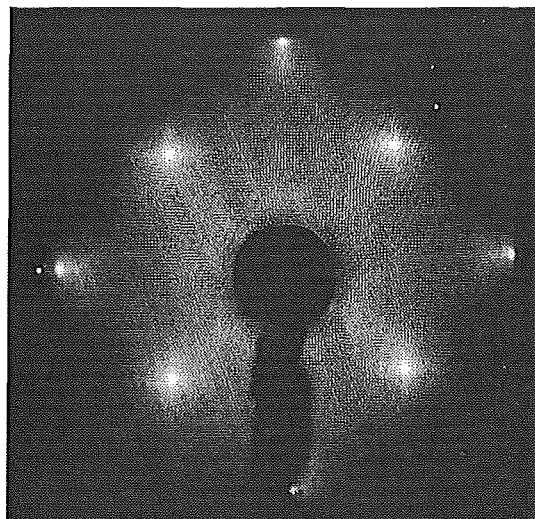
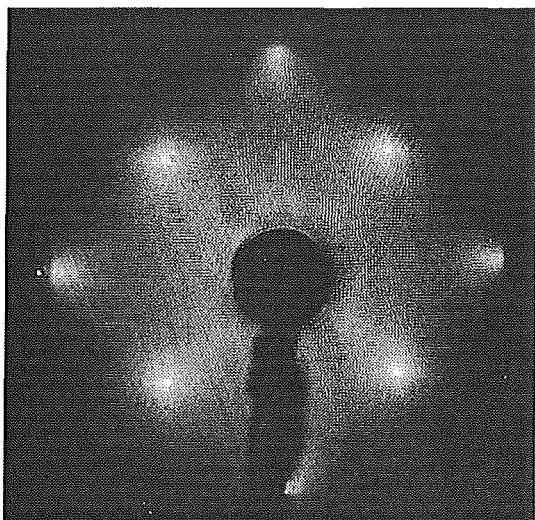
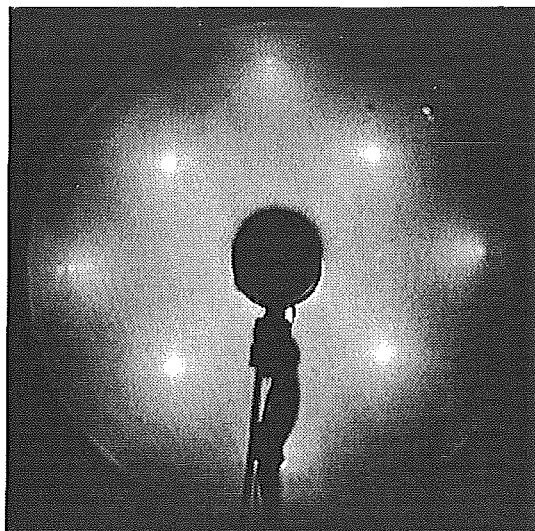
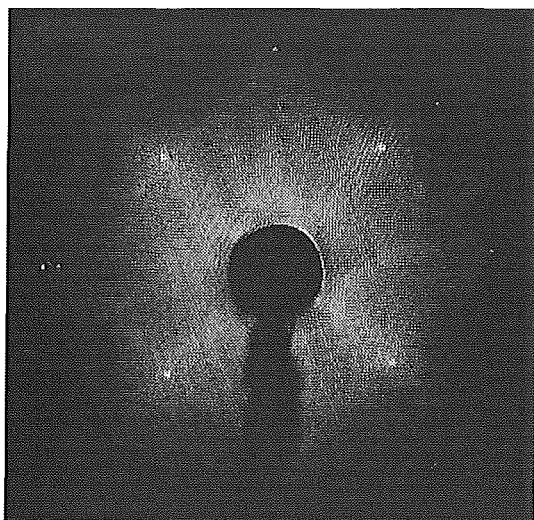


Abb. 7.2: Beugungsbilder der Mn-Filme in Abhängigkeit der Bedeckung

Zur Aufnahme der Bilder wurden Filme bei 173 K deponiert und für 10 Minuten auf 300 K angelassen. Alle Bilder wurden nach sich daran anschließendem Einkühlen bei 100 K aufgenommen (links oben: 2,6 ML, $E=112,5$ eV, rechts oben: 6,7 ML, $E=112,5$ eV, Mitte links: 7,9 ML, $E=112,5$ eV, Mitte rechts: 16,1 ML, $E=112,5$ eV, links: 16,1 ML, $c(2 \times 2)$ $E=117,2$ eV nach dem Anlassen auf 523 K für 15 Minuten).

7.2 Struktur

Zur Charakterisierung der strukturellen Eigenschaften wurden zunächst LEED-Bilder in Abhängigkeit der Bedeckung beobachtet (Abb. 7.2). Unabhängig von der Schichtdicke wurden keine Überstrukturen im LEED-Beugungsbild beobachtet. Dies gilt auch für Filme im Submonolagenbereich, bei denen nur die $c(2 \times 2)$ des Cu_3Au -Substrats sichtbar war. In einem weiteren Schritt wurde überprüft, ob sich die Position der Hauptstruktureflexe mit wachsender Schichtdicke zwischen 0 und 25 ML ändert. Nachdem durch eine Beobachtung des LEED-Bildes auch dies nicht verifiziert werden konnte, muß davon ausgegangen werden, daß das Mn von Beginn des Wachstums an pseudomorph auf dem Substrat aufwächst. Strukturelle Änderungen können daher im wesentlichen nur durch eine Änderung des Interlagenabstands, d.h. des c/a -Verhältnisses bei konstantem a , gekennzeichnet sein. Zur Charakterisierung der strukturellen Eigenschaften wurden LEED $I(E)$ -Spektren des (1,0)-, (1,1)-, (2,1)- und (2,0)-Reflexes bei verschiedenen Schichtdicken aufgenommen und miteinander verglichen. Ein Vergleich der $I(E)$ -Spektren der (1,1)-Reflexe ist in Abb. 7.3 gezeigt. Die Spektren variieren

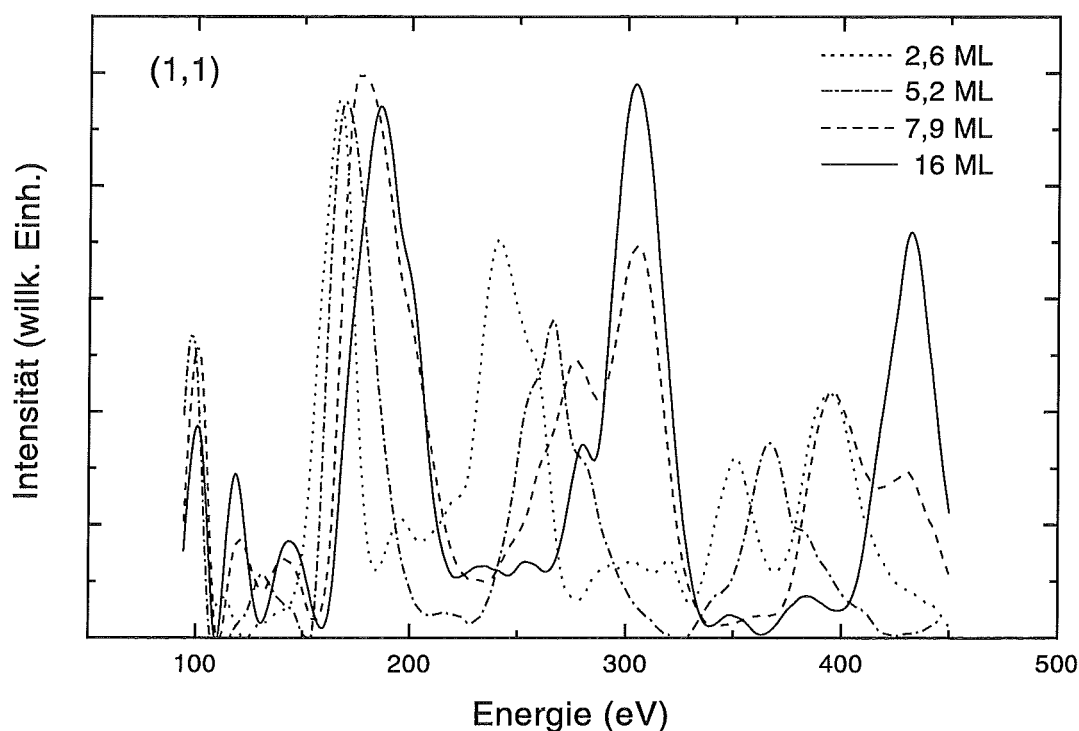


Abb. 7.3: $I(E)$ -Spektren der Mn-Filme in Abhängigkeit der Schichtdicke

Die Intensität des (1,1)-Beugungsreflexes ist in Abhängigkeit der Energie aufgetragen. Es ist der Verlauf der Spektren von Filmen, die bei 173 K deponiert und auf 300 K angelassen wurden, für verschiedene Schichtdicken (2,6 ML: punktierte Linie, 5,2 ML: punkt-gestrichelte Linie, 7,9 ML: gestrichelte Linie und 16 ML: durchgezogene Linie) dargestellt.

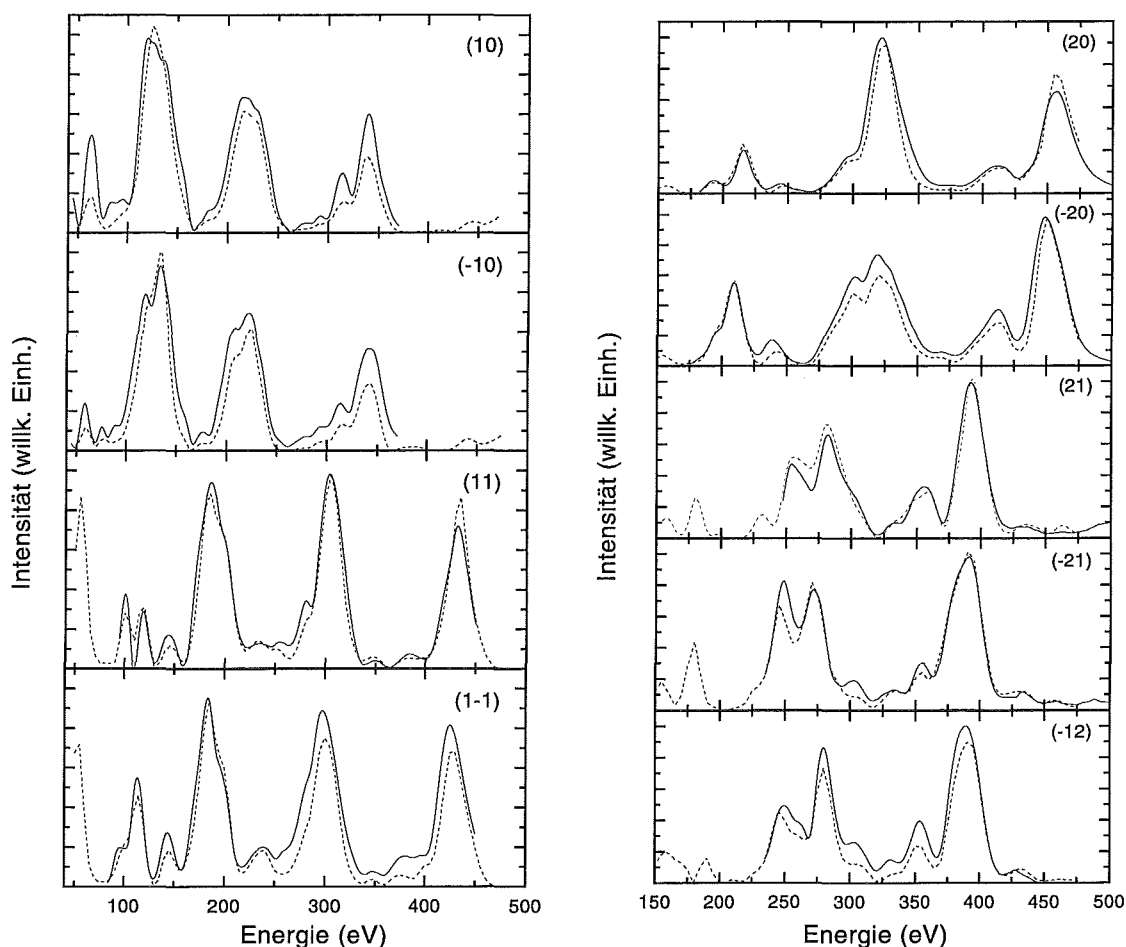


Abb. 7.4: Vergleich berechneter und experimenteller $I(E)$ -Spektren für einen 16 ML Film

Die experimentellen Daten (durchgezogene Linie) stimmen mit den berechneten (gestrichelte Linie) auch im Detail überein. Zur Berechnung wurden die Strukturparameter aus Tabelle 7.2 verwendet.

ausgeprägt mit steigender Bedeckung. Ein prinzipieller Trend ist dabei eine Verschiebung der Maxima zu größeren Energien. Diese Verschiebung ist für eine Änderung des Interlagenabstands charakteristisch. Die Spektren des 2,6 und 5,2 ML Films weichen erheblich von den Spektren bei großer Schichtdicke (16 ML) ab. Dies erkennt man daran, daß sie Minima bei den Energien aufweisen, bei denen die Intensität des 16 ML Films maximal ist. Die Spektren des 7,9 und 16 ML Films sind sich schon erheblich ähnlicher. Dies bedeutet, daß sich die Struktur der Filme in Abhängigkeit der Schichtdicke zwischen 2 und 8 ML wesentlich ändert; oberhalb ca. 11 ML weicht sie jedoch nur noch wenig von der bei größerer Schichtdicke ab. Denkbar ist, daß in einem zwi-

schen ca. 7 und 11 ML liegendem Bereich die Spektren durch eine Überlagerung der verschiedenen strukturellen Phasen gekennzeichnet sind. Ein Indiz dafür ist, daß die Intensität der Spektren eines 7,9 ML Films (Abb. 7.3) sowohl an den Positionen des 16 ML Films als auch bei kleinerer Energie maximal ist. Eine quantitative Analyse in diesem Bereich ist deshalb ohne Kenntnis der Struktur bei sehr kleiner und sehr großer Schichtdicke nicht möglich. Eine volldynamische Berechnung der Reflexintensitäten sehr kleiner Schichtdicken ist aufgrund eines Anteils des Cu_3Au -Substrats nicht durchführbar, solange nicht die Spektren des Substrats mit ausreichender Genauigkeit berechnet werden können. Die strukturelle Analyse beschränkte sich daher zunächst nur auf große Schichtdicken. Volldynamische Berechnungen der $I(E)$ -Spektren eines 16 ML Films wurden mit dem Programm von Moritz [124] von M. Wuttig in Zusammenarbeit mit Y. Gauthier (Laboratoire de Cristallographie, associe du CNRS, BP166X, Grenoble Cedex) durchgeführt. Für die Berechnung wurde eine Debye-Temperatur von 440 K für das Volumen und 220 K für die erste Lage verwendet und der Tilt zu $(1,15 \pm 0,2)^\circ$ bestimmt. Die Interlagenabstände wurden zunächst in Schritten von $0,1 \text{ \AA}$ zwischen $1,5$ und $2,1 \text{ \AA}$ variiert. Die ersten zwei Interlagenabstände an der Oberfläche d_{12} , d_{23} und der Interlagenabstand im Volumen d_b wurden bei festem lateralen Abstand der (010)-Ebenen a zur Optimierung der Modellstruktur verändert.

Zunächst wurde angenommen, daß das Mn pseudomorph auf dem Substrat aufwächst. Zur genauen Analyse wurden die Strukturparameter in kleinen Schritten von $0,01 \text{ \AA}$ geändert. Schließlich wurde auch der laterale Abstand der (010)-Ebenen a variiert. Tab. 7.2 zeigt die optimierten Strukturparameter des Modells für zwei verschiedene R-Faktoren. Die Unterschiede der optimierten Strukturmodelle für die R-Faktoren sind

$d_{12} (\text{\AA})$	$d_{23} (\text{\AA})$	$d_b (\text{\AA})$	$a (\text{\AA})$	R-Faktor
1,875	1,77	1,77	1,875	0,10 (R_P)
1,875	1,77	1,77	1,872	0,18 (R_{DE})

Tab. 7.2: Optimierte Strukturparameter von Manganfilmen mit großer Schichtdicke (16 ML)

Erkennbar an den kleinen Werten für die R-Faktoren wird eine sehr gute Übereinstimmung zwischen berechneten und experimentellen Kurven erreicht. Für die verschiedenen R-Faktoren werden konsistente Ergebnisse erzielt.

gering und die Werte der Minima der R-Faktoren sehr klein. Dies zeigt eine sehr gute Übereinstimmung zwischen berechneten und gemessenen Spektren. Diese Übereinstimmung wird durch den Vergleich der mit den Strukturparametern der Tabelle 7.2 berechneten $I(E)$ -Spektren mit den experimentell gemessenen Kurven (Abb. 7.4) deutlich. Sowohl die Position als auch die Höhe der Maxima werden für alle Reflexe sehr gut beschrieben. Dies gilt auch für Details der experimentellen Spektren. In Abb. 7.5

ist die Abhängigkeit des R_{DE} - und des Pendry-R-Faktors von der Variation der Interlagenabstände und des lateralen Abstands dargestellt. Die Abbildung zeigt tiefe, gut definierte Minima der R-Faktoren auf einer kleinen Skala der Variation, die eine präzise Bestimmung der entsprechenden interatomaren Abstände zuläßt.

Der Abstand der (001)-Ebenen $(1,875 \pm 0,015)$ Å weicht nur um 0,1 % von dem des Substrates ab. Damit ist eindeutig bewiesen, daß das Mn auch bei großer Schichtdicke pseudomorph aufwächst. Das c/a-Verhältnis im Volumen des Films beträgt $1,34 \pm 0,02$, was einer tetragonalen Verzerrung der Phase um -5,2 % von einer idealen kfz Struktur entspricht. Das atomare Volumen des Films beträgt $(12,45 \pm 0,3)$ Å³. Der erste Interlagenabstand ist im Vergleich zum Volumen um 6,2 % bzw. 0,11 Å auf $(1,88 \pm 0,015)$ Å expandiert. An der Oberfläche des Films beträgt das atomare Volumen lokal $(13,22 \pm 0,2)$ Å³ und das c/a-Verhältnis $1,42 \pm 0,02$.

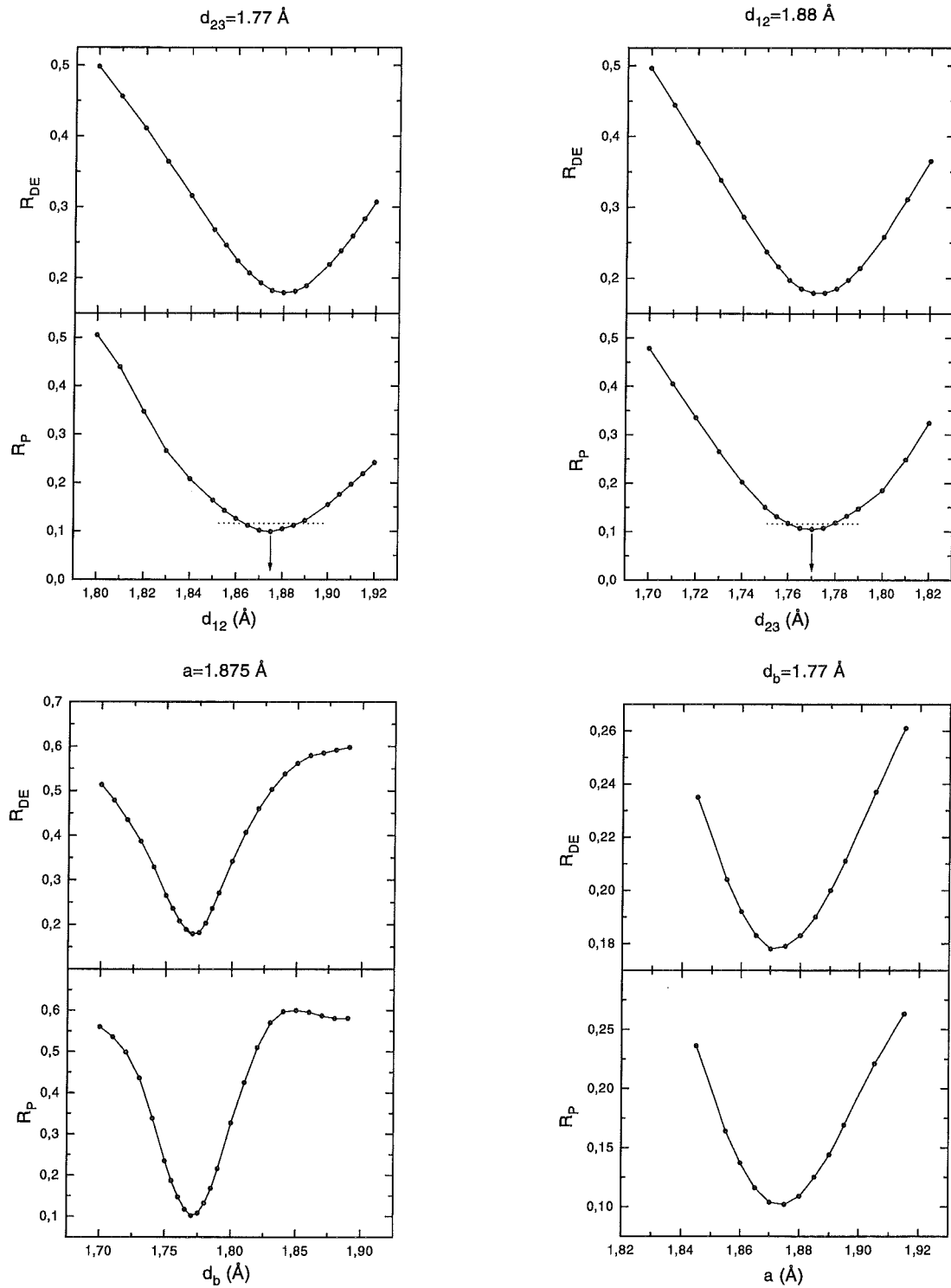


Abb. 7.5: Einfluß der Variation der Strukturparameter auf die R-Faktoren

Links oben: Variation des ersten Interlagenabstands d_{12} bei festem Abstand zwischen der zweiten und dritten Lage d_{23} , rechts oben: Änderung von d_{23} bei festem d_{12} , links unten: Variation von d_b bei festem a , rechts unten: Änderungen des lateralen Abstands der (001)-Ebenen a bei festem d_b . Für den ersten und zweiten Interlagenabstand ist die Genauigkeit der Parameterbestimmung durch die horizontale, gestrichelte Linie angegeben.

7.3 Diskussion struktureller und morphologischer Eigenschaften

Mangan wächst bei 173 K bis etwa 8 ML im lagenweisen Modus auf. Bei niedrigerer Depositionstemperatur wird ein dreidimensionales Wachstum gefunden. Bei 300 K zeigen die MEED-Kurven (Abb. 7.1) bis zum Abbruch der Deposition MEED-Oszillationen, die charakteristisch für ein lagenweises Wachstum mit oszillierender Stufendichte sind. Im untersuchten Schichtdickenbereich (0 bis 25 ML) wächst das Mangan pseudomorph auf dem $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ -Substrat auf. Oberhalb ca. 11 ML wachsen die Filme in der kubisch-flächenzentrierten Modifikation des Mangans. Das auffälligste Merkmal der Struktur ist eine tetragonale Verzerrung des Films um 5,2 % senkrecht zur Filmoberfläche. Sie resultiert aus der SSDW-Spinstruktur der antiferromagnetischen kfz Phase (Abb. 2.9). Innerhalb der (100)-Ebenen sind die Spins der Atome parallel gekoppelt, zwischen den (100)-Ebenen antiparallel. Gleich orientierte Spins der antiparallelen Kopplung sind energetisch durch die Austauschspaltung getrennt, innerhalb der (100)-Ebenen besetzen die Spins benachbarter Atome mit paralleler Orientierung die gleichen Zustände (Abb. 2.10). Als Folge des Pauliprinzips besteht innerhalb der (100)-Ebene zwischen den parallel gekoppelten Spins eine stärkere Tendenz als senkrecht zur (100)-Ebene zwischen den antiparallel gekoppelten Momenten, den atomaren Abstand zu vergrößern, und das c/a -Verhältnis verringert sich. Für eine SSDW-Spinstruktur erwartet man ein vergrößertes, für eine TSDW-Spinstruktur ein unverändertes c/a -Verhältnis (Tab. 2.3). Aus der strukturellen Analyse folgt, daß der $\underline{m}$ -Vektor der Spindichtewelle senkrecht zur Oberfläche orientiert ist. Durch die Genauigkeit der strukturellen Analyse kann ausgeschlossen werden, daß SSDW-Domänen mit einem $\underline{m}$ -Vektor parallel zur Filmoberfläche vorliegen, da für diesen Fall ein c/a -Verhältnis größer als $\sqrt{2}$ erwartet wird. Mittels der Ergebnisse der strukturellen Analyse läßt sich die Verzerrung der unverspannten AF kfz Phase quantitativ bestimmen. Dazu muß von dem atomaren Volumen der unverspannten kfz Phase ausgegangen werden. Nach den Berechnungen von Asada et al. (Tab. 2.2) beträgt dieses $12,46 \text{ \AA}^3$ ($a=3,68 \text{ \AA}$). Dieser berechnete Wert weicht wenig von dem extrapolierten Wert von Acet et al. [25] ($12,6 \text{ \AA}^3$, $a=3,70 \text{ \AA}$) ab. In beiden Referenzen wurde jedoch kein Wert für die tetragonale Verzerrung angegeben. Mittels Röntgenbeugung an Mn-reichen Legierungen wurden sowohl die Gitterkonstanten als auch das c/a -Verhältnis des unverspannten γ -Mangans bestimmt. Diese betragen $a_0 = (2,67 \pm 0,02) \text{ \AA}$, $c/a=1,33$ ($12,67 \text{ \AA}^3$) für γ -MnCu-Legierungen [292], $a_0 = 2,68 \text{ \AA}$, $c/a=1,36$ ($13,07 \text{ \AA}^3$) für γ -MnPt und $a_0 = 2,68 \text{ \AA}$, $c/a=1,37$ ($12,92 \text{ \AA}^3$) [27] für γ -FeMn Legierungen. Der laterale Abstand der unverspannten, verzerrten Phase des γ -Mn liegt damit zwischen 2,66 und 2,69 $\text{\AA}$. Aus den strukturellen Parametern des 16 ML dicken Mn-Films (Tab. 7.2) kann unter Berücksichtigung der epitaktischen Spannung des Films die laterale Gitterkonstante a_0 der unverspannten γ -Phase in Abhängigkeit der Verzerrung bzw. des c/a -Verhältnisses berechnet werden. Diese

Abhängigkeit ist in Abb. 7.6 dargestellt. Aus der Abbildung ergibt sich für einen la-

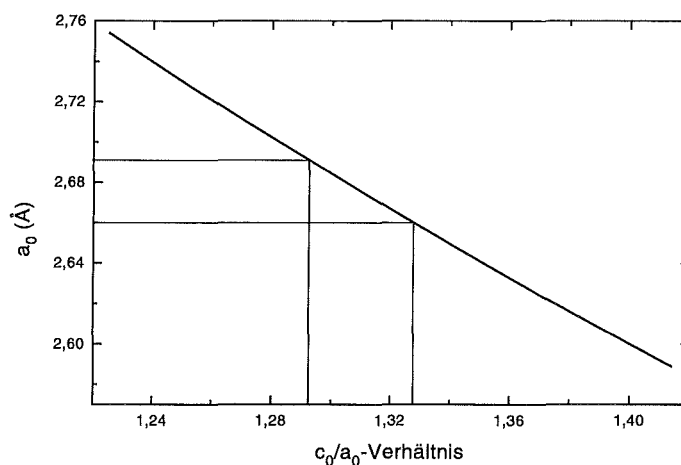


Abb. 7.6: Berechnete Abhängigkeit der lateralen Gitterkonstante a_0 vom c_0/a_0 -Verhältnis für unverspanntes kfz Mn

Zur Berechnung wurden die experimentellen Werte aus Tab. 7.2 und die elastischen Konstanten der PM kfz Phase des Eisens aus Tab. 3.1 verwendet. Für einen lateralen nächsten Nachbarabstands a_0 zwischen 2,66 und 2,69 Å ergibt sich ein c_0/a_0 -Verhältnis zwischen 1,33 und 1,29.

teralen nächsten Nachbarabstand von 2,66 Å ein c_0/a_0 -Verhältnis von 1,33 und für 2,69 Å ein Wert von 1,29. Die Verzerrung der unverspannten γ -Phase des Mangans liegt daher zwischen -6,1 und -8,5 %. Die atomaren Volumina ($12,49 \text{ Å}^3$ bzw. $12,59 \text{ Å}^3$) stimmen gut mit dem extrapolierten Wert von Acet et al. ($12,6 \text{ Å}^3$) [25] überein. Die Verzerrung ist stärker, als in den Mn-reichen Legierungen [27,292] beobachtet wird. Sie liegen innerhalb der berechneten Werte von Oguchi et al. [48] (-10 %) und von Crockford et al. [44,46] (-3,8 %) (Tab. 2.3). Zur Überprüfung der berechneten Werte können die optimierten Strukturparameter mit den Ergebnissen von Tian et al. [282] und Jona et al. [283] an Mn-Filmen auf Pd(100) verglichen werden. Sie deponierten Mn auf einem Pd(100)-Substrat ($a=2,75 \text{ Å}$) bei Raumtemperatur und beobachteten bis 6 ML eine $c(2 \times 2)$ -Überstruktur. Bei ca. 10 ML führten sie an der im LEED beobachteten (1×1) Struktur eine quantitative Analyse von I(E)-Spektren durch, die einen Interlagenabstand von $(1,715 \pm 0,03) \text{ Å}$ im Volumen ($V = 12,97 \text{ Å}^3$, $c/a=1,25$) und einen um 5 % expandierten ersten Interlagenabstand von $(1,805 \pm 0,03) \text{ Å}$ ergab [282,283]. Aus den strukturellen Parametern des verspannten Films wurde unter der Annahme eines c/a -Verhältnisses von 1,33 die laterale Gitterkonstante zu $a_0 = (2,69 \pm 0,02) \text{ Å}$ für das unverspannte γ -Mn berechnet [282,283]. Sowohl diese als auch die Werte aus Tab. 7.2 sind in Abb. 7.7 dargestellt. Zur Berücksichtigung der tetragonalen Verzerrung wurde zunächst die epitaktische Linie und die tetragonale Ebene ausgehend von einem unverzerrten Kristall ($c_0/a_0 = \sqrt{2}$) berechnet. Die berechnete Linie mit den Werten von Jona et al. [282,283] für die unverspannte Phase ($a_0 = 2,69$, $c_0/a_0 = 1,33$) liegt innerhalb der Fehlergrenzen des experimentell gemessenen Wertes der gleichen Autoren (punktierte

Linie und Wert (1) in Abb. 7.7 oben) in der tetragonalen Ebene. Der experimentelle Wert (1) liegt jedoch außerhalb der epitaktischen Linie der gleichen Struktur (Abb. 7.7 unten). Die experimentellen Werte aus Tab. 7.2 liegen unterhalb der berechneten Kurven für $a_0 = 2,69$, $c_0/a_0 = 1,33$. Die unverspannte Phase des kfz Mn muß daher stärker verzerrt sein. Die Kurven (durchgezogene Linien in Abb. 7.7), die aus Abb. 7.6 mit $a_0 = 2,69$ und $c_0/a_0 = 1,29$ berechnet worden sind, liegen bei beiden Diagrammen innerhalb der Fehlergrenzen der experimentellen Werte aus Tab. 7.2 und Ref. [282, 283]. Eine ähnlich gute Übereinstimmung wird auch für $a_0 = 2,66 \text{ \AA}$ und $c_0/a_0 = 1,33$ erzielt. Die Kurven der ferro- bzw. ferrimagnetischen krz Modifikation des Mangans, die mit dem Wert aus Tab. 2.2 berechnet wurde, liegt unterhalb des in Abb. 7.7 dargestellten Bereichs. Auf dem $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ - und dem $\text{Pd}(100)$ -Substrat wird daher diese Phase nicht stabilisiert.

Der erste Interlagenabstand der Manganfilme auf dem $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ -Substrat ist, abweichend vom Volumen, nicht kontrahiert, sondern das c/a -Verhältnis liegt nahe bei $\sqrt{2}$. Ein vergrößertes c/a -Verhältnis und atomares Volumen der Oberflächenlage ($13,65 \text{ \AA}^3$ ($c/a = 1,31$)) ist auch von Tian et al. [282, 283] für Mn-Filme auf einem $\text{Pd}(100)$ -Substrat beobachtet worden.

Diese Vergrößerung des atomaren Volumens an der Oberfläche ist ungewöhnlich, da für die nicht magnetischen Übergangsmetalle eine Kontraktion des ersten Lagenabstandes erwartet wird [203]. Es ist daher sehr wahrscheinlich, daß das Mangan an der Oberfläche in einer anderen Phase vorliegt. Keine geeignete Erklärung ist ein paramagnetischer Zustand der Oberfläche. In diesem Fall müßte das lokale atomare Volumen kleiner als das der antiferromagnetischen Phase sein, wie aus der Extrapolation des atomaren Volumens PM kfz Mangans nach Acet [25] hervorgeht. Als Folge davon müßte der erste Interlagenabstand erheblich kontrahiert sein.

Auszuschließen ist auch eine FM krz Phase an der Oberfläche, da das atomare Volumen dieser Phase kleiner als das der AF Phase ist. Unwahrscheinlich ist auch eine AF krz Phase, da das lokale atomare Volumen und c/a -Verhältnis der Oberflächenlage oberhalb der Kurven in Abb. 7.7 liegt.

Ein möglicher Ansatz ist eine Volumenvergrößerung der Oberflächenatome, die aus der Reduktion der Koordinationszahl an der Oberfläche resultiert. Diese Reduktion führt zu einer Erhöhung des magnetischen Moments an der Oberfläche. Mit der Erhöhung dieses Moments ist eine Vergrößerung des atomaren Volumens verbunden. Unterstützt wird diese These durch Berechnungen von Eriksson et al. [59], die die größte Momentenerhöhung der 3d-Elemente um 58 % für die Oberflächenatome des kfz Mn ergaben. Ein plausiblerer Ansatz ist eine andere Spinstruktur des Films an der Oberfläche. Dazu reicht jedoch eine Expansion von 1,4 % (Tab. 2.3) bei einer DSDW-Spinstruktur nicht aus, um die erhebliche Expansion zu erklären. Eine erhebliche Vergrößerung des atomaren Volumens der kfz Phase kann auch durch eine ferromagnetische Kopplung der ersten und zweiten Lage erreicht werden. Obwohl im Volumen eine solche Struktur

instabil ist (Abb. 2.7), kann an der Oberfläche aufgrund der reduzierten Koordinationszahl möglicherweise diese Phase stabilisiert sein.

Zur Überprüfung des magnetischen Grundzustandes wurden daher die Manganfilme im gesamten Schichtdickenbereich mittels des magnetooptischen Kerr-Effekts in Modulationstechnik und Nullellipsometrie untersucht. In einem Temperaturbereich zwischen 100 und 600 K wurden keine Hinweise auf einen ferromagnetischen Zustand der Oberfläche gefunden. Oberhalb 500 K ändern sich die Eigenschaften der Oberfläche durch die Diffusion der Substratome auf den Film. Sie führt zur $c(2 \times 2)$ -Überstruktur im Beugungsbild (Abb. 7.2 links), so daß eine zuverlässige Aussage nur bis zu dieser Temperatur möglich ist. Im Gegensatz zu den RT-Eisenfilmen auf einem Cu(100)-Einkristall im Bereich II, deren Néel-Temperatur im Volumen des Films gering ist, liegt die Néel-Temperatur der AF kfz Phase bei 670 K [25]. Zur Ummagnetisierung einer hypothetischen ferromagnetischen Oberflächenlage wären demnach große Feldstärken erforderlich, die u.U. mit dem experimentellen Aufbau nicht erreicht werden. Eine Verringerung der notwendigen Feldstärke ist durch eine Messung bei höherer Temperatur möglich. Doch ist auch in diesem Fall das Einsetzen der Diffusion unterhalb der Néel-Temperatur ein begrenzender Faktor, so daß sich auch der AF Zustand der Mn-Filme nicht nachweisen läßt.

Die Diffusion der Substratome zur Filmoberfläche erfolgt über Defekte im Volumen des Films, die von der Grenzfläche Substrat/Adsorbat bis zur Oberfläche reichen. Bei kleinen Schichtdicken segregieren die Substratome bereits während der Deposition bei 300 K auf die Filmoberfläche. Zur Vermeidung dieser Segregation müssen tiefe Depositionstemperaturen gewählt werden; die Anlaßtemperatur sollte 300 K nicht überschreiten.

Im Submonolagenbereich wird keine quasihexagonale Struktur gefunden, wie aus Experimenten an Manganfilmen auf Ni(100) [278] und Cu(100) [63, 277] erwartet werden könnte. Statt dessen wird im Bereich weniger Monolagen eine kubische Phase des Mangans stabilisiert, deren atomares Volumen und c/a -Verhältnis sich von dem der antiferromagnetischen kfz Phase unterscheidet. Dies geht aus den unterschiedlichen Spektren bei kleiner und großer Schichtdicke hervor (Abb. 7.3). Erkennbar an der Änderung der energetischen Position der Intensitätsmaxima ordnet sich diese Struktur bis ca. 11 ML um. Der strukturelle Übergang führt zu einem Maximum der mittleren Intensität der MEED-Kurven zwischen 6 und 8 ML und einer Änderung der Streifenrichtung im LEED-Bild von der kfz[011]- in die kfz[001]-Richtung. Die kreuzförmige Verbreiterung der Reflexe bei großer Schichtdicke resultiert möglicherweise aus der Bildung langgestreckter Domänen, die um 90° gegeneinander gedreht sind. Die strukturelle Umordnung führt wahrscheinlich zur Bildung der Defekte im Film, die das Diffusionsverhalten bei großen Schichtdicken beeinflussen.

Die Bildung der Defekte im Volumen des Films kann auch mit der tetragonalen Verzerrung aufgrund der SSDW-Spinstruktur zusammenhängen. Diese Verzerrung erfolgt

in einem martensitischen Übergang [25] erst unterhalb der Néel-Temperatur. Die Néel-Temperatur steigt mit wachsender Schichtdicke des Films an. Deshalb ist nicht auszuschließen, daß das Mn bei geringer Schichtdicke in der paramagnetischen kfz Phase auf dem Cu_3Au -Substrat aufwächst. Bei einer kritischen Schichtdicke erreicht die Néel-Temperatur die Depositionstemperatur und es findet eine Phasenänderung von der PM kfz zur AF kfz Phase statt. Nach den Ergebnissen von Acet et al. [25] wird eine Verzerrung des γ -Mangans unterhalb der Néel-Temperatur bei 540 K erwartet, so daß ein Phasenübergang von einer unverzerrten AF kfz zur verzerrten AF kfz Mn Phase wahrscheinlich ist. Diese Änderung ist durch eine erhebliche Vergrößerung des atomaren Volumens und eine Änderung des c/a -Verhältnisses gekennzeichnet und kann daher ebenfalls zur Bildung von Defekten führen.

Ein Vergleich der atomaren Volumina und der c/a -Verhältnisse anderer Arbeitsgruppen mit der tetragonalen Ebene und der epitaktischen Linie kann zur Ermittlung der strukturellen und magnetischen Phase des Mn bei anderen Substratgitterkonstanten beitragen. Dazu sind die Ergebnisse der strukturellen Analyse der Mn-Filme auf Ag(100) von Jonker et al. [285, 286] in Abb. 7.7 (Wert (2)) eingetragen. Mit größer werdender Substratgitterkonstante ist nach den Berechnungen in Abb. 3.2 zwischen 2,78 und 2,90 Å die FM krz Struktur energetisch bevorzugt. Das Ag(100)-Substrat ($a=2,89$ Å) liegt damit an der Grenze zwischen der Stabilisierung der FM und AF krz Phase. Da die Kurven für die FM krz Phase unterhalb des in Abb. 7.7 dargestellten Bereichs liegen, ist es unwahrscheinlich, daß diese Phase auf dem Ag(100)-Substrat stabilisiert wird. Es ergibt sich jedoch eine ausreichende Übereinstimmung für die AF krz Phase (gestrichelte Linie).

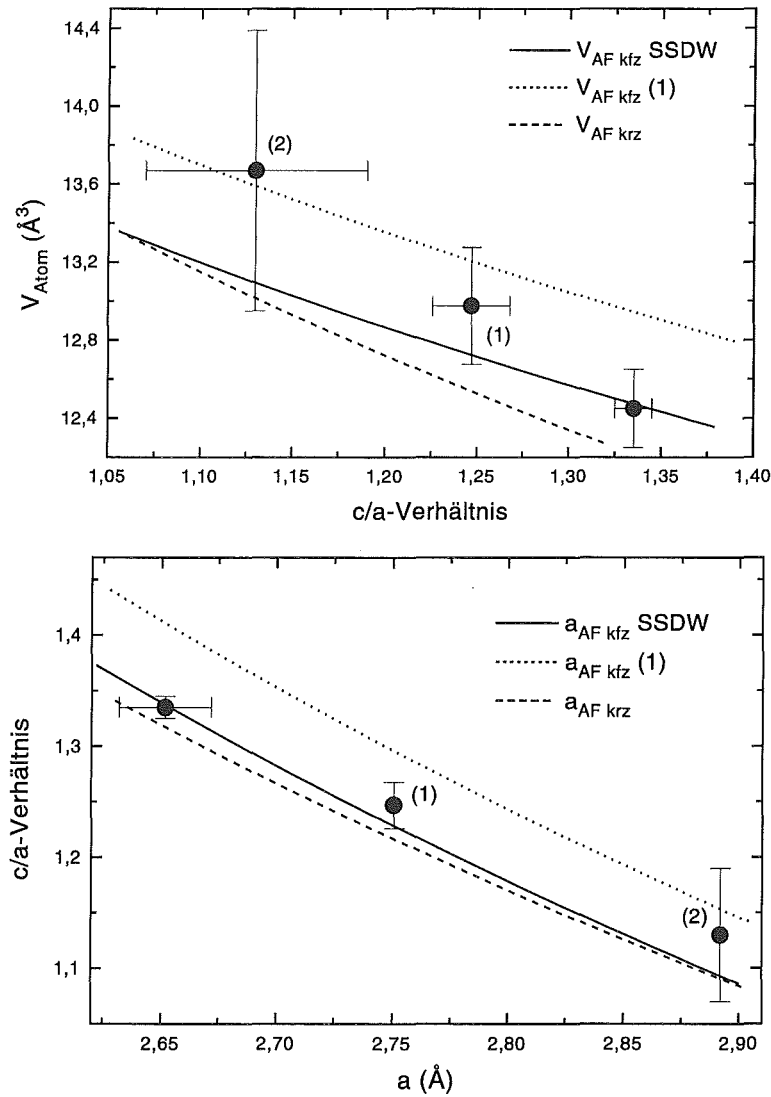


Abb. 7.7: Vergleich zwischen experimentellen und berechneten Werten der magnetischen und strukturellen Phasen des kfcz Mangans

Tetragonale Ebene und epitaktische Linie für verschiedene Phasen pseudomorpher Manganfilme. Die Kurven wurden für die krz Phase mit den elastischen Konstanten des PM krz Eisens und die kfcz Phase mit den elastischen Konstanten des PM kfcz Eisens berechnet (Tab. 3.1). Die punktierte Linie wurde mit den Werten von Jona et al. [282, 283] ($a_0 = 2,69$, $c_0/a_0 = 1,33$) berechnet, die durchgezogene Linie für einen aus Abb. 7.6 bestimmten Wert ($a_0 = 2,69$, $c_0/a_0 = 1,29$) berechnet. Die gestichelte Linie wurde aus Tab. 2.2 für die AF krz Phase berechnet. Zum Vergleich sind die Ergebnisse aus Experimenten nach Tab. 7.2 und an 10 ML Mn auf Pd(100) [282, 283] (1) sowie an Mn-Filmen auf Ag(100) [285, 286] (2) eingetragen.

Kapitel 8

Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit war es, die Wechselbeziehung zwischen Magnetismus, Struktur und Morphologie ultradünner Filme auf einkristallinen Substraten aufzuzeigen. Von besonderem Interesse ist die Stabilisierung metastabiler Hochtemperaturphasen durch die Wahl eines geeigneten Substrats bei Raumtemperatur. Dazu wurden Eisen und Mangan als Elemente mit einer ausgeprägten Vielfalt an magnetischen und strukturellen Phasen (Allotropie) ausgewählt und auf einem Cu(100)- bzw. Cu₃Au(100)-Substrat deponiert.

Eisen wächst in zwei kfz und der krz Phase in Abhängigkeit der Depositionstemperatur auf dem Cu(100)-Substrat auf (Abb. 8.1). Unterhalb ca. 4,5 ML wächst Fe unabhängig von der Depositionstemperatur in der FM kfz Phase auf dem Substrat (Bereich I und A). In diesem Schichtdickenbereich ist die Magnetisierung senkrecht zur Oberfläche orientiert. Das atomare Volumen dieser Phase ($12,19 \text{ \AA}^3$) ist in Übereinstimmung mit theoretischen Berechnungen gegenüber der krz Phase ($11,82 \text{ \AA}^3$) und der AF kfz Phase ($11,5 \text{ \AA}^3$) expandiert. Alle Lagen der FM kfz Phase sind in Form einer sinusförmigen Verscherung nebeneinander liegender, atomarer Reihen in die kfz[011]-Richtung in der Ebene und in Form einer Korrugation senkrecht zu den Ebenen rekonstruiert. Dieses Rekonstruktionsmuster ist Kennzeichen für eine strukturelle Instabilität der FM kfz Phase des Eisens gegen Verscherungen in die kfz[011]-Richtung. Oberhalb 4,5 ML (II) verringert sich bei den RT-Filmen die Amplitude der Korrugation, die Verscherung in der Ebene sowie der Interlagenabstand im Volumen des Films. Das kleinere atomare Volumen stimmt mit dem der AF kfz Phase des Eisens überein. An der Oberfläche wird lokal die FM kfz Phase stabilisiert. Die plausible Ursache dafür ist die reduzierte Koordinationszahl, die zu einer Momenterhöhung führt. Diese Momenterhöhung verursacht aufgrund der Moment-Volumen-Instabilität des kfz Eisens den expandierten Interlagenabstand. Das polare Kerr-Signal bleibt in diesem Bereich konstant. Oberhalb 10 ML findet ein martensitischer Phasenübergang zur krz(110)-Phase statt, der durch eine kollektive Verscherung einer großen Anzahl an Atomen in die kfz[011] Richtung bei gleichzeitiger Expansion des Interlagenabstands gekennzeichnet ist. Als direkte Konsequenz dieser Umwandlung reorientiert sich die Magnetisierungsrichtung in die Filmebene und der Film ist wieder homogen magnetisiert. Mit dem strukturellen Über-

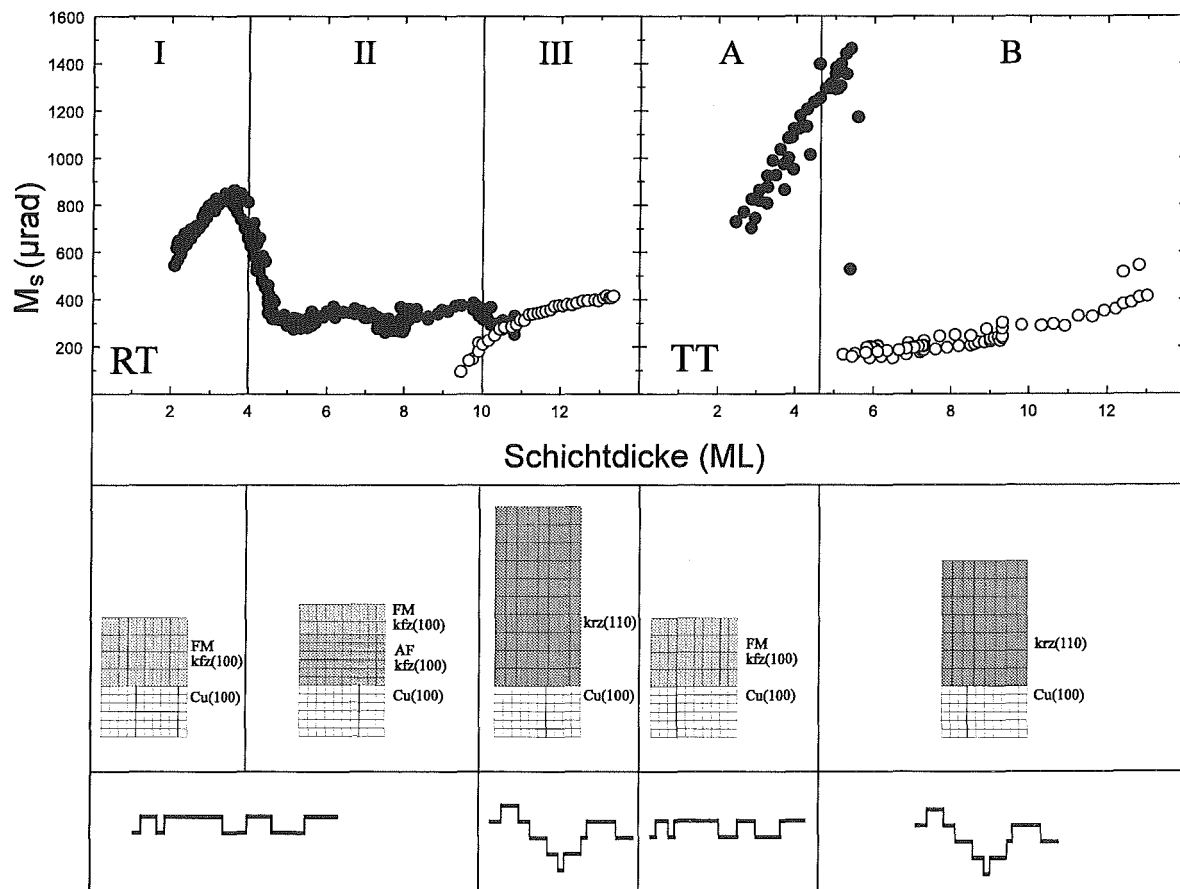


Abb. 8.1: Korrelation der magnetischen, strukturellen und morphologischen Eigenschaften der Eisenfilme auf Cu(100)

Links: RT-Filme, rechts: TT-Filme.

Oben: Sättigungsmagnetisierung in polarer (gefüllte Symbole) und longitudinaler Geometrie (offene Symbole).

Mitte: Struktur.

Unten: Morphologie.

gang ändert sich bei Raumtemperatur das Wachstum von einem lagenweisen zu einem dreidimensionalen Wachstumsmodus, der für die krz(110) Phase typisch ist.

Bei den Eisenfilmen, die bei tiefer Temperatur deponiert wurden, vergrößern sich die Scheramplitude in der Ebene und der Interlagenabstand, und die FM kfc Phase ordnet sich direkt in die krz(110) Phase um. Im Vergleich zu den RT-Filmen ist diese Phase jedoch aufgrund des Rekonstruktionsmusters der FM kfc-Phase auf einer kürzeren Reichweite geordnet. Die strukturelle Umordnung zum krz(110) Fe führt zu einer Änderung der Magnetisierungsrichtung in die Filmebene. Die Suche nach einer Erklärung für die Stabilisierung der AF kfc Phase bei den RT-Filmen und den direkten Übergang von der FM kfc Phase in die krz Phase bei den TT-Filmen bietet sich als Gegenstand für zukünftige Untersuchungen an. Möglicherweise führt eine Interdiffusion von Cu- und

Fe-Atomen bei 300 K zu einer Verringerung der magnetischen Grenzflächenanisotropie an der Fe/Substrat-Grenzfläche, die die Stabilisierung der AF k_{rz} Phase bei weiterer Deposition begünstigt, während bei 100 K eine größere Grenzflächenanisotropie an der Fe/Substrat Grenzfläche zum Übergang zur FM k_{rz} Phase führt.

Bei einer Vergrößerung der Substratgitterkonstanten auf 3,745 Å (Cu₃Au(100)) kann die FM k_{rz} Phase nicht mehr auf dem Substrat stabilisiert werden (Abb. 8.2). Statt

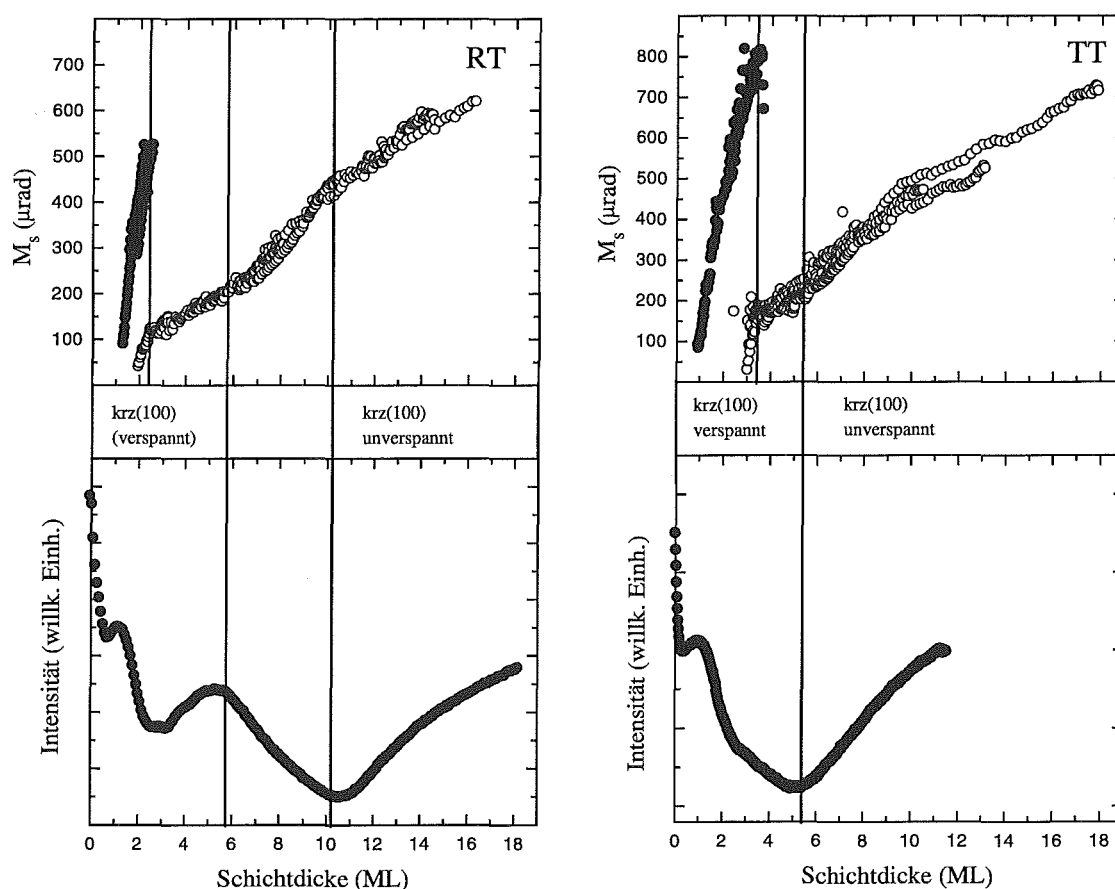


Abb. 8.2: Korrelation der magnetischen, strukturellen und morphologischen Eigenschaften ultradünner Eisenfilme auf Cu₃Au(100)

Links: RT-Filme, rechts: TT-Filme.

Oben: Sättigungsmagnetisierung in polarer (gefüllte Symbole) und longitudinaler Geometrie (offene Symbole), Mitte: Struktur, unten: MEED Wachstumskurve des (0,0)-Reflexes

dessen wächst das Fe bis etwa 5,5 ML in der k_{rz}(100)-Struktur verspannt auf dem Cu₃Au(100)-Substrat auf. Bei einer Depositionstemperatur von 300 K wird bis zu dieser Schichtdicke ein dem lagenweisen Wachstum ähnlicher Modus gefunden. Die

magnetokristalline Grenzflächenanisotropie und die magnetoelastische Energie des verspannten krz Eisens führen bei kleiner Schichtdicke zu einer Bevorzugung der senkrechten Magnetisierung bis zur Curie-Temperatur. Aufgrund der Interdiffusion von Fe und Substratatom an der Fe/Substrat-Grenzfläche wird der Beitrag dieser Grenzfläche zur magnetokristallinen Grenzflächenanisotropie verringert. Als Folge davon reduziert sich die kritische Schichtdicke für den Reorientierungsübergang von 3,2 ML bei den TT-Filmen auf 2,3 ML bei den RT-Filmen. Oberhalb 5,5 ML bildet sich die unverspannte krz(100)-Phase des Eisens auf dem Substrat. Die Umordnung ist durch die Bildung von Facetten und/oder Mosaikkristallen gekennzeichnet und erstreckt sich bei den RT-Filmen auf einen Bereich zwischen 6 und 11 ML und bei den TT-Filmen auf einen kleineren Schichtdickenbereich. Die strukturelle Umwandlung führt zwischen 6 und 11 ML bei den RT-Filmen zu einem Abfall der MEED-Intensität des (0,0)-Reflexes und zur Änderung des Gradienten der longitudinalen Kerr-Elliptizität. Bei weiterer Deposition verringert sich die Defektdichte im Film und das Fe wächst bei 300 K in einem dreidimensionalen Wachstumsmodus auf dem krz(100)-Fe auf.

Für alle Substrate mit größerer Gitterkonstanten ist zu erwarten, daß das Fe in der krz(100) Phase stabilisiert wird.

Mangan wächst im gesamten untersuchten Schichtdickenbereich (bis 25 ML) pseudomorph auf dem $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ -Kristall auf. Eine quasi hexagonale Anordnung wie auf dem Cu(100)- oder Ni(100)-Substrat wird im Monolagenbereich nicht beobachtet. Oberhalb 170 K wird ein lagenweises Wachstum des Mangans gefunden. Zur Vermeidung der Segregation und der Interdiffusion muß Mn bei tiefer Temperatur deponiert werden und die Anlaßtemperatur darf 300 K nicht übersteigen.

Bei großer Schichtdicke (16 ML) wird die AF kfz Phase des Mn auf dem Substrat stabilisiert. Aufgrund einer antiferromagnetischen Spinstruktur mit $\underline{m}=(1,0,0)$ ist das c/a-Verhältnis um 5,2 % reduziert. Eine Berechnung für die unverspannte Phase des AF kfz Mn ergibt für einen lateralen nächsten Nachbarabstand zwischen 2,66 und 2,69 Å ein c/a-Verhältnis, das zwischen 1,33 und 1,29 liegt. Der erste Interlagenabstand und damit auch das lokale atomare Volumen und das c/a-Verhältnis sind an der Oberfläche erheblich größer als im Volumen des Films. Eine mögliche Ursache dafür ist eine ferromagnetische Kopplung zwischen den ersten beiden Lagen. Diese Kopplung hat wahrscheinlich eine Vergrößerung des atomaren Volumens an der Oberfläche zur Folge.

Während des Wachstums bilden sich im Film Defekte, die von der Grenzfläche Substrat/Adsorbat bis zur Filmoberfläche reichen. Sie führen bereits bei einer Anlaßtemperatur von 510 K zur Diffusion von Substratatom an der Filmoberfläche und zur Bildung einer geordneten $c(2 \times 2)$ -Legierung auf der Filmoberfläche. Ursache für die Bildung der Defekte ist eine strukturelle Änderung des Films, die bei einer Depositionstemperatur von 170 K auf den Bereich unterhalb ca. 11 ML beschränkt ist. Da der Film

pseudomorph aufwächst, ist diese Änderung im wesentlichen durch eine Änderung des c/a -Verhältnisses gekennzeichnet. Möglicherweise führt eine martensitische Transformation von der kubischen zur tetragonalen Phase mit einem vergrößerten atomaren Volumen zur Bildung von Defekten. Die Verzerrung des Films tritt vermutlich bei zunehmender Bedeckung ein, wenn die Néel-Temperatur bzw. die Temperatur, die zur tetragonalen Verzerrung führt, die Depositionstemperatur erreicht.

Alle drei epitaktischen Systeme zeigen eine enge Korrelation der magnetischen, strukturellen und morphologischen Eigenschaften. Die kfz Hochtemperaturphasen des Mangans und des Eisens lassen sich durch pseudomorphes Wachstum bei einer geeigneten Wahl der Substratgitterkonstante auf Einkristallen stabilisieren. Der Bereich der Substratgitterkonstanten und der Schichtdicke, innerhalb derer diese Phasen aufwachsen, ist von der Stabilität der Hochtemperaturphasen bei Raumtemperatur gegen Deformationen abhängig. Für zukünftige Experimente bietet sich an, durch eine Variation der Gitterkonstante die Eigenschaften der Hochtemperaturphasen in Abhängigkeit der epitaktischen Spannung im Film zu untersuchen. Durch die Wahl des Substratmaterials können die Eigenschaften der Adsorbat/Substrat-Grenzfläche modifiziert werden. Eine weitere Möglichkeit, die Eigenschaften der Hochtemperaturphasen bei Raumtemperatur zu untersuchen, bietet sich durch die Deposition von Legierungsfilmen an.

Literaturverzeichnis

- [1] Fischer, K.H. Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen. Vorlesungsmanuskripte, IFF Ferienkurs, 1993.
- [2] Nolting, W. *Quantentheorie des Magnetismus 1*. ISBN 3-519-03084-5. Teubner Studienbücher Physik, 1986.
- [3] Pettifor, D.G. *Metallurgical Chemistry*. Her Majesty's Stationary Office, London, 1972.
- [4] Zeller, R. Bandmagnetismus I. Vorlesungsmanuskripte, IFF-Ferienkurs: Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen, Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [5] Hohenberg, P.C.; Kohn, W. *Physical Review*, 136:B 864, 1964.
- [6] Fawcett, E. Spin-density-wave antiferromagnetism in Chromium. *Reviews of Modern Physics*, 60(1):209–283, 1988.
- [7] Cracknell. *Landolt-Börnstein*, Band III 13c, Kapitel 5.3, Seite 139–159. Elsevier Science Publishers B.V., 1989.
- [8] Cracknell. *Landolt-Börnstein*, Band III 19a, Kapitel 1.1.2, Seite 33–141. Elsevier Science Publishers B.V., 1989.
- [9] Blügel, S. Bandmagnetismus II. Vorlesungsmanuskripte, IFF-Ferienkurs: Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen, Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [10] Wassermann, E.F. Invar-Legierungen. Vorlesungsmanuskripte, IFF-Ferienkurs: Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen, Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [11] Abrahams, S.C.; Guttman, L.; Kasper, J.S. *Physical Review*, 127:2052, 1962.
- [12] Gonser, U.; Meehan, C.J.; Muir, A.H., Wiedersich. *Journal of Applied Physics*, 34:2373, 1963.
- [13] Johanson, G.J.; McGirr, M.B.; Wheeler, D.A. *Phys. Rev. B*, 1:3208, 1970.
- [14] Williamson, D.L.; Keune, W.; Gonser, U. Band 1(2) der *Proceed. Intern. Conf. on Magnetism, Moscow 1973*, Seite 246. Publishing House Nauka, Moscow, 1974.
- [15] Ezawa, T.; Macedo, W.A.A.; Glos, U.; Keune, W.; Schletz, K.P.; Kirschbaum, U. Magneto-Volume Effects Of γ -Fe Precipitates in Cu and CuAl Matrices. *Physica B*, 161:281–284, 1989.

- [16] Keune, W.; Ezawa, T.; Macedo, W.A.A.; Glos, U.; Kirschbaum, U. Magneto-Volume Effects In γ -Fe Ultrathin Films And Small Particles. *Physica B*, 161:269–275, 1989.
- [17] Gradmann, U. *Magnetism In Ultrathin Transition Metal Films*, Band 7, Kapitel 1, Seite 74–96. Elsevier Science Publishers B.V., 1993.
- [18] Knappwost, A. *Z. Phys. Chem.*, 12:30, 1957.
- [19] Newkirk, J.B. *Trans. AIME*, 209:1214, 1957.
- [20] Murayama, H. *J. Phys. Soc. Jpn.*, 55:2834, 1986.
- [21] Jona, F.; Marcus, P.M. *Surface Physics and Related Topics*, Kapitel LEED and Epitaxy, Seite 213–239. World Scientific, 1991.
- [22] Berghout, C. *Z. Metallkunde*, 52:179, 1961.
- [23] Window, B. *Philos. Mag.*, 26:681, 1942.
- [24] Ebert, H. Theorie ferromagnetischer Legierungen. Vorlesungsmanuskripte, IFF-Ferienkurs: Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen, Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [25] Acet, M.; Zahres, H.; Stamm, W.; Wassermann, E.F.; Pepperhoff, W. The study of the thermal properties of γ -Mn from Mn-Cu alloy. *Physica B*, 61:67–71, 1989.
- [26] Acet, M.; Stamm, W.; Wassermann, E.F.; Zahres, H.; Pepperhoff, W. In *Journal of Applied Physics*, Band 67 der *Thirty-Fourth Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials*, Seite 5303, 1990.
- [27] Endoh, Y; Ishikawa, Y. Antiferromagnetism of γ Iron Manganes Alloys. *Journal of the Physical Society of Japan*, 30:1614, 1971.
- [28] Ellis, W.C. and Greiner, E.S. *Trans. Am. Soc. Met.*, 29:415, 1941.
- [29] Prinz, G.A. Metastability in epitaxial magnetic metal films. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 100:469–480, 1991.
- [30] Weiss, R.J. *Proc. Phys. Soc.*, 82:281, 1963.
- [31] Guillaume, Ch.E. *C.R. Acad. Sci.*, 125:235, 1897.
- [32] Kaufmann, L.; Clougherty, E.V. and Weiss, R.J. *Acta Met.*, 11:323, 1963.
- [33] Wassermann, E.F.; Usadel, K. . *International Symposium on Magnetoelasticity and Electronic Structure of Transition Metals, Alloys and Films*, Band 61 der *Physica B*, 1989.
- [34] Andersen, O.K.; Madsen, J.; Poulsen, U.K., Jepsen, O.; Koller, J. *Physica B*, 86-88:249, 1977.

- [35] Moruzzi, V.L.; Marcus, P.M.; Schwarz, K.; Mohn, P. *Phys. Rev. B.*, 34:1784, 1986.
- [36] Moruzzi, V.L.; Marcus, P.M.; Kübler, J. Magnetovolume instabilities and ferromagnetism versus antiferromagnetism in bulk FCC iron and manganese. *Physical Review B*, 39 pt B(10):6957–61, 1989.
- [37] Moruzzi, V.L.; Marcus, P.M. Constrained Total-Energy Calculations: Ferrimagnetism and antiferromagnetism in b.c.c. manganese. *Solid State Communications*, 71(3):203–206, 1989.
- [38] Asada, T.; Terakura, K. Generalized-gradient-approximation study of the magnetic and cohesive properties of bcc, fcc and hcp Mn. *Physical Review B*, 47(23):15992, 1993.
- [39] Perdew, J.P.; Wang Y. *Physical Review B*, 33:8800, 1986.
- [40] Asada, T.; Terakura, K. private Mitteilung.
- [41] Asada, T.; Terakura, T. GGA study of the cohesive properties of 3d transition metals. Elsevier Publisher B.V., 1993.
- [42] Asada, T.; Terakura, T. Erratum: Cohesive properties of iron obtained by use of the generalized gradient approximation. *Physical Review B*, 48(23):17649, 1993.
- [43] Asada, T.; Terakura, T. Cohesive properties of iron obtained by use of the generalized gradient approximation. *Physical Review B*, 46(20):13599–602, 1992.
- [44] Crockford, D.J.; Bird, D.M.; Long, M.W. Band structure of non collinear magnets in γ -Mn and γ -Fe. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 3:8665–8682, 1991.
- [45] Long, M.W.; Yeung, W. *J. Phys. F.: Met. Phys.*, 18:469, 1986.
- [46] Crockford, D.J.; Bird, D.M.; Long, M.W. Axial pressures of non-collinear magnets in γ -Mn and γ -Fe. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 4(8):2079–86, 1992.
- [47] Tsunoda, Y.; Kunitomi, N.; Nicklow, R.M. *J. Phys. F.: Met. Phys.*, 17:2447, 1987.
- [48] Oguchi, T.; Freeman, A.J. Magnetically induced tetragonal lattice distortion in antiferromagnetic fcc Mn. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 46:L1–L4, 1984.
- [49] Hicks, T.J.; Pepper, A.R.; Smith, J.H. *J. Phys. C*, 1:1683, 1968.
- [50] Megeghetti, D.; Sidhu, S.S. *Phys. Rev.*, 105:130, 1957.
- [51] Cowlam, N.; Bacon, G.E.; Gillott, L. *J. Phys. F.: Met. Phys.*, 7:L315, 1957.
- [52] Smith, J.H.; Vance, E.R. *J. Phys. C.: Solid State Phys.*, 2:761, 1969.
- [53] Honda, N.; Tanji, Y.; Nekagawa, Y. *J. Phys. Soc. Jpn*, 41:1931, 1976.
- [54] Tsunoda, Y. Spin-density wave in cubic γ -Fe and γ -Fe_{100-x}Co_x. *J. Phys.: Condens. Matter*, 1:10427–38, 1989.

- [55] Uhl, M. Sandratski, L.M.; Kübler, J. Electronic and magnetic states of γ -Fe. *J. Magn. Magn. Mat.*, 103:314–324, 1992.
- [56] Cracknell. *Landolt-Börnstein*, Band III 24b, Kapitel 5.2.3.2, Seite 511. Elsevier Science Publishers B.V., 1989.
- [57] Liebermann, L.N.; Clinton, J.; Edwards, P.M; Mathon, J. *Physical Review Letters*, 25:232, 1979.
- [58] Blügel, S. Magnetische Wechselwirkung II. Vorlesungsmanuskripte, IFF-Ferienkurs: Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen, Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [59] Eriksson, O., Boring, A.M.; Albers, R.C.; Fernando, G.W.; Cooper, B.R. Spin and orbital contributions to surface magnetism in 3d elements. *Physical Review B*, 45:2868–75, 1992.
- [60] Freeman, A.J.; Wu, R.Q. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 100:497, 1991.
- [61] Freeman, A.J. Magnetic anisotropy of ferromagnetic Fe and Co thin films. In *Thirty-Fifth IEEE Conference on Magnetism and Magnetic Materials*, Band 69, Seite 5215, 1991.
- [62] Blügel, S. Two-dimensional ferromagnetism of 3d, 4d, and 5d transition metal monolayers on noble metal (001) substrates. *Physical Review Letters*, 68(6):851–4, 1992.
- [63] Flores, T. Struktur und Wachstum ultradünner Manganfilme auf Cu(100) und Ni(100). Diplomarbeit, Forschungszentrum Jülich, 1992.
- [64] Wuttig, M. Tailoring of materials by epitaxial growth. Habilitationsschrift, RWTH-Aachen, 1994.
- [65] Wang, Z.Q.; Li, Y.S.; Lok, C.K.C.; Quinn, J.; Jona, F. *Solid State Communications*, 62:181, 1987.
- [66] Wu, S.C.; Lu, S.H.; Lok, C.K.C.; Quinn, J.; Li, Y.S., Tian, D.; Jona, F. *Physical Review B*, 38:5363, 1988.
- [67] Bruno, P. Physical origins and theoretical models of magnetic anisotropy. Vorlesungsmanuskripte, IFF-Ferienkurs: Magnetismus von Festkörpern und Grenzflächen, Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [68] Néel, L. *J.Phys.Rad.*, 15:225, 1954.
- [69] Bruno, P. Magnetic surface anisotropy of transition metal ultrathin films. *Applied Physics A*, 49:499–506, 1989.
- [70] Bruno, P. *J. Appl. Phys.*, 64:3153, 1988.
- [71] Mills, D.L. The ferromagnetism of ultrathin films; from two to three dimensions. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 100:515–526, 1991.

- [72] Gradmann, U.; Korecki, J.; Waller, G. *Appl. Phys. A*, 39:101, 1986.
- [73] Przybylski, M.; Korecki, J.; Gradmann, U. Magnetism of ultrathin Fe(110) films. *Applied Physics A [Solids and Surfaces]*, A52(1):33–47, 1991.
- [74] Daalderop, G.H.O.; Kelly, P.J.; Schuurmans, M.F.H. *Physical Review B*, 41:11919, 1990.
- [75] de Jonge, W.; Bloemen, P.; Broeder, F. *Ultrathin Magnetic Structures - Experimental Investigations of Magnetic Anisotropy*, Band I, Kapitel 2.3, Seite 65–90. Springer Verlag, Berlin, 1994. ISBN 3-540-57407-7.
- [76] Heinrich, B.; Celinski, Z.; Cochran, J.F.; Arrott, J.S.; Myrtle, K. *J. Appl. Phys.*, 70:5769, 1991.
- [77] Pescia, D.; Pokrovskii, V.L. Antiferromagnetism in face-centered-tetragonal iron. *Physical Review Letters*, 65:2599, 1990.
- [78] Wulfschlegel, W.; Knappmann, S.; Gehring, B.; Oepen, H.P. Temperature-induced magnetic anisotropies in Co/Cu(1 1 17). *Physical Review B*, 50:16074–77, 1994.
- [79] Knappmann, S. Suszeptibilitätsmessungen an ultradünnen, epitaktischen Kobaltfilmen auf einer Cu(1 1 17)-Oberfläche. Diplomarbeit, Forschungszentrum Jülich, 1994.
- [80] Wulfschlegel, W.C.U. Magnetische Eigenschaften von ultradünnen Kobaltfilmen auf einer gestuften Kupferoberfläche. Diplomarbeit, Forschungszentrum Jülich, 1994.
- [81] Bruno, P. *J. Phys. F*, 18:1291, 1988.
- [82] O'Handley, R.C.; S.-W. Sun. Strained layers and magnetoelastic coupling. *J. Magn. Magn. Mat.*, 107:1717–1720, 1992.
- [83] O'Handley, R.C.; Oh-Sung Song; Ballentine, C.A. Determining thin-film magnetoelastic constants. *J. Appl. Phys.*, 74:6302–6307, 1993.
- [84] Nolting, W. *Quantentheorie des Magnetismus 2*. ISBN 3-519-03085-3. Teubner Studienbücher Physik, 1986.
- [85] Mermin; Wagner. *Physical Review Letters*, 17:1133, 1966.
- [86] Politi, P.; Rettori, A.; Pini, M.G.; Pescia, D. Magnetic Phase Diagram of a thin film with a reorientation transition. *Europhysics Letters*, 28(1):71–76, 1994.
- [87] Wu, F.Y. *Rev. Mod. Phys.*, 54:235, 1982.
- [88] Mattis, D.C. *The theory of Magnetism II*. Springer Verlag, Berlin, 1985.
- [89] Yang, C.N. *Physical Review B*, 7:480, 1973.
- [90] Bramwell, S.T.; Holdsworth, P.C.W. *J. Phys. Condens. Matter*, 5:L53, 1993.
- [91] Shang-Ken Ma. *Modern theory of critical phenomena*. Benjamin, New York, 1976.

- [92] Li, Y.; Baberschke, K. Dimensional crossover in ultrathin Ni(111)-films on W(110). *Physical Review Letters*, 68:1208, 1992.
- [93] Faraday, M. *Phil. Trans.*, 136:1, 1846.
- [94] Kerr, J. *Rep. Brit. Ass.*, 5:1, 1876.
- [95] Drude, P. Über Oberflächenschichten. I. Theil. *Annalen der Physik und Chemie*, 36:532–560, 1889.
- [96] Drude, P. Über Oberflächenschichten. II. Theil. *Annalen der Physik und Chemie*, 36:865–897, 1889.
- [97] Grünberg, P. Magnetooptik und magnetooptische Speicher. Vorlesungsmanuskripte, IFF-Ferienkurs: Festkörperforschung für die Informationstechnik, 1990.
- [98] Fumagalli, P. Magnetooptik-Grundlagen und Anwendungen. Vorlesung, RWTH-Aachen, Wintersemester 94/95.
- [99] Oppeneer, P.M.; Maurer, T.; Sticht, J.; Kübler, J. Ab initio calculated magneto-optical Kerr effect of ferromagnetic metals: Fe and Ni. *Physical Review B*, 45(19):10924, 1992.
- [100] Bennett, H.S.; Stern, E.A. *Phys. Rev.*, 137:A448, 1965.
- [101] Cooper, B.R. *Phys. Rev.*, 139:A1504, 1965.
- [102] Erskine, J.L.; Stern, E.A. *Phys. Rev. B*, 8:1239, 1973.
- [103] Weller, D.; Harp, G.R.; Farrow, R.F.C.; Cebollada, A.; Sticht, J. Orientation dependence of the polar Kerr effect in fcc and hcp Co. *Physical Review Letters*, 72(13):2097–2100, 1994.
- [104] Royer, L. *Bull. Soc. Fr. Min.*, 51:7, 1928.
- [105] Kraft, T.; Marcus, P.M.; Methfessel, M.; Scheffler, M. Elastic constants of Cu and the instability of its bcc structure. *Physical Review B*, 48:5886, 1993.
- [106] Marcus, P.M.; Jona, F. Films in tetragonal states produced by epitaxial strain. *Surface Review and Letters*, 1(1):15–21, 1994.
- [107] Schroeder, K. Theoretische Festkörperphysik I. Vorlesung, RWTH-Aachen.
- [108] Hull, D.; Bacon, D.J. *Introduction to Dislocations*, Band 37 der *International Series on Materials Science and Technology*. Pergamon Press, 1984.
- [109] Moruzzi, V.L. Magnetic instabilities in Invar. In *International Symposium on Magnetoelasticity and Electronic Structure of Transition Metals, Alloys and Films - ISOMES '89. Physica B*, Band 161, Seite 99–104, 1989.
- [110] Kraft, T.; Methfessel, M.; van Schilfgaarde, M.; Scheffler, M. Effect of substrate-imposed strain on the growth of metallic overlayers calculated for FCC and HCP iron. *Physical Review B [Condensed Matter]*, 47(15):9862–9, 1993.

- [111] Peng, S.S.; Jansen, H.J.F. Antiferromagnetism in face-centered-tetragonal iron. *Journal of Applied Physics*, 69(8):6132–34, 1991.
- [112] Krasko, G.L.; Olson, G.B. Energetics of bcc-fcc lattice deformation in iron. *Physical Review B*, 40:11536–45, 1989.
- [113] van der Merwe, J.H.; Woltersdorf, J.; Jesser, W.A. *Mater. Sci. Technol.*, 81:, 1986.
- [114] Zillgen, H. Magnetismus, Struktur und Morphologie ultradünner Eisenfilme auf Cu(100). Diplomarbeit, Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [115] Eckerlin-Kandeler. *Landolt-Börnstein*, Band III/6, Kapitel 1.1.2, Seite 1–40. 1989.
- [116] Moruzzi, V.L., Marcus, P.M. *Energy band theory of metallic magnetism in the elements*, Band 7, Kapitel 2, Seite 97–137. Elsevier Science Publishers B.V., 1993.
- [117] Jandeleit, J. Morphologie und Struktur dünner Chromfilme auf Cu(100). Diplomarbeit, Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [118] Horn, M.; Henzler, M. *J. Crystal Growth*, 81:428, 1987.
- [119] Kleinle, G.; Moritz, W.; Ertl, G. *Surface Science*, 238:119, 1990.
- [120] Pendry, J.B. *J. Phys. C.*, 13:937, 1980.
- [121] Zannuzzi, E.; Jona, F. *Surface Science*, 62:61, 1977.
- [122] Heinz, K. *Progress in Surface Science*, 27:239, 1988.
- [123] Rous, P.J. *Progress in Surface Science*, 39:3, 1992.
- [124] Moritz, W. *J. Phys. C.*, 17:353, 1984.
- [125] Moruzzi, V.L.; Janak, J.F.; Williams, A.R. *Calculated Electronic Properties of Metals*. Plenum, New York, 1978.
- [126] Bauer, E. *Zeitschrift für Kristallographie*, 110:372, 1958.
- [127] Poelsema, B.; Kunkel, R.; Verheij, L.K.; Comsa, G. *Phys. Rev. B.*, 41:11609, 1990.
- [128] Poelsema, B.; Kunkel, R.; Nagel, N.; Becker, A.F.; Rosenfeld, G.; Verheij, L.K.; Comsa, G. *Appl. Phys. A.*, 53:369, 1991.
- [129] Rosenfeld, G.; Poelsema, B.; Comsa, G. The concept of two mobilities in homoepitaxial growth. *J. Cryst. Growth*, im Druck.
- [130] Rosenfeld, G. *Manipulation von Wachstumsmodi in der Epitaxie am Beispiel einer Ag (111)-Fläche*. Dissertation, Forschungszentrum Jülich, 1994.
- [131] Stroscio, J.; Pierce, D.T.; Dragoset, R.A. Homoepitaxial growth of iron and a real space view of Reflection High-Energy-Diffraction. *Physical Review Letters*, 70(23):3615, 1993.

- [132] Kunkel, R.; Poelsema, B.; Verheij, L.K.; Comsa, G. *Phys. Rev. Lett.*, 65:733, 1990.
- [133] *Kinetic effects in metal homoepitaxy*, V. European Conference on Surface Crystallography, 1995.
- [134] Schwoebel, R.L.; Shipsey, E.J. *J. Appl. Phys.*, 37:3682, 1966.
- [135] Voigtländer, B.; Zimmer, A. Simultaneous molecular beam epitaxy growth and scanning tunneling microscopy imaging during Ge/Si epitaxy. *Appl. Phys. Lett.*, 63(22):3056–57, 1993.
- [136] Copel, M.; Reuter, M.L.; Kaxiras, E.; Tromp, R.M. The study of the thermal properties of γ -Mn from Mn-Cu alloy. *Physical Review Letters*, 63:632, 1989.
- [137] Daum, W. *Struktur und Gitterdynamik ultradünner epitaktischer Silber- und Eisenfilme auf Ni(100)- und Cu(100)-Substraten*. Dissertation, Kernforschungsanlage, Jülich, 1988.
- [138] Soens, S. Struktur und Wachstum dünner hexagonaler Silber und Manganfilme auf Cu(100)- und Ni(100)- Substraten. Diplomarbeit, Forschungszentrum Jülich, 1995.
- [139] Giesen-Seibert, M.; Jentjens, R.; Poensgen, M.; Ibach, H. *Physical Review Letters*, 71:3517, 1993.
- [140] Giesen-Seibert, M.; Jentjens, R.; Poensgen, M.; Ibach, H. *Physical Review Letters*, 73:E911, 1994.
- [141] Thomassen, J.; Feldmann, B.; Wuttig, M. Growth, structure and morphology of ultra-thin iron films on Cu(100). *Surface Science*, 264(3):406–18, 1992.
- [142] Thomassen, J. *Untersuchung der strukturellen und magnetischen Eigenschaften aufgewachsener Schichten*. Dissertation, Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [143] Feldmann, B. Struktur und Wachstum ultradünner Eisenfilme auf Cu(100). Diplomarbeit, Forschungszentrum Jülich, 1991.
- [144] Petrich, G.S.; Pukite, P.R.; Wowchak, A.M.; Whaley, G.J.; Cohen, P.I.; Arrott, A.S. *J. Cryst. Growth*, 95:23, 1989.
- [145] Cohen, P.I.; Petrich, G.S.; Pukite, P.R.; Whaley, G.J.; Arrott, A.S. *Surface Science*, 216:222, 1989.
- [146] Clarke, S.; Vvedensky, D.D. *Phys. Rev. Lett.*, 58:2235, 1987.
- [147] Sudijono, J.; Johnson, M.D.; Snyder, C.W.; Elowitz, M.B.; Orr, B.G. *Phys. Rev. Lett.*, 69:2811, 1992.
- [148] Henzler, M. *Oberflächenphysik des Festkörpers*. Teubner Verlag, Stuttgart, 1991.
- [149] Henzler, M. *Surface Science*, 22:12, 1970.
- [150] Henzler, M. *Appl. Phys.*, 9:11, 1976.

- [151] Jagodzinski, H.; Moritz, W.; Wolf, D. *Surface Science*, 77:233, 1978.
- [152] Pflanz, S. Diplomarbeit, Universität München, 1991.
- [153] von Gmünden, D. Diplomarbeit, Universität Erlangen, 1988.
- [154] Shurcliff, W.A. *Polarized Light*. Havard University Press, Cambridge, 1962.
- [155] Berger, A.; Knappmann, S.; Oepen, H.P. *J. Appl. Phys.*, 75:5598, 1994.
- [156] Gehring, B. Untersuchungen zum Wachstum und Magnetismus von ultradünnen Kobaltfilmen auf einer gestuften Cu(1,1,17)-Oberfläche. Diplomarbeit, Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [157] Berger, A. *Mikromagnetische Strukturen in ultradünnen Kobaltschichten*. Dissertation, Forschungszentrum Jülich, 1993.
- [158] Massalski, T.B. *Binary Alloy Phase Diagrams*. American Society For Metals, 1986.
- [159] McRae, E.G.; Malic, R.A. Ordering Kinetics at the Cu₃Au(110) surface. *Physical Review Letters*, 65:737, 1990.
- [160] McRae, E.G.; Malic, R.A. Determination of low-energy electron diffraction beam profiles with application to ordering kinetics at the Cu₃Au(110)-surface. *Physical Review B*, 42:1509, 1990.
- [161] McRae, E.G.; Buck, T.M.; Malic, R.A.; Wallace, W.E. Ordering and layer composition at the Cu₃Au(110) surface. *Surface Science Letters*, 238:L481–L485, 1990.
- [162] McRae, E.G.; Buck, T.M.; Malic, R.A.; Wallace, W.E. Observation of the Cu₃Au(001) phase transition using a novel low energy electron diffraction system. *Surface Science*, 148:551, 1984.
- [163] Sundaram, V.S.; Farrell, B.; Alben, R.S. Robertson, W.D. The order-disorder transformation at a (100) surface of Cu₃Au - theory and experiment. *Surface Science*, 46:653, 1974.
- [164] Sundaram, V.S.; Farrell, B.; Alben, R.S. Robertson, W.D. *Physical Review Letters*, 31:1139, 1975.
- [165] Buck, T.M.; Wheatley, G.H.; Marchut, L. Order-Disorder and segregation behaviour at the Cu₃Au(100) surface. *Physical Review Letters*, 51:43, 1983.
- [166] Jamison, K.D.; Lind, D.M.; Dunning, F.B.; Walters, K.G. Polarized LEED investigation of the order-disorder transition at a Cu₃Au(100) surface. *Surface Science*, 159:451, 1985.
- [167] Alvarado, S.E.; Campagna, M.; Fattah, A.; Ülhoff, W. *Z. Phys. B*, 66:103, 1987.
- [168] Dosch, H.; Mailänder, L.; Lied, A.; Peisl, J.; Grey, F.; Johnson, R.L.; Krummacker, S. Experimental evidence for an interface delocalization transition in Cu₃Au. *Physical Review Letters*, 60(23):2382, 1988.

- [169] Lipowsky, R. Critical surface phenomena at first-order bulk transitions. *Physical Review Letters*, 49(21):1575–78, 1982.
- [170] Lipowsky, R. Surface-induced order and disorder: critical phenomena at first-order phase transitions. *J. Appl. Phys.*, 55(6):2485, 1984.
- [171] Niehus, H.; Achete, C. Surface structure investigation of nitrogen and oxygen on $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$. *Surface Science*, 289:19–29, 1993.
- [172] Dodt, T. *Vollständiges, spinpolarisiertes Elektronenstreuexperiment an ultradünnen Fe Filmen auf Cu_3Au (001)*. Dissertation, Kernforschungsanlage, Jülich, 1988.
- [173] Macedo, W.A.A.; Keune, W.; Ellerbrock, E.D. Magnetic properties of ultrathin epitaxial fcc-Fe(001) films on Cu(001) and $\text{Cu}_3\text{Au}(001)$. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 93:552–556, 1991.
- [174] Rochow, R.; Carbone, C.; Dodt, T.; Johnen, F.P.; Kisker, E. Growth mode and magnetic behavior of thin Fe films on $\text{Cu}_3\text{Au}(001)$ studied by low-energy electron diffraction and spin-resolved electron spectroscopies. *Physical Review B [Condensed Matter]*, 41(6):3426–33, 1990.
- [175] Lu, S.H.; Quinn, J.; Tian, D.; Jona, D.; Marcus, P.M. Structural properties of epitaxial films of Fe on Cu and Cu-based surface and bulk alloys. *Surface Science*, 209(3):364–78, 1989.
- [176] Reichert, H.; Eng, P.J.; Dosch, H.; Robinson, I.K. Temperaturabhängige Oberflächensegregationsprofile in Cu_3Au . Band 58 der *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, Seite 1268, 1994.
- [177] Reichert, H.; Eng, P.J.; Adams, B.; Dosch, H.; Robinson, I.K. Ultraschnelle Ordnungsparameter-Relaxation an der $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$ -Oberfläche. Band 58 der *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, Seite 1268, 1994.
- [178] May, F. Struktur, Wachstum und Magnetismus ultradünner Eisenfilme auf Cu(100). Diplomarbeit, Forschungszentrum Jülich, 1992.
- [179] Sokoll, A. Magnetismus, Struktur und Morphologie ultradünner Fe-Filme auf $\text{Cu}_3\text{Au}(100)$. Diplomarbeit, Forschungszentrum Jülich, 1995.
- [180] Gradmann, U.; Isbert, H.O. Ferromagnetic γ -Iron Films Prepared on $\text{CuAu}(111)$ Surfaces. *J. Magn. Magn. Mat.*, 15-18:1109–1111, 1980.
- [181] Varga, P. private Mitteilung.
- [182] Thomassen, J.; May, F.; Feldmann, B.; Wuttig, M.; Ibach, H. Magnetic live surface layers in Fe/Cu(100). *Physical Review Letters*, 69(26):3831–4, 1992.
- [183] Wuttig, M.; Thomassen, J. Structure determination for Fe films on Cu(100). *Surface Science*, 282(3):237–45, 1993.

- [184] Pescia, D.; Stampanoni, M.; Bona, G.L.; Vaterlaus, A.; Willis, R.F.; Meier, F. Magnetism of epitaxial FCC-iron-films on Cu(001) investigated by spin-polarised-photoelectron emission. *Physical Review Letters*, 58:2126–29, 1987.
- [185] Liu, C.; Moog, E.R.; Bader, S.D. Polar Kerr-effect observation of perpendicular surface anisotropy for ultrathin FCC Fe grown on Cu(100) investigated by spin-polarised-photoelectron emission. *Physical Review Letters*, 60:2422, 1988.
- [186] Liu, C.; Moog, E.R.; Bader, S.D. Polar Kerr-effect observation of perpendicular surface anisotropy for ultrathin ferromagnetic films: FCC Fe/Cu(100). In *Fourth Joint Magnetism and Magnetic Materials - INTERMAG Conference*, Band 64, Seite 5325–7, 1988.
- [187] Montano, P.A.; Fernando, G.W.; Cooper, B.R.; Moog, E.R.; Naik, H.M.; Bader, S.D.; Lee, Y.C.; Darici, Y.M.; Min, H.; Marciano, S. *Physical Review Letters*, 59:1041, 1987.
- [188] Stampanoni, M. *Applied Physics A*, 49:449, 1989.
- [189] Xhonneux, P.; Courtens, E. Direct correlation between the structure and magnetism of thin epitaxial Fe on Cu(100). *Physical Review B [Condensed Matter]*, 46(1):556–9, 1992.
- [190] Macedo, W.A.A.; Keune, W. *Physical Review Letters*, 61:475, 1988.
- [191] Halbauer, R.; Gonser, U. *J. Magn. Magn. Mat.*, 35:35, 1983.
- [192] Pappas, D.P.; Kamper, K.P.; Miller, B.P.; Hopster, H.; Fowler, D.E.; Luntz, A.C.; Brundle, C.R. Magnetism of ultrathin films of Fe on Cu(100). In *Thirty-Fifth IEEE Conference on Magnetism and Magnetic Materials*, Band 69, Seite 5209–11, 1991.
- [193] Jesser, W.A.; Matthews, J.W. *Philos. Mag.*, 17:595, 1968.
- [194] Darici, Y.; Marciano, J.; Min, H.; Montano, B.A. *Surface Science*, 182:477, 1987.
- [195] Clarke, A.; Rous, P.J.; Arnott, M.; Jennings, G.; Willis, R.F. *Surface Science*, 192:L483, 1987.
- [196] Kief, M.T.; Egelhoff, W.F. Growth and structure of Fe and Co thin films on Cu(111), Cu(100) and Cu(110): a comprehensive study of metastable film growth. *Physical Review B [Condensed Matter]*, 47(16):10785–814, 1993.
- [197] Nishiyama, Z.; Shimizu, K.; Sugino, K. *Acta Metall.*, 9:620, 1961.
- [198] Pitsch, W. *Philos. Mag.*, 4:477, 1959.
- [199] Chambers, S.A.; Wagener, T.J.; Weaver, J.H. *Physical Review B*, 36:8992, 1987.
- [200] Daum, W.; Stuhlmann, C.; Ibach, H. *Physical Review Letters*, 60:8992, 1988.

- [201] Stuhlmann, C.; Beckers, U.; Thomassen, J.; Wuttig, M.; Ibach, H.; Schmidt, G. Order-disorder transition of 6 ML iron-films on the Cu(100)-surface. *Springer Series in Surface Science*, 24:360–365, 1991.
- [202] Landskron, H.; Schmidt, G.; Heinz, K.; Müller, K.; Stuhlmann, C.; Beckers, U.; Wuttig, M.; Ibach, H. *Surface Science*, 256:115, 1991.
- [203] Davis, H.L.; Hannon, J.B.; Ray, K.B.; Plummer, E.W. Anomalous interplanar expansion at the (001) surface of Be. *Physical Review Letters*, 68:2632, 1992.
- [204] Magnan, H.; Chandesris, D.; Villette, B.; Heckmann, O.; Lecante, J. Structure of thin metastable epitaxial Fe films on Cu(100): reconstruction and interface ordering by coating. *Physical Review Letters*, 67(7):859–62, 1991.
- [205] Egawa, C.; McCash, E.M.; Willis, R.F. Adsorption of hydrogen on thin FCC-iron films grown on Cu(100). *Surface Science*, 215(1-2):L271–8, 1989.
- [206] Pappas, D.P., Kämper, K.-P., Hopster, H. Reversible Transition between perpendicular and in-plane magnetization in ultrathin films. *Physical Review Letters*, 64:3179, 1990.
- [207] Glatzel, H.; Fauster, T.; Scherzer, B.M.U.; Dose, V. *Surface Science*, 254:58, 1991.
- [208] Steigerwald, D.A.; Jacob, I.; Egelhoff, W.F. Structural study of the epitaxial growth of fcc-Fe-films, sandwiches and superlattices on Cu(100). *Surface Science*, 202:472, 1988.
- [209] Chambliss, D.D.; Wilson, R.J.; Chiang, S. Nucleation and growth of ultrathin Fe and Au films on Cu(100) studied by scanning tunneling microscopy. In *38th National Symposium of the American Vacuum Society*, Band 10, Seite 1993–8, 1992.
- [210] Chambliss, D.D.; Johnson, K.E.; Wilson, R.J.; Chiang, S. Surface structure and metal epitaxy: STM studies of ultrathin metal films on Au(111) and Cu(100). In *Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces International Symposium*, Band 121, Seite 1–9, 1993.
- [211] Chambliss, D.; Johnson, K.E. Nucleation with a critical cluster size of zero: submonolayer Fe inclusions in Cu(100). *Physical Review B*, 50:5012, 1994.
- [212] Johnson, K.E.; Chambliss, D.D.; Wilson, R.J.; Chiang, S. Growth and morphology of partial and multilayer Fe thin films on Cu(100) and the effect of adsorbed gases studied by scanning tunneling microscopy. In *39th American Vacuum Society National Symposium*, Band 11, Seite 1654–60, 1993.
- [213] Chambliss, D.D.; Johnson, K.E.; Kalki, K.; Chiang, S.; Wilson, R.J. Initial growth and morphology of ultrathin magnetic films studied using scanning tunneling microscopy. In *Magnetic Ultrathin Films, Multilayers and Surfaces, Interfaces and Characterization Symposium*, Seite 713–22. Mater. Res. Soc, 1993.
- [214] Johnson, K.E.; Chambliss, D.D.; Wilson, R.J.; Chiang, S. A structural model and mechanism for Fe epitaxy on Cu(100). *Surface Science*, 313(3):L811–16, 1994.

- [215] Detzel, T.; Memmel, N.; Fauster, T. Growth of ultrathin iron films on Cu(001): an ion-scattering spectroscopy study. *Surface Science*, 293(3):227–38, 1993.
- [216] Egelhoff, W.F.; Jacob, I.; Rudd, J.M.; Cochran, J.F.; Heinrich, B. X-ray photoelectron and Auger electron forward-scattering studies of lattice expansions and contractions in epitaxial films. In *36th National Symposium of the American Vacuum Society*, Band 8, Seite 1582–6.
- [217] Steigerwald, D.A.; Egelhoff, J.R. Observation of intensity oscillations in RHEED during the epitaxial growth of Cu and fcc Fe on Cu(100). *Surface Science*, 192:L887–92, 1987.
- [218] Shih, H.D.; Jona, F.; Bardi, U.; Marcus, P.M. The atomic structure of Fe{110}. *J.Phys.C*, 13:3801, 1980.
- [219] Müller, S.; Bayer, P.; Reischl, C.; Heinz, K.; Feldmann, B.; Zillgen, H.; Wuttig, M. Structural instability of ferromagnetic fcc Fe films on Cu(100). *Physical Review Letters*, 74(5):765–68, 1995.
- [220] Wassermann, E.F. *J. Magn. Magn. Mater.*, 100:346, 1991.
- [221] Kübler, J. private Mitteilung.
- [222] Ellerbrock, R.D.; Fuest, A.; Schatz, A.; Keune, W.; Brand, R.A. Mössbauer-Effect study of magnetism and structure of fcc-like Fe(001) films on Cu(001). *Physical Review Letters*, im Druck, 1995.
- [223] Keune, W.; Schatz, A. private Mitteilung.
- [224] Kraft, T.; Marcus, P.M.; Scheffler, M. Atomic and magnetic structure of FCC Fe/Cu(100). *Physical Review B [Condensed Matter]*, 49(16):11511–14, 1994.
- [225] Schatz, A.; Dunkhorst, S.; Lingnau, S.; von Hörsten, U.; Keune, W. RHEED intensity oscillations during epitaxial growth of fcc Fe on Cu(001). *Surface Science*, 310:L595, 1995.
- [226] Albrecht, H.; Fritzsche, H.; Gradmann, U. *Surface Science*, 294:1, 1993.
- [227] Heinz, K.; Bayer, P. private Mitteilung.
- [228] Wayman, C.M. *Physical Metallurgy*, Kapitel 15. Elsevier, Amsterdam, 1983.
- [229] Giergiel, J.; Kirschner, J.; Landgraf, J.; Shen, J.; Woltersdorf, J. *Surface Science*, 310:1, 1994.
- [230] Li, D.; Freitag, M.; Pearson, J.; Qiu, Z.Q.; Bader, S.D. Magnetic and structural instabilities of ferromagnetic and antiferromagnetic Fe/Cu(100). *J. Appl. Phys.*, 76(10):6425, 1994.
- [231] Kirilyuk, A.; Giergiel, J.; Shen, J.; Kirschner, J. CO-assisted growth of fcc Fe on Cu(100). Band 14 der *European Conference on surface science (ECOSS-14)*, Leipzig, Seite 100, 1994.

- [232] Dumpich, G.; Becker, E.; Schletz, K.; Stamm, W.; Keune, W.; Kiauka, W.; Murayama, S. Evidence for a high-spin Fe state in FCC $\text{Fe}_{1-x}/\text{Ni}_x$ thin films in the Invar region. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 74(2):237–47, 1988.
- [233] Fuest, A.; Ellerbrock, R.D.; Schatz, A.; Keune, W.; Brand, R.A. Local magnetic properties of ultrathin ferromagnetic fcc Fe films on Cu(001). *Hyperfine Interactions*, 92:1297–1301, 1994.
- [234] Swartzendruber, L.J.; Bennet, L.H.; Kief, M.T.; Egelhoff, W.F. Magnetic Properties of 6 ML fcc-Fe films. *Mat. Res. Soc. Proc.*, 313:237, 1993.
- [235] Li, D.; Freitag, M.; Pearson, J.; Qiu, Z.Q.; Bader, S.D. Magnetic phases of ultrathin Fe grown on Cu(100) as epitaxial wedges. *Physical Review Letters*, 72:3112, 1994.
- [236] Bayer, P.; Müller, S.; Schmailzl, P.; Heinz, K. *Physical Review B*, 48:17611, 1993.
- [237] Müller, S.; Kinne, A.; Schmailzl, P.; Heinz, K. High precision LEED structure analysis of ultrathin fcc Fe films on Cu(100). *Surface Science*, eingereicht, 1995.
- [238] Müller, S., Kinne, A., Kottcke, M., Metzler, R., Bayer, P., Hammer, L.; Heinz, K. Laterale Gitterrelaxation von Cu(100). Band 59 der *Verhandlungen der Deutschen Physikalischen Gesellschaft*, Seite 1499, 1995.
- [239] Kalki, K.; Chambliss, D.D.; Johnson, K.E.; Wilson, R.J.; Chiang, S. Evidence for martensitic fcc-bcc transition of thin Fe films on Cu(100). *Physical Review B*, 48:18344–47, 1993.
- [240] Koike, J.; Nastasi, M. In Thompson, C.V.; Tsao, J.Y.; Srilovitz, D.R., *Evolution of thin films and surface microstructure*, Band 202. Mat. Res. Soc., Pittsburg, 1991.
- [241] Schmailzl, P.; Schmidt, K.; Bayer, P.; Doll, R.; Heinz, K. The structure of thin epitaxial Fe films on Cu(100) in the transition range fcc to bcc. *Surface Science*, 312(1-2):73–81, 1994.
- [242] Scheurer, F.; Allenspach, R.; Xhonneux, P.; Courtens, E. Magnetic coupling of structural microdomains in bcc Fe on Cu(001). *Physical Review B*, 48:9890, 1993.
- [243] Egelhoff, W.F. private Mitteilung.
- [244] Nyberg, G.L.; Kief, M.T.; Egelhoff, W.F. Spot-profile-analyzing LEED study of the epitaxial growth of Fe, Co, and Cu on Cu(100). *Physical Review B [Condensed Matter]*, 48(19):14509–19, 1993.
- [245] Pappas, D.P.; Kämper, K.-P.; Miller, B.P.; Hopster, H.; Fowler, D.E.; Luntz, A.C.; Brundle, C.R. *J. Appl. Phys.*, 69:5209, 1991.
- [246] Pappas, D.P.; Brundle, C.R.; Hopster, H. *Physical Review B*, 45:8169, 1992.
- [247] Allenspach, R.; Bischof, A. Magnetization direction switching in Fe/Cu(100) epitaxial films: temperature and thickness dependence. *Physical Review Letters*, 69:3385, 1992.

- [248] Hembree, G.G.; Drucker, J.; Healy, S.D.; Heim, K.R.; Yang, Z.J.; Scheinfein, M.R. *Appl. Phys. Lett.*, 64:1036, 1994.
- [249] Tobin, J.G.; Waddill, G.D. Giant X-Ray Absorption Circular Dichroism in Magnetic Ultrathin films of Fe/Cu(001). *Physical Review Letters*, 68(24):3642, 1992.
- [250] Tobin, J.G.; Waddill, G.D. Resonant photoemission and magnetic X-ray dichroism in the M-shell of ultrathin films of Fe. *J. Appl. Phys.*, 75(10):6369, 1994.
- [251] Waddill, G.D.; Tobin, J.G. Magnetic X-ray dichroism in 2p absorption spectra of Fe/Cu(001). *J. Appl. Phys.*, 73(10):6748, 1993.
- [252] Pappas, D.P.; Waddill, G.D.; Tobin, J.G. Magnetic dichroism in corelevel photoemission from fcc Fe/Cu(100) films. *J. Appl. Phys.*, 73(10):5936, 1993.
- [253] Wuttig, M.; Feldmann, B.; Thomassen, J.; May, F.; Zillgen, H.; Brodde, A.; Hannemann, H.; Neddermeyer, H. Structural transformations of fcc iron films on Cu(100). *Surface Science*, 291:14–28, 1993.
- [254] Zillgen, H.; Feldmann, B.; Wuttig, M. Structural and magnetic properties of ultrathin Fe films deposited at low temperature on Cu(100). *Surface Science*, 321:32–46, 1994.
- [255] Tréglia, G.; Legrand, B. *Physical Review B*, 35(9):4338, 1987.
- [256] Tyson, W.R.; Miller, W.A. *Surface Science*, 62:267, 1977.
- [257] Okamoto, H.; Massalski, T.B.; Swartzendruber, L.J.; Beck, P.A. *Bull. Alloy Phase Diagrams*, 5(6), 1984.
- [258] Legg, K.O.; Jona, F.; Jepsen, D.W.; Marcus, P.M. Low-energy electron diffraction analysis of clean Fe{100}. *J. Phys. C: Solid State Phys.*, 10:937–946, 1977.
- [259] Wang, Z.Q.; Li, Y.S.; Jona, F. Epitaxial growth of body-centered-cubic nickel on iron. *Solid State Communications*, 61(10):623–626, 1987.
- [260] Egawa, C.; Tezuka, Y.; Oki, S.; Murata, Y. Structures of ultra-thin Fe overlayers on a Rh(001) surface. *Surface Science*, 283:338–343, 1993.
- [261] Begley, A.M.; Kim, S.K.; Jona, F.; Marcus, P.M. Growth mode and atomic structure of ultrathin Fe films on Rh(001) determined by quantitative low-energy electron diffraction. *Physical Review B [Condensed Matter]*, 48(3):1786–93, 1993.
- [262] Stampanoni, M.; Vaterlaus, A.; Aelischmann, A. and Meier, F. *Physical Review Letters*, 59(21):2483, 1987.
- [263] Dürr, W.; Taborelli, M.; Paul, O.; Germar, R.; Gudat, W.; Pescia, D.; Landolt, M. *Physical Review Letters*, 62(2):206, 1989.
- [264] Quinn, J.; Li, Y.S.; Li, H.; Tian, D.; Jona, F.; Marcus, P.M. Atomic and electronic structure of Fe films grown on Pd(001). *Physical Review B [Condensed Matter]*, 43(5):3959–68, 1991.

- [265] Liu, C.; Bader, S.D. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 8(3):2727, 1990.
- [266] Jiang, Q.; He, Y.-L.; Wang, G.-C. Thermal stability and intermixing of ultrathin Fe films on a Au(001) surface. *Surface Science*, 295(1-2):197-212, 1993.
- [267] He, Y.-L.; Wang, G.-C. Observation of atomic place exchange in submonolayer hetero-epitaxial Fe/Au(001) films. *Physical Review Letters*, 71(23):3834-7, 1993.
- [268] He, Y.-L.; Liew, Y.-F.; Wang, G.-C. Growth and magnetic dynamic scaling of ultrathin ferromagnetic films: Fe/Au(001). In *Thirty-Eighth Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials*, Band 75, Seite 5580-2, 1994.
- [269] Lu, S.H.; Wang, Z.Q.; Tian, D.; Li, Y.S.; Jona, F.; Marcus, P.M. Epitaxial growth of gamma -Fe on Ni(001). *Surface Science*, 221(1-2):35-47, 1989.
- [270] Kümmerle, W.; Gradmann, U. *Solid State Communications*, 24:33, 1977.
- [271] Kümmerle, W.; Gradmann, U. *Phys. Status Solidi A*, 45:171, 1978.
- [272] Kief, M.T.; Egelhoff, W.F. Perpendicular magnetic anisotropy in epitaxial ultrathin films of Fe and Co on Cu(100), Cu(110), and Cu(111). *J. Appl. Phys.*, 73(10):6195, 1993.
- [273] Tian, D.; Jona, F.; Marcus, P.M. Structure of ultrathin films of Fe on Cu(111) and Cu(110). *Physical Review B [Condensed Matter]*, 45(19):11216-21, 1992.
- [274] Arrott, A.S.; Heinrich, B.; Purcell, S.T.; Cochran, J.F.; Urquhart, K.B. Engineering magnetic materials on the atomic scale. *J. Appl. Phys.*, 61(8):3721, 1987.
- [275] Blügel, S.; Drittler, B.; Zeller, R.; Dederichs, P.H. *Appl. Phys. A*, 49:547, 1989.
- [276] Heinrich, B.; Arrott, A.S.; Liu, C.; Purcell, S.T. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 5:1935, 1987.
- [277] Flores, T.; Hansen, M.; Wuttig, M. Structure and growth of Mn on Cu(100). *Surface Science*, 279:251-264, 1992.
- [278] Wuttig, M.; Flores, T.; Knight, C.C. Structure and growth of Mn on Ni(100). *Physical Review B*, 48(16):12082-12092, 1993.
- [279] Wuttig, M.; Knight, C.C. LEED structure determination of tetragonal MnNi films on Ni(100). *Physical Review B*, 48(16):12130, 1993.
- [280] Tian, D.; Begley, A.M.; Jona, F. *Surface Science*, 273:L393, 1992.
- [281] Tian, D.; Li, H.; Wu, S.C.; Jona, F.; Marcus, P.M. *Physical Review B*, 1995. eingereicht.
- [282] Tian, D.; Wu, S.C.; Jona, F. Epitaxy of Mn on Pd{001}. *Solid State Communications*, 70(2):199-204, 1989.
- [283] Jona, F.; Marcus, P.M. Properties of films of γ -Fe and γ -Mn. *Surface Science*, 223:L897-L903, 1989.

- [284] Heinrich, B.; Arrott, A.S.; Cochran, J.F.; Liu, C.; Myrtle, K. Ferromagnetic Resonance in ultrahigh vacuum: effect of epitaxial overlayers on Fe. *J. Vac. Sci. Technol. A*, 4(3), 1986.
- [285] Jonker, B.T.; Krebs, J.J.; Prinz, G.A. Growth and magnetic characterization of Mn films and superlattices on Ag(100). *Physical Review B*, 39(2):1399–1402, 1989.
- [286] Idzerda, Y.U.; Jonker, B.T.; Elan, W.T.; Prinz, G.A. Identification of the structure in Mn/Ag(100) superlattices. *J. Appl. Phys.*, 67(9):5385, 1990.
- [287] Massalski, T.B.; Kamoto, O. *Bull. Alloy Phase Diagrams*, 6(5), 1985.
- [288] Wuttig, M.; Gauthier, Y.; Blügel, S. Magnetically driven buckling and stability of ordered surface alloys: Cu(100) c(2 × 2)Mn. *Physical Review Letters*, 70(23):3619–22, 1993.
- [289] Flores, T.; Junghans, S.; Wuttig, M. private Mitteilung.
- [290] Rader, O.; Gudat, W.; Carbone, C.; Vescovo, E.; Blügel, S.; Kläsges, D.; Eberhardt, W.; Wuttig, M.; Redinger, J.; Himpsel, F.J. Electronic structure of two dimensional magnetic alloys: c(2×2)Mn on Cu(100) and Ni(100). *Physical Review B*, 1995. eingereicht.
- [291] Blügel, S. private Mitteilung.
- [292] Pearson, W.B. *A handbook of lattice spacings and structures of metals and alloys*. International series of monographs in metal physics and physical metallurgy. Pergamon, Oxford, 1967.

Danksagung

Herrn Professor Dr. H. Ibach bin ich für die Möglichkeit, diese Arbeit im Institut für Grenzflächenforschung und Vakuumphysik des Forschungszentrums Jülich durchführen zu können, zu Dank verpflichtet.

Mein ganz besonderer Dank gilt Herrn Priv. Doz. Dr. Matthias Wuttig, der diese Arbeit betreut hat und dem ich auch für seine persönliche Unterstützung danke. Als besonders positiv habe ich die gute Mischung aus eigenständigem und gruppenorientiertem Arbeiten in seiner Arbeitsgruppe erfahren. Zahlreiche Diskussionen mit ihm haben einen erheblichen Beitrag zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Herrn Josef Larscheid danke ich für seine tatkräftige Hilfe beim Lösen technischer Aufgaben und seinen persönlichen Einsatz.

Bei den Herren Dipl.-Phys. Frank May, Holger Zillgen und Andreas Sokoll sowie Herrn Artur Braun bedanke ich mich für die sehr gute Zusammenarbeit bei der Durchführung und Auswertung der Experimente.

Herrn Dr. Yves Gauthier danke ich für die volldynamischen Berechnungen der I(E)-Spektren der Manganschichten. Herrn Dr. Pierre Dolle danke ich für die gute Zusammenarbeit während seiner Aufenthalte in Deutschland. Beiden gilt mein Dank für viele anregende Gespräche.

Herrn Udo Linke danke ich für die Präparation der Einkristalle und viele fachlich nützliche Hinweise während meiner Arbeit.

Der gesamten Arbeitsgruppe unter Leitung von Herrn Dr. Hans Peter Oepen danke ich für ihre Diskussionsbereitschaft und ihre informelle Unterstützung beim Umbau des magnetooptischen Kerr-Effektes zur Messung der Suszeptibilität.

Mein Dank gilt Herrn Dr. Andreas Berger für interessante Diskussionen und insbesondere seinen wesentlichen Beitrag zur Erklärung des Koerzitivfeldstärkenmaximums bei den RT-Eisenfilmen auf Cu(100).

Daneben danke ich auch Frau Ursula und Herrn Dr. Johannes Thomassen sowie Herrn Dieter Bruchmann und den anderen Mitgliedern der Arbeitsgruppe, Frau PhD. Colette Knight und den Herren Dipl.-Phys. Thomas Flores, Jürgen Jandeleit, René Niebuhr, Stefan Soens, Stefan Junghans sowie Herrn Christoph Roß für das gute Arbeitsklima. Den Mitarbeitern der elektronischen und mechanischen Werkstatt danke ich für die Unterstützung meiner Arbeit und die schnelle Hilfe in akuten Problemfällen.

Allen anderen Mitarbeitern des Instituts danke ich für ihre Hilfsbereitschaft.

Herrn Puchala danke ich für die Digitalisierung mehrerer Bilder.

Meinen Freunden Wolfgang Vermöhlen, Markus Havighorst und Martin Althaus sowie Herrn Dipl.-Phys. Michael Speckmann danke ich für die aufwendige Durchsicht des Manuskriptes und viele nützliche Ratschläge.

Mein ganz persönlicher Dank gilt den Personen, die mich durch das Studium und die Promotion begleitet haben, meiner Frau Martina, meinen Eltern, meinem Bruder und meinen Freunden.

Abschließend bedanke ich mich bei der Konrad Adenauer Stiftung für die Gewährung des Stipendiums. Grund für diesen Dank besteht zum einen in der finanziellen Förderung und der Bezuschussung von Reisekosten für die Teilnahme an einigen Konferen-

zen. Zum anderen bin ich besonders für die ideelle Förderung durch die Stiftung dankbar, die mir einen tieferen Einblick in ökonomische, gesellschaftspolitische, historische und philosophische Fragestellungen ermöglicht hat. Mein besonderer Dank richtet sich in diesem Zusammenhang an Herrn Dr. M. Müller, Herrn Dr. D. Preuß und Herrn Dr. R. Täubrich.

Jül-3185
Januar 1996
ISSN 0944-2952