

# Magnetismus

von

## Eisen / Seltenerdmetall- Viellagenschichten



Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)

der Fakultät Physik der Universität Regensburg

vorgelegt von

Klemens Prügl

aus

Erlau

(1999)

Der Promotionsgesuch wurde eingereicht am: 13.01.1999

Tag der mündlichen Prüfung: 19.05.1999

Die Arbeit wurde angeleitet von Prof. Dr. H. Hoffmann.

**Prüfungsausschuß:**

Vorsitzender: Prof. Dr. D. Strauch

1. Gutachter: Prof. Dr. H. Hoffmann

2. Gutachter: Prof. Dr. D. Weiss

Prüfer: Prof. Dr. K.F. Renk

# Inhalt

1. Einleitung und Zielsetzung .....	5
2. Magnetische Grundlagen .....	8
2.1 Magnetismus der beteiligten Elemente .....	8
2.2 Magnetismus in amorphen Festkörpern .....	10
2.3 Magnetismus von amorphem Eisen .....	11
2.4 Magnetismus von Eisen / Seltenerdmetall - Legierungen .....	13
2.5 Ferrimagnetismus .....	14
2.6 Magnetismus von Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten .....	16
2.7 Molekularfeldtheorie zur Berechnung der Magnetisierung .....	17
2.8 Magnetisierungszustände in Fe / Gd - Viellagenschichten .....	18
3. Schichtherstellung und experimentelle Methoden .....	20
3.1 Schichtherstellung .....	20
3.2 Röntgenfluoreszenzanalyse .....	24
3.3 Röntgenbeugung .....	25
3.4 Röntgenreflektometrie .....	27
3.5 Elektronenbeugung .....	29
3.6 Mößbauerspektroskopie .....	31
3.7 SQUID .....	34
4. Struktur der Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten .....	36
4.1 Röntgenbeugung .....	36
4.2 Röntgenreflektometrie .....	38
4.3 Elektronenbeugung .....	41
4.4 Dichte der Eisenlagen .....	44
5. Magnetische Charakterisierung .....	47
5.1 Magnetisches Moment .....	47
5.1.1 Magnetisierung der Fe / Y - Viellagenschichten .....	48

5.1.2 Magnetisierung von Schichten mit 2 magnetischen Komponenten . . .	51
5.1.3 Magnetisierung der Fe / Gd - Viellagenschichten . . . . .	53
5.1.4 Magnetisierung der Fe / Dy - Viellagenschichten . . . . .	56
5.1.5 Zusammenfassung der Ergebnisse der Magnetometrie . . . . .	59
5.2 Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung . . . . .	60
5.3 Mößbauerspektroskopie . . . . .	62
6. Stabilität des amorphen Eisens . . . . .	67
7. Magnetisierungsverhalten von Fe / Gd - Viellagenschichten . . . . .	71
7.1 Anpassungsrechnungen . . . . .	71
7.2 Ergebnisse der Anpassungsrechnungen . . . . .	76
7.3 Magnetisierungsverteilung . . . . .	79
8. Zusammenfassung . . . . .	84
9. Literaturverzeichnis . . . . .	87

## 1. Einleitung und Zielsetzung

Die hauptsächlichen Anwendungen von Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten liegen in der magnetooptischen Datenspeicherung. Dort verwendet man als magnetisches Speichermedium derzeit hauptsächlich Legierungen aus Terbium, Gadolinium, Eisen und Kobalt [Man95]. Um die magnetischen Eigenschaften dieser Materialien im Hinblick auf ihre Tauglichkeit als Datenspeicher zu optimieren, versucht man diese nicht nur in Form von Legierungen einzusetzen. Statt dessen ordnet man die Elemente in Viellagenschichten an. Man hofft durch den zusätzlichen Parameter der Einzellagendicken das optimale Schichtsystem für die magnetooptische Datenspeicherung schaffen zu können.

Aus diesem Grund werden Struktur und Magnetismus von Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten seit mehreren Jahren intensiv untersucht. In diesen Untersuchungen fanden sich zum Teil erstaunliche physikalische Eigenschaften, die das System nicht nur für die praktische Anwendung, sondern auch für die physikalische Grundlagenforschung interessant erscheinen lassen.

Eine dieser interessanten Eigenschaften besteht darin, daß sich die magnetischen Parameter der Schichtsysteme nicht stetig ändern, wenn man die Einzellagendicken variiert. So läßt sich eine kritische Eisenlagendicke  $d_c$  angeben, bei der sich die Magnetisierung, die Curietemperatur und die magnetische Anisotropie der Proben erheblich und spontan ändern. Diese Änderung der magnetischen Schichteigenschaften wird in der Literatur darauf zurückgeführt, daß das Eisen erst ab der kritischen Schichtdicke  $d_c$  einen bcc - Kristall bildet. Unterhalb dieser Schichtdicke liegt das Eisen in einer anderen Modifikation vor, die in der Literatur zum Teil als amorphes Eisen [Lan91] und zum Teil als amorphe Eisen - Seltenerdmetall - Legierung [Sha90] bezeichnet wird. Die Änderung in der Struktur der Schichtsysteme wirkt sich auch auf deren Magnetismus aus und erklärt somit die spontane Änderung der magnetischen Eigenschaften an der kritischen Eisendicke  $d_c$ .

Ein großer Teil dieser Arbeit wird sich deswegen mit den magnetischen und strukturellen Eigenschaften des amorphen Eisens befassen. Dabei wird besonders Wert auf die möglichst genaue strukturelle Charakterisierung der Proben mit Hilfe von modernen Untersuchungsmethoden gelegt. Magnetische Messungen alleine erlauben nur indirekte Schlüsse über die Viellagenschichtsysteme. Um zu ergründen, welche Physik hinter dem Magnetismus der Proben steckt, ist es unerlässlich, die Struktur der Schicht möglichst genau zu kennen. Erst mit der genauen Kenntnis der Struktur der Proben und insbesondere des amorphen Eisens kann der

Magnetismus der Eisen / Seltenerdmetall -Viellagenschichten näher charakterisiert werden.

Die Strukturänderung im Eisen bei der kritischen Einzellagendicke  $d_c$  wurde bisher an den meisten Eisen / Seltenerdmetall -Viellagenschichten entdeckt. Dies ist auch nicht weiter verwunderlich, da sich die Seltenerdmetalle (oder auch Lanthanide) in bezug auf ihre chemischen Eigenschaften und ihre Ionenradien sehr ähnlich verhalten. Im Magnetismus unterscheiden sie sich dagegen erheblich. Deshalb ergibt sich zusätzlich die Fragestellung, inwieweit der Magnetismus des amorphen Eisens von den magnetischen Eigenschaften der benachbarten Seltenerdmetalle beeinflusst wird.

Eine andere interessante Eigenschaft der Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten besteht darin, daß sie mit normalen, im Labor zur Verfügung stehenden Magnetfeldern, magnetisch nicht gesättigt werden können. Das heißt auch im Hochfeldbereich steigt die Magnetisierung dieser Schichtsysteme mit zunehmendem äußeren Magnetfeld noch weiter an. Dies steht völlig im Gegensatz zu den meisten anderen ferro- bzw. ferrimagnetischen Substanzen, die durch Anlegen eines äußeren Feldes  $H_{ext}$  schnell ihre Sättigungsmagnetisierung erreichen. Auf diese Eigenschaft der Eisen / Seltenerdmetalle wird im zweiten Teil dieser Arbeit näher eingegangen. Dabei wird ein Modell zur Berechnung der Magnetisierung in Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten vorgestellt, das die endliche Hochfeldsuszeptibilität der Proben erklären kann.

Außer acht gelassen wurden in dieser Arbeit magnetische Eigenschaften von Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten, die darauf zurückzuführen sind, daß die Schichten lateral nicht homogen magnetisiert, sondern in magnetische Domänen aufgespalten sind. Diese Themen wurden im Hinblick auf die magnetooptische Datenspeicherung, die im "Schreiben" und "Löschen" von magnetischen Domänen besteht, bereits sehr intensiv erforscht [Lan98a - Lan98c].

### **Arbeitsprogramm und Zielsetzung**

Die strukturelle Charakterisierung der amorphen Eisenphase stellt einen Schwerpunkt der Untersuchungen dar. Bisher hatte man amorphes Eisen im wesentlichen daran erkannt, daß die typischen Beugungsreflexe des Eisens nicht auftraten. Dann kann es aber immer noch in Form von Nanokristalliten oder Legierungen vorliegen. In dieser Arbeit wurden zur Charakterisierung von amorphem Eisen zum ersten Mal die Methode der lateralen Paarverteilungsfunktion eingesetzt. Diese hat ein sehr hohes Auflösungsvermögen und erlaubt eine präzise Angabe der Reichweite der strukturellen Ordnung und somit eine wesentlich bessere Charakterisierung der

vorliegenden Eisenmodifikation.

Die Änderung der magnetischen Eigenschaften von amorphem Eisen bei der kritischen Schichtdicke stellt einen weiteren Schwerpunkt der Arbeit dar. Vor allem wurde hier versucht, das magnetische Moment der amorphen Eisenphase quantitativ zu bestimmen. Wie bei den strukturellen Untersuchungen ergibt sich auch hier die Frage, ob der Magnetismus von amorphem Eisen von den benachbarten Lagen abhängt oder ob das reduzierte magnetische Moment eine intrinsische Eigenschaft des amorphen Eisens darstellt.

Ziel war, das magnetische Moment von amorphem Eisen in verschiedenen Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten zu bestimmen, wobei Seltenerdmetalle mit verschiedenen magnetischen Eigenschaften eingesetzt wurden: Yttrium zeigt kein eigenes magnetisches Moment und erlaubt somit die Messung der Eigenschaften des reinen amorphen Eisens. Gadolinium und Dysprosium sind in gewissen Temperaturbereichen ferromagnetisch, weisen aber deutlich unterschiedliche Curietemperaturen auf. Hier wird speziell untersucht, inwieweit die Curie-temperatur des Seltenerdmetalls einen Einfluß auf den Magnetismus von amorphem Eisen ausübt.

In theoretischen Arbeiten wird eine Abhängigkeit des magnetischen Moments von der Massendichte des amorphen Eisens vorhergesagt [Kra91, Lor95]. Aus diesem Grund wurde zusätzlich zu den magnetischen Eigenschaften auch die Massendichte des amorphen Eisens bestimmt.

Den dritte Schwerpunkt der Arbeit stellt die Untersuchung des Hochfeldverhaltens der Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten dar. Ein typisches Merkmal dieser Viellagenschichten ist deren endliche Hochfeldsuszeptibilität. Das heißt, die Schichten können mit den zur Verfügung stehenden Feldern nicht magnetisch gesättigt werden. Um dieses Verhalten zu erklären wurden Modellrechnungen durchgeführt, die das Magnetisierungsverhalten der Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten in verschiedenen Temperaturbereichen simulieren. Die Rechnungen basieren auf einer Molekularfeldtheorie [Cam93] und ergeben für verschiedene Temperaturen und Felder unterschiedliche Spinkonfigurationen.

## 2. Magnetische Grundlagen

### 2.1 Magnetismus der beteiligten Elemente

Der Magnetismus der beteiligten Elemente unterscheidet sich grundlegend. Im Eisen stammt das magnetische Moment von Elektronen aus der nicht aufgefüllten 3d - Schale, in den Seltenerdmetallen dagegen von den Elektronen der 4f - Schale. Die 3d - Elektronen sind im Eisen delokalisiert und müssen als Bandelektronen angesehen werden. Dies führt beim Magnetismus zum Beispiel dazu, daß das magnetische Moment Werte annehmen kann, die nicht mit dem magnetischen Moment des isolierten Atoms übereinstimmen. Da das magnetische Moment im Eisen durch die Bandstruktur bestimmt wird, ist es einsichtig, daß die Struktur des Festkörpers einen beträchtlichen Einfluß auf den Magnetismus des Eisens ausübt.

Die nahe am Kern lokalisierten 4f - Elektronen der Seltenerdmetalle sind dagegen weitgehend vom Kristallfeld abgeschirmt [Coe89]. Ihr magnetisches Moment kann daher in guter Näherung durch die Hund'schen Regeln berechnet werden und entspricht somit dem magnetischen Moment des freien Atoms. Typisch für die Seltenerdmetalle ist, daß die Ausrichtung der atomaren magnetischen Momente oft nicht kollinear ist. Es tritt in manchen Temperaturbereichen eine helikale Anordnung der magnetischen Momente auf [Chi66].

Um den Komplikationen aus dem Weg zu gehen, die durch das Auftreten der nichtkollinearen Spinstrukturen der Seltenerdmetalle entstehen, beschränkt sich diese Arbeit hauptsächlich auf die Seltenerdmetalle Gadolinium und Dysprosium. Bei diesen Elementen kommt in bestimmten Temperaturbereichen eine ferromagnetische Ordnung vor, das heißt alle magnetischen Momente sind parallel ausgerichtet.

Daneben wurde auch Yttrium verwendet, das eigentlich nicht zu den Seltenerdmetallen zählt. Es verhält sich aber zu diesen chemisch ähnlich, mit der Ausnahme, daß es kein magnetisches Moment hat.

Die chemische Ähnlichkeit der Seltenerdmetalle kann durch ihre Elektronenkonfiguration erklärt werden. Ihre drei außen liegenden Valenzelektronen sind meistens  $6s^2$  und  $5d^1$  (Ausnahme: Europium und Ytterbium). Ihr Unterschied im Magnetismus wird durch eine wachsende Anzahl an kernnahen 4f - Elektronen verursacht.

Die magnetischen Eigenschaften der betrachteten Elemente sind in der nachfolgenden Tabelle

kurz zusammengefaßt.

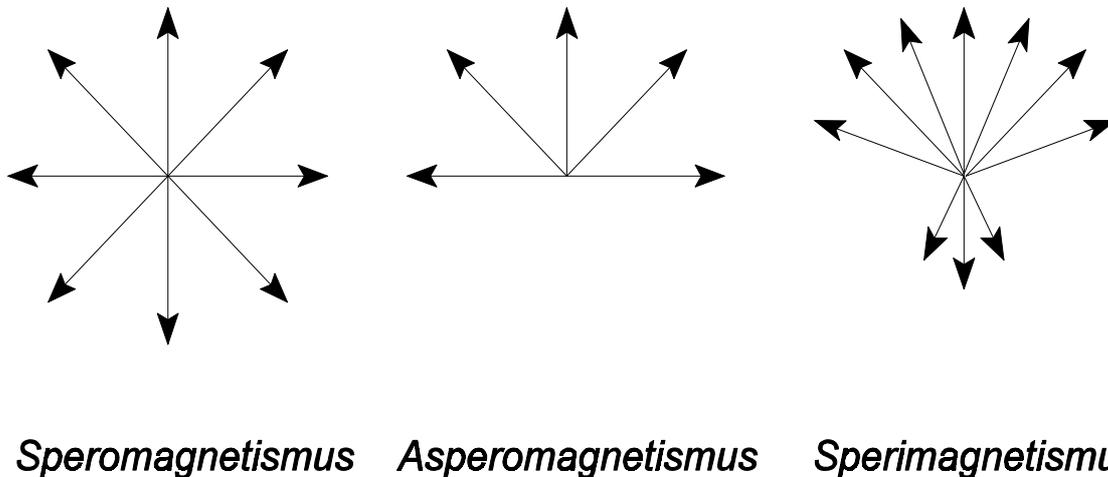
<b>Eigenschaften der verwendeten Elemente</b>				
Element	Magnetisches Moment [ $\mu_B$ ]	Elektronen-konfiguration	Temperaturbereich	Magnetische Ordnung
Eisen	2,2	$3d^6$	< 1023 K	Ferromagnet
Gadolinium	7,5	$4f^7 5d^1 6s^2$	< 298 K	Ferromagnet
Terbium	9,35	$4f^8 5d^1 6s^2$	< 221 K	Ferromagnet
			$221 \text{ K} < T < 229 \text{ K}$	Antiferromagnet
Dysprosium	10,4	$4f^9 5d^1 6s^2$	< 86 K	Ferromagnet
			$86 \text{ K} < T < 173 \text{ K}$	helikal, Antiferromagnet
Yttrium	0	$4d^1 5s^2$	-	

Typisch für die Seltenerdmetalle ist im allgemeinen ein nicht ausgelöschter Bahndrehimpuls der 4f - Elektronen. Dieser führt üblicherweise zu einer starken magnetischen Anisotropie, das heißt die Magnetisierungsarbeit  $\int \vec{H} d\vec{M}$  ist vom Winkel zwischen den Kristallachsen und dem äußeren Feld abhängig. Nur im Gadolinium findet sich reiner Spinmagnetismus, da hier die 4f - Schale gerade halb gefüllt ist.

Die Kopplung von Spin- und Bahndrehimpuls wird durch die Hund'schen Regeln beschrieben. Daraus folgt, daß der Gesamtdrehimpuls in den sogenannten leichten Seltenerdmetallen (4f - Schale weniger als halb gefüllt) durch Subtraktion, und in den schweren Seltenerdmetallen (4f - Schale mehr als halb gefüllt) durch Addition von Spin- und Bahndrehimpuls zustande kommt.

## 2.2 Magnetismus in amorphen Festkörpern

Wegen der fehlenden strukturellen Ordnung im amorphen Festkörper ist es einsichtig, daß auch die magnetischen Momente keinen einheitlichen Betrag und keine einheitliche Richtung aufweisen. Man kennt verschiedene Arten des Magnetismus von amorphen Festkörpern, die in der folgenden Abbildung 2 kurz vorgestellt werden [Coe78].



*Abbildung 2: Verschiedene Arten des Magnetismus in amorphen Festkörpern.*

Bei noch größerer Unordnung kann auch ein Spinglaszustand auftauchen. Hier kommt es durch gemischte positive und negative Austauschkopplungen zu einer Frustration. Ein Spinglas ist dadurch gekennzeichnet, daß es eine große Zahl von nahezu entarteten Zuständen gibt [Mal89]. Dies führt oft dazu, daß sich das System nicht im energetischen Grundzustand befindet. Der momentane Zustand ist also von der Vorgeschichte der Probe abhängig.

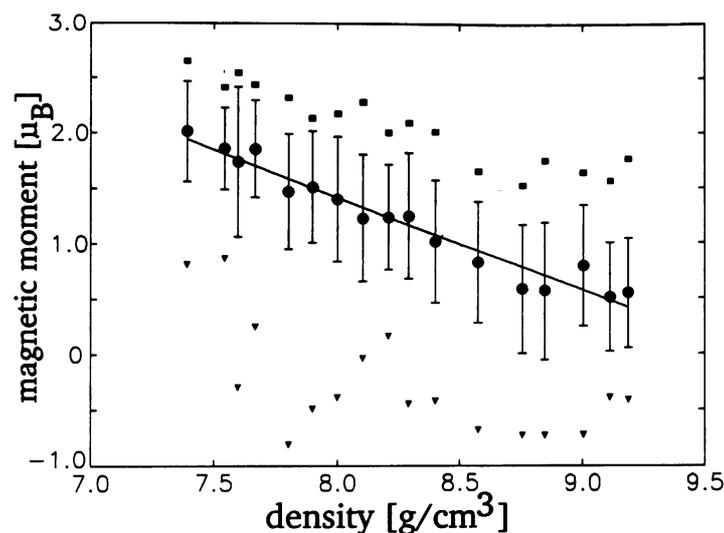
Ein starker Hinweis auf einen Spinglaszustand ist das Auftreten einer sogenannten thermischen Hysterese. Das heißt, die spontane Magnetisierung und die Suszeptibilität der Probe hängen davon ab, ob die Probe in An- oder Abwesenheit eines äußeren Magnetfeldes gekühlt wurde.

### 2.3 Magnetismus von amorphem Eisen

Wie bereits oben erörtert wurde, tritt in Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten das Eisen in amorphem Zustand auf, solange es eine gewisse Schichtdicke  $d_c$  nicht überschreitet. Amorphes Eisen verhält sich in bezug auf den Magnetismus anders als  $\alpha$ -Eisen. Dies ist leicht zu verstehen, wenn man bedenkt, daß der Magnetismus der Bandelekttronen stark von der Koordinationszahl abhängt. Im bcc - Gitter ist die Anzahl der nächsten Nachbarn gleich 8 ist. Nimmt man an, daß die amorphe Phase einer dichtesten Kugelpackung ähnlich ist, so ist hier die Koordinationszahl dagegen knapp 12.

Der Magnetismus von amorphem Eisen wurde in der Literatur bereits von mehreren Autoren theoretisch behandelt. Deren Ergebnisse sollen im Folgenden kurz vorgestellt werden.

Kraus und Krey [Kra91] erhielten dabei das Resultat, daß das magnetische Moment der einzelnen Atome von deren lokalen Volumen abhängig ist. Sie berechneten das mittlere atomare magnetische Moment von Proben mit verschiedenen Massendichten. Dabei stellte sich heraus, daß die atomaren magnetischen Momente keinen einheitlichen Betrag aufweisen, und daß das mittlere magnetische Moment des Eisens mit zunehmender Massendichte abnimmt (vgl. Abbildung 3).



**Abbildung 3:** Die Kreise mit den Fehlerbalken zeigen die Abhängigkeit des mittleren magnetischen Moments von amorphem Eisen von der Massendichte. Aus [Kra91].

Die Abhängigkeit des Magnetismus von der Massendichte des amorphen Eisens fanden auch Lorenz und Hafner [Lor95]. Sie beobachteten allerdings nicht nur eine Abnahme des mittleren atomaren Moments mit steigender Massendichte, sondern auch eine Veränderung der Art des Magnetismus.

Bei steigender Massendichte erhält man demnach einen Übergang von einem inhomogenen Ferromagnetismus zum Asperomagnetismus und schließlich zu einem fast speromagnetischen Zustand mit nahezu verschwindendem makroskopischem magnetischen Moment.

Kakehashi et al. [Kak97] berechneten die magnetischen Eigenschaften des amorphen Eisens in Abhängigkeit von der mittleren Koordinationszahl  $Z^*$  und einem Unordnungsparameter  $\Delta$  mit  $\Delta = [(\delta R)^2]_S / [R]_S^2$ , wobei  $R$  der mittlere Abstand zum nächsten Nachbarn und  $\delta R$  die Variation von  $R$  ist. Sie fanden, daß es beim Eisen einen kritischen Wert für  $\Delta$  gibt, bei dem ein Übergang vom Ferromagnetismus zum Spinglas stattfindet.

Ergebnisse aus Experimenten mit amorphem Eisen findet man hauptsächlich in Arbeiten über Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten. Dabei wird amorphes Eisen meistens dadurch identifiziert, daß in der Röntgenbeugung kein Peak des  $\alpha$  - Eisens auftaucht. Die magnetische Charakterisierung zeigt meistens ein deutlich reduziertes magnetisches Moment und eine deutlich erniedrigte Curietemperatur.

Andere untersuchen in ihren Arbeiten die Eigenschaften von Eisen in amorphen Legierungen, in dem sie den Eisenanteil schrittweise erhöhen [Xia87]. Hier zeigen sich keine Ergebnisse, die eindeutig auf die magnetischen Eigenschaften von amorphem Eisen schließen lassen. Die gemessenen Resultate sind dagegen stark davon abhängig, welche anderen Elemente sich in der Legierung befinden.

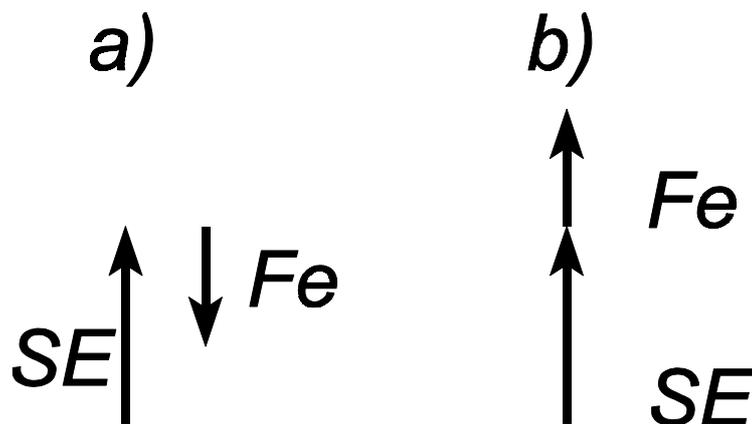
Außer in den Eisen / Seltenerdmetallen wurde amorphes Eisen auch durch Deposition auf stark gekühlte Substrate (4 K) erzeugt [Leu74]. Dieses amorphe Eisen ist nicht auf extrem dünne Schichten beschränkt. Es kristallisiert jedoch bereits durch die Erwärmung auf Zimmertemperatur aus.

Massives amorphes Eisen konnte durch sonochemische Herstellung [Bel95] erzeugt werden. Dieses amorphe Eisen zeigt in Neutronenbeugungsuntersuchungen eine deutlich verringerte Ordnungsreichweite. Eine chemische Analyse ergab jedoch einen hohen Verunreinigungsgrad. Deshalb ist ein Vergleich mit anderen Arbeiten nur bedingt möglich.

## 2.4 Magnetismus von Eisen / Seltenerdmetall - Legierungen

Eisen / Seltenerdmetall - Legierungen können in zwei Gruppen eingeteilt werden. Die eine Gruppe bilden Legierungen aus Eisen und einem leichten Seltenerdmetall ( $J=|L-S|$ ), die andere Legierungen aus Eisen und einem schweren Seltenerdmetall ( $J=L+S$ ).

In ersteren herrscht eine ferromagnetische, in letzteren eine antiferromagnetische Kopplung zwischen den Eisen- und den Seltenerdmetallmomenten. Das heißt, in Legierungen aus Eisen und einem leichten Seltenerdmetall sind die Momente parallel, in Legierungen aus Eisen und einem schweren Seltenerdmetall dagegen antiparallel ausgerichtet (vergleiche Abbildung 4). Das Gadolinium mit seiner halb gefüllten 4f - Schale folgt dabei den schweren Seltenerdmetallen und koppelt antiferromagnetisch mit den Eisenmomenten.



**Abbildung 4:** Kopplungsmöglichkeiten von Eisen (Fe) mit Seltenerdmetallen (SE):

a) Hat die 4f - Schale des Seltenerdmetalls 7 oder mehr Elektronen, so stehen die magnetischen Momente antiparallel.

b) Ist die 4f - Schale weniger als halb gefüllt so richtet sich das Moment des Seltenerdmetalls parallel zum Eisenmoment aus.

Die Erklärung für diese Kopplung liegt in den Elektronenkonfigurationen. Da es zwischen den 3d - Elektronen des Eisens und den 4f - Elektronen der Seltenerdmetalle keinen wesentlichen Überlapp gibt, findet die Kopplung indirekt über die 5d - Elektronen der Seltenerdmetalle statt [Con86]. Das Austauschintegral zwischen Eisen 3d - und Seltenerdmetall 5d - Zuständen ist negativ. Das heißt, die Spins von Eisen und Seltenerdmetallen sind immer antiparallel ausge-

richtet. Deshalb sind Legierungen aus Eisen und schweren Seltenerdmetallen Ferrimagnete.

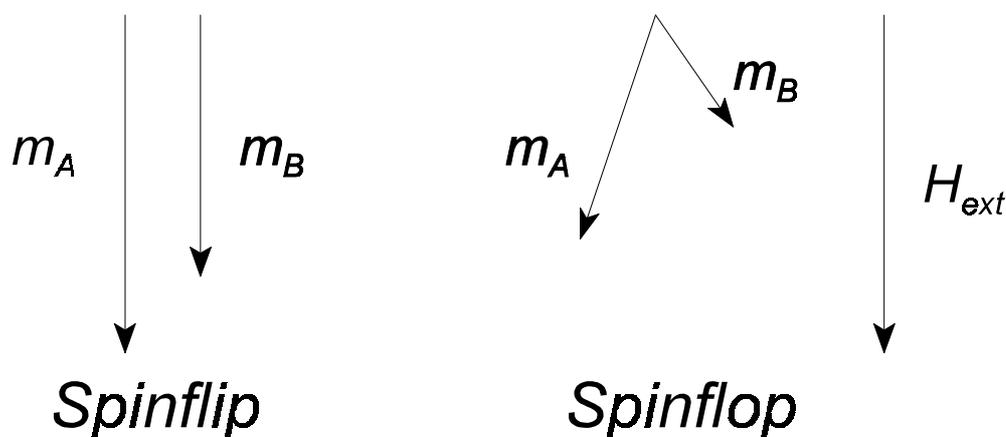
In den leichten Seltenerdmetallen stehen nach den Hund'schen Regeln der Gesamtdrehimpuls und der Spin antiparallel zueinander. Deshalb sind der Gesamtdrehimpuls des Seltenerdmetalls und der Spin des Eisens parallel ausgerichtet. Legierungen aus Eisen und einem leichten Seltenerdmetall koppeln also ferromagnetisch zueinander.

Umfassende Angaben über die magnetische Daten von Eisen - Seltenerdmetall - Legierungen findet man in [Han89] und [Han90].

## 2.5 Ferrimagnetismus

Ferrimagnete bestehen aus zwei unterschiedlichen magnetischen Untergittern  $A$ ,  $B$ , die in sich eine parallele Ausrichtung ihrer Momente  $m_A$  und  $m_B$  aufweisen. Die Untergitter sind jedoch zueinander antiparallel. Dies führt zu spezifischen Eigenschaften, die im folgenden kurz dargestellt werden sollen.

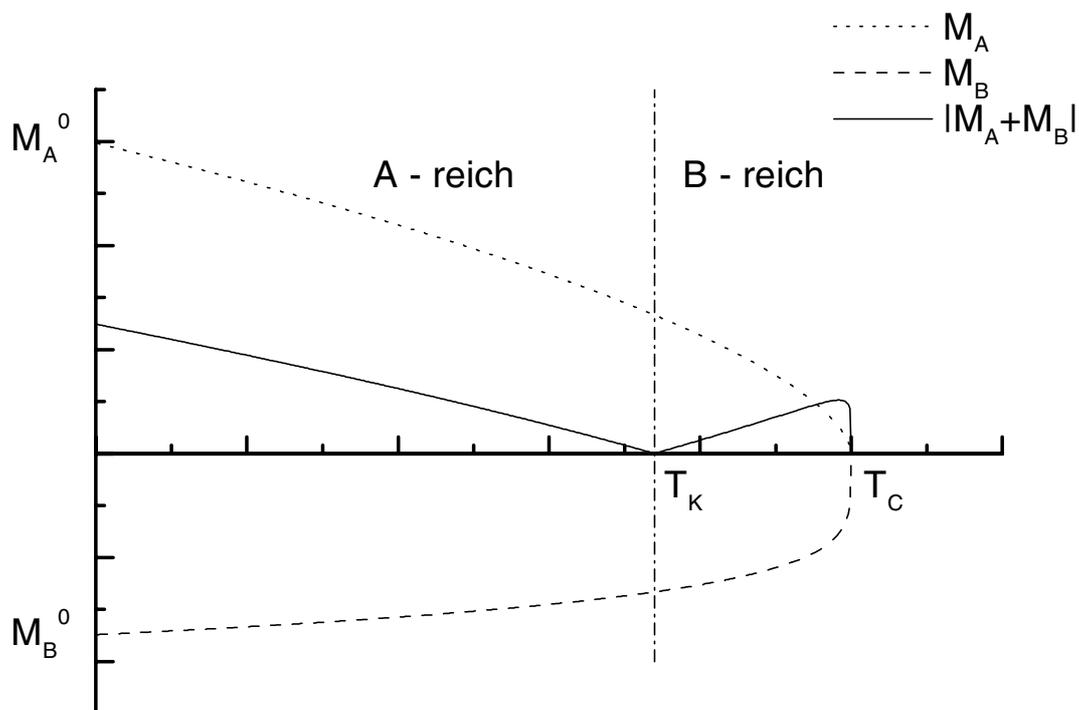
Bei kleinen äußeren Feldern verhalten sich Ferrimagnete wie Ferromagnete mit dem makroskopischen magnetischen Moment  $m = |m_A - m_B|$ . Mit wachsenden Feldern wird diese Anordnung energetisch ungünstig und die Momente orientieren sich um. Dabei kennt man zwei Möglichkeiten für diese Umordnung, den Spinflip und den Spinflop (vergleiche Abbildung 5).



**Abbildung 5:** Ferrimagnete haben zwei Möglichkeiten, wie sie sich in starken äußeren Feldern anordnen, den Spinflip und den Spinflop.

Der Spinflip ist dabei in der Magnetisierungskurve durch einen spontanen Sprung, der Spinflop durch einen flachen Anstieg gekennzeichnet.

Die beiden magnetischen Momente der Untergitter A und B haben üblicherweise eine unterschiedliche Temperaturabhängigkeit. Dies führt zu spezifischen  $M(T)$  Verläufen (vergleiche Abbildung 6). Bei bestimmten Konstellationen gibt es eine Temperatur  $T_K$ , bei der die Momente der Untergitter gerade gleich groß sind, und das gesamte magnetische Moment somit verschwindet. Diese Temperatur heißt Kompensationstemperatur. Das Auftreten einer Kompensationstemperatur wird oft als Nachweis einer antiferromagnetischen Kopplung benutzt.



**Abbildung 6:** Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung im Ferrimagneten: Bei bestimmten Anordnungen kann es zu einem Nulldurchgang der Magnetisierung kommen. Diese Temperatur heißt Kompensationstemperatur. Überwiegt die Magnetisierung des Untergitters A, so sagt man, die Probe ist A-reich.

## 2.6 Magnetismus von Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten

Magnetometrische Untersuchungen an Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten zeigten, daß ebenso wie in den Legierungsschichten eine Kopplung zwischen den magnetischen Momenten der Eisenschichten und denen der Seltenerdmetallschichten besteht. Dabei kommt es in voller Analogie zu den Legierungsschichten zu einer parallelen Ausrichtung der Momente, wenn die 4f - Schale des Seltenerdmetalls maximal 6 Elektronen besitzt, und zu einer antiparallelen Ausrichtung, falls sich in der 4f - Schale mindestens 7 Elektronen befinden. Überraschenderweise beschränkt sich diese magnetische Kopplung nicht nur auf die erste Grenzatomlage, sondern reicht bis zu drei Atomlagen ins Innere der Schichten [Sch93, Luk93]. Dies hat zur Folge, daß z.B. Terbium in Fe / Tb - Viellagenschichten bei Zimmertemperatur eine magnetische Ordnung aufweist, obwohl dessen Curietemperatur im Massivmaterial bei nur etwa 220 K liegt.

Bei den meisten Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten wird von einer spontanen Änderung der magnetischen Eigenschaften berichtet, wenn eine kritische Eisendicke überschritten wird. Die verwendeten Seltenerdmetalle waren dabei Gadolinium [Lan91], Praseodym [Hon95], Terbium [Pom94], Lanthan [Ros96], Cer [Thi92], Dysprosium [Yod88], Yttrium [Han93] Neodym [Sch98] und Samarium [Bru97]. Diese Änderung wird darauf zurückgeführt, daß das Eisen bei kleinen Schichtdicken zuerst in einer amorphen Phase aufwächst. Erst bei der kritischen Schichtdicke  $d_c$  kristallisiert es aus und ändert dadurch seine magnetischen Eigenschaften.  $d_c$  liegt dabei im Bereich von 2 bis 3 nm.

Die Curietemperatur der Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten ist deswegen stark von deren Einzellagendicken abhängig. Bei dicken Eiseneinzellagen ( $> 3$  nm) kommt bcc - Eisen in den Schichten vor und somit ist die Curietemperatur identisch mit der Curietemperatur von massivem Eisen. Schichten mit dünneren Eiseneinzellagen weisen dagegen erheblich niedrigere Ordnungstemperaturen auf (z. B.: Fe / Tb, Fe / Gd: ca 400 K, Fe / Y: ca 100 K [Are92]).

Sowohl Eisen / Seltenerdmetall - Legierungs- als auch Viellagenschichten sind dafür bekannt, daß sie oft eine starke senkrechte magnetische Anisotropie aufweisen. Das heißt, die Magnetisierung dieser Schichten orientiert sich ohne äußeres Feld senkrecht zur Schichtebene, obwohl in dieser Konfiguration starke entmagnetisierende Felder vorkommen. Die starke Anisotropie wird durch die hohen Bahndrehimpuls Momente, die in den Seltenerdmetallen vorkommen, verursacht. Um das Auftreten einer senkrechten Anisotropie der Schichten zu erklären, braucht

man allerdings eine zusätzliche Eigenschaft, welche die Schichtnormale zur ausgezeichneten Achse macht. In der Literatur wird dies unter anderem dadurch erklärt, daß in Legierungsschichten ein Überschuß an Eisen - Seltenerdmetall - Atompaaeren senkrecht zur Schichtebene ausgerichtet ist [Bec97]. Dieser Überschuß entsteht in Viellagenschichten an den Grenzflächen von selbst.

Die Ausnahme bei der senkrechten magnetischen Anisotropie bilden dabei Fe / Gd - Viellagenschichten. Dies ist leicht zu verstehen, wenn man bedenkt, daß Gadolinium mit seiner halb gefüllten 4f - Schale keinen Bahndrehimpuls aufweist. In der Tat findet man eine senkrechte magnetische Vorzugsrichtung von Fe / Gd - Viellagenschichten nur bei extrem kleinen Einzellagendicken [Sha90].

## 2.7 Molekularfeldtheorie zur Berechnung der Magnetisierung

Zur Berechnung der Magnetisierung in Viellagenschichten kann ein Modell verwendet werden, das auf einer Molekularfeldtheorie basiert [Cam93]. Die Grundannahme der Molekularfeldtheorie besteht darin, daß das magnetische Moment eines Atoms in einem Feld (dem Molekularfeld) ausgerichtet wird, das von den benachbarten magnetischen Momenten erzeugt wird. Die hier vorgestellte Molekularfeldtheorie dient speziell zur Berechnung von Magnetisierungszuständen in Viellagenschichten. Statt einzelnen Atomen werden hier ganze Atomlagen betrachtet. Zur Berechnung benötigt man im wesentlichen zwei Gleichungen.

Der mittlere Spin  $\langle S_i \rangle$  einer Atomlage ist gegeben durch

$$\langle \vec{S}_i \rangle = S_i^0 B_S \left( \frac{S_i^0 g_i \mu_B H_{eff}}{k_B T} \right) \quad (1)$$

Dabei ist  $S_i^0$  der Grundzustandsspin,  $B_S$  die Brillouinfunktion zum Spin  $S$ ,  $k_B$  die Boltzmannkonstante,  $T$  die Temperatur und  $H_{eff}$  ist gegeben durch:

$$\vec{H}_{eff}^i = \vec{H}_{ext} + \frac{2}{g_i \mu_B N_i} \sum_j J_{i,j} \langle \vec{S}_j \rangle \quad (2)$$

Hier ist  $H_{ext}$  das äußere Feld,  $g_i$  der Landé Faktor,  $\mu_B$  das Bohr'sche Magneton,  $J_{ij}$  die Austauschkonstante und  $N_i$  die Anzahl der Atome in der  $i$ -ten Atomlage.

Die Magnetisierung der ganzen Schicht berechnet sich durch

$$\vec{m}_{ges} = \sum_{i=1}^N \langle \vec{S}_i \rangle g_i N_i \mu_B \quad (3)$$

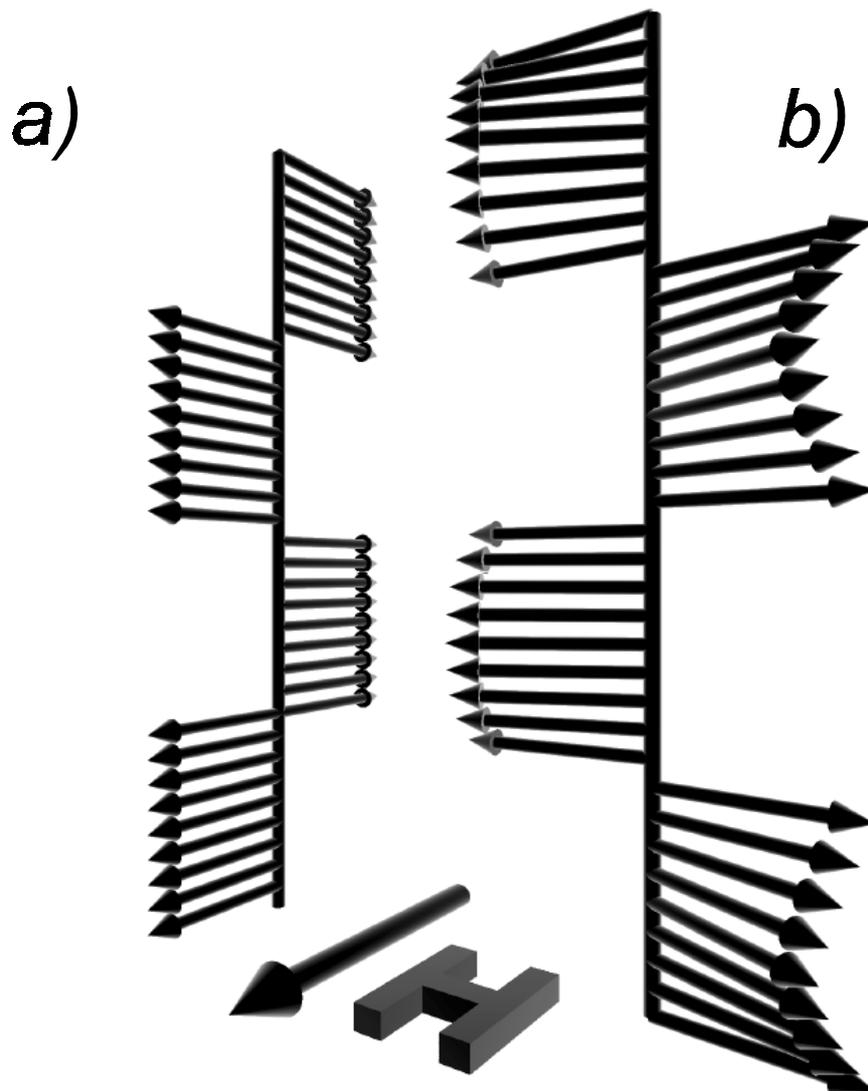
Für die Gleichungen (1) und (2) kann keine analytische Lösung gefunden werden. Deshalb müssen die Magnetisierungszustände numerisch berechnet werden.

## 2.8 Magnetisierungszustände in Fe / Gd - Viellagenschichten

Bereits Ende der 80'er Jahre erschienen Veröffentlichungen theoretischer Arbeiten von Camley et al. [Cam88] über das Magnetisierungsverhalten von Eisen / Gadolinium - Viellagenschichten. Die Autoren zeigten damals, daß es in diesen Schichten prinzipiell zwei verschiedene Magnetisierungszustände gibt, die sie als "twisted state" und "aligned state" bezeichneten.

Diese beiden Zustände werden in Abbildung 7 dargestellt. Beide Grafiken zeigen jeweils eine Viellagenschicht. Jeder Pfeil repräsentiert mit seiner Richtung und seiner Länge das magnetische Moment einer Atomlage. Die Abbildung symbolisiert eine Viellagenschicht, die aus je zwei Einzellagen Eisen und zwei Einzellagen Gadolinium aufgebaut ist. Die Einzellagen bestehen dabei aus jeweils neun Atomlagen.

Abbildung 7 a) zeigt den "aligned state". Man sieht, daß jeweils die Eisen-Lagen parallel, die Gadolinium Lagen antiparallel zum äußeren Feld ausgerichtet sind. Im Teilbild b) ist dagegen der "twisted state" abgebildet. Hier weisen die atomaren Momente weder exakt in die Richtung des äußeren Feldes noch exakt dagegen. Statt dessen schließen sie endliche Winkel ein. Die Momente an den Grenzflächen stehen dabei in einem Winkel von etwa  $180^\circ$  zueinander und von etwa  $90^\circ$  zum äußeren Feld. Die Momente drehen sich umso mehr in Feldrichtung, je weiter sie von der Grenzfläche entfernt sind.



**Abbildung 7:** Anordnung der atomaren Momente im aligned state a) und im twisted state b).

Hinweise auf die Existenz solcher Zustände erhielt man bereits bei der Magnetometrie, der Neutronenreflektometrie [Hah95], der Mößbauerspektroskopie [Saj94] und bei Magnetowiderstandsmessungen [Tak92]. Ebenso werden in theoretischen Arbeiten Auswirkungen auf die spezifische Wärmekapazität der Schichten vorhergesagt [Cam97]. In der Magnetometrie erkennt man den twisted state durch einer hohe Suszeptibilität der Magnetisierungskurven im Hochfeldbereich.

### 3. Schichtherstellung und experimentelle Methoden

#### 3.1 Schichtherstellung

Sämtliche im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Proben wurden durch Kathodenzerstäubung (Sputtern) angefertigt. Das Prinzip dieser Herstellungsmethode wird in Abbildung 8 kurz dargestellt.

Das zu beschichtende Substrat und das Beschichtungsmaterial in Form einer etwa 3 mm dicken Scheibe, das im weiteren als Target bezeichnet wird, befinden sich in einem mit Argon im Druckbereich von 0,1 - 1 Pa gefüllten Rezipienten. Legt man an das Target eine negative Spannung von 200 - 300 V an, so bildet sich ein Plasma aus Argonionen und Elektronen. Die positiv geladenen Argonionen werden in Richtung des Targets beschleunigt. Treffen sie auf das Target, so werden Atome aus diesem herausgeschlagen. Diese fliegen dann in Richtung des zu beschichtenden Substrats und lagern sich dort ab.

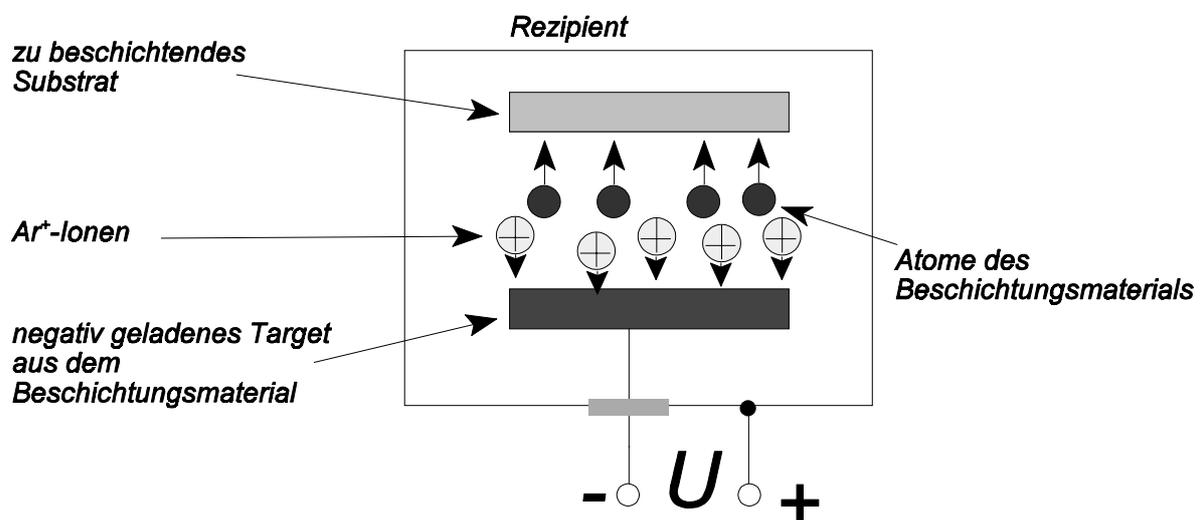


Abbildung 8: Prinzip der Kathodenzerstäubung.

Um bei einem niedrigerem Argondruck arbeiten zu können, wird unter das Target ein Permanentmagnet montiert, dessen Magnetfeld die Elektronen auf Kreisbahnen zwingt und somit deren Stoß- und Ionisationswahrscheinlichkeit in der Nähe des Targets erhöht. Man spricht dann von Magnetronsputtern. Dies hat den Vorteil, daß weniger Verunreinigungen in die Probe eingebaut werden. Die kinetische Energie der auf das Substrat auftreffenden Atome liegt im Bereich von einigen Elektronenvolt. Eine genauere Beschreibung der Kathodenzerstäubung findet man bei [Cho79].

In der verwendeten Sputteranlage befinden sich drei Magnetronsputterkathoden. Eine davon ist mit Eisen, eine mit dem Seltenerdmetall (Y, Gd, Dy), und eine mit dem Abdeckmaterial (Al, Ti = Korrosionsschutz) bestückt. Das zu beschichtende Substrat befindet sich auf einem drehbaren Probenhalter, der es erlaubt das Substrat jeweils über einer der Kathoden zu positionieren. Während der Probenpositionierung (Drehung des Probenhalters) wird das Substrat durch eine Blende abgedeckt. So kann vermieden werden, daß gleichzeitig von zwei verschiedenen Targets Atome auf das Substrat treffen und somit eine Legierungsschicht bilden. Um die Targets beim Ein- und Ausbringen der Substrate vor Oxidation und Kontamination zu schützen wurde die Anlage durch ein Schleusensystem erweitert, das einen Probenwechsel erlaubt, bei dem das Vakuum im Rezipienten erhalten bleibt. Die technischen Daten der Anlage können nachfolgender Tabelle entnommen werden.

Restgasdruck	$\sim 5 \cdot 10^{-7}$ Pa
Sputtergas	Argon 99,9999%
Sputterdruck	0,7 Pa
Targetdurchmesser	7,5 cm
Abstand Target-Substrat	15 cm

Die Sputterparameter der einzelnen Materialien sind:

	Fe	SE
Sputterleistung	70 W	50 W
Sputterrate	0,7 Å/s	1,5 - 2 Å/s
Targetreinheit	99,9 %	99,6 %

Als Substrate wurden bei den Fe / Y - Proben Quarzglas und bei den Fe / Gd- und den Fe / Dy - Viellagenschichten Silizium mit einer ca. 100 nm dicken Oxidschicht. Vor der Beschichtung wurden die Substrate einem Standard Reinigungsprozeß unterzogen. Dieser besteht aus jeweils 15 min Ultraschallbad in destilliertem Wasser, Aceton, Isopropanol und hochreinem Äthanol. Die Substrate werden unmittelbar vor dem Einbau in die Beschichtungsanlage aus dem Äthanol genommen und mit N<sub>2</sub> abgeblasen, um Lösungsmittelrückstände zu entfernen. Im Ultrahochvakuum (UHV) wurden die Substrate für etwa 6 h auf 200 °C geheizt, um die meisten Adsorbate zu desorbieren.

Die Zusammensetzung des Restgases wurde mit einem Massenspektrometer bestimmt. In diesem wurde hauptsächlich die Masse 28 detektiert. Das Restgas besteht also aus Stickstoff oder Kohlenmonoxid.

Zur Schichtherstellung wurden die Substrate auf -100 °C gekühlt, um eine Interdiffusion der Schichten weitgehend zu unterbinden. Die Viellagenschicht entsteht dadurch, daß der Proben-teller rechnergesteuert jeweils über eines der Targets positioniert wird. Dann öffnet sich für eine genau festgelegte Zeit (= Einzellagendicke / Sputterrate) die Blende und erlaubt die Abscheidung des jeweiligen Elements auf dem Substrat. Da die Depositionsrate im wesentlichen von der Sputterleistung abhängt, wird die Stromversorgung der Sputterkathoden auf konstante Leistung geregelt.

Um die Viellagenschicht vor Korrosionseinflüssen zu schützen, wird als Abschluß eine etwa 8 nm dicke Abdeckschicht aufgebracht. Diese besteht aus Aluminium oder Titan. Von diesen Materialien ist bekannt, daß sie durch Reaktion mit Luft passivieren. Das Titan bildet dabei TiN, das Aluminium Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Um einen ausreichenden Schutz der Viellagenschicht zu gewährleisten, wurde anschließend eine Augertiefenprofilanalyse durchgeführt. Dabei zeigte sich, daß die Abdeckung ausreichend dicht ist. Wegen der verschiedenen Untersuchungsmethoden wurden verschiedene Abdeckmaterialien benutzt. Dabei zeichnet sich das TiN dadurch aus, daß es bei der Röntgenbeugung keine störenden Reflexe hat. Wegen der niedrigeren Ordnungszahl ist Aluminium dagegen bei Schichten die mit Elektronenbeugung untersucht werden vorzuziehen.

Es wurden Schichtserien mit konstanter Seltenerdmetalldicke und variabler Eisenlagendicke hergestellt. Da bei den meisten Messungen die Eigenschaften des Eisens bestimmt werden sollten, wurde bei Fe / Dy- und Fe / Gd - Viellagenschichten darauf geachtet, daß in den Schichten die gleiche Gesamtstoffmenge an Eisen ist. Das heißt, die Schichten mit dünneren Eiseneinzellagen bestehen aus einer höheren Anzahl von Doppellagen.

Folgende Schichtsysteme wurden hergestellt und charakterisiert.

**Fe/Y-Viellagenschichten**

$d_{\text{Fe}}/\text{\AA}$	$d_{\text{Y}}/\text{\AA}$	$n_{\text{DL}}$
6,9	29	10
10	28	10
14	28	10
17	28	10
21	29	10
24	28	10
28	30	10
33	28	10
72	28	10

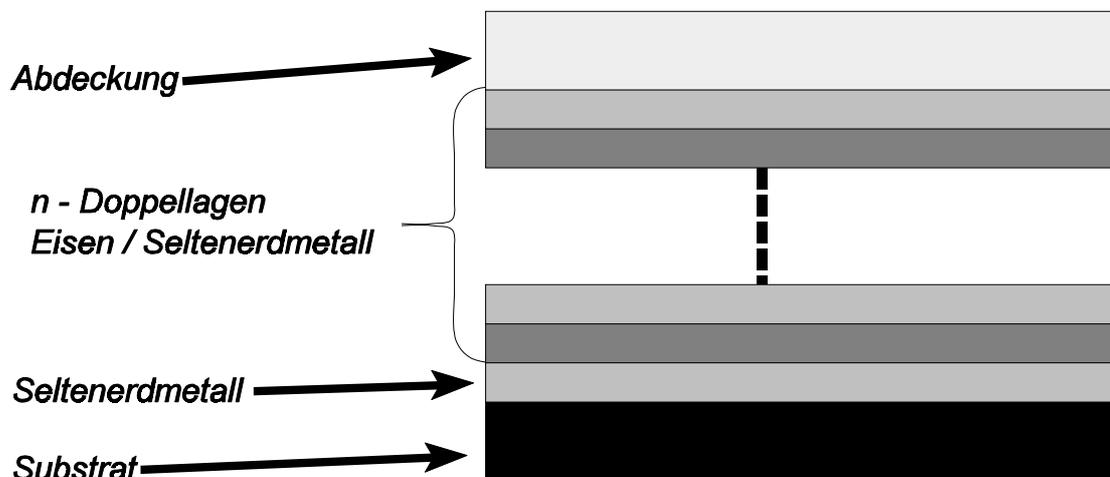
**Fe/Gd-Viellagenschichten**

$d_{\text{Fe}}/\text{\AA}$	$d_{\text{Gd}}/\text{\AA}$	$n_{\text{DL}}$
5,6	42	30
11	39	30
17	40	20
22	42	15
27	40	12
29	40	12
30	40	11
33	43	10
36	42	9
41	43	8
110	42	3

**Fe/Dy-Viellagenschichten**

$d_{\text{Fe}}/\text{\AA}$	$d_{\text{Dy}}/\text{\AA}$	$n_{\text{DL}}$
9	38	30
14	37	20
18	37	15
23	40	12
23	39	12
26	36	11
29	37	10
34	36	9
36	35	8
44	40	7
52	39	6
93	35	3

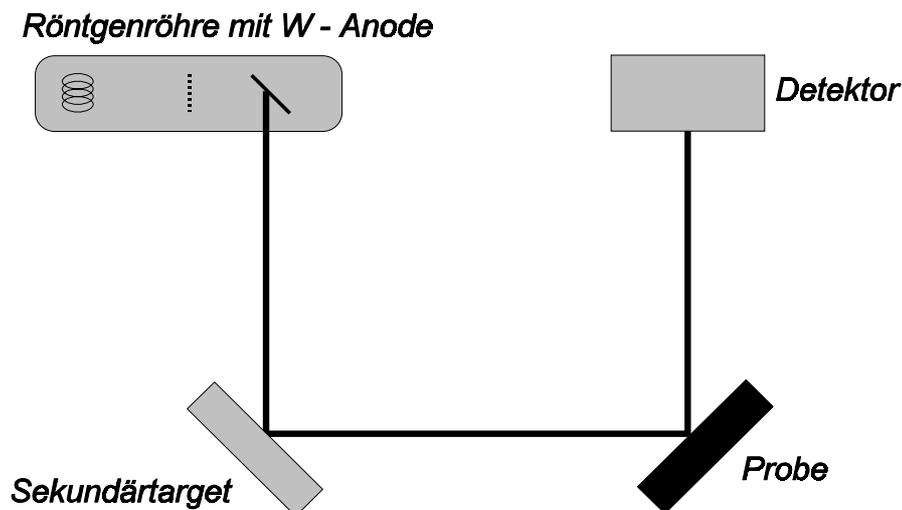
Der Schichtaufbau ist in Abbildung 9 ersichtlich.



**Abbildung 9:** Aufbau der Viellagenschichten: Das Eisen ist jeweils oben und unten zu einem Seltenerdmetall benachbart.

### 3.2 Röntgenfluoreszenzanalyse

Nach der Schichtherstellung wurde die Massenbelegung der einzelnen Elemente mit der Röntgenfluoreszenzanalyse (XFA) bestimmt. Der prinzipielle Aufbau der Röntgenfluoreszenzanlage ist in Abbildung 10 dargestellt.



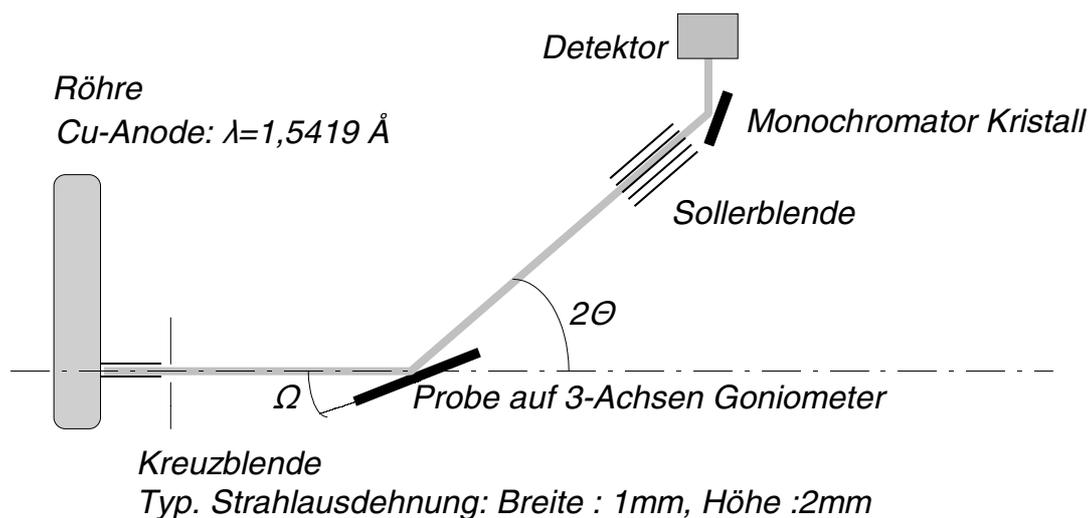
*Abbildung 10: Prinzipieller Aufbau der Röntgenfluoreszenzanlage.*

Dabei wird die Schicht mit Röntgenstrahlen bestrahlt, deren Energie knapp über den Absorptionskanten der zu messenden Elemente liegt. Gemessen wird die Intensität der Fluoreszenzstrahlung der zu bestimmenden Elemente. Diese ist proportional zur Schichtdicke, falls es zu keiner merklichen Absorption der Röntgenstrahlung in der Schicht kommt, das heißt solange die Schicht nicht zu dick ist ( $< 200$  nm). Die im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Schichten erfüllen diese Voraussetzung [Ker90].

Das Verhältnis zwischen der Masse des jeweiligen Elements und der Intensität der Fluoreszenzstrahlung wird durch die Messung von Standardproben bestimmt, deren Masse durch Wägung genau bestimmt wurde. Über diesen Eichfaktor kann die Massenbelegung der Viellagenschichten mit einer Genauigkeit von etwa 2 - 3 % gemessen werden. Werden im folgenden Schichtdicken angegeben, so beziehen sich diese, falls nicht anders angegeben, auf Messungen der Massenbelegung durch die Röntgenfluoreszenzanalyse. Die geometrische Dicke wurde über die Massendichte des Massivmaterials bestimmt.

### 3.3 Röntgenbeugung

Die Röntgenbeugung ist die klassische Methode zur Analyse von Kristallstrukturen. In unserem Fall wurde die Bragg - Brentano Meßmethode verwendet. Dabei trifft monochromatische Röntgenstrahlung ( $\text{Cu K}_\alpha$ ) auf die Probe. Die reflektierte Strahlung wird im Winkel  $2\theta$  zum einfallenden Strahl detektiert (vgl. Abbildung 11). Um nur die Strahlung, die exakt im Winkel  $2\theta$  reflektiert wird zu detektieren, befindet sich vor dem Detektor eine sogenannte Sollerblende, ein Bündel von dünnen Platten aus hoch absorbierendem Material mit dünnen Schlitzen. Die inelastisch gestreute Strahlung wird durch einen Graphit-Monochromator gefiltert.



Philips PW 3710

Abbildung 11: Prinzip eines Röntgendiffraktometers.

Trägt man die Intensität der gestreuten Röntgenstrahlung gegen den Streuwinkel  $2\Theta$  auf, so erwartet man Peaks an den Stellen, an denen die Bragg - Bedingung

$$\sin\Theta = \frac{n\lambda}{2d} \quad (4)$$

erfüllt ist. Dabei ist  $\lambda$  die Wellenlänge der Röntgenstrahlung,  $n$  die Beugungsordnung und  $d$  ein Netzebenenabstand des beobachteten Kristalls.

Die meisten Proben, die im Rahmen dieser Arbeit hergestellt wurden, sind amorph bis polykristallin. Deshalb hängt die gestreute Intensität kaum vom Einfallswinkel  $\Omega$  des Röntgenstrahls ab. Das Si - Substrat ist dagegen ein Einkristall. Man erwartet daher in einigen Kristallrichtungen Reflexe, die die Intensität der Reflexe der Viellagenschicht um mehrere Größenordnungen übersteigen. Deshalb wurden die Proben nicht exakt in einer Kristallrichtung des Siliziums ausgerichtet. Es wurde ein konstanter Einfallswinkel von  $\Omega = 10^\circ$  gewählt, bei dem kaum störende Substratpeaks vorkommen. Durch das Diffraktometer wird die elastisch gestreute Intensität der Probe in Abhängigkeit des Streuwinkels  $2\Theta$  aufgenommen.

Durch die endliche Kristallitgröße sind die Beugungsreflexe verbreitert. Nach der sogenannten Scherrer - Formel [War30] gilt für die Peak-Breite

$$\Delta(2\Theta) = \frac{0,94 \cdot \lambda}{D_C \cos \theta} \quad (5)$$

Dabei ist  $\Delta(2\Theta)$  die Halbwertsbreite [rad],  $\lambda$  die Röntgenwellenlänge, und  $D_C$  die kohärente Dicke, das heißt der Kristallitdurchmesser in Richtung des Streuvektors.

### 3.4 Röntgenreflektometrie

Die Röntgenreflektometrie stellt eine geeignete Methode dar, um die Viellagenstruktur ohne Zerstörung zu untersuchen. Der Aufbau der Messung ist der Röntgenbeugung sehr ähnlich. Der Hauptunterschied besteht darin, daß der Meßbereich bei kleineren Winkeln ( $0.5^\circ < 2\theta < 10^\circ$ ) liegt. Das prinzipielle Aufbau der Röntgenreflektometrie (oder auch Röntgenkleinwinkelbeugung) ist in Abbildung 12 zu sehen.

Man betrachtet die Teilreflexionen an den inneren Grenzflächen der Schichtsysteme. Kommt es zwischen den teilreflektierten Strahlen zu einer konstruktiven Interferenz, so mißt man im Detektor eine erhöhte Intensität. Analog zur Röntgenbeugung gilt hier die modifizierte Braggbedingung

$$\sin^2\Theta = \left( \frac{m\lambda}{2D} \right)^2 + 2\bar{\delta}, \quad (6)$$

wobei der zusätzliche Term  $2\bar{\delta}$  die Brechung des Röntgenstrahls an der Schichtoberfläche berücksichtigt.

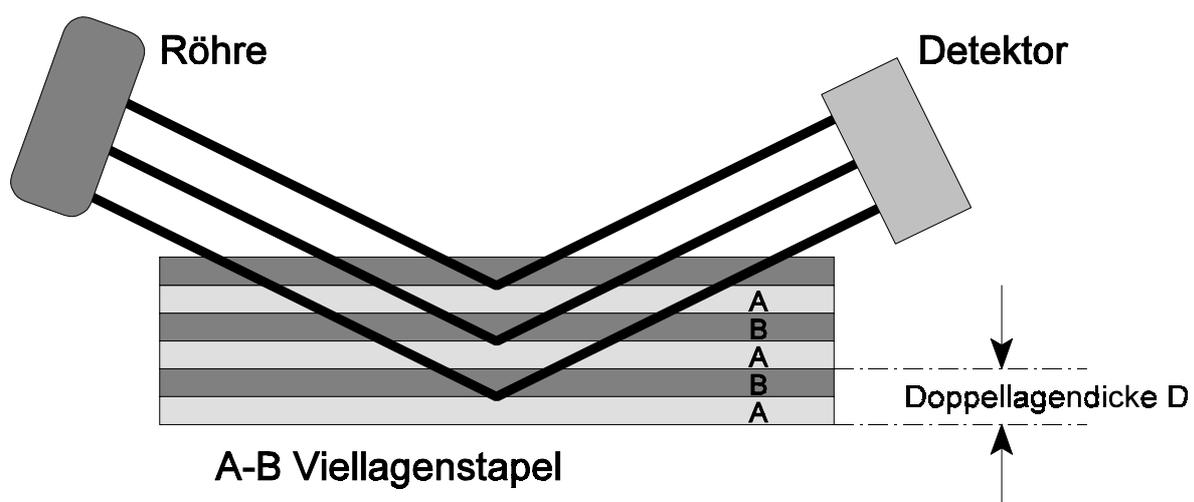


Abbildung 12: Prinzip der Röntgenreflektometrie an Viellagenschichten.

Durch eine Standardauswertung der Röntgenreflektometrie kann man die Doppellagendicke  $D$  der Viellagenschicht bestimmen. Allerdings erhält man wesentlich mehr Informationen, wenn man die Meßkurve durch ein theoretisches Modell anpaßt. Das Modell, das dazu verwendet wird, ist die Distorted Wave Born Approximation (DWBA) [Hol93].

Als Fitparameter erhält man neben den Lagendicken die RMS Rauigkeit der Lagen und eine inplane - Korrelationslänge der Rauigkeit [Dor96, Chl97]. Die RMS (**R**oot **M**ean **S**quare) - Rauigkeit ist definiert durch:

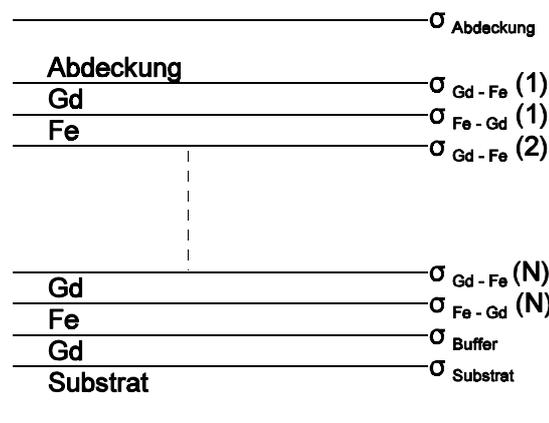
$$P(z) = \frac{1}{2\pi\sigma} \exp\left(-\frac{z^2}{2\sigma^2}\right) \quad (7)$$

Dabei ist  $z(x,y)$  das Rauigkeitsprofil der Oberfläche,  $P(z)$  die Wahrscheinlichkeitsdichte von  $z(x,y)$ , und  $\sigma$  die RMS - Rauigkeit.

In dem Modell werden nicht alle Grenzflächen einzeln betrachtet. Statt dessen nimmt man an, daß sich die Rauigkeit der  $j$ -ten Grenzfläche  $\sigma_j$  gemäß

$$\sigma_j := \sqrt{\sigma_N^2 + (N-j)\Delta\sigma|\Delta\sigma|} \quad [\text{Å}] \quad (8)$$

berechnen läßt. Hier ist  $\sigma_N$  die Rauigkeit der untersten Lage und  $\Delta\sigma$  die sogenannte inkrementelle Rauigkeit (vgl. Abbildung 13).

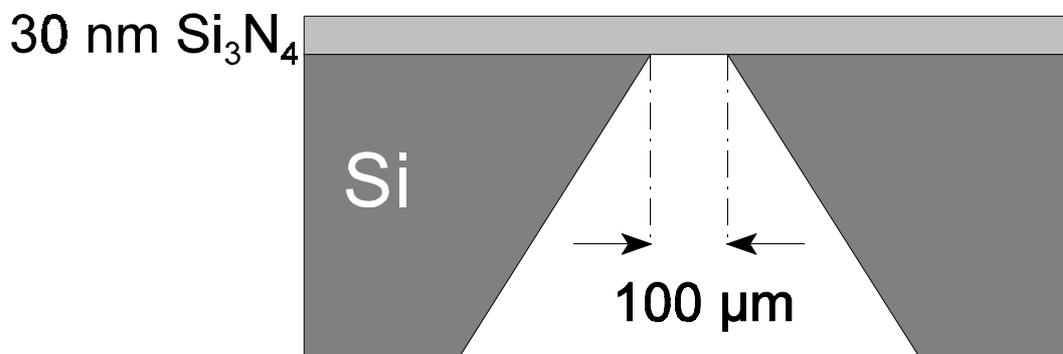


**Abbildung 13:** Zur Nomenklatur der Schichtrauhigkeiten: Die Rauigkeit der einzelnen Lagen wird gemäß Gleichung 8 definiert durch die Rauigkeit der untersten Lage  $\sigma_N$  und einer inkrementellen Rauigkeit  $\Delta\sigma$ .

### 3.5 Elektronenbeugung

Zusätzlich zur Röntgenbeugung wurde an den Schichten Elektronenbeugung durchgeführt. Im Gegensatz zur Röntgenstrahlung zeichnen sich die Elektronen zum einen durch einen wesentlich erhöhten Streuquerschnitt und zum anderen durch kürzere Wellenlängen aus. Die Elektronenbeugung wurde nicht wie die Röntgenbeugung in Reflexions-, sondern in Transmissionsgeometrie durchgeführt. So ergänzen sich die beiden Meßmethoden gut: Bei der Röntgenbeugung steht der Beugungsvektor nahezu senkrecht auf der Schichtebene. Man erhält dadurch Aussagen über die vertikale Korrelation der Atome. In der Elektronenbeugung liegt der Beugungsvektor dagegen in der Schichtebene, so daß man daraus Informationen über die laterale Verteilung der Atome gewinnt.

Da die Schichten transparent für Elektronen sein müssen, wurden spezielle Substrate verwendet (vgl. Abbildung 14).



**Abbildung 14:** Substrate für die Elektronenbeugung. In der Mitte des Substrats befindet sich ein  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$  großes für Elektronen transparentes Fenster. Die Viellagenschicht wird auf das Siliziumnitrid gesputtert.

Diese bestehen aus Silizium, das auf der Vorderseite mit 30 nm Siliziumnitrid beschichtet ist. Von hinten wird das Silizium weggeätzt. Der Ätzprozeß läuft in verschiedenen Kristallrichtungen mit unterschiedlicher Geschwindigkeit ab. Dies führt zu pyramidenförmigen Ätzgruben im Substrat. Das Siliziumnitrid wird nicht geätzt und bleibt als  $100 \times 100 \mu\text{m}^2$  große und 30 nm

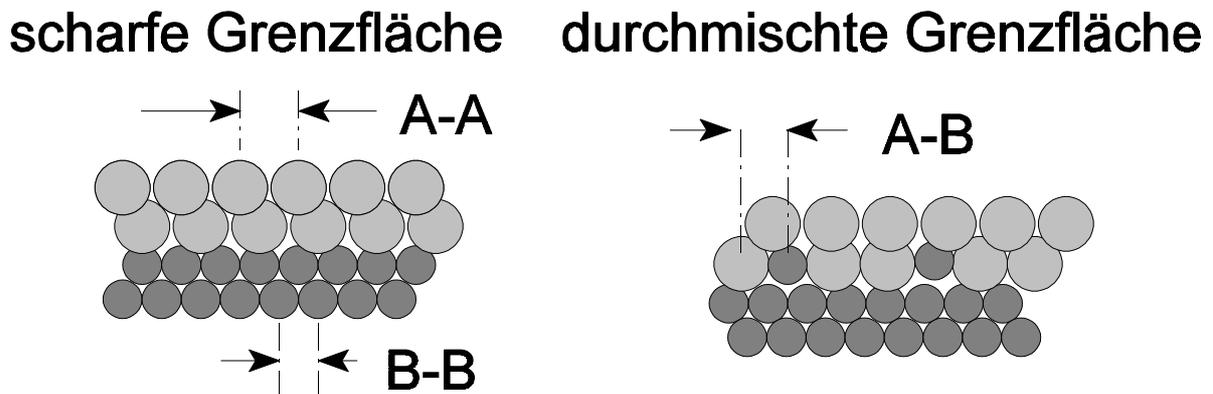
dicke Membran übrig [Bru96].

Die Elektronenbeugung wurde in einem 300 keV - Elektronenmikroskop durchgeführt. Die Elektronen haben somit eine De Broglie - Wellenlänge von  $\lambda_{DB} = 2$  pm. (Röntgenbeugung:  $\lambda = 154$  pm). Zur Auswertung der Elektronenbeugung wurde das Beugungsbild fouriertransformiert. Man erhält dann die sogenannte laterale Paarverteilungsfunktion:

$$g(\vec{r}) = \mathcal{P}(\vec{r}) - \rho_0 \quad (9)$$

Dabei ist  $\mathcal{P}(\vec{r})$  die mittlere Teilchendichte in Richtung des Vektors  $\vec{r}$  im Abstand  $r$  zu einem beliebigen Zentralatom und  $\rho_0$  die makroskopische Teilchendichte der Probe. Die Amplitude von  $g(r)$  ist ein Maß für die Häufigkeit, in der ein bestimmter Atomabstand  $r$  in der durchstrahlten Probe vorkommt. Da der Streuvektor in der Schichtebene liegt, werden nur Atompaare in der Schichtebene betrachtet. Damit ist diese Methode auch geeignet, die Durchmischung von Grenzflächen zu detektieren, wie in der nachfolgenden Abbildung 15 gezeigt wird.

In kristallinen Viellagenschichten mit scharfen Grenzflächen erhält man in der Paarverteilung



**Abbildung 15:** Bestimmung der Grenzflächendurchmischung: Je schärfer die Grenzfläche ist, desto weniger A-B Abstände werden in der lateralen Paarverteilungsfunktion detektiert.

nur dort Maxima, wo die festen Nachbarabstände (A-A, B-B vgl. Abbildung 15) der beteiligten Kristalle liegen. Ist die Grenzfläche dagegen durchmischte, so detektiert man auch Mischabstände (A-B).

Außer zur Feststellung, ob die Grenzflächen vermischt sind, ist die Methode auch besonders zur Bestimmung der Reichweite der kristallinen Ordnung geeignet. Diese erkennt man an dem Radius  $r$ , ab dem die Paarverteilungsfunktion  $g(r)$  nicht mehr moduliert ist. Bei größeren Radien kommen alle Abstände gleich oft vor, das heißt es liegt keine kristalline Ordnung mehr vor. Näheres zur Methode der lateralen Paarverteilungsfunktion findet man bei [Tew94, Zwe96, Bru96].

### 3.6 Mößbauerspektroskopie

Die Mößbauerspektroskopie ist eine sehr nützliche Methode zur Gewinnung von Aussagen über den Magnetismus auf mikroskopischer Ebene weil der Atomkern als Sonde benutzt wird. Dieser spürt überwiegend den Einfluß seiner direkt benachbarten Elektronen, das heißt die Messmethode ist sehr lokal. Der Aufbau der Mößbauerspektroskopie wird in Abbildung 16 erläutert.

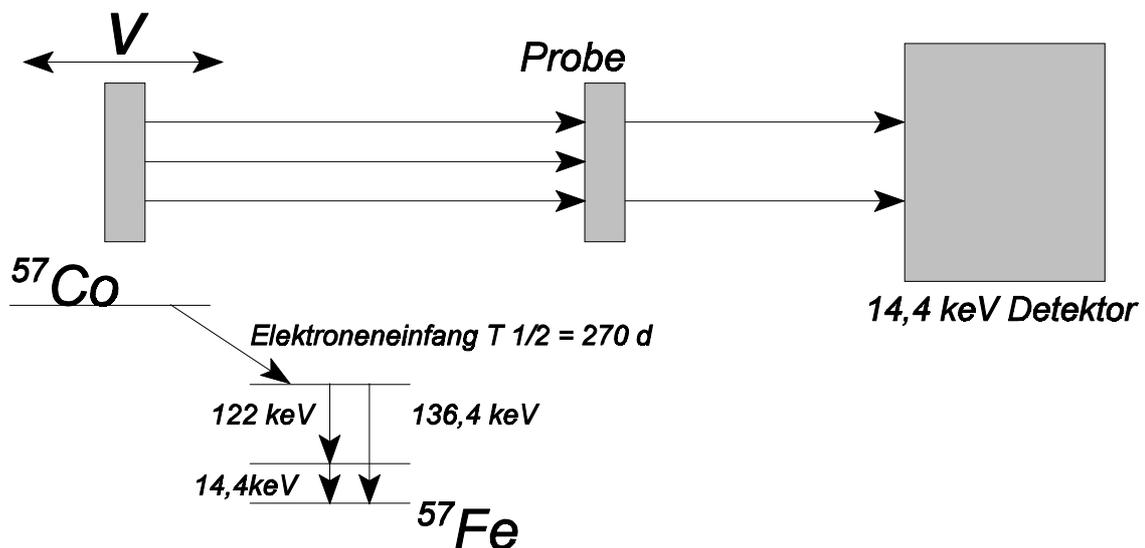


Abbildung 16: Prinzip der Mößbauerspektroskopie an Eisen.

Der grundlegende Effekt bei der Mößbauerspektroskopie ist, daß  $\gamma$ -Quanten, die aus einer

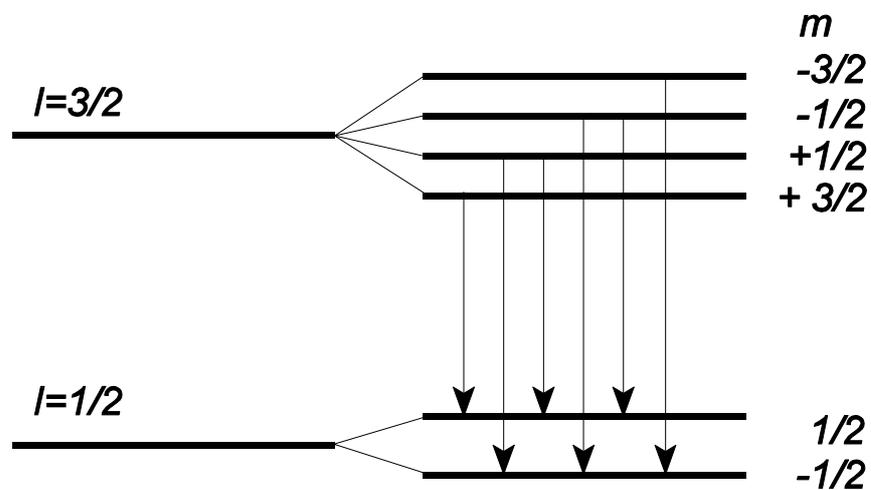
angeregten  $^{57}\text{Fe}$  Quelle emittiert werden, resonant in einem anderen  $^{57}\text{Fe}$  absorbiert werden.

Dies ist nicht selbstverständlich, da durch den Rückstoß bei der Emission kinetische Energie auf den Kern übertragen wird. Dadurch hat das  $\gamma$  - Quant aus dem Emitter nicht mehr genügend Energie um das  $^{57}\text{Fe}$  im Absorber aus dem Grundzustand anzuregen. Durch den Einbau des Eisens in den Festkörper wird dies unterbunden und der Rückstoß kann vom gesamten Festkörper aufgenommen werden. So vollziehen sich Emission und Absorption des  $\gamma$  - Quants mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit rückstoßfrei [Gon75]. Die Linienbreite des Mößbauerübergangs ist daher im wesentlichen durch die endliche Lebensdauer des angeregten Zustands bestimmt.

Je nach Umgebung des Kerns sind dessen Energieniveaus etwas verschoben oder aufgespalten. Im ersten Fall spricht man von Isomerieverschiebung, die auf die Überlappung der 1S-Wellenfunktion der Elektronenhülle des Atoms mit dem Kern zurückzuführen ist. Im zweiten Fall ist ein elektrischer Feldgradient am Kernort (= Quadrupolaufspaltung) oder ein Magnetfeld (= Hyperfeinaufspaltung) verantwortlich. Um die verschobenen Energien zu detektieren, versetzt man die Quelle in Bewegung. Dadurch wird die Energie des ankommenden  $\gamma$  - Quants dopplerverschoben. Bewegt man die Quelle mit verschiedenen Geschwindigkeiten, so erhält man verschiedene Anregungsenergien.

Traditionell mißt man die Absorption der  $\gamma$  - Quanten in Abhängigkeit von der Quellengeschwindigkeit. Anstatt der Absorption der  $\gamma$  - Quanten in Transmission kann man auch Konversionselektronen in Streugeometrie detektieren (CEMS: **C**onversion **E**lectron **M**össbauer **S**pectroscopy). Die Konversionselektronen stammen von der Relaxation des 14,4 keV - Zustands der Probe. Besonders bei dünnen Schichten ergeben sich durch diese Meßmethode im Hinblick auf die Signalstärke Vorteile [Bay89]. Deshalb wurde sie hier eingesetzt.

Speziell zur Untersuchung des Magnetismus der Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten wurde die magnetische Hyperfeinaufspaltung bestimmt. In massivem  $\alpha$  - Eisen liegt bei 0 K ein Hyperfeinfeld von etwa 33,9 T (33 T bei 298 K) vor [Vio71]. Dieses führt im Übergang  $I = 3/2$  nach  $I = 1/2$  mit den Auswahlregeln  $\Delta m = 0, \pm 1$  zu einem Sextett in der Mößbauerspektroskopie (vgl. Abbildung 17). Das magnetische Hyperfeinfeld ist in erster Näherung proportional zum magnetischen Moment des Eisens. Damit kann die Mößbauerspektroskopie als lokales Magnetometer verwendet werden.



**Abbildung 17:** Aufspaltung der Kernniveaus von  $^{57}\text{Fe}$  im Magnetfeld. Nach den Auswahlregeln sind 6 Übergänge erlaubt

Als Quelle wurde  $^{57}\text{Co}$  verwendet, das in einer Rhodium Matrix eingebettet ist. Bei dieser Quelle gibt es weder eine Quadrupolaufspaltung und noch eine Hyperfeinaufspaltung vor. Die Quelle ist also quasi monochromatisch.

### 3.7 SQUID

Ein SQUID (Superconducting Quantum Interferometer Device) ist ein universelles Gerät zur Bestimmung der magnetischen Eigenschaften von dünnen magnetischen Proben. Das Gerät ist sehr empfindlich und kann magnetische Momente, die in der Größenordnung von einer Monolage Eisen auf der Fläche eines Quadratzentimeters liegen, leicht detektieren. Prinzipiell wird nicht das magnetische Moment der Probe, sondern das Streufeld, das von diesem ausgeht gemessen. Dieses ist proportional zum Moment der Probe. Für verschiedene Probengeometrien muß ein entsprechender Geometriefaktor eingeführt werden.

Den Aufbau des verwendeten SQUID zeigt Abbildung 18.

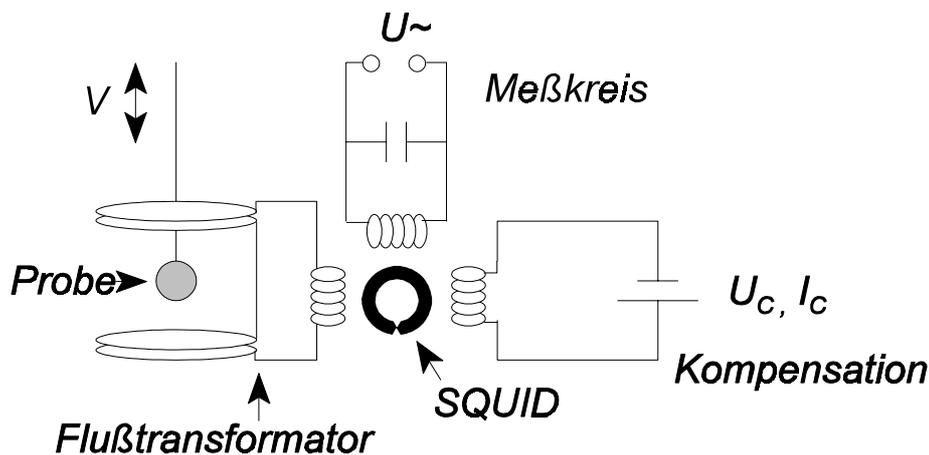


Abbildung 18: Aufbau des SQUID - Magnetometers..

Das verwendete SQUID - Magnetometer funktioniert nach folgendem Prinzip [Buc90]: Der magnetische Fluß  $\phi_p$ , der von der Probe ausgeht, wird von zwei supraleitenden Spulen aufgenommen und über den Flußtransformator in das eigentliche SQUID eingekoppelt. Dieses besteht aus einem supraleitenden Ring, der an einer Stelle, dem sogenannten "weak link" durch einen dünnen Isolator unterbrochen ist. Durch den weak link wird der kritische Fluß  $\phi_c$  erniedrigt, bei dem ein Flußquant in den Ring eindringen kann. Zusätzlich zum Fluß von der Probe wird von einem Schwingkreis (= Meßkreis) ein hochfrequenter Fluß  $\phi_{\sim}$  eingekoppelt, so daß im SQUID der Gesamtfluß  $\phi_p + \phi_{\sim}$  anliegt. Dieser führt dazu, daß der kritische Fluß im SQUID periodisch mit der Frequenz von  $\phi_{\sim}$  überschritten wird und dabei Spannungspulse im

Meßkreis induziert werden. Die Häufigkeit der Spannungspulse, die von  $\phi_p$  abhängt, ändert die Spannung im Meßkreis. Über einen Kompensationskreis wird diese Spannung konstant gehalten, indem im SQUID über eine Spule ein Fluß mit entgegengesetztem Vorzeichen von  $\phi_p$  induziert wird. Der dafür notwendige Strom ist proportional zu der Flußänderung, die durch die Bewegung der Probe entsteht und kann somit als Meßsignal verwendet werden.

Im Meßbetrieb wird die Probe durch die zwei entgegengesetzt gepolten Spulen bewegt. Der dabei aufgenommene Kompensationsstrom geht daher durch ein Minimum und ein Maximum. Die Differenz des Spulenstroms im Minimum und im Maximum ist proportional zum Fluß, der von der Probe erzeugt wird und somit auch proportional zum magnetischen Moment der Probe.

Mit dem zur Verfügung stehenden Gerät kann das magnetische Moment der Probe in Abhängigkeit von Temperatur und äußerem Feld bestimmt werden. Der Meßbereich erstreckt sich dabei von -5 T bis + 5 T und von 10 K bis 400 K.

Für die in dieser Arbeit gezeigten Meßkurven wurde die Probe zuerst auf die Meßtemperatur stabilisiert und in einem Feld von 5 T gesättigt. Die Meßpunkte wurden dann in absteigender Reihenfolge bis zum Feld 0 durchfahren.

## 4. Struktur der Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten

Ein Schwerpunkt dieser Arbeit war die umfassende strukturelle Charakterisierung der Schichtsysteme, insbesondere der amorphen Phase des Eisens. Prinzipiell könnte die Änderung magnetischen Eigenschaften des Eisens bei der kritischen Schichtdicke auch auf eine Durchmischung und Legierungsbildung der Einzellagen an den Grenzflächen zurückgeführt werden. Dies kann jedoch nahezu ausgeschlossen werden, wie in den nachfolgenden Kapiteln gezeigt wird.

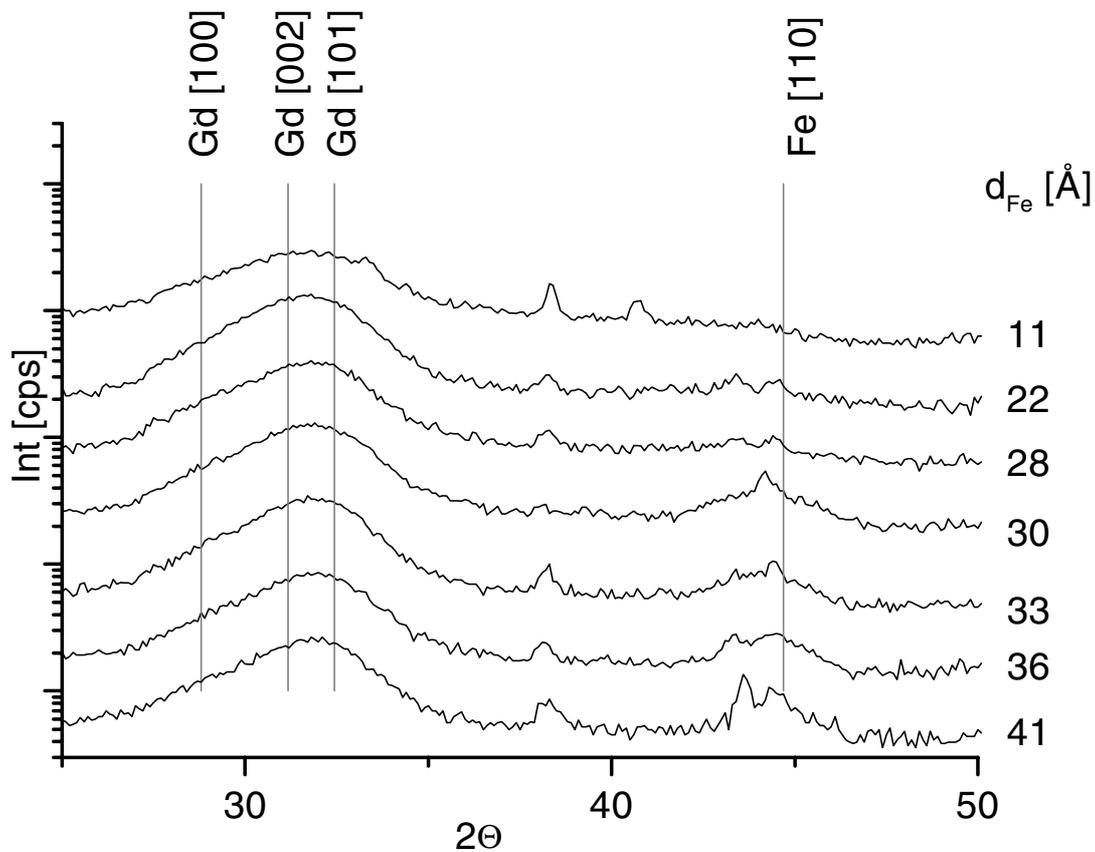
Die wichtigsten Ergebnisse werden im folgenden kurz vorgestellt. Untersucht wurden Kristallinität, Ordnungsreichweite und Viellagenstruktur der Schichtsysteme. Dabei werden stellvertretend für alle Schichtsysteme die Ergebnisse an Fe / Gd - Viellagenschichten gezeigt. Die strukturellen Untersuchungen an den Fe / Dy- und den Fe / Y - Viellagenschichten zeigen sehr ähnliche Ergebnisse.

### 4.1 Röntgenbeugung

Die Ergebnisse der Röntgenbeugung an Fe / Gd - Viellagenschichten sind in Abbildung 19 zu sehen. Aufgetragen ist dabei auf der Abszisse der Streuwinkel  $2\theta$  und auf der Ordinate die gestreute Intensität. Die neun Graphen gehören zu neun verschiedenen Viellagenschichten, die sich nur in ihrer Eiseneinzellagendicke und der Anzahl der Doppellagen unterscheiden ( $d_{ges}(Fe) = const$ ). Zur besseren Übersichtlichkeit wurden die Graphen vertikal verschoben.

Man erkennt, daß ab einer Eiseneinzellagendicke von 30 Å ein breiter Peak auftaucht, der dem Eisen - [110] - Netzebenenabstand entspricht. Wie bereits oben erwähnt, enthalten alle Schichten dieselbe Stoffmenge an Eisen. Deshalb kann das Erscheinen des Eisen - [110] - Peaks bei  $2\theta = 44,7^\circ$  nicht darauf zurückgeführt werden, daß die Schichten von oben nach unten schrittweise mehr Eisen enthalten. Es kann also davon ausgegangen werden, daß sich die Struktur von Fe / Gd - Viellagenschichten mit Eiseneinzellagen unterhalb von 30 Å von der dickeren Eiseneinzellagen unterscheidet. Ein Übergang amorph → kristallin kann hier noch nicht zweifelsfrei nachgewiesen werden, da das Auftreten des Peaks auch in einer Änderung der Textur des Eisens begründet sein könnte.

Durch die Auswertung der Eisen [110] Peaks mit der Scherrerformel (5) erhält man Kristallitdurchmesser, die in etwa der Schichtdicke entsprechen. Dies war auch so zu erwarten, da der



**Abbildung 19:** Röntgenbeugung an Fe / Gd - Viellagenschichten. Die Gadoliniumdicke beträgt jeweils etwa 40 Å. Die Dicke der Eisenlagen ist neben dem jeweiligen Graphen angegeben.

Streuvektor nahezu senkrecht auf der Schichtebene steht. Daraus kann gefolgert werden, daß sich die kristalline Kohärenz nicht über die Einzellagen hinaus fortsetzt, wie es zum Beispiel beim pseudomorphen Wachstum der Fall wäre.

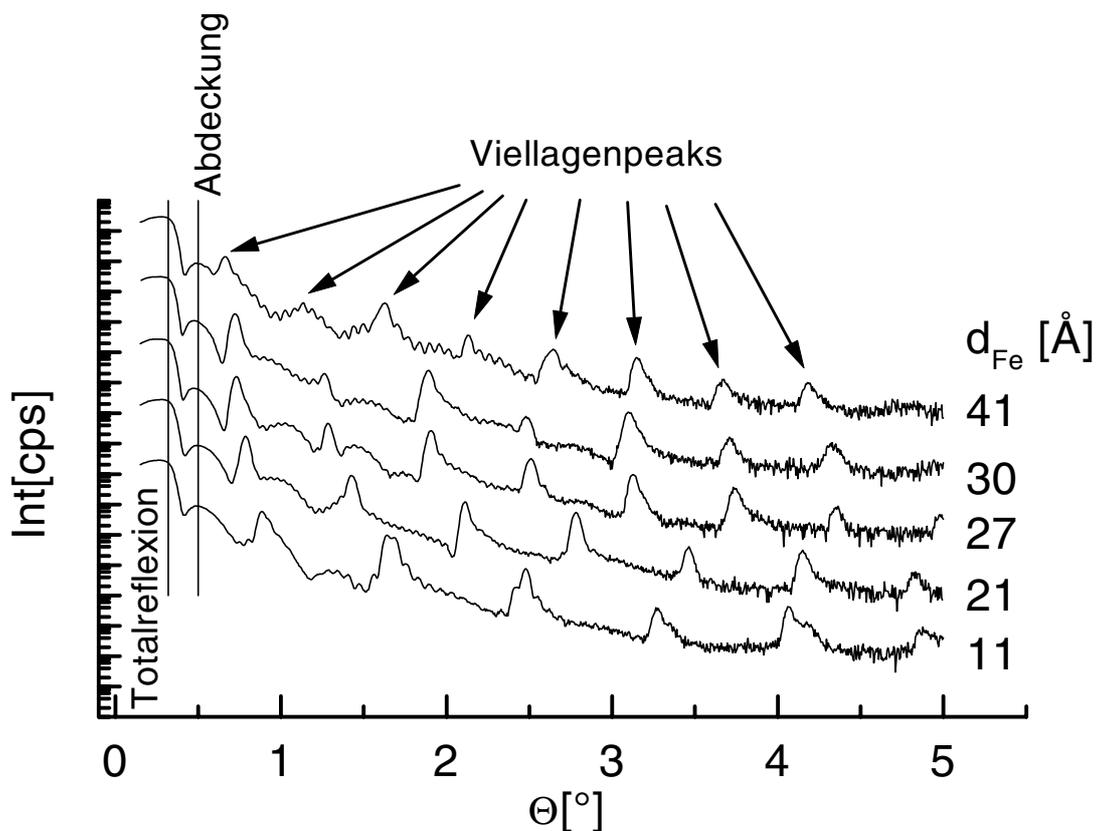
Der breite Peak bei etwa  $2\theta = 32^\circ$  besteht aus einer Überlagerung der Gd[100], Gd[002] und Gd[101] Peaks, die wegen der starken Verbreiterung nicht getrennt werden können. An diesen kann man keine Veränderung der Struktur feststellen.

Zusammenfassend läßt sich feststellen, daß in Fe / Gd - Viellagenschichten bcc - Eisen vorkommt, sobald die Dicke der Eisenlagen größer oder gleich 30 Å ist.

## 4.2 Röntgenreflektometrie

Die Messungen der Röntgenreflektometrie an einigen Schichten der Fe / Gd - Viellagenserie sind in Abbildung 20 zu sehen. Um die Übersichtlichkeit zu erhöhen, wurden die Graphen vertikal gegeneinander verschoben.

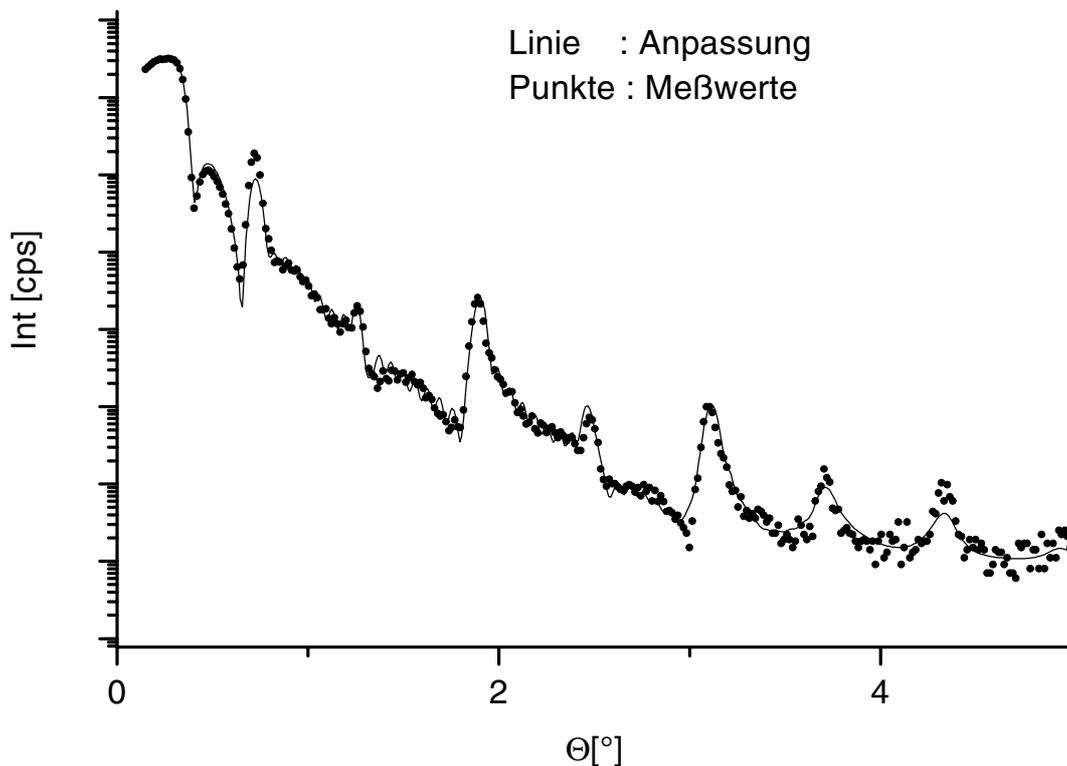
Der Anstieg der Reflexion bei kleinen Winkeln ( $\theta < 0,3^\circ$ ) ist der Bereich der Totalreflexion. Der nachfolgende breite Peak bei  $\theta = 0,5^\circ$  kann der Titanabdeckung zugeordnet werden. Die schärferen Peaks sind die sogenannten Viellagenpeaks und stammen von den Reflexionen des Röntgenstrahls an den einzelnen Grenzflächen. Wegen der steigenden Periodenlänge rücken die Viellagenpeaks mit wachsender Eisenlagendicke enger zusammen (vgl. modifizierte Braggbedingung: Gl. 6). Rein qualitativ erkennt man bereits durch das Auftreten vieler Viellagenpeaks eine sehr gut ausgeprägte Viellagenstruktur.



**Abbildung 20:** Intensität der reflektierten Röntgenstrahlung an Fe / Gd - Viellagenschichten mit unterschiedlichen Eisenlagendicken. Die Gadoliniumdicke beträgt konstant etwa 40  $\text{\AA}$ .

Die feinen Oszillationen der Intensität, die in Abbildung 20 zu sehen sind, sind sogenannte Kiesing - Fringes. Sie entstehen durch Interferenz des an der Schichtoberseite reflektierten Strahls mit dem am Substrat reflektierten Strahl. Die Kiesing - Fringes treten an der Schicht mit  $d_{Fe} = 41 \text{ \AA}$  stärker hervor, da die Gesamtdicke dieser Schicht kleiner ist als die der anderen (geringere Anzahl der Doppellagen). Bei größeren Schichtdicken überlappen die Kiesing - Fringes in zunehmendem Maße und sind somit nicht mehr so stark ausgeprägt. Das Auftreten von Kiesing - Fringes in der Röntgenreflektometrie spricht dafür, daß die gesamten Schichten insgesamt recht glatt sind.

Zur genauen Auswertung der Röntgenreflektometrie werden die Kurven durch das DWBA - Modell angepaßt, das die Reflexionen des Röntgenstrahls an den rauhen Grenzflächen simuliert. Dadurch erhält man aus der Röntgenreflektometrie Angaben über die Rauhmigkeit der einzelnen Lagen. Wie in Abbildung 21 zu sehen ist, kann die Anpassung den tatsächlichen Verlauf der Meßkurven recht gut beschreiben.



**Abbildung 21:** Intensitätsverlauf der Röntgenreflektometrie an einer Fe / Gd -Viellagenschicht mit  $d_{Fe} = 30 \text{ \AA}$ ,  $d_{Gd} = 40 \text{ \AA}$  mit dem zugehörigen Fit.

Bei diesen Fits wurden folgende Werte für die RMS - Schichtrauigkeit ermittelt:

<b>RMS - Rauigkeit der Fe / Gd - Viellagenschichten in Å aus Röntgenreflektometrie</b>						
$d_{Fe}$ [Å]	21	28	30	33	36	41
$\sigma_{Gd-Fe}$	$2,9 \pm 0,6$	$2,6 \pm 0,7$	$1,8 \pm 0,8$	$3,3 \pm 1,2$	$6,2 \pm 2,6$	$7,5 \pm 3,0$
$\Delta\sigma_{Gd-Fe}$	$0,6 \pm 0,3$	$0,8 \pm 0,4$	$1,4 \pm 0,3$	$1,1 \pm 0,5$	$-1,1 \pm 1,5$	$-1,3 \pm 1,8$
$\sigma_{Fe-Gd}$	$3,2 \pm 0,9$	$4,5 \pm 2,8$	$3,5 \pm 1,4$	$2,9 \pm 0,6$	$4,4 \pm 1,8$	$2,9 \pm 0,7$
$\Delta\sigma_{Fe-Gd}$	$0,9 \pm 0,4$	$1,7 \pm 1,1$	$1,1 \pm 0,5$	$1,0 \pm 0,4$	$-0,5 \pm 1,9$	$1,1 \pm 0,4$

Die Definitionen von  $\sigma$  und  $\Delta\sigma$  wurden in Kapitel 3.4 vorgestellt.

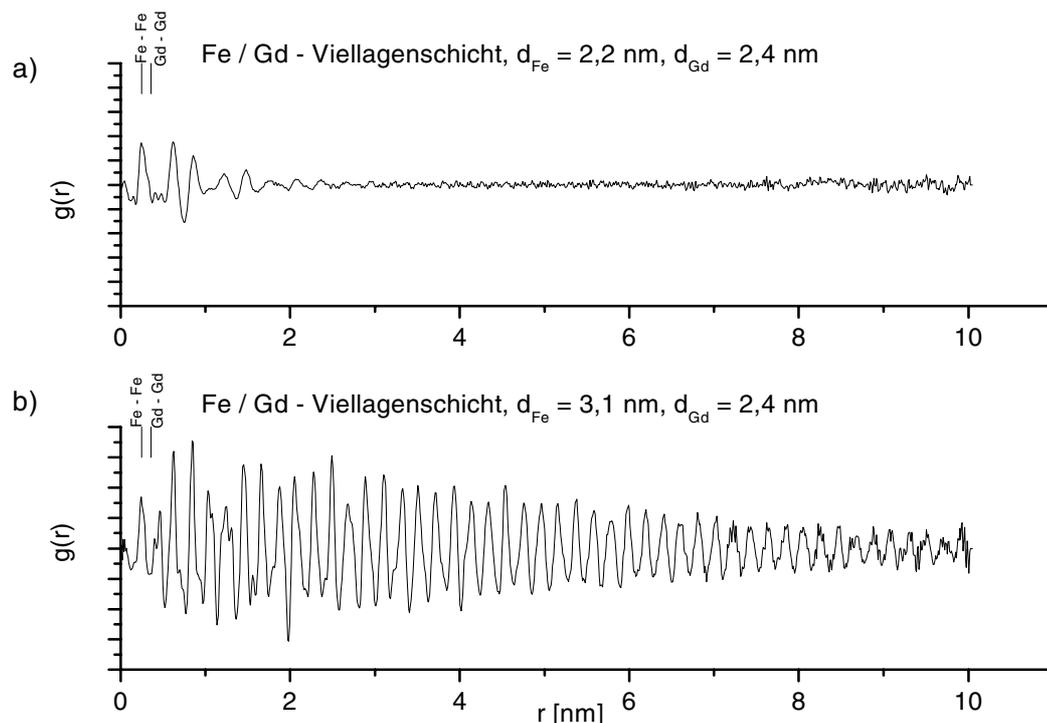
Trotz der teils großen Fehler in der Bestimmung der RMS - Rauigkeiten läßt sich hier die Aussage treffen, daß die Schichten insgesamt sehr glatt ( $\sigma_{RMS} \leq 7,5$  Å) aufeinander aufwachsen. Die Erhöhung der Rauigkeit  $\Delta\sigma$  ist vernachlässigbar klein, und es liegt keine korrelierte Rauigkeit in den Schichten vor.

Beim Übergang von Schichten mit amorphem Eisen ( $d_{Fe} \leq 28$ Å) zu Schichten mit kristallinem Eisen ( $d_{Fe} \geq 30$  Å) ist keine spontane Änderung der Schärfe der Grenzflächen erkennbar. Erst mit noch weiter wachsender Eisenlagendicke ( $d_{Fe} = 36$  Å,  $41$  Å) steigt die Rauigkeit kontinuierlich an. Dieses Verhalten kann dadurch erklärt werden, daß erst die größeren Kristallite die Rauigkeit der Viellagenschichten spürbar erhöhen.

Wäre die Änderung der magnetischen Eigenschaften darauf zurückzuführen, daß die Schichten unterhalb der kritischen Eisendicke legiert vorliegen, so müßte sich die Schärfe der Grenzflächen bei Schichten mit größerer Eisendicke stark erhöhen. Dies ist nach den Ergebnissen der Röntgenreflektometrie nicht der Fall. Auch die Schichten mit dünnen Eisenlagen haben bereits eine gut ausgeprägte Viellagenstruktur.

### 4.3 Elektronenbeugung

Die lateralen Paarverteilungsfunktionen  $g(r)$  von zwei Fe / Gd - Viellagenschichten sind in Abbildung 22 zu sehen. Die Schichten unterscheiden sich nur in ihrer Eiseneinzellagendicke, die in Graph a) 22 Å und in Graph b) 31 Å beträgt. Obwohl die Differenz der Eisendicken nur etwa 1 nm beträgt, erkennt man eine drastische Änderung der Ordnungsreichweite in den beiden Schichten. Bei der Schicht mit 31 Å Eisen beträgt die Reichweite der kristallinen Ordnung in der Schicht etwa 10 nm. In der Schicht mit 22 Å dicken Eisenlagen ist die kristalline Ordnung (das heißt die Modulation der Paarverteilungsfunktion) bereits nach etwa 2,5 nm verschwunden, das heißt die maximale Kristallitgröße des Eisens in dieser Schicht beträgt 2,5 nm.



**Abbildung 22:** laterale Paarverteilungsfunktion von zwei Fe / Gd - Viellagenschichten mit a)  $d_{\text{Fe}} = 22 \text{ Å}$ ,  $d_{\text{Gd}} = 24 \text{ Å}$  und b)  $d_{\text{Fe}} = 31 \text{ Å}$ ,  $d_{\text{Gd}} = 24 \text{ Å}$ .

Die Meßkurven sind eine Überlagerung der Paarverteilungsfunktionen von reinem Eisen, reinem Gadolinium und der legierungähnlichen Grenzfläche. Vergleicht man die erhaltenen Kurven mit theoretisch berechneten Paarverteilungsfunktionen, so erkennt man, daß in der Paarverteilungsfunktion der Schicht mit den dickeren Eisenlagen (Abbildung 22,b) praktisch ausschließlich der Anteil des kristallinen Eisens zu sehen ist. Die Paarverteilungsfunktion der

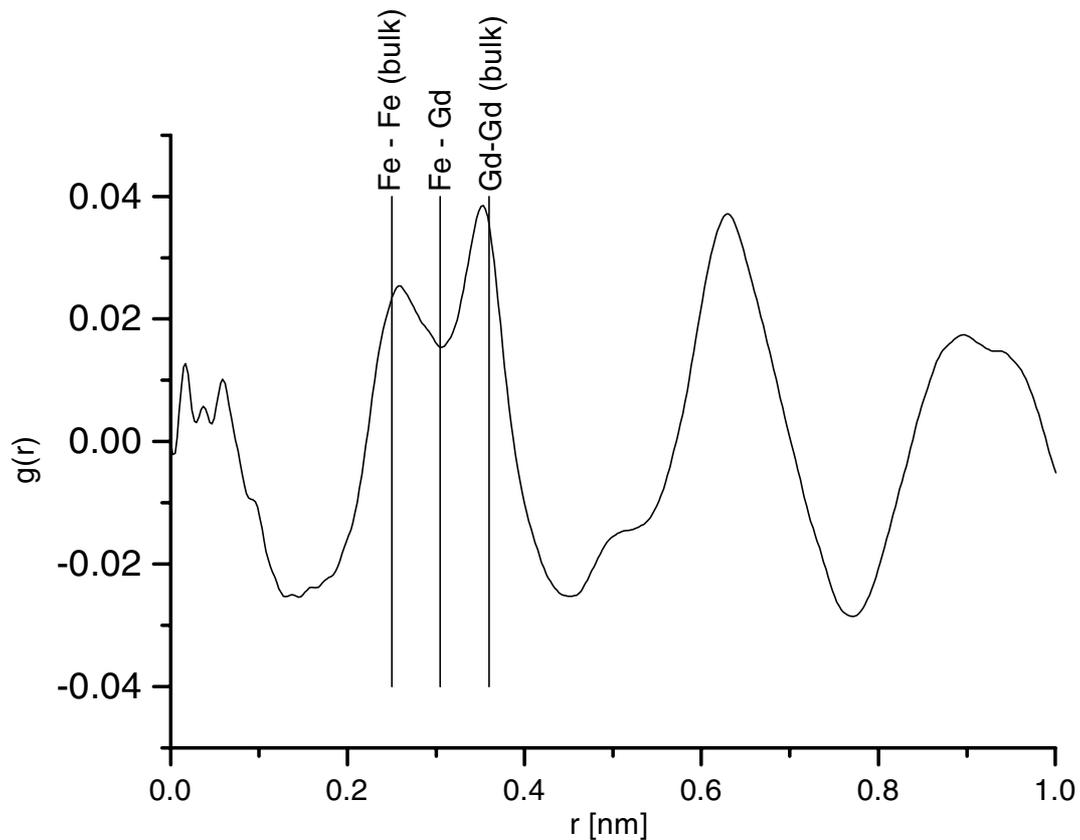
Schicht mit den dünneren Eisenlagen (Abbildung 22,a) enthält dagegen merkliche Anteile der Gadoliniumpaarverteilung, vor allem bei den größeren noch sichtbaren Abständen (bei etwa 2 nm). Das Eisen hat in dieser Schicht also eine deutlich kürzere Ordnungsreichweite, als die gemessenen 2,5 nm.

Eine eindeutige Trennung der gemessenen Paarverteilungsfunktion in einen Gadoliniumanteil und einen Eisenanteil ist derzeit noch nicht möglich, weil ein einzelnes Spektrum durch unterschiedliche Texturen und Kristallitgrößen sehr unterschiedlich auftreten kann.

Zusammenfassend ist festzustellen, daß in den beiden untersuchten Schichten zwei unterschiedliche Eisenmodifikationen vorkommen, von denen die stärker geordnete als  $\alpha$ -Eisen identifiziert werden kann. Die Modifikation in den dünneren Eisenlagen hat eine laterale Ordnungsreichweite, die deutlich unter 2,5 nm liegt. Hier kann allerdings keine Aussage darüber getroffen werden, ob das Eisen in dieser Schicht völlig amorph ist oder ob es noch Nanokristallite gibt, die einen maximalen Kristallitdurchmesser von 2 nm aufweisen. Dazu muß ein Algorithmus entwickelt werden, der es erlaubt, die jeweiligen Anteile der gemessenen Paarverteilungsfunktionen exakt zu trennen. In der Literatur wird diese Eisenmodifikation als amorphes Eisen bezeichnet.

Die laterale Paarverteilungsfunktion bei kleinen Abständen kann Auskunft über eine Grenzflächendurchmischung geben. In Abbildung 23 sind zusätzlich zur Paarverteilungsfunktion noch die Abstände der nächsten Nachbarn von massivem Eisen und massivem Gadolinium eingetragen. Der Fe - Gd - Abstand befindet sich im Minimum zwischen den beiden eingetragenen Elementabständen bei 0,3 nm. Bestünde die Schicht aus einer reinen Legierung, so müßte auch hier ein Maximum auftauchen. Dies wird zum Beispiel bei Fe / Tb - Legierungen auch beobachtet [Tew93]. Da hier jedoch ein ausgeprägtes Minimum auftritt, kann man davon ausgehen, daß eine Grenzflächendurchmischung kaum vorhanden ist.

Schichten mit Eisenlagendicken  $< 3$  nm zeigen in der Röntgenbeugung keinen Eisenpeak (vgl. Abbildung 19) und haben eine deutlich verringerte Ordnungsreichweite (vgl. Abbildung 22). Daraus wird oft geschlossen, daß diese Schichten keine Viellagenschichten, sondern Legierungsschichten sind. Die Messungen der Röntgenreflektometrie (vgl. Abbildung 20) und des Nahbereichs der lateralen Paarverteilungsfunktion widerlegen diese Interpretation jedoch eindeutig. Auch die Proben mit Eisenlagendicken, die unterhalb von 30 Å liegen, haben eine sehr ausgeprägte Viellagenstruktur. Sie unterscheiden sich von Schichten mit dickeren Eisenlagen nur dadurch, daß eine andere Eisenmodifikation auftritt, die eine nur geringe bis amorphe Ordnung aufweist.



**Abbildung 23:** Paarverteilungsfunktion einer Fe / Gd - Viellagenschicht mit  $d_{Fe} = 20 \text{ \AA}$  und  $d_{Gd} = 40 \text{ \AA}$  bei kleinen Abständen. Die senkrechten Striche markieren den nächsten Nachbarabstand von massivem Eisen und massivem Gadolinium.

Nach der Literatur soll die Dicke, bei der in Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten amorphes Eisen in kristallines Eisen übergeht bei etwa  $23 \text{ \AA}$  liegen. Die Messungen dieser Arbeit ergaben, daß der Übergang bei einer höheren Eisenlagendicke stattfindet. Der Grund dafür ist wahrscheinlich, daß die Schichten bei der Herstellung auf  $-100 \text{ }^\circ\text{C}$  gekühlt wurden. Durch die Kühlung der Proben während der Schichtherstellung wird die Mobilität der Atome stark eingeschränkt. Zum Vergleich wurden auch Schichten bei Zimmertemperatur, aber sonst gleichen Herstellungsbedingungen angefertigt. Bei diesen Schichten liegt die kritische Schichtdicke dann tatsächlich bei etwa  $23 \text{ \AA}$  [Hof98].

#### 4.4 Dichte der Eisenlagen

Wie bereits im Kapitel 2.4 angemerkt wurde, gibt es theoretische Arbeiten, die sich mit den magnetischen Eigenschaften von amorphem Eisen befassen. Es wird dabei eine Abhängigkeit des Magnetismus von der Massendichte des amorphen Eisens berechnet [Kra91, Haf95]. Wegen dieser theoretischen Betrachtungen wurde im Rahmen dieser Arbeit zum ersten Mal versucht, die Dichte des amorphen Eisens, das in den Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten vorkommt, zu messen.

Dazu wurden die Röntgenreflektometrie und die Röntgenfluoreszenzanalyse kombiniert. Wie bereits beschrieben wurde, liefert die Röntgenreflektometrie die geometrische Dicke der Lagen, die Röntgenfluoreszenzanalyse dagegen die Massenbelegung der einzelnen Elemente. Da die Fläche der Schicht bekannt ist, kann man aus diesen beiden Messungen die Dichte des amorphen Eisens ermitteln.

Dabei tritt jedoch eine Schwierigkeit auf: Durch Röntgenreflektometriemessungen lassen sich sehr genaue Bestimmungen der Doppellagendicke vornehmen, indem man die auftretenden Peakpositionen bestimmt und mit der modifizierten Bragg - Gleichung (6) auswertet. Zur Bestimmung der Einzellagendicken bedarf es allerdings einer Anpassung der gesamten Meßkurve durch das DWBA - Modell. Hier fließen viele Parameter, wie zum Beispiel die einzelnen Schichtrauhigkeiten, ein. Der Fehler in der Bestimmung der Einzellagendicke ist daher im allgemeinen groß. Deshalb wurde die geometrische Dicke der Schichten hier auf andere Weise bestimmt.

Aus der Standardauswertung der Röntgenreflektometrie erhält man sehr genau die Doppellagendicke. Diese wird gegen die Eisenmasse pro Einzellage aufgetragen. Da die Seltenerdmetalldicke in etwa konstant gehalten wurde, erhält man dadurch Meßpunkte, die sich auf einer ansteigenden Gerade befinden. Extrapoliert man diese Gerade zu  $m_{Fe} = 0$ , so erhält man die mittlere Seltenerdmetalldicke  $\overline{d_{SE}}$ . Aus den Röntgenfluoreszenzmessungen kennt man die Massenbelegung der Seltenerdmetalle und kann daraus die mittlere Massenbelegung  $\overline{m_{SE}}$  pro Doppellage und darüber die mittlere Dichte des Seltenerdmetalls

$$\overline{\rho_{SE}} = \frac{\overline{m_{SE}}}{A \overline{d_{SE}}} \quad (10)$$

bestimmen.  $A$  ist dabei die Fläche der Probe.

Die tatsächliche Seltenerdmetallschichtdicke  $d_{SE}$  wird dann durch

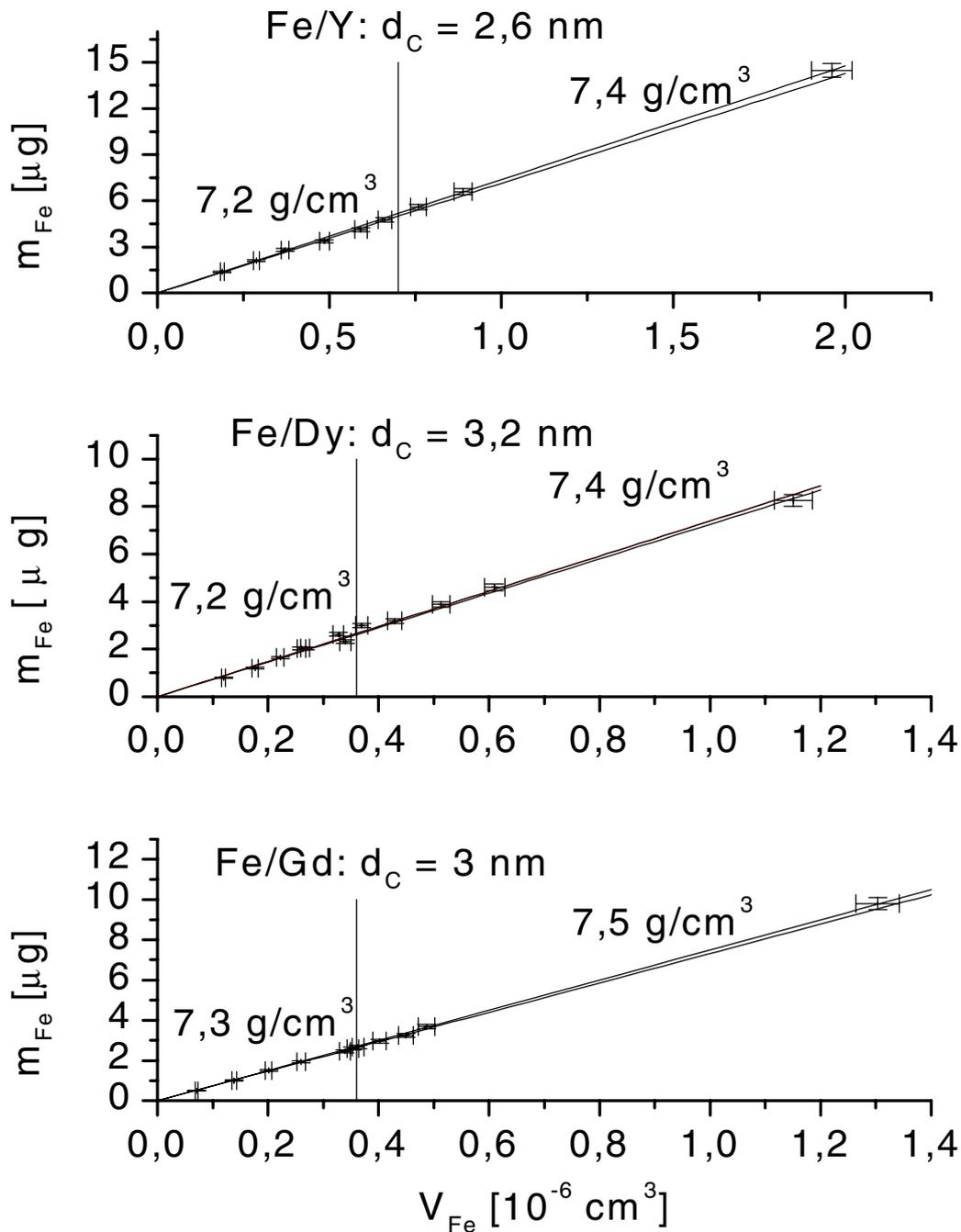
$$d_{SE} = \frac{m_{SE}}{\rho_{SE} A} \quad (11)$$

berechnet, die tatsächliche Eisendicke  $d_{Fe}$  ist die Differenz aus der Doppellagendicke und der Seltenerdmetalldicke. Die Meßfehler für die Masse und für die Schichtdicke betragen etwa 3 %. Der Gesamtfehler beträgt also etwa 6 %.

In Abbildung 24 ist die Massenbelegung der Schichten gegen ihr Volumen aufgetragen. Zusätzlich sind die ermittelten Werte für die Dichte des Eisens und eine senkrechte Gerade eingetragen, die den Übergang zwischen Schichten mit kristallinem und Schichten mit amorphem Eisen markiert. Dabei erkennt man, daß keine drastische Änderung der Dichte beim Übergang von amorphem zu kristallinem Eisen stattfindet. Pro Schichtsystem sind im Graphen für die ermittelte Dichte zwei Werte angegeben, die durch eine lineare Regression der Meßpunkte im kristallinen und im amorphen Bereich gewonnen wurden. Die Massendichte des amorphen Eisens ist tendenziell um 3 % niedriger, als die des polykristallinen Eisens. Diese Verringerung liegt jedoch im Rahmen des Meßfehlers. Die gemessenen Dichten im kristallinen Bereich sind gegenüber dem Wert des Massivmaterials um 6 % erniedrigt. Diese verringerte Massendichte ist typisch für polykristalline dünne Schichten.

Auf jeden Fall kann jedoch die Aussage getroffen werden, daß es zu keiner drastischen Änderung der Dichte beim Übergang vom kristallinen zum amorphen Eisen kommt. Die gemessene Erniedrigung der Dichte beträgt knapp 3 %.

Dieses Ergebnis verwundert zunächst, da eine amorphe Anordnung eine höhere Koordinationszahl und somit eine höhere Dichte als die bcc - Struktur aufweisen sollte. Vergleicht man die bcc - Struktur (Koordinationszahl = 8) mit der dichtesten Kugelpackung (Koordinationszahl = 12), so stellt man fest, daß die Teilchendichte in der dichtesten Kugelpackung etwa 10 % höher ist. Betrachtet man die amorphe Struktur als nicht perfekte dichteste Kugelpackung, so nimmt man an, daß die mittlere Koordinationszahl bei 11 liegt [Kak97]. Die Teilchendichte sollte also um knapp 10 % unter der Teilchendichte der dichtesten Kugelpackung liegen. Das entspricht recht gut der Teilchendichte der bcc - Struktur.



**Abbildung 24:** Masse des Eisens in Abhängigkeit vom Volumen. Die senkrechten Striche markieren die Stellen an denen die Änderung der kristallinen Ordnung stattfindet. Die beiden Geraden kommen durch Anpassung der Meßwerte im amorphen bzw. im kristallinen Bereich zustande. Die ermittelten Werte der Dichte in  $\text{g/cm}^3$  sind eingetragen.

## 5. Magnetische Charakterisierung

Die vorangegangenen Kapitel befaßten sich mit strukturellen Untersuchungen, die an den Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten durchgeführt wurden. Dabei wurde nachgewiesen, daß das Eisen in den Schichten in zwei Modifikationen vorkommt. Um welche Modifikation es sich jeweils handelt, hängt davon ab, ob die Eisenlagendicke größer oder kleiner als eine kritische Schichtdicke  $d_C$  ist. Das Eisen in den dickeren Lagen kann als bcc - Eisen identifiziert werden, das Eisen in den dünneren Lagen ist eine Modifikation mit deutlich verringerter Ordnungsreichweite und wird als amorph bezeichnet.

In diesem Kapitel wird betrachtet, wie sich bcc - Eisen und amorphes Eisen im Magnetismus unterscheiden.

### 5.1 Magnetisches Moment

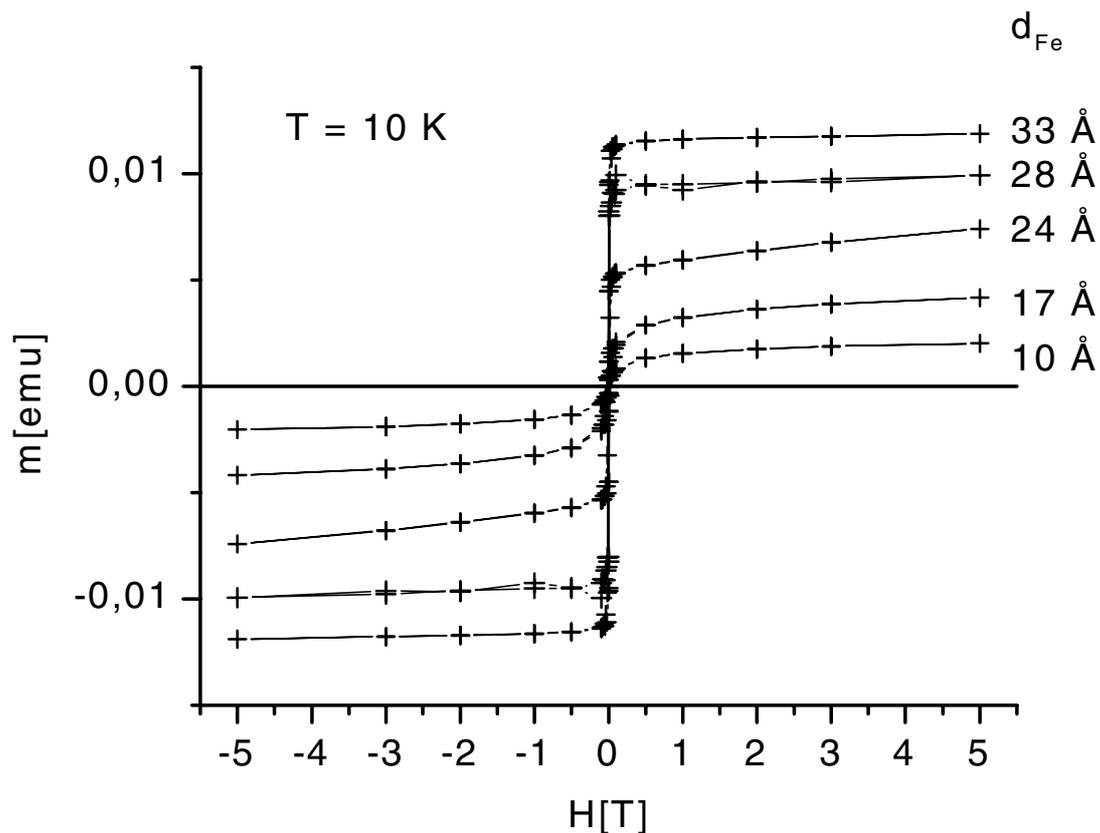
In dieser Arbeit geht es vor allem um das Verhalten der Schichtsysteme im Hochfeldbereich, in dem die Schichten nicht mehr in magnetische Domänen aufgespalten sind. Die hier vorgestellten Ergebnisse betreffen nicht die Ummagnetisierung der Schichten. Diese wurde für Fe / Tb und Fe / Gd - Viellagenschichten mit senkrechter Anisotropie bereits ausführlich von Lanchava beschrieben [Lan98a-d].

Sämtliche magnetometrische Messungen wurden an einem SQUID - Magnetometer durchgeführt. Falls nicht anders angegeben, war die Richtung des äußeren Feldes immer parallel zur Schichtebene.

### 5.1.1 Magnetisierung der Fe / Y - Viellagenschichten

Als erstes werden die Ergebnisse der Messungen an den Fe / Y - Viellagenschichten vorgestellt. Diese haben den Vorteil, daß die Auswertung wegen des nicht magnetischen Yttriums wesentlich erleichtert wird.

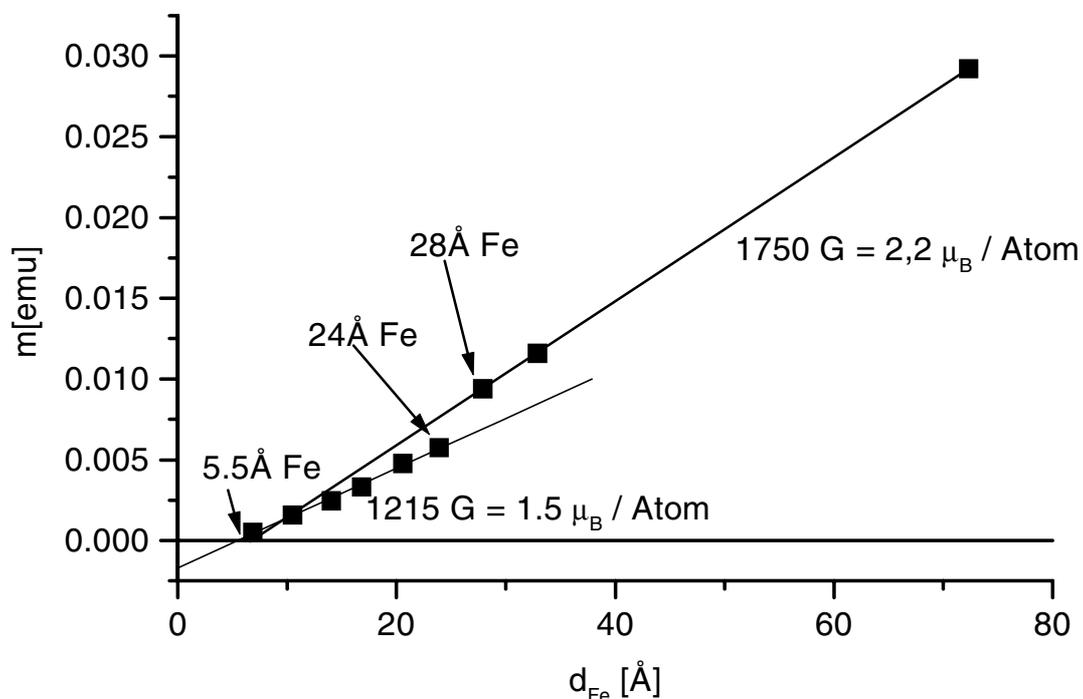
Die Magnetisierungskurven von Fe / Y - Viellagenschichten sind in Abbildung 25 zu sehen. Die Meßtemperatur beträgt dabei 10 K. Man erkennt zunächst wie erwartet eine Erhöhung des magnetischen Moments mit steigender Eisenlagendicke. Zusätzlich sieht man deutlich, daß die Hochfeldsuszeptibilität (Steigung der Magnetisierungskurve) bei den Schichten mit  $d_{Fe} \geq 28 \text{ \AA}$  Eiseneinzellagendicke deutlich kleiner ist als bei den Schichten mit  $d_{Fe} \leq 24 \text{ \AA}$ . Dies ist ein deutlicher Hinweis auf eine Strukturänderung.



**Abbildung 25:** Magnetisierungskurven von Fe / Y - Viellagenschichten mit verschiedenen Eisenlagendicken.

Das magnetische Moment  $m$  der Fe / Y - Lagen wurde durch Extrapolation der Magnetisierungskurven aus dem gesättigten Bereich zu  $H = 0$  gewonnen. Abbildung 26 zeigt das magnetische Moment in Abhängigkeit von der Eiseneinzellagendicke  $d_{Fe}$ . Man erkennt, daß die Meßpunkte auf zwei Geraden verschiedener Steigung liegen. Die Steigung dieser Geraden ist proportional zur Magnetisierung  $M (= m / V)$  der Proben.

Schichten mit Eisenlagendicken oberhalb von  $28 \text{ \AA}$  weisen demnach ein magnetisches Moment von  $1750 \text{ G}$  auf. Dieser Wert entspricht recht gut dem Literaturwert für massives Eisen. Die Proben mit dünneren Eisenlagen zeigen dagegen eine deutlich reduzierte Magnetisierung von etwa  $1200 \text{ G}$ .



**Abbildung 26:** Magnetisches Moment der Fe / Y - Viellagenschichten pro Doppellage gegen die Eisenlagendicke. Die Dicke der Yttriumeinzellagen beträgt etwa  $30 \text{ \AA}$ .

Extrapoliert man die beiden Geraden zum Wert  $m = 0$ , so befindet man sich bei etwa  $5,5 \text{ \AA}$  Eisenlagendicke. Diese Dicke entspricht ungefähr einer Monolage Eisen, wenn man sie auf zwei Grenzflächen aufteilt. Schichten mit dünneren Eiseneinzellagen zeigen bei einer Temperatur von  $10 \text{ K}$  keine magnetische Ordnung. In Proben mit dickeren Eiseneinzellagen befindet sich pro Grenzfläche etwa eine Monolage Eisen, die nicht ferromagnetisch ist.

Das Auftreten dieses Verhaltens bezeichnet man als “magnetisch tote Lagen”. Dabei kann nicht

festgestellt werden, ob die äußerste Grenzlage des Eisens unmagnetisch ist, oder ob ein gewisser Anteil des Eisens ins Yttrium diffundiert ist. Letztere Annahme erscheint allerdings wahrscheinlicher, da die Extrapolation beider Geraden die X-Achse ungefähr bei der selben Dicke schneiden. Das heißt, auch wenn die Eisenlagen auskristallisieren, bleibt der in das Yttrium diffundierte Anteil unmagnetisch.

Betrachtet man das Verhalten des magnetischen Moments an der kritischen Eisendicke  $d_c$ , so erkennt man nicht nur eine Änderung der Steigung der Geraden. Es kommt auch zu einem Sprung der Meßpunkte. Dieses Verhalten ist ein deutlicher Hinweis darauf, daß das unterschiedliche Magnetisierungsverhalten des amorphen Eisens nicht mit einer Legierungsbildung an den Grenzflächen erklärt werden kann. In diesem Fall würde das magnetische Moment zunächst langsam anwachsen. Ab einer gewissen Eisendicke, wenn sich reines bcc - Eisen bildet, würde sich wegen der größeren Magnetisierung des bcc - Eisens das magnetische Moment mit wachsender Schichtdicke schneller erhöhen. Man würde also nur einen Knick in der Meßkurve erhalten. Tatsächlich mißt man jedoch zusätzlich zur Änderung der Steigung noch einen Sprung. Dieser Sprung zeigt, daß bei der kritischen Dicke nahezu das gesamte Eisenvolumen (abzüglich der "toten Lagen") die volle Magnetisierung von 1750 G aufweist.

Wäre das reduzierte magnetische Moment auf eine Durchmischung zurückzuführen, so müßten sich das Eisen und das Yttrium beim Überschreiten der kritischen Eisendicke entmischen, damit dieses Verhalten erklären werden könnte. Da dies sehr unwahrscheinlich ist, kann davon ausgegangen werden, daß die Änderung der Magnetisierung bei der kritischen Dicke tatsächlich nur auf eine Änderung der Struktur des Eisens zurückgeführt werden kann. Dieses Ergebnis ist eine Bestätigung der Ergebnisse der strukturellen Untersuchungen (Kapitel 4).

### 5.1.2 Magnetisierung von Schichten mit 2 magnetischen Komponenten

Die meisten herkömmlichen Methoden zur Bestimmung des magnetischen Moments, dienen der Messung des integralen Moments. Das heißt, es wird nicht unterschieden, von welchem Element das Moment stammt. Dies ist auch bei den SQUID - Messungen der Fall. Da die meisten Seltenerdmetalle selbst ein magnetisches Moment aufweisen, wurde hier ein einfaches Verfahren entwickelt, mit dem von einer Meßreihe sowohl die Eisenmagnetisierung als auch die Magnetisierung des Seltenerdmetalls ermittelt werden kann. Dabei geht man folgendermaßen vor:

Das gemessene magnetische Moment  $m_{ges}$  besteht aus der Summe des Eisenmoments  $m_{Fe}$  und des Seltenerdmetallmoments  $m_{SE}$ .

$$m_{ges} = m_{Fe} + m_{SE} \quad (12)$$

Da nur die zur Feldrichtung parallele Komponente des magnetischen Moments gemessen wird, wird hier auf die Vektorenschreibweise verzichtet. Bei antiparalleler Kopplung zwischen Eisen- und Seltenerdmetallmoment muß jedoch mit Vorzeichen gerechnet werden.

Die einzelnen Momente können durch ihre Magnetisierung  $M$  und ihr Volumen  $V$  ausgedrückt werden.

$$m_{ges} = M_{Fe} V_{Fe} + M_{SE} V_{SE} \quad (13)$$

Gleichung 13 wird durch das Volumen des Seltenerdmetalls  $V_{SE}$  geteilt.

$$\frac{m_{ges}}{V_{SE}} = M_{Fe} \frac{V_{Fe}}{V_{SE}} + M_{SE} \quad (14)$$

Wird das gemessene durch das Volumen des Seltenerdmetalls dividierte Gesamtmoment gegen das Verhältnis von Eisenvolumen zum Seltenerdmetall - Volumen aufgetragen, so erhält man eine Gerade, deren Steigung die Eisenmagnetisierung und deren Achsenabschnitt die Magnetisierung des Seltenerdmetalls darstellt.

Zu beachten sind allerdings die Vorzeichen der einzelnen Magnetisierungen wegen der antipar-

allelen Ausrichtung des Eisen- und des Seltenerdmetallmoments. Dazu führt man ein Koordinatensystem ein, in dem festgelegt wird, welches Element eine positive Magnetisierung besitzt. In der vorliegenden Arbeit ist dies immer das Eisenmoment. Dies führt dazu, daß das Gesamtmoment negative Werte annimmt, sobald das magnetische Moment des Seltenerdmetalls überwiegt. Experimentell erkennt man den Vorzeichenwechsel daran, daß die Gesamtmagnetisierung bei einer bestimmten Temperatur (der Kompensationstemperatur) eine Nullstelle aufweist.

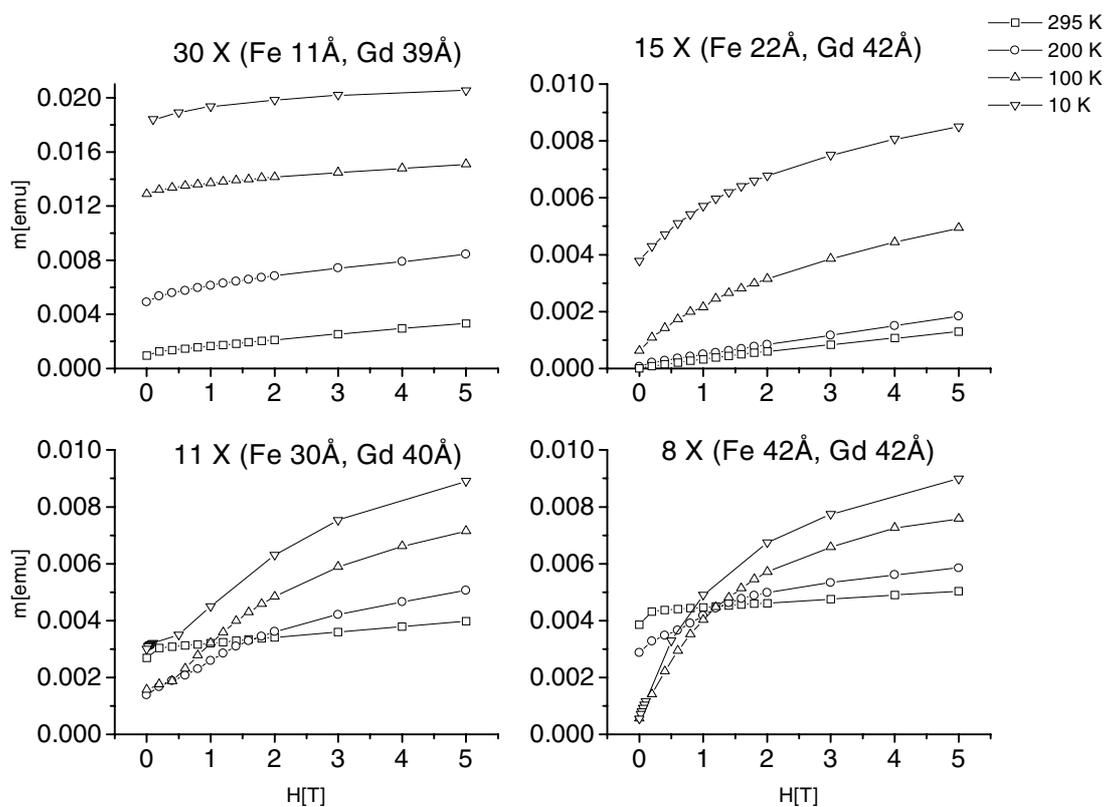
Das Gesamtmoment erhält man aus SQUID - Messungen, die Volumina (bzw. Massen) der einzelnen Elemente aus der Röntgenfluoreszenzanalyse. Als magnetisches Moment wird dabei der Wert genommen, den man aus der Magnetisierungskurve im gesättigten Bereich durch Extrapolation zu  $H = 0$  erhält.

Obige Herleitung ist nur dann richtig, wenn die Magnetisierung innerhalb der Einzellagen konstant ist. Nur dann kann das Moment als Produkt aus Magnetisierung und Volumen angesehen werden. Im allgemeinen Fall muß das Integral der lokalen Magnetisierung über das Schichtvolumen bestimmt werden und die hier vorgestellte Auswertungsmethode ist nicht anwendbar.

### 5.1.3 Magnetisierung der Fe / Gd - Viellagenschichten

Einige Magnetisierungskurven der Fe / Gd - Viellagenschichten sind in Abbildung 27 dargestellt. Dabei ist jeweils nur der Ast im positiven Feldbereich aufgetragen und die Meßpunkte wurden von 5 T aus abwärts aufgenommen. Die verschiedenen Symbole stellen unterschiedliche Meßtemperaturen dar. In Fe / Gd -Viellagenschichten liegt eine antiparallele Kopplung zwischen dem magnetischen Moment des Eisens und dem des Seltenerdmetalls vor. Die Curie-temperatur des Gadoliniums liegt bei 290 K.

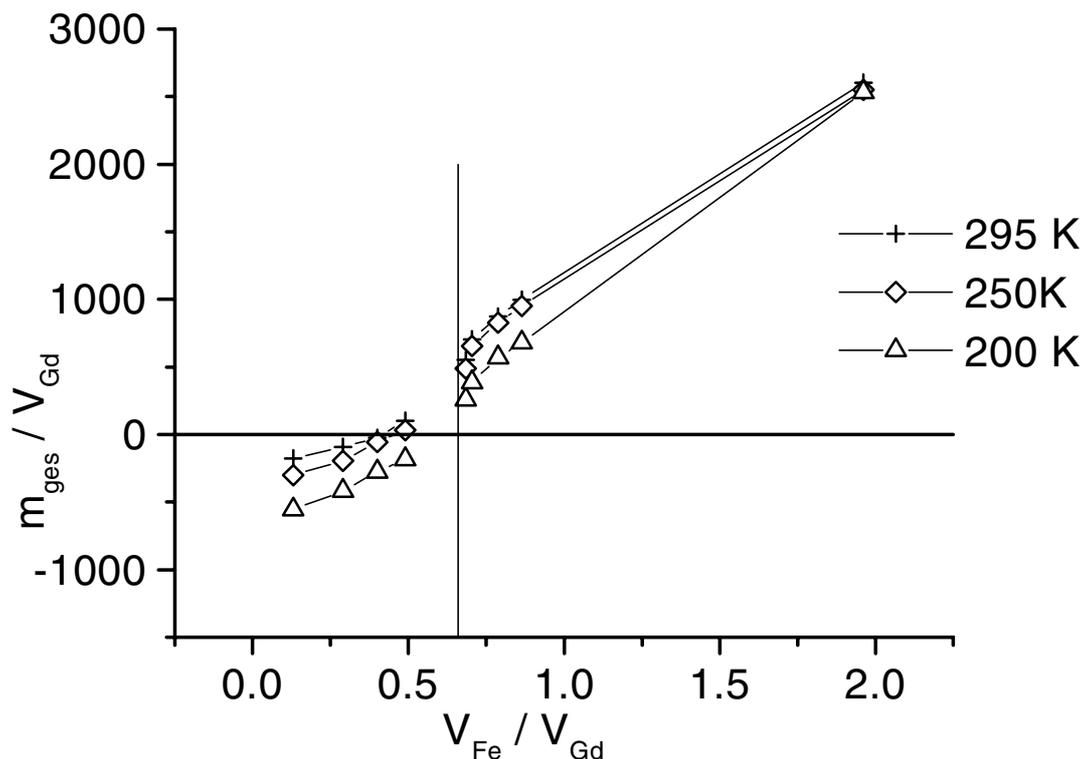
Durch die endliche Steigung und Krümmung der meisten Kurven im Hochfeldbereich erkennt man, daß die Proben mit dem zur Verfügung stehenden Magnetfeld von 5 T nicht magnetisch gesättigt werden können. Allenfalls bei Temperaturen ab 200 K kann wegen der nur schwachen Krümmung der Magnetisierungskurven, das magnetische Moment durch Extrapolation auf  $H = 0$  zu ermittelt werden. Deswegen beschränkt sich die folgende Auswertung auf die Messun-



**Abbildung 27:** Magnetisierungskurven von Fe / Gd - Viellagenschichten bei verschiedenen Meßtemperaturen. Zu beachten sind die unterschiedlichen Skalen der Ordinate.

gen bei 200 K, bei 250 K und bei 295 K.

In Abbildung 28 sind die ermittelten durch das Gadoliniumvolumen dividierte magnetischen Momente gegen das Verhältnis von Eisen- und Gadoliniumvolumen aufgetragen. Nach Gleichung 14 ist die Steigung der daraus resultierenden Geraden gleich der Eisenmagnetisierung und der Achsenabschnitt gleich der Gadoliniummagnetisierung.



**Abbildung 28:** Magnetisches Moment der Fe / Gd - Viellagenschichten normiert auf das Gadoliniumvolumen in Abhängigkeit vom Verhältnis von Eisen- und Gadoliniumvolumen bei verschiedenen Temperaturen. Die Gadoliniumeinzellagendicke beträgt konstant etwa 40 Å.

Man erkennt, daß sich die Steigung der Geraden, auf denen sich die Meßpunkte befinden bei  $V_{Fe} / V_{Gd} = 0,7$  ändert. Bei diesem Verhältnis der Volumina beträgt die Eisenlagendicke 30 Å. Dies ist der selbe Wert, bei dem in den strukturellen Untersuchungen der Übergang von amorphem zu kristallinem Eisen gefunden wurde.

Die ermittelten Magnetisierungen der einzelnen Komponenten können nachfolgender Tabelle entnommen werden. Dabei wurde zwischen dem kristallinen Eisenbereich ( $d_{Fe} \geq 30$  Å) und dem amorphen Eisenbereich ( $d_{Fe} < 30$  Å) unterschieden.

<b>Ermittelte Magnetisierung von Eisen und Gadolinium in Fe / Gd - Viellagenschichten</b>				
	“Kristalliner Bereich”: $d_{\text{Fe}} \geq 30 \text{ \AA}$		“Amorpher Bereich”: $d_{\text{Fe}} < 30 \text{ \AA}$	
	$M_{\text{Fe}}$ [G]	$M_{\text{Gd}}$ [G]	$M_{\text{Fe}}$ [G]	$M_{\text{Gd}}$ [G]
295 K	$1490 \pm 50$	$310 \pm 50$	$740 \pm 130$	$290 \pm 50$
250 K	$1480 \pm 50$	$430 \pm 50$	$940 \pm 100$	$440 \pm 50$
200 K	$1690 \pm 60$	$790 \pm 50$	$1050 \pm 50$	$700 \pm 50$

Man erkennt, daß die Eisenmagnetisierung im amorphen Bereich deutlich reduziert ist.

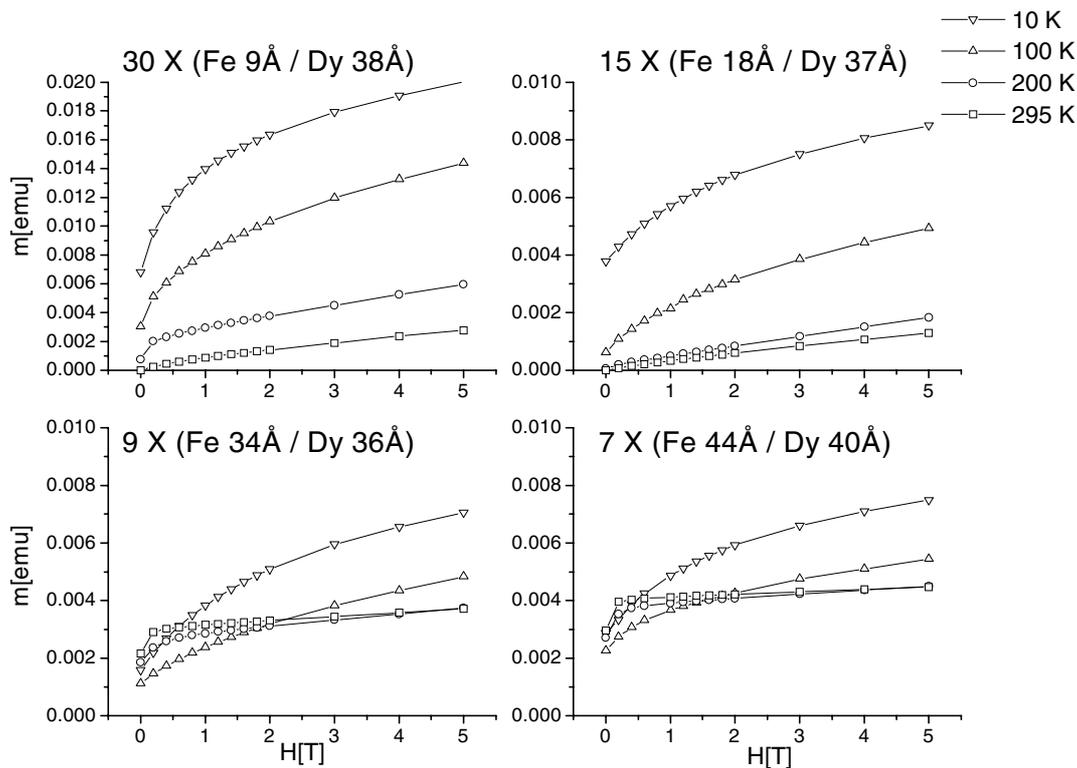
Wie man der Tabelle entnehmen kann, ergab die oben dargestellte Berechnung Werte der Magnetisierung von kristallinem Eisen, die mit dem Literaturwert ( $M_{\text{Fe}} = 1766 \text{ G}$  bei 4 K, 1717 G bei 290 K [Lan86]) nicht übereinstimmen. Nach der Berechnung würden deutlich erniedrigte Werte vorliegen. Dies gibt Anlaß zu der Vermutung, daß die Auswertung, die hier angewendet wurde, nicht zutreffend ist. Die Hauptannahme, daß innerhalb der Einzellagen eine Homogenität der Magnetisierung besteht, ist eventuell nicht gerechtfertigt. Auf die tatsächliche Verteilung der Magnetisierung innerhalb der Schicht wird noch genauer in einem späteren Kapitel eingegangen.

### 5.1.4 Magnetisierung der Fe / Dy - Viellagenschichten

Einige Magnetisierungskurven von Fe / Dy - Viellagenschichten sind in Abbildung 29 dargestellt. Wie bei den Fe / Gd - Viellagenschichten liegt auch hier eine antiferromagnetische Kopplung zwischen den magnetischen Momenten des Eisens und den des Dysprosiums vor. Die Curietemperatur des Dysprosiums liegt jedoch bei nur 86 K. Zwischen 86 K und 173 K ordnen sich die Dysprosiummomente helikal an.

Ebenso wie bei den Fe / Gd - Viellagenschichten lassen sich durch die zur Verfügung stehenden Felder die Proben nicht magnetisch sättigen. Bei Meßtemperaturen ab 200 K gelingt wegen der nur schwachen Krümmung aber zumindest die Rückextrapolation der Meßkurven auf  $H = 0$ .

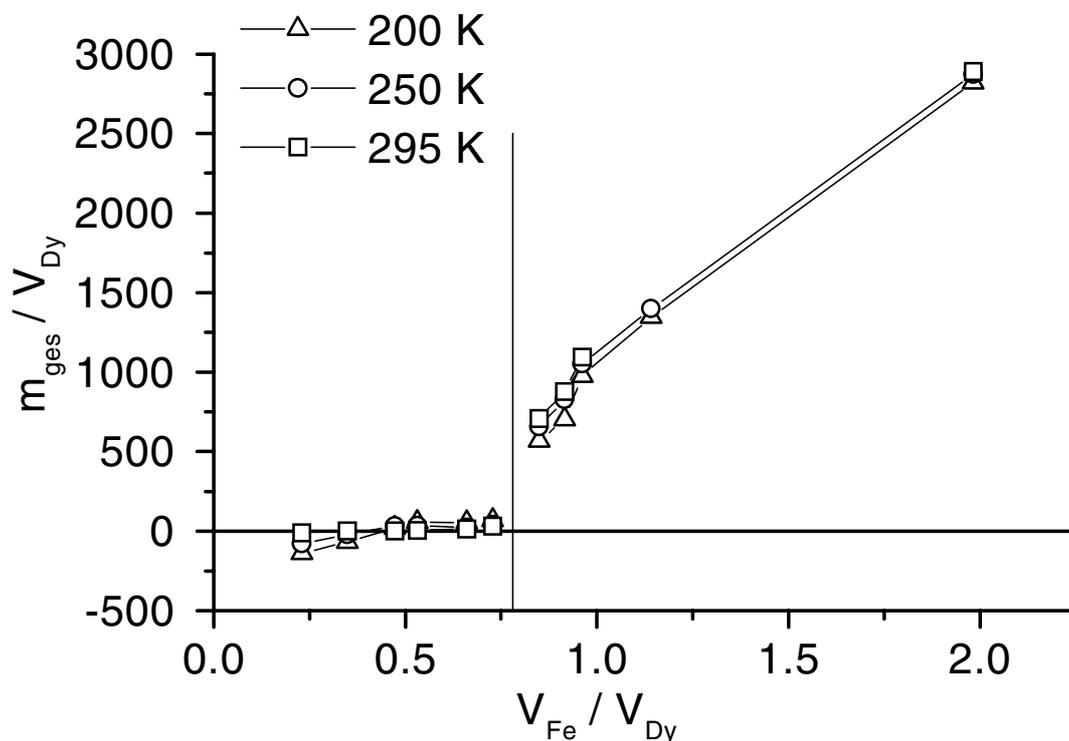
Aus diesem Grund wurde die Magnetisierung der Fe / Dy - Viellagenschichten nur in diesem Temperaturbereich ausgewertet. Die Herleitung erfolgt auch hier so, wie es in Kapitel 5.1.2



**Abbildung 29:** Magnetisierungskurven von Fe / Dy - Viellagenschichten. Aufgetragen ist jeweils der rechte Ast der Magnetisierungskurve. Die Meßpunkte wurden in absteigender Reihenfolge aufgenommen.

beschrieben wurde.

Abbildung 30 zeigt die gemessenen durch das Volumen des Dysprosiums dividierten Werte gegen das Verhältnis der Elementvolumina aufgetragen (vgl. Gleichung 14). Die Dysprosium - Dicke liegt bei etwa 37 Å. Man erhält ein ähnliches Bild wie im Fall der Fe / Gd - Viellagenschichten. Unterhalb der kritischen Eisendicke von 32 Å verläuft die Kurve wesentlich flacher als oberhalb dieser Grenze.



**Abbildung 30:** Magnetisches Moment der Fe / Dy-Viellagenschichten dividiert durch das Volumen des Dysprosium als Funktion des Volumenverhältnisses  $V_{Fe} / V_{Dy}$  (siehe Gleichung 14) Die Dysprosiumdicke liegt bei allen Schichten bei etwa 37 Å. Die senkrechte Gerade befindet sich dort, wo die Eisendicke 32 Å beträgt.

Die Meßpunkte liegen in diesem Fall nicht eindeutig auf Geraden. Vor allem im kristallinen Bereich sind die ersten beiden Werte erniedrigt. Dies deutet darauf hin, daß in diesen Schichten noch Reste von amorphem Eisen vorkommen. Deshalb wurden diese Meßpunkte nicht in die Auswertung miteinbezogen. Im amorphen Bereich erkennt man, daß die Meßpunkte sehr nahe an der X-Achse liegen. Vor allem die Werte bei  $T = 295$  K sind innerhalb der Fehlergrenzen identisch 0. Bei dieser Temperatur ist die Schicht paramagnetisch.

Die gefundenen Werte der Magnetisierungen können nachfolgender Tabelle entnommen werden.

<b>Ermittelte Magnetisierung von Eisen und Dysprosium in Fe / Dy - Viellagenschichten</b>				
	Kristalliner Bereich: $d_{\text{Fe}} > 32 \text{ \AA}$		amorpher Bereich: $d_{\text{Dy}} < 32 \text{ \AA}$	
	$M_{\text{Fe}}$ [G]	$M_{\text{Dy}}$ [G]	$M_{\text{Fe}}$ [G]	$M_{\text{Dy}}$ [G]
295 K	$1760 \pm 50$	$600 \pm 50$	$70 \pm 50$	$30 \pm 50$
250 K	$1770 \pm 50$	$640 \pm 50$	$220 \pm 60$	$100 \pm 50$
200 K	$1790 \pm 50$	$720 \pm 70$	$420 \pm 80$	$210 \pm 50$

Im Vergleich zu den Fe / Gd - Viellagenschichten findet man hier eine deutlichere Erniedrigung der Eisenmagnetisierung beim Übergang von kristallinem zu amorphem Eisen. Zusätzlich zur Erniedrigung der Eisenmagnetisierung ist hier auch ein sehr deutlichen Einfluß der Kristallinität des Eisens auf die Magnetisierung des Dysprosiums erkennbar.

Der Hauptunterschied zwischen Gadolinium und Dysprosium liegt in ihrer Ordnungstemperatur, die bei massivem Gadolinium bei 290 K, bei massivem Dysprosium dagegen nur bei 173 K liegt. Der ganze Meßbereich, der hier dargestellt wurde liegt also oberhalb der Ordnungstemperatur von massivem Dysprosium. Da man trotzdem ein endliches Dysprosiummoment mißt, ist dieses wahrscheinlich auf die Kopplung an das Eisen zurückzuführen. So ist es auch nicht verwunderlich, daß eine Änderung der Kristallinität des Eisens nicht nur einen Einfluß auf den Magnetismus des Eisens, sondern auch auf den Magnetismus des Dysprosiums ausübt.

Da die Kopplung zwischen den Eisen- und den Dysprosiumlagen mit zunehmender Reichweite schwächer wird, ist das grenzflächennahe Dysprosium stärker gekoppelt als das Dysprosium im Inneren der Lagen. Man kann also davon ausgehen, daß bei den hier vorliegenden Temperaturen nur das grenzflächennahe Dysprosium magnetisch geordnet ist, während im Inneren der Schicht paramagnetisches Dysprosium vorliegt. Die Einzellagen sind also nicht homogen magnetisiert und die Voraussetzung für die Auswertung der Magnetisierung der Schichten gemäß dem in Kapitel 5.1.2 hergeleiteten Modell ist nicht gegeben.

### 5.1.5 Zusammenfassung der Ergebnisse der Magnetometrie

Das magnetischen Moment von Eisen ändert sich bei einer kritischen Eisendicke  $d_{Fe}$ . Diese Dicke ist bei Fe / Y -Viellagenschichten 26 Å, bei Fe / Gd - Viellagenschichten 29 Å und bei Fe / Dy - Viellagenschichten 32 Å.

Die verringerte Magnetisierung in Fe / Y - Viellagenschichten läßt sich bei einer Temperatur von 10 K auf 1200 G quantifizieren. Zusätzlich erhöht sich bei diesen Schichten die Hochfeldsuszeptibilität, sobald beim Eisen die kritische Einzellagendicke unterschritten wird. Die Curietemperatur ist im Bereich der amorphen Schichten von der Schichtdicke abhängig und liegt bei etwa 100 K. Im kristallinen Bereich läßt sie sich ohne Zerstörung der Viellagenstruktur nicht bestimmen, da sie weit oberhalb der Zimmertemperatur liegt.

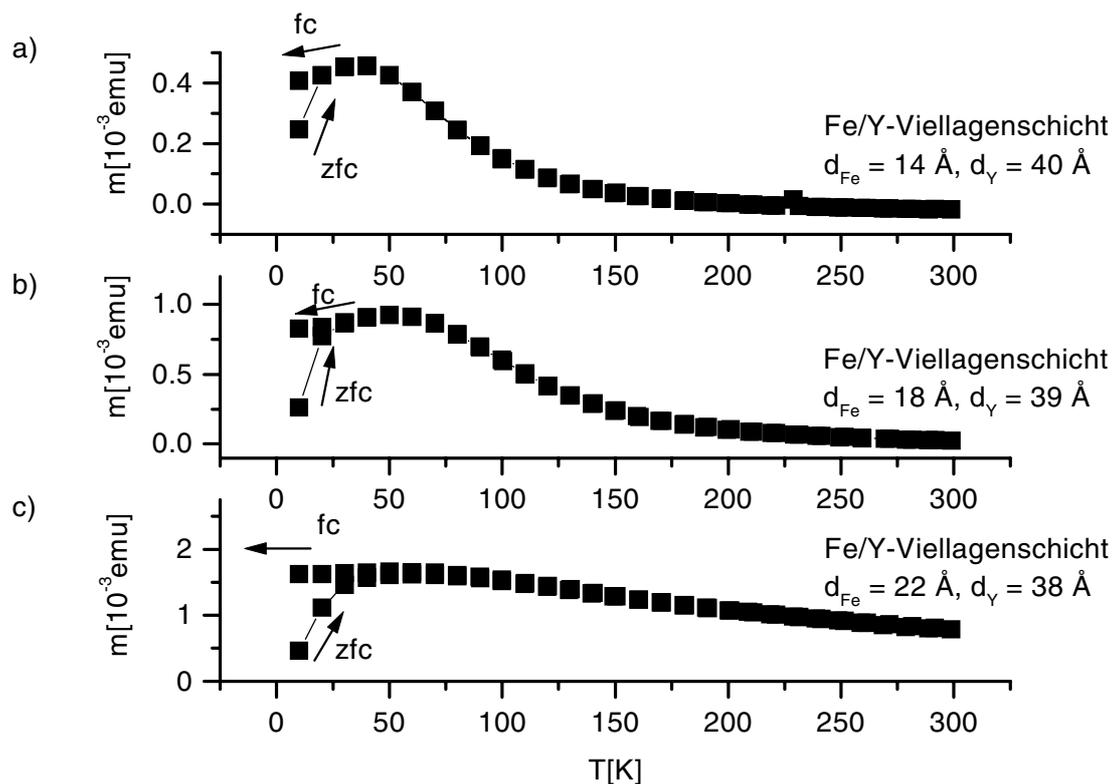
Bei Fe / Gd - und Fe / Dy - Viellagenschichten kann das magnetische Moment des amorphen Eisens nicht direkt bestimmt werden, da sich das gemessene magnetische Moment aus der vektoriellen Summe des Eisen - und des Seltenerdmetallmoments zusammensetzt. Wären die Einzellagen in sich homogen magnetisiert, so könnten die einzelnen Magnetisierungen durch die in Kapitel 5.1.2 hergeleitete Auswertung ermittelt werden. Da diese Auswertung für kristallines Eisen Werte liefert, die zum Teil stark vom Literaturwert abweichen, muß angenommen werden, daß die Einzellagen nicht homogen magnetisiert sind.

Die Inhomogenität der Magnetisierung der Einzellagen erscheint auch plausibel, da in den Viellagenschichten teilweise ein spontanes magnetisches Moment gemessen werden kann, obwohl die Meßtemperatur über der Curietemperatur der Einzelmaterialien liegt. Dies kann nur dadurch erklärt werden, daß die magnetische Ordnung an den Grenzflächen durch die Eisen - Seltenerdmetall - Kopplung induziert wird. Diese Ordnung sinkt mit zunehmender Entfernung von der Grenzfläche, und damit ändert sich auch die Magnetisierung innerhalb der Einzellage.

Zur Erfassung des Magnetismus der Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten reicht es nicht aus, die Viellagenschichten in zwei Komponenten aufzuteilen. Die Schichten müssen noch feiner unterteilt werden. Im Kapitel 7 wird daher ein Modell vorgestellt, das die Schichten in Atomlagen unterteilt. Trotzdem kann ein Einfluß der Kristallstruktur auf den Magnetismus der Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten hier deutlich nachgewiesen werden.

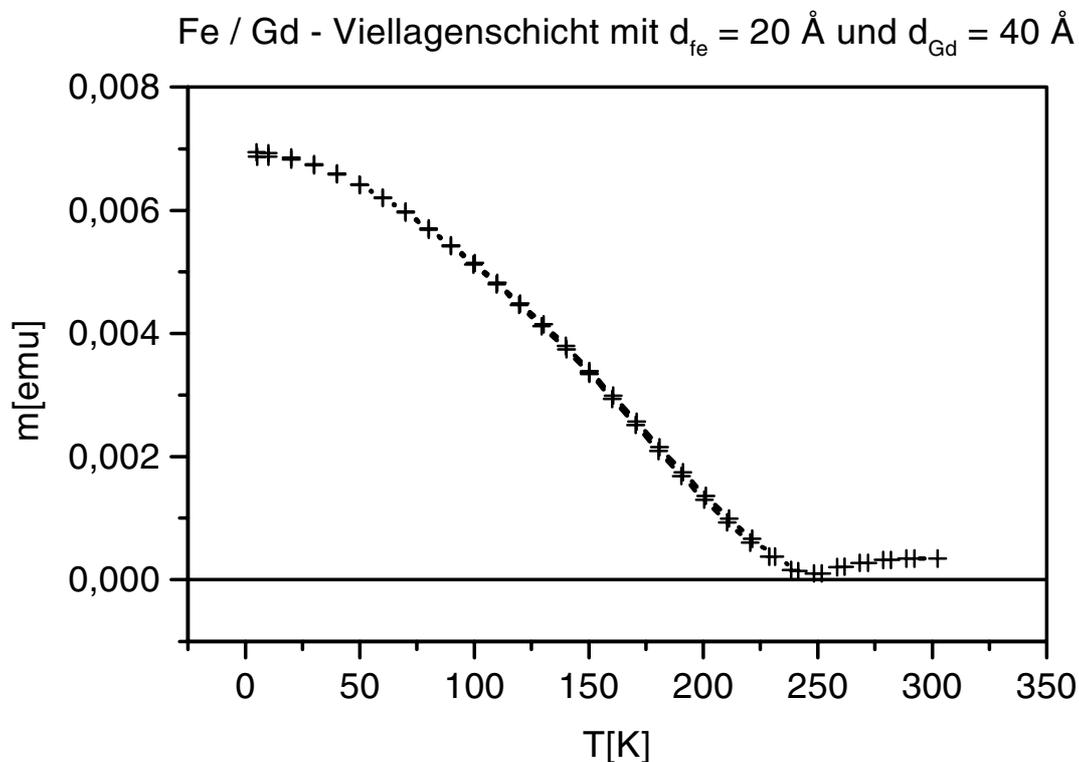
## 5.2 Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung

Mißt man an Fe / Y - Viellagenschichten mit amorphen Eisenlagen die Abhängigkeit des magnetischen Moments von der Temperatur, so stellt man fest, daß je nach Vorgeschichte der Probe thermische Hystereseeffekte oder eine Drift der Magnetisierung über eine längere Zeit [Are92] auftreten. Suszeptibilität und Magnetisierung der Schicht hängen davon ab, ob die Schicht mit oder ohne Anwesenheit eines äußeren Feldes abgekühlt wird. Im ersten Fall spricht man von "field cooling (fc)" im letzteren von "zero field cooling (zfc)". Messungen zur thermischen Hysterese sind in Abbildung 31 dargestellt.



**Abbildung 31:** Magnetisches Moment als Funktion der Temperatur: zfc) Abkühlung der Probe ohne externes Feld; Aufnahme der Meßpunkte bei anschließender Temperaturerhöhung und einem Feld von 20 mT; fc) Aufnahme der Meßpunkte beim Abkühlen der Probe in einem Feld von 20 mT.

Vergleichbare Messungen an Fe / Gd - Viellagenschichten sind in Abbildung 32 dargestellt. Hier ist keine Abhängigkeit der Meßkurve von der Vorgeschichte der Probe feststellbar.



**Abbildung 32:** Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung einer Fe / Gd - Viellagenschicht mit  $d_{\text{Fe}} = 20 \text{ \AA}$  und  $d_{\text{Gd}} = 40 \text{ \AA}$  bei einem äußeren Feld von 20 mT. Die Meßwerte wurden auf die gleiche Art wie bei den Fe / Y - Viellagenschichten (Abbildung 31) aufgenommen

Bei Fe / Dy - Viellagenschichten können diese Messungen nur schwer interpretiert werden, da sie bei tiefen Temperaturen ein Koerzitivfeld von über 1 T aufweisen. Etwaige Aufspaltungen der Temperaturabhängigkeit bei einem äußeren Feld von 20 mT könnten somit durch das Auftreten von magnetischen Domänen bedingt sein.

Das Auftreten einer thermischen Hysterese ist typisch für ein Spinglas [Mal89]. In den theoretischen Arbeiten von Kakehashi et al. [Kak97] wird das Auftreten eines Spinglaszustands bei großer struktureller Unordnung vorhergesagt.

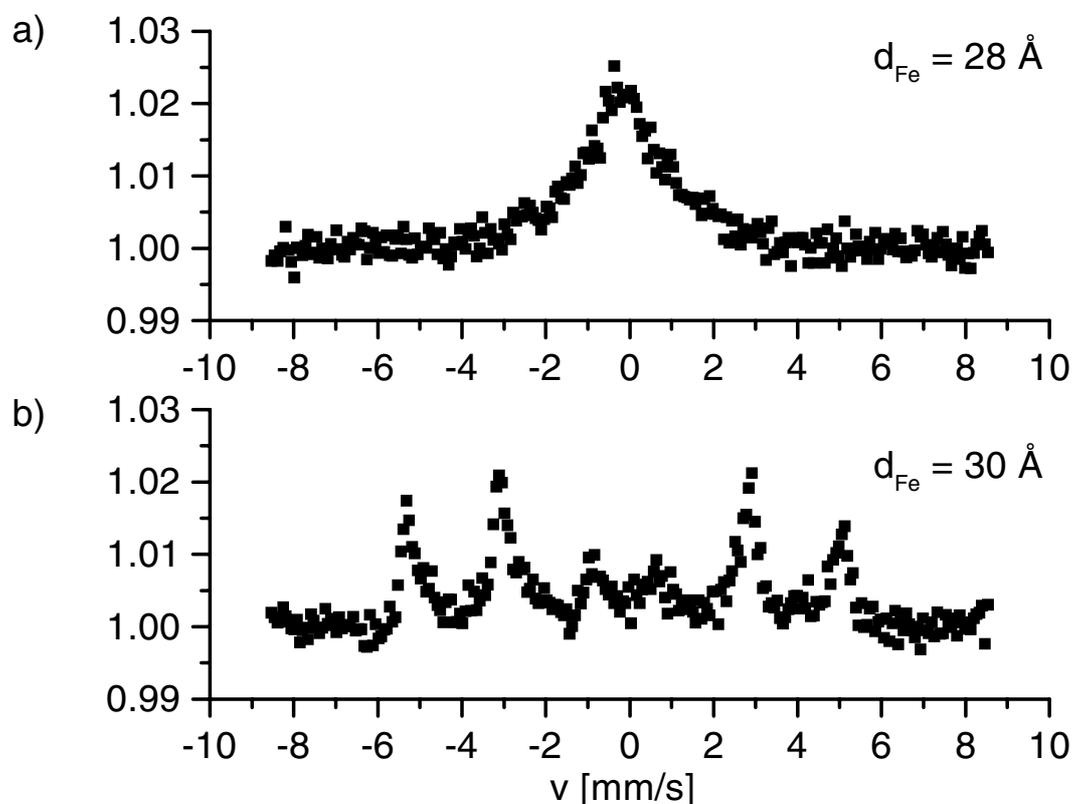
Es kann also aus diesen Messungen geschlossen werden, daß sich das amorphe Eisen in Fe / Y - Viellagenschichten bei tiefen Temperaturen wie ein Spinglas verhält. Falls in den benachbarten Lagen eine magnetische Ordnung vorhanden ist (wie bei Fe / Gd - Viellagenschichten), über-

trägt sich diese auf das amorphe Eisen, und der Spinglaszustand tritt nicht mehr auf.

### 5.3 Mößbauerspektroskopie

Die hier vorgestellten Mößbauerspektren wurden, falls nicht anders vermerkt, bei Zimmertemperatur aufgenommen. Dabei wurde der in Kapitel 3.4 vorgestellte Aufbau benutzt, das heißt es wurde nicht die Absorption der transmittierten  $\gamma$  - Strahlung, sondern die Intensität der emittierten Konversionselektronen (CEMS) gemessen. Es wurde kein äußeres Feld angelegt.

Typische Mößbauerspektren von Fe / Gd - Viellagenschichten zeigen die Abbildungen 33 a und b. Man erkennt zwei grundlegend verschiedene Mößbauerspektren. Schichten, die in den strukturellen Untersuchungen (Kapitel 3) kristalline Ordnung im Eisen aufweisen, zeigen im Mößbauerspektrum das erwartete Sextett (Abb. 33 b), das durch die Hyperfeinaufspaltung



**Abbildung 33:** Typische Mößbauerspektren von Fe / Gd - Viellagenschichten bei Zimmertemperatur. Die Gadoliniumdicke beider Schichten liegt bei etwa  $40 \text{ \AA}$ . Aus [Kip98].

zustande kommt. Die Auswertung der Linienaufspaltung liefert das Hyperfeinfeld, das in den Eisenlagen vorherrscht. Es liegt bei Schichten mit kristallinem Eisen nahe bei 33 T, dem Wert des massiven  $\alpha$  - Eisens.

Dieses Sextett taucht nicht mehr auf, sobald die kristalline Ordnung im Eisen verschwindet, das heißt, sobald die Eisenlagendicke unterhalb von  $d_c$  liegt (Abb. 33 a). Statt dessen taucht nur ein Peak auf, der wesentlich breiter als die natürliche Linienbreite des Eisens ist.

Man nimmt an, daß im amorphen Eisen kein festes Hyperfeinfeld von 33 T vorliegt. In amorphen Substanzen gibt es keine äquivalenten Gitterplätze. Das heißt, alle Atome befinden sich in einer leicht unterschiedlichen Umgebung. Da das Hyperfeinfeld auf einen Kern überwiegend von den Elektronen der nächsten Umgebung ausgeht, kann somit auch nicht erwartet werden, daß alle Atome ein einheitliches Hyperfeinfeld sehen.

Statt dessen liegt eine breite Verteilung von verschiedenen Hyperfeinfeldern vor. Der breite Peak ist eine Überlagerung von vielen Sextetten mit verschiedenen starken Hyperfeinfeldaufspaltungen.

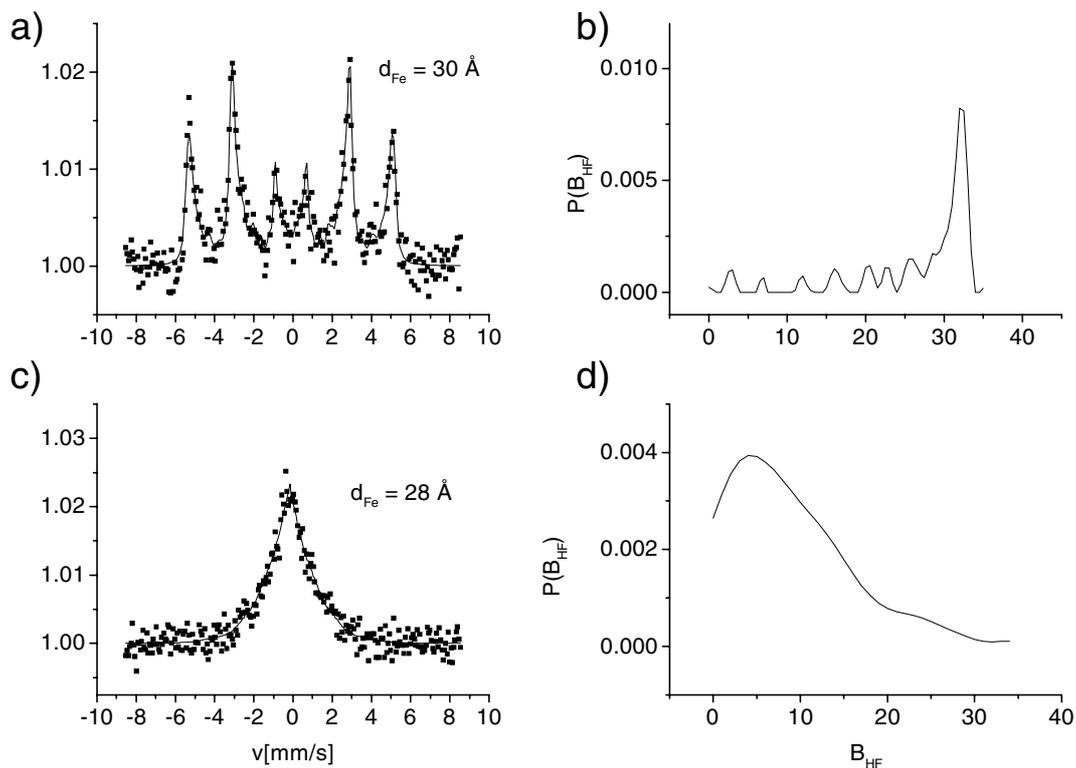
Mößbauerspektren dieser Art können nicht auf herkömmliche Weise ausgewertet werden. Sie müssen einer Anpassungsrechnung unterzogen werden. In den hier angewendeten Anpassungsrechnungen wird der gemessene breite Peak durch eine Linearkombination von  $n$  Mößbauerspektren, die sich nur in ihrer Hyperfeinaufspaltung unterscheiden, genähert. Durch diesen Fit erhält man die Hyperfeinfeldverteilung  $P(B_{HF})$ . Diese gibt die Wahrscheinlichkeit  $P$  an, mit der ein  $^{57}\text{Fe}$  Kern einem Hyperfeinfeld  $B_{HF}$  ausgesetzt ist.  $n$  liegt dabei üblicherweise bei etwa 40. Mit einer kleineren Anzahl von Hyperfeinfeldern kann das gemessene Spektrum meistens nicht hinreichend genau angepaßt werden.

Die Anpassung wurde mit einem an der Universität Duisburg entwickeltem Programm durchgeführt [Bra92].

Ein Beispiel für die Berechnung der Hyperfeinfeldverteilung ist in Abbildung 34 dargestellt. Hier sieht man in den Graphen a) und c) die Meßwerte als Symbole und die Anpassung als durchgezogene Linie. In den Graphen b) und d) ist die korrespondierende Hyperfeinfeldverteilung  $P(B_{HF})$  aufgetragen.

Man erkennt deutlich, daß die Hyperfeinfeldverteilung der Schicht mit  $d_{Fe} = 30 \text{ \AA}$  einen scharfes Maximum bei etwa 33 T aufweist. (Abbildung 34 b). Im Gegensatz dazu zeigt die Hyperfeinfeldverteilung der Schicht mit amorphen Eisenlagen eine breite Verteilung (Abbildung 34 d). Diese Verteilung hat ihren Schwerpunkt deutlich unterhalb von 33 T, dem Hyperfeinfeld des massiven Eisens.

Das Hyperfeinfeld ist in erster Näherung proportional zur Magnetisierung des Eisens und hängt stark von der Ordnungstemperatur ab. Diese sind nach den Ergebnissen der Magnetometrie (Kapitel 5.1) in Schichten, deren Eisenlagendicken unterhalb von  $d_C$  liegen, deutlich verringert. Aus diesem Grund ist in diesen Schichtsystemen auch das mittlere Hyperfeinfeld deutlich niedriger als in massivem bcc - Eisen. Ähnliche Ergebnisse wurden auch für Fe / Tb - Viellagenschichten gefunden [Kip98].

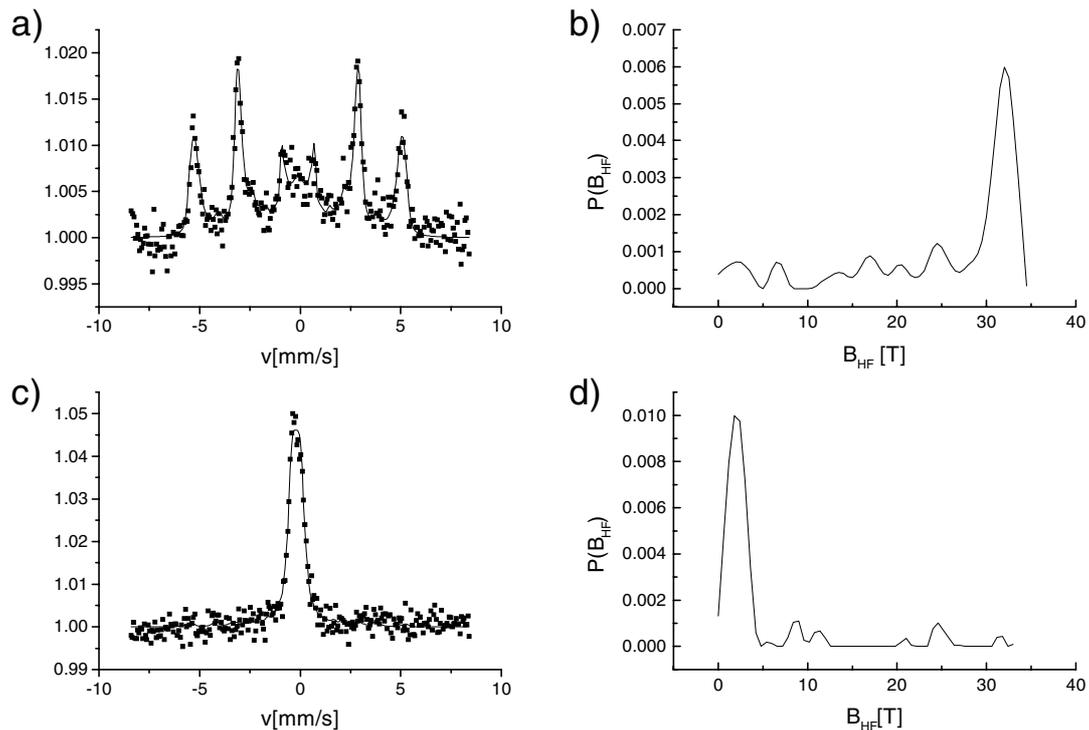


**Abbildung 34:** Anpassung (a, c) und Hyperfeinfeldverteilung (b, d) der Mößbauerspektren einer Fe / Gd - Viellagenschicht mit  $d_{Fe} = 30 \text{ \AA}$  (a, b) und einer Fe / Gd - Viellagenschicht mit  $d_{Fe} = 28 \text{ \AA}$  (c, d). Die Dicke der Gadoliniumlagen liegt bei etwa  $40 \text{ \AA}$ .

Die in Abbildung 34 dargestellte Hyperfeinfeldverteilung des amorphen Eisens bei Zimmertemperatur darf allerdings nicht als intrinsische Eigenschaft des Eisens angesehen werden. Vergleichbare Messungen an Fe / Y - Viellagenschichten [Are92] und Fe / Dy - Viellagenschichten (vgl. Abbildung 35) zeigen zwar das erwartete Sextett in den Schichten mit  $d_{Fe} > d_C$ . In den Schichten mit dünneren Eiseneinzellagen ( $d_{Fe} < d_C$ ) erhält man aber keine so breite Hyperfeinfeldverteilung wie bei den Fe / Gd - Viellagenschichten, sondern nur einen schmalen Peak bei etwa 0 T (vgl. Abbildung 35 d). Das heißt, das Hyperfeinfeld in diesen Schichten ist

deutlich schwächer ausgeprägt als das Hyperfeinfeld in Fe / Gd - Viellagenschichten.

Erst durch Abkühlen der Probe kann eine ähnlich breite Hyperfeinfeldverteilung im amorphen Eisen erzielt werden [Are92, Ern99]. Die Ordnungstemperatur dieser Schichten ist also im Vergleich zu Fe / Gd - Viellagenschichten deutlich reduziert.



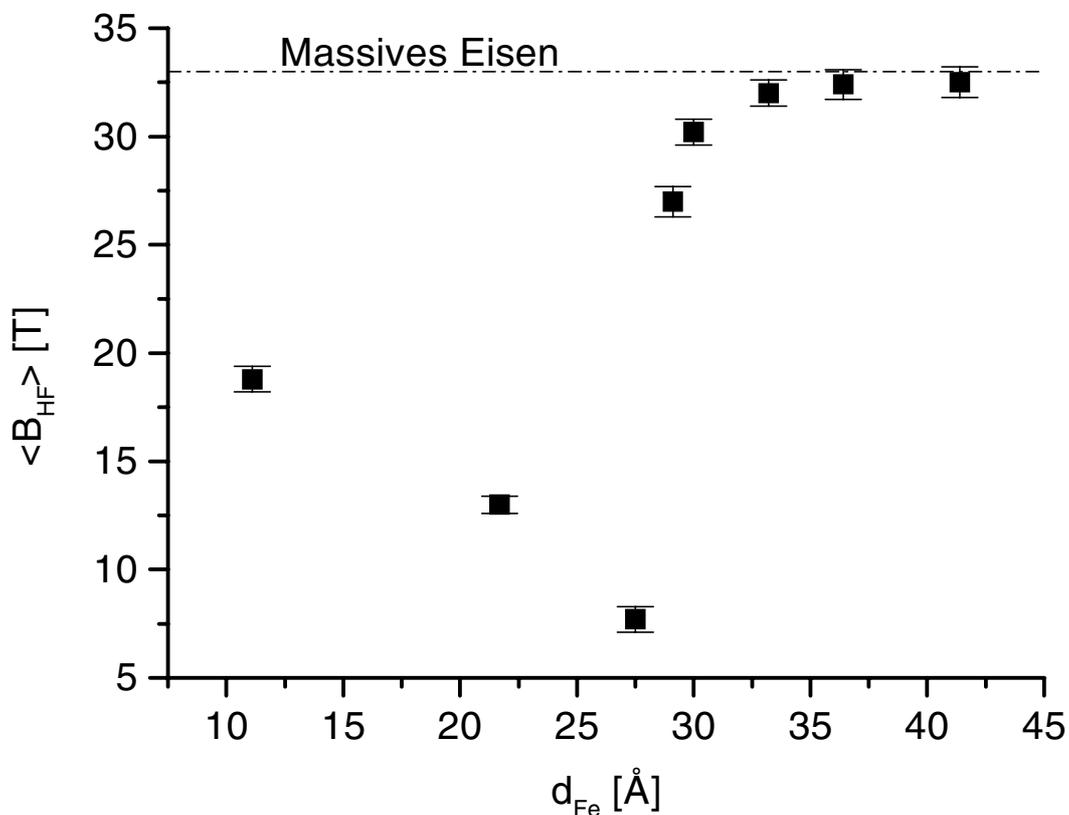
**Abbildung 35:** Anpassung (a, c) und Hyperfeinfeldverteilung (b, d) der Mößbauerspektren einer Fe / Dy -Viellagenschicht mit  $d_{Fe} = 34 \text{ \AA}$  (a, b) und einer Fe / Dy - Viellagenschicht mit  $d_{Fe} = 30 \text{ \AA}$  (c, d). Die Dicke der Dysprosiumlagen liegt bei etwa  $37 \text{ \AA}$ .

Der Magnetismus im amorphen Eisen wird also entscheidend durch die Wechselwirkung mit den benachbarten Lagen beeinflusst. Da dieser Effekt von der Grenzfläche ausgeht und eine beschränkte Reichweite hat, ist es interessant, wie die Hyperfeinfeldverteilung von der Eisenschichtdicke abhängt.

In Abbildung 36 ist der Mittelwert der Hyperfeinfeldverteilung einer Serie von Fe / Gd - Viellagenschichten gegen die Eiseneinzellagendicke aufgetragen. Anhand eines Sprungs erkennt man deutlich den Übergang zwischen amorphem und kristallinem Eisen durch einen Sprung im mittleren Hyperfeinfeld bei einer Eisenschichtdicke von etwa  $30 \text{ \AA}$ . Mit zunehmender Schicht-

dicken wächst das mittlere Hyperfeinfeld im kristallinen Bereich bis zu einem Sättigungswert, der dem Hyperfeinfeld des massiven Eisens entspricht.

Überraschenderweise wächst das mittlere Hyperfeinfeld im Bereich des amorphen Eisens mit sinkender Eiseneinzellagendicke. Eine Erklärung dafür ist, daß in der Nähe der Grenzfläche Bereiche mit höherem Hyperfeinfeld vorkommen als im Inneren der Eisenlagen. Mit wachsender Schichtdicke bleibt der Grenzflächenanteil konstant. Es erhöht sich nur der Volumenanteil mit niedrigem Hyperfeinfeld. Deshalb nimmt das über die ganze Schicht gemittelte Hyperfeinfeld  $\langle B_{HF} \rangle$  ab.



**Abbildung 36:** Mittleres Hyperfeinfeld der Fe / Gd - Viellagenschichten bei Zimmertemperatur als Funktion der Eisenlagendicke bei konstanter Dicke der Gadoliniumlagen von etwa 40 Å. Aus [Kip98].

Diese Überlegung wird auch durch die Ergebnisse aus der Magnetometrie (Kapitel 5.1) gestützt. Auch dort gab es starke Hinweise darauf, daß die Magnetisierung in den Eisenlagen nicht homogen ist.

Der Anstieg des mittleren Hyperfeinfeldes  $\langle B_{HF} \rangle$  bei sinkender Eisenlagendicke ist bei den Fe / Dy - Viellagenschichten nicht erkennbar. Bei Zimmertemperatur sind die Schichten paramagnetisch, das heißt es ist kein Hyperfeinfeld vorhanden. Dieses entsteht erst bei tieferen Temperaturen. Dabei zeigt sich jedoch keine ausgeprägte Abhängigkeit des mittleren Hyperfeinfeldes  $\langle B_{HF} \rangle$  von der Eisenlagendicke [Ern99].

Das unterschiedliche Verhalten von Fe / Gd - und Fe / Dy - Viellagenschichten erklärt sich dadurch, daß amorphes Eisen bei Zimmertemperatur paramagnetisch ist. Erst durch die Wechselwirkung mit den benachbarten Seltenerdmetallagen kann im amorphen Eisen eine magnetische Ordnung induziert werden. Dies geschieht durch die Austauschkopplung zwischen den Eisen- und den Seltenerdmetallmomenten.

Je nachdem wie stark diese magnetische Kopplung ausfällt, kommt es im amorphen Eisen bei Zimmertemperatur zu ferromagnetischem oder zu paramagnetischem Verhalten. Als Maß für die Kopplung zwischen den Eisen- und den Seltenerdmetallmomenten kann die Curietemperatur der entsprechenden amorphen Legierung genommen werden. Diese liegt für eine Konzentration, die einer Atomlage Eisen und einer Atomlage Seltenerdmetall entspricht ( $\text{Fe}_2\text{SE}$ ) für Fe - Gd - Legierungen bei 500 K [Han89] und für Fe - Dy - Legierungen bei 300 K [Han90]. Daraus ist ersichtlich, daß die Austauschwechselwirkung zwischen Eisen und Gadolinium fast doppelt so groß ist wie die Austauschwechselwirkung zwischen Eisen und Dysprosium.

Die Mößbauerspektroskopie ergibt, daß die kristalline Ordnung des Eisens einen großen Einfluß auf dessen Magnetismus ausübt. Während Schichten, die in strukturellen Untersuchungen als eindeutig kristallin identifiziert werden konnten, ein Hyperfeinfeld aufweisen, das nahezu dem Wert des massiven Eisens entspricht, zeigen die Proben mit amorphen Eisen ein deutlich reduziertes Hyperfeinfeld. Dieses weist dazu teilweise noch eine breite Verteilung auf und spiegelt somit die strukturelle Unordnung in einer magnetischen Unordnung wieder.

Sobald das Eisen amorph vorliegt, kann man einen Einfluß der benachbarten Lagen auf den Magnetismus des Eisens feststellen. Dabei verstärkt die Kopplung an die Seltenerdmetalle den Magnetismus des amorphen Eisens. Die magnetische Ordnung ist bei Zimmertemperatur bei Fe / Gd - Viellagenschichten hauptsächlich an der Grenzfläche lokalisiert und verringert sich im Inneren der Lagen. Ist die Kopplung an die Seltenerdmetallagen schwächer (z. B. Fe / Dy - Viellagenschichten), so erkennt man keine ausgeprägte Zunahme des Hyperfeinfeldes an den Grenzflächen.

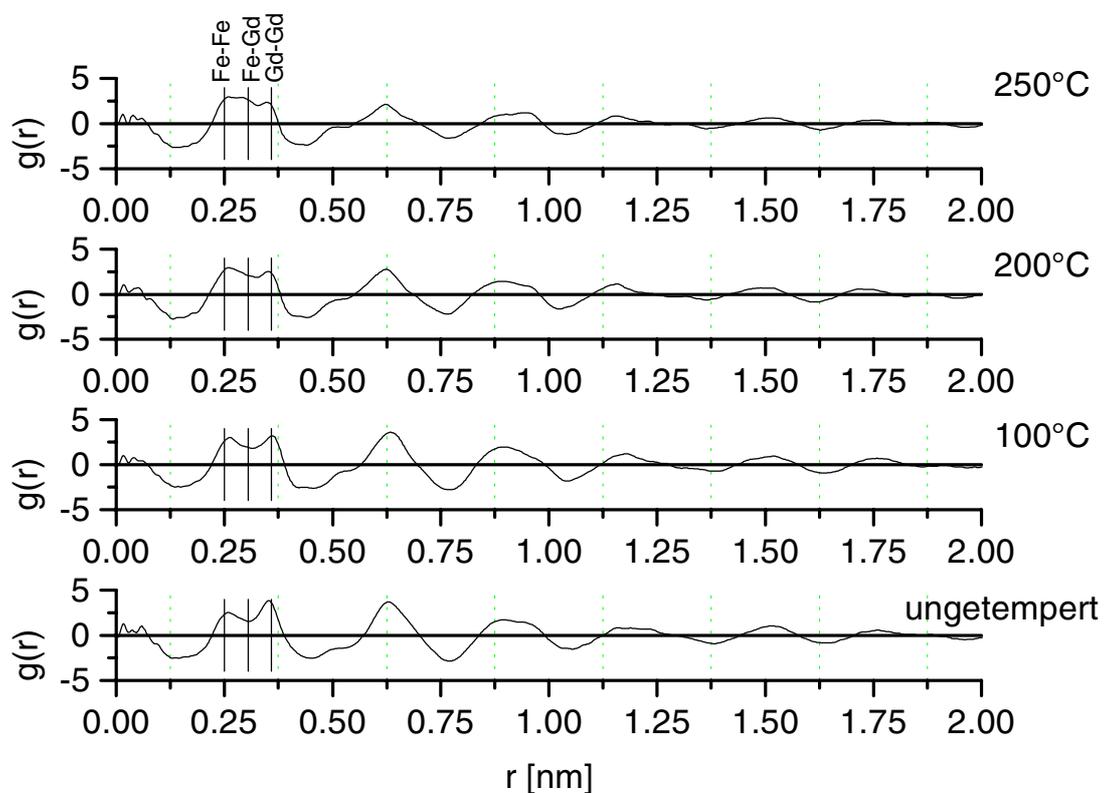
Diese Ergebnisse werden durch die Resultate aus der Magnetometrie (Kapitel 5.1) bestätigt.

## 6. Stabilität des amorphen Eisens

Um weitere Informationen über das amorphe Eisen zu erlangen, wurden die Schichtsysteme einer Temperbehandlung unterzogen. Damit sollte die Umwandlung des amorphen Zustands in einen kristallinen Zustand erreicht werden. Ähnliche Untersuchungen von Dubowik et al. [Dub96] ließen darauf schließen, daß sich der Kristallisationsgrad bei Fe / Zr - Viellagen-schichten durch das Tempern erhöht.

Zur Untersuchung wurden jeweils zwei vergleichbare Proben hergestellt. Eine Probe wurde im Elektronenmikroskop sowohl getempert als auch strukturell untersucht. Die andere wurde in einem Vakuumpumpstand getempert und anschließend ex situ durch Mößbauerspektroskopie magnetisch charakterisiert. Die Temperdauer betrug jeweils eine Stunde.

In Abbildung 37 sind die Ergebnisse der aus Elektronenbeugung ermittelten lateralen Paarver-



**Abbildung 37:** Paarverteilungsfunktionen einer Fe / Gd - Viellageschicht mit  $d_{Fe} = 20 \text{ \AA}$  und  $d_{Gd} = 24 \text{ \AA}$  nach verschiedenen Temperzyklen. Aus [Hof98].

teilungsfunktionen zu sehen. Man erkennt, daß in der lateralen Paarverteilungsfunktion die Maxima bei 0,62 nm und 0,9 nm mit zunehmender Temperatur niedriger werden. Daraus kann gefolgert werden, daß sich die strukturelle Ordnung der Schicht durch den Temperprozeß nicht erhöht sondern eher erniedrigt. Statt dessen entsteht in der lateralen Paarverteilungsfunktion zwischen dem Eisen - Eisen Abstand und dem Gadolinium - Gadolinium Abstand bei 0,3 nm ein weiteres Maximum. Wie bereits in Kapitel 3.5 beschrieben wurde, läßt sich der zugehörige Atomabstand durch eine sich ausbildende Legierungsphase erklären.

Da sich amorphe Stoffe üblicherweise in einem metastabilen Zustand befinden, ist es verwunderlich, daß die Temperbehandlung nicht zum Auskristallisieren des Eisens sondern zu einer Durchmischung der Grenzflächen führt.

Dieses Verhalten ist auch von Fe / Zr - Viellagenschichten bekannt. Herr et al. [Her96] vermuten, daß die amorphe Phase von Eisen in Viellagenschichten nicht metastabil, sondern stabil ist. Diese Vermutung kann folgendermaßen hergeleitet werden:

Betrachtet man den kristallinen und den amorphen Zustand von Eisen im Massivmaterial, so ist der kristalline Zustand im Eisen energetisch günstiger, das heißt die Bindungsenergie liegt tiefer. Somit ist

$$\Delta\epsilon = \epsilon_{\text{kristallin}} - \epsilon_{\text{amorph}} < 0 \quad (15)$$

Im Gegensatz zum Massivmaterial muß in dünnen Schichten auch der Energiebeitrag, der von den Grenzflächen herkommt, berücksichtigt werden. Die Bindungsenergie kann also mit

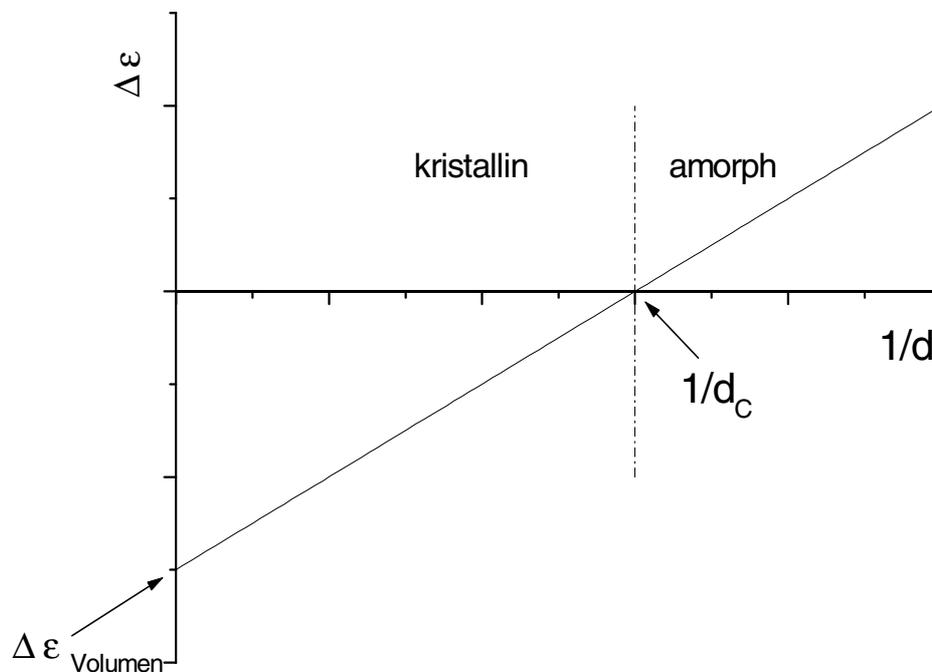
$$\epsilon = \epsilon_{\text{Volumen}} + \frac{1}{d} \epsilon_{\text{Grenzfläche}} \quad (16)$$

angesetzt werden. Angenommen

$$\Delta\epsilon_{\text{Grenzfläche}} = \epsilon_{\text{Grenzfläche}}^{\text{kristallin}} - \epsilon_{\text{Grenzfläche}}^{\text{amorph}} > 0, \quad (17)$$

so verläuft  $\Delta\epsilon$  wie in Abbildung 38. Dann gibt es also eine kritische Dicke  $d_c$ , unterhalb derer die amorphe Phase energetisch günstiger ist als die kristalline Phase. In diesem Fall kann man

erwarten, daß sich das amorphe Eisen durch eine Temperbehandlung nicht auskristallisieren läßt, da es sich in einer stabilen Phase befindet.



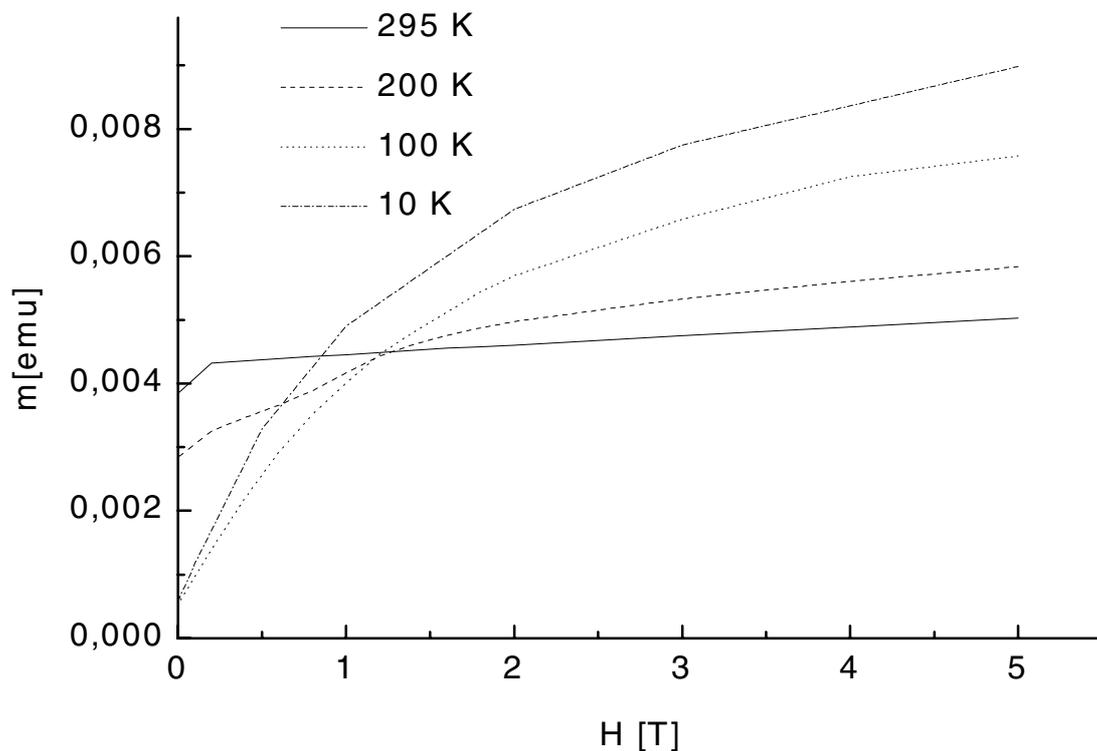
**Abbildung 38:** Energieunterschied zwischen amorpher und kristalliner Phase in Abhängigkeit von der reziproken Schichtdicke. Bei einer kritischen Schichtdicke  $d_c$  ergibt sich ein Übergang zwischen amorpher und kristalliner Phase.

Der Grund dafür, daß die Grenzflächenenergie im amorphen Zustand niedriger als die Grenzflächenenergie im kristallinen Zustands ist könnte der große Gitterfehlpass zwischen Eisen und Seltenerdmetallen sein. Eisenatome haben einen nächsten - Nachbarn - Abstand von  $2 \text{ \AA}$ , die Seltenerdmetalle dagegen ungefähr  $3,6 \text{ \AA}$ . Zusätzlich zum großen Gitterfehlpass muß allerdings auch eine starke Wechselwirkung zwischen den Seltenerdmetallatomen und den Eisenatomen bestehen, da sich sonst das bcc - Eisengitter unabhängig von der Seltenerdmetall - Unterlage ausbilden könnte.

## 7. Magnetisierungsverhalten von Fe / Gd - Viellagenschichten

### 7.1 Anpassungsrechnungen

Wie bereits in Kapitel 2.8 dargestellt wurde gibt es theoretische Arbeiten über Fe / Gd - Viellagenschichten, in denen Zustände berechnet wurden, die eine nicht kollineare Spinstruktur ("twisted state") aufweisen [Cam97, Cam93]. Diese Spinstruktur wurde durch verschiedene experimentelle Methoden bereits gefunden und sollte sich unter anderem durch eine deutliche Erhöhung der Hochfeldsuszeptibilität erkennbar machen. Diese Erhöhung konnte auch in eigenen Messungen nachgewiesen werden (vgl. Abbildung 39).



**Abbildung 39:** Rechter Ast der Magnetisierungskurven einer Fe / Gd - Viellagenschicht mit  $d_{Fe} = 41 \text{ \AA}$  und  $d_{Gd} = 43 \text{ \AA}$  bei verschiedenen Temperaturen.  $H$  liegt parallel zur Schichtebene. Die Meßpunkte wurden in absteigender Reihenfolge aufgenommen.

Hier sind bei unterschiedlichen Temperaturen gemessene Magnetisierungskurven einer Fe / Gd - Viellagenschicht ( $d_{Fe} = 41 \text{ \AA}$ ,  $d_{Gd} = 43 \text{ \AA}$ ) aufgetragen. Die Magnetisierungskurven bei den höheren Temperaturen (295 K und 200 K) zeigen eine endliche Remanenz und sind bei hohen Feldern nahezu gesättigt. Bei tieferen Temperaturen (10 K und 100 K) ergibt sich dagegen ein ganz anderes Bild. Die Kurven zeigen im Hochfeldbereich eine starke Krümmung und Suszeptibilität. Die Remanenz verschwindet dafür fast vollständig. Vermutlich befinden sich diese Schichten bei tiefen Temperaturen im “twisted state”.

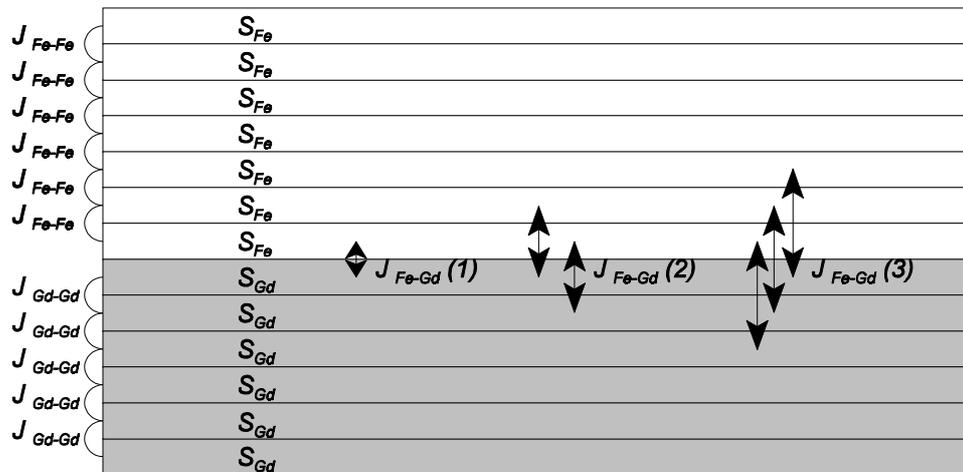
Befinden sich die Schichten im “twisted state”, so macht es wenig Sinn sie nach der in Kapitel 5.1.2 dargestellten Methode auszuwerten. Deshalb wurden eigene Simulationsrechnungen angestellt, die im folgenden vorgestellt werden.

Nach dem Modell, das verwendet wurde, wird die Schicht in einzelne Atomlagen aufgeteilt. Es wird angenommen, daß innerhalb dieser Atomlagen alle Spins die gleiche Richtung und den gleichen Betrag haben. So kann für alle Atomlagen  $i$  ein Vektor  $\vec{S}_i$  eingeführt werden, der parallel zu der lokalen Magnetisierung steht. Der Betrag des Vektors ist der thermische Mittelwert  $\langle \vec{S}_i \rangle$  (Gleichung (1)) des jeweiligen Spins.

Die Vektoren  $\vec{S}_i$  haben nur zwei Komponenten. Eine Komponente von  $\vec{S}_i$  ist parallel und die andere senkrecht zum äußeren Feld  $H_{ext}$ . Auf die senkrecht zur Schichtebene stehende Komponente wurde in der Simulation verzichtet, da die experimentellen Ergebnisse zeigen, daß die Magnetisierung der hier betrachteten Proben immer in der Schichtebene liegt.

Die Atomlagen sind untereinander magnetisch gekoppelt. Die Kopplungsstärke zwischen zwei Atomlagen  $i$  und  $j$  wird dabei durch einen Parameter  $J_{ij}$  beschrieben. Für die unterschiedlichen Atomlagen und Kopplungsreichweiten nimmt der Parameter  $J_{i,j}$  verschiedene Werte an

Zur Beschreibung der Viellagenschicht wurden 5 verschiedene Kopplungsstärken  $J_{ij}$  eingeführt (vergleiche Abbildung 40). Im Lageninneren wird nur die Nächste - Nachbar - Wechselwirkung betrachtet. Hier beschreiben die Parameter  $J_{Fe-Fe}$ , und  $J_{Gd-Gd}$  die Kopplungsstärke zwischen zwei benachbarten Eisen, beziehungsweise Gadoliniumlagen. Für die Kopplung an der Grenzfläche wurden 3 Parameter  $J_{Fe-Gd}(1)$ ,  $J_{Fe-Gd}(2)$  und  $J_{Fe-Gd}(3)$  eingeführt, da aus früheren Arbeiten [Luk93, Sch93] bekannt ist, daß sich die Kopplungsreichweite an den Grenzflächen über mehr als eine Atomlage erstreckt. Dabei beschreibt der Parameter  $J_{Fe-Gd}(1)$  die Nächste - Nachbar - Wechselwirkung,  $J_{Fe-Gd}(2)$  die Übernächste - Nachbar - Wechselwirkung und  $J_{Fe-Gd}(3)$  die Drittnächste - Nachbar - Wechselwirkung zwischen den Eisen- und den Gadoliniumlagen an der Grenzfläche (vergleiche Abbildung 40).

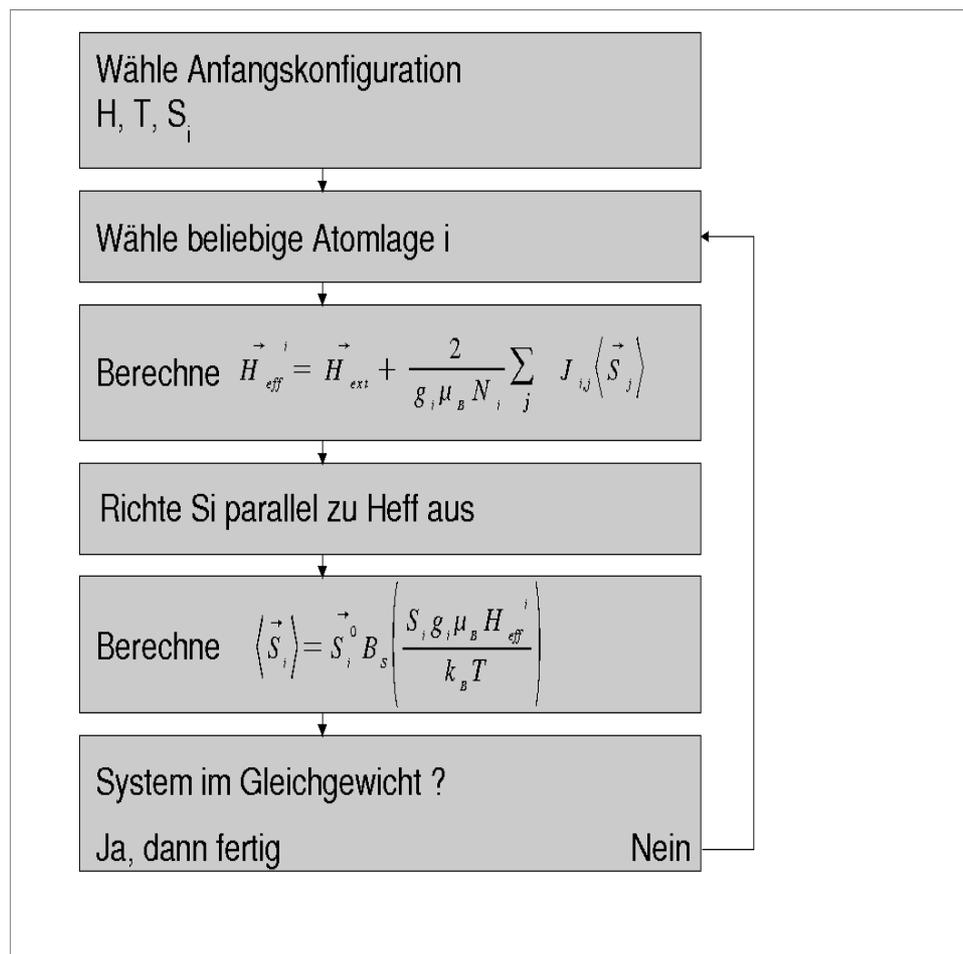


**Abbildung 40:** Atomlagenmodell für die Simulationsrechnungen. Die Parameter  $S_{Fe}$  und  $S_{Gd}$  stellen das Grundzustandsmoment des jeweiligen Elements, der Parameter  $J_{i,j}$  beschreibt die magnetische Kopplung.

Da der Grundzustand dieses Systems nicht analytisch gefunden werden kann, wurde ein numerischer Algorithmus angewendet. Dieser Algorithmus funktioniert nach folgendem Muster (vergleiche Abbildung 41).

Im Ausgangszustand der Simulation weisen die lokalen magnetischen Momente  $\vec{S}_i$  beliebige Werte auf. Eine Atomlage  $i$  wird zufällig ausgewählt, das effektive Feld  $\vec{H}_{eff}^i$  dieser Lage nach Gleichung (2, Seite 17) berechnet und das lokale magnetische Moment  $\vec{S}_i$  dieser Lage parallel zu  $\vec{H}_{eff}^i$  ausgerichtet. Schließlich wird der thermische Mittelwert  $\langle \vec{S}_i \rangle$  des lokalen magnetischen Moments nach Gleichung (1, Seite 17) berechnet. Dieser Vorgang wird jeweils für eine beliebige andere Atomlage solange fortgesetzt, bis sich das System im Gleichgewicht befindet. Der Gleichgewichtszustand besteht dann, wenn sich das gesamte magnetische Moment  $m_{ges}$  (Gleichung 3, Seite 18) des Systems nicht mehr ändert.

Man erhält so die Verteilung der lokalen magnetischen Momente  $\vec{S}_i$  und die gesamte Magnetisierung des Systems. Führt man diese Berechnung mit verschiedenen äußeren Feldern  $H_{ext}$  durch, so ergibt sich eine Magnetisierungskurve.



**Abbildung 41:** Algorithmus zur Berechnung der Spinkonfiguration bei vorgegebener Temperatur  $T$  und vorgegebenem äußerem Feld  $H_{ext}$ .  $S_i$  repräsentiert das lokale magnetische Moment der  $i$ -ten Atomlage

Die hauptsächlichen Näherungen dieser Berechnungen bestehen darin, daß Spinwellenanregungen vernachlässigt wurden, daß die dreidimensionale Schicht in einem eindimensionalen System berechnet wird, und daß die amorphe bis polykristalline Struktur durch exakte Atomlagen beschrieben wurde.

Dabei wird sich später zeigen, daß vor allem die Vernachlässigung der Spinwellenanregungen einen großen Einfluß auf die quantitativen Ergebnisse der numerischen Simulationen haben wird. Die Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung wird hier über den ganzen Meßbereich durch die Brillouinfunktion berechnet. Durch die Spinwellen erhält man bei niedrigen Temperaturen ( $T < T_c / 2$ ) eine  $T^{3/2}$  Abhängigkeit [Blo30] für die Magnetisierung. Wird diese vernachlässigt, so erhält man in diesem Temperaturbereich durch die Berechnung generell zu große

Werte für die Magnetisierung. Deshalb wurde der Temperaturbereich  $T < \frac{1}{2} T_C^{Gd}$  bei der Berechnung soweit möglich vermieden. Die Berücksichtigung der Curietemperatur des Eisen ist nicht möglich, da diese zu hoch liegt.

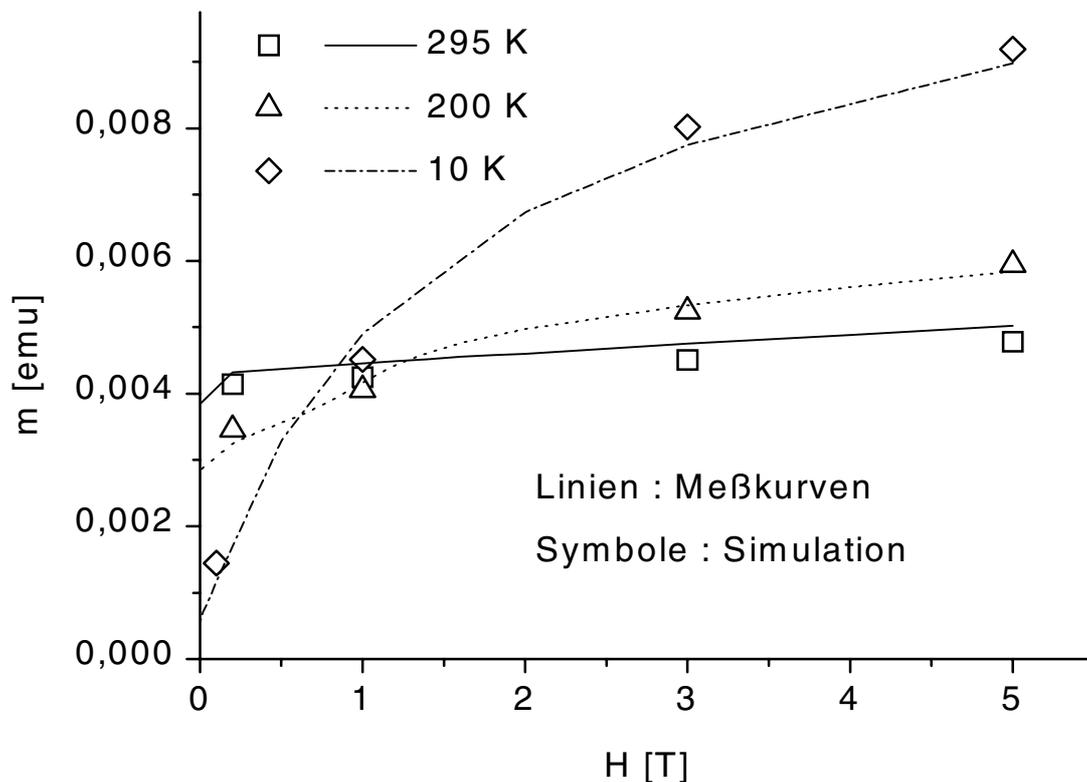
Im Rahmen dieser Arbeit wurde versucht, nicht nur die Magnetisierungskurven zu simulieren, sondern die Simulationsrechnungen den tatsächlichen Messungen möglichst gut anzupassen und daraus quantitative Werte für die Grundzustandsmomente  $S_0$  und die Kopplungsstärken  $J_{ij}$  zu erhalten. Wie bereits im vorigen Kapitel bemerkt wurde, scheitert eine herkömmliche Auswertung der Kurven daran, daß die Einzellagen nicht homogen magnetisiert sind. Will man Aussagen über die magnetischen Eigenschaften der beteiligten Elemente treffen, so bleibt nur die Möglichkeit, das System durch ein vereinfachtes Modell zu erfassen und die gesuchten Parameter durch Anpassung zu ermitteln.

Als freie Parameter wurden für die Anpassung die Grundzustandsmomente der beteiligten Elemente  $S_{Fe}$  und  $S_{Gd}$  und die Austauschkonstanten  $J_{Fe-Fe}$ ,  $J_{Gd-Gd}$ ,  $J_{Fe-Gd}(1)$ ,  $J_{Fe-Gd}(2)$ ,  $J_{Fe-Gd}(3)$  benutzt.

Dieses System mit sieben freien Parametern wurde der Anpassungsrechnung unterzogen. Dabei wurde zur Anpassung der sogenannte "Amoeba" Algorithmus verwendet [Pre90], in dem das mittlere Abstandsquadrat  $\chi^2$  zwischen Meßkurve und Simulationskurve minimiert wird.

## 7.2 Ergebnisse der Anpassungsrechnungen

Ein Beispiel für eine solche Anpassung ist in Abbildung 42 zu sehen. Um die Spinwellenanregungen des Gadoliniums ( $T_C = 290$  K) zu umgehen, wurde der Fit nur bei 10 K (dh. bei etwa 0 K) und bei Temperaturen größer als  $T < \frac{1}{2} T_C^{Gd}$  durchgeführt. Wie man sieht, erhält man eine relativ gute Übereinstimmung zwischen den Meßpunkten (Linien in der Abbildung) und den simulierten Punkten (Symbole in der Abbildung). Würde man auch die Temperaturen zwischen 10 K und 200 K berechnen, so erhielte man durchwegs zu große Werte für das magnetische Moment.



**Abbildung 42:** Anpassung der Magnetisierungskurven einer Fe / Gd - Viellagenschicht mit  $d_{Fe} = 41$  Å,  $d_{Gd} = 43$  Å. Die Linien entstammen SQUID-Messungen, die Symbole repräsentieren die simulierten Werte.

Die aus der Anpassung der Magnetisierungskurve einer Fe / Gd-Viellagenschicht ( $d_{Fe} = 41$  Å,  $d_{Gd} = 43$  Å) erhaltenen Werte sind der nachfolgenden Tabelle zu entnehmen. Dabei wurde die Kopplungsstärke  $J_{i,j}$  immer mit der Anzahl der Kopplungspartner  $N$  in der jeweiligen Ebene

multipliziert, da dieser Term die gesamte Kopplungsenergie für die jeweilige Reichweite repräsentiert.

<b>aus Anpassung ermittelte Grundzustandsmomente und Kopplungsenergien</b>		
	Aus Fit	Massivmaterial
$S_{\text{Fe}}$	1,2	1,1 (2,2 $\mu_{\text{B}}$ )
$S_{\text{Gd}}$	3,6	3,6 (7,2 $\mu_{\text{B}}$ )
$N_{\text{Fe-Fe}} J_{\text{Fe-Fe}}$	24 meV	56 meV
$N_{\text{Gd-Gd}} J_{\text{Gd-Gd}}$	1,6 meV	2,4 meV
$N_{\text{Fe-Gd}} J_{\text{Fe-Gd}} (1)$	-6,0 meV	
$N_{\text{Fe-Gd}} J_{\text{Fe-Gd}} (2)$	-2,6 meV	
$N_{\text{Fe-Gd}} J_{\text{Fe-Gd}} (3)$	-0,6 meV	

Die oberen zwei Werte in der dritten Spalte sind die Literaturwerte für den Grundzustandsspin von massiven Eisen und Gadolinium, die unteren beiden Werte sind Abschätzungen der Curie-temperatur aus der Molekularfeldtheorie nach

$$J_{ij} = \frac{3 k_B T_C}{2zS(S+1)} \quad (24)$$

Dabei ist  $z$  die Anzahl der nächsten Nachbarn.

Wie man aus obiger Tabelle erkennt, liefert die Anpassung recht brauchbare Werte für das magnetische Grundzustandsmoment. Sie versagt jedoch bei einer genauen Angabe der Kopplungsstärke  $J_{ij}$ . Dies ist auch nicht weiter verwunderlich, nachdem die Spinwellenanregungen nicht beachtet wurden. Vor allem beim Eisen ( $T_C = 1023$  K) befindet man sich bei allen Meßtemperaturen in dem von Spinwellenanregungen dominierten  $T^{3/2}$  Bereich. So erklärt sich auch, daß es hier zur größten Abweichung vom Theoriewert kommt.

Eine interessante Erkenntnis kann die Rechnung in bezug auf die Kopplungsstärken doch liefern. Betrachtet man die Kopplung zwischen Eisen und Gadolinium, so erkennt man einen deutlichen Abfall mit zunehmender Reichweite der Kopplung. Vergleicht man die erhaltenen Werte für die Kopplung zwischen den nächsten Nachbarn und den drittnächsten Nachbarn, so erkennt man, daß sich die Kopplung bei dieser Reichweite schon um einen Faktor 10 verringert

hat. Man ist mit Hilfe dieser Rechnungen nicht mehr darauf beschränkt, nur eine Reichweite der Kopplung anzugeben. Statt dessen kann deren Verlauf und Abnahme ins Innere der Schicht bestimmt werden.

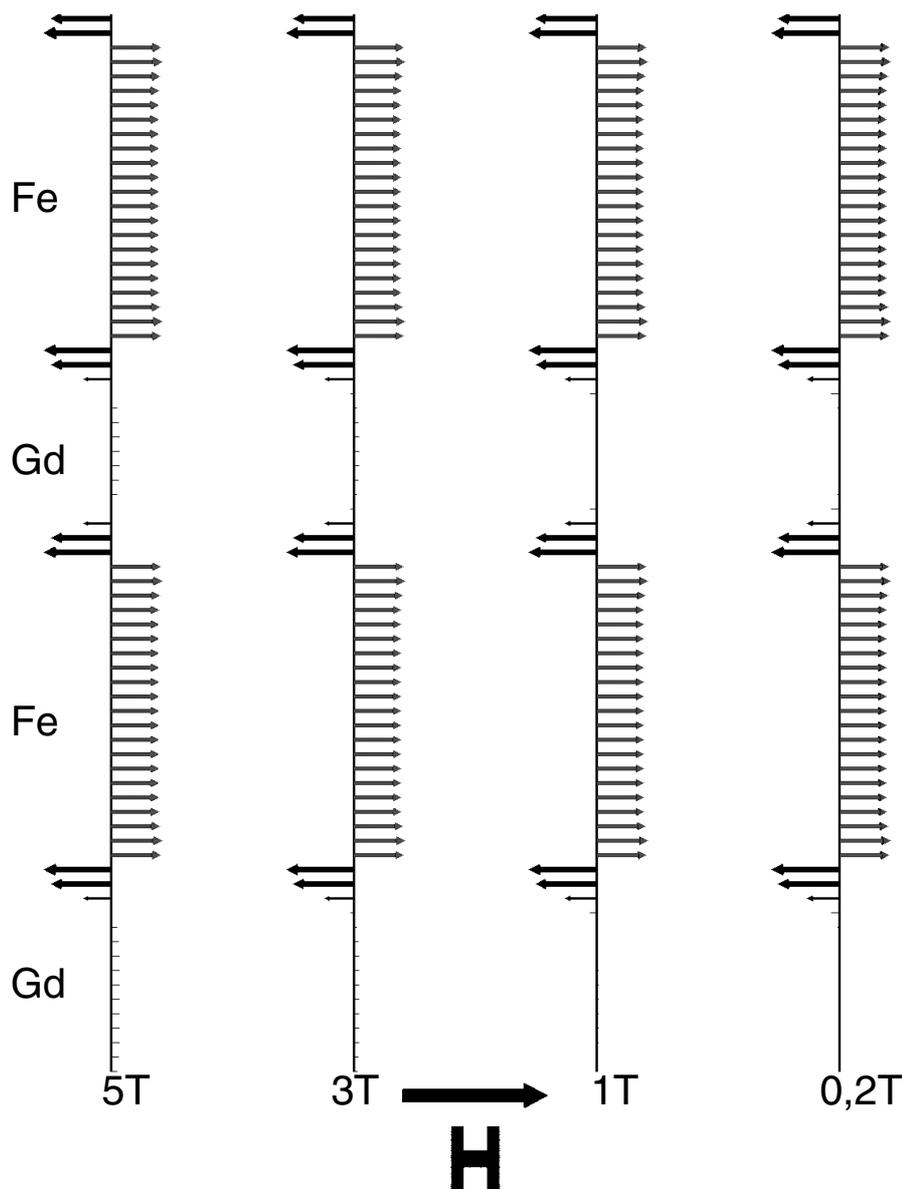
Die Werte der obigen Tabelle konnten durch Anpassung von verschiedenen Fe / Gd - Viellagenschichten in etwa reproduziert werden. Vor allem das magnetische Grundzustandsmoment wurden dabei immer sehr gut erhalten. Die berechneten Kopplungsstärken  $J$  streuen dagegen leicht. Sie liefern jedoch immer den Abfall der Kopplungsstärke von der Grenzfläche ins Innere der Schicht.

Leider konnten mit dieser Methode nicht die Magnetisierungskurven von Fe / Gd - Viellagenschichten mit amorphen Eisenlagen angepaßt werden. So kann dessen Grundzustandsmoment hier nicht angegeben werden. Der Grund dafür liegt eventuell in der Tatsache, daß sich der Magnetismus einer amorphen Substanz nicht durch eine eindimensionale Molekularfeldtheorie erklären läßt.

### 7.3 Magnetisierungsverteilung

Wie bereits in Kapitel 7.1 beschrieben wurde liefert die Simulation zusätzlich zu den Magnetisierungskurven auch die räumliche Verteilung der Spinrichtungen  $\vec{S}_i$ . Diese Verteilung bei einer Meßtemperatur von  $T = 295$  K ist in Abbildung 43 zu sehen.

Man erkennt, daß die Eisenmomente bei allen Feldern homogen parallel zum Feld ausgerichtet



**Abbildung 43:** Berechnete Magnetisierungsverteilung einer Fe / Gd - Viellagenschicht mit  $d_{Fe} = 41$  Å und  $d_{Gd} = 43$  Å bei einer Temperatur von 295 K und verschiedenen äußeren Feldern. Es sind jeweils nur die untersten Lagen abgebildet. In Wirklichkeit würde sich die Schicht nach oben hin fortsetzen.

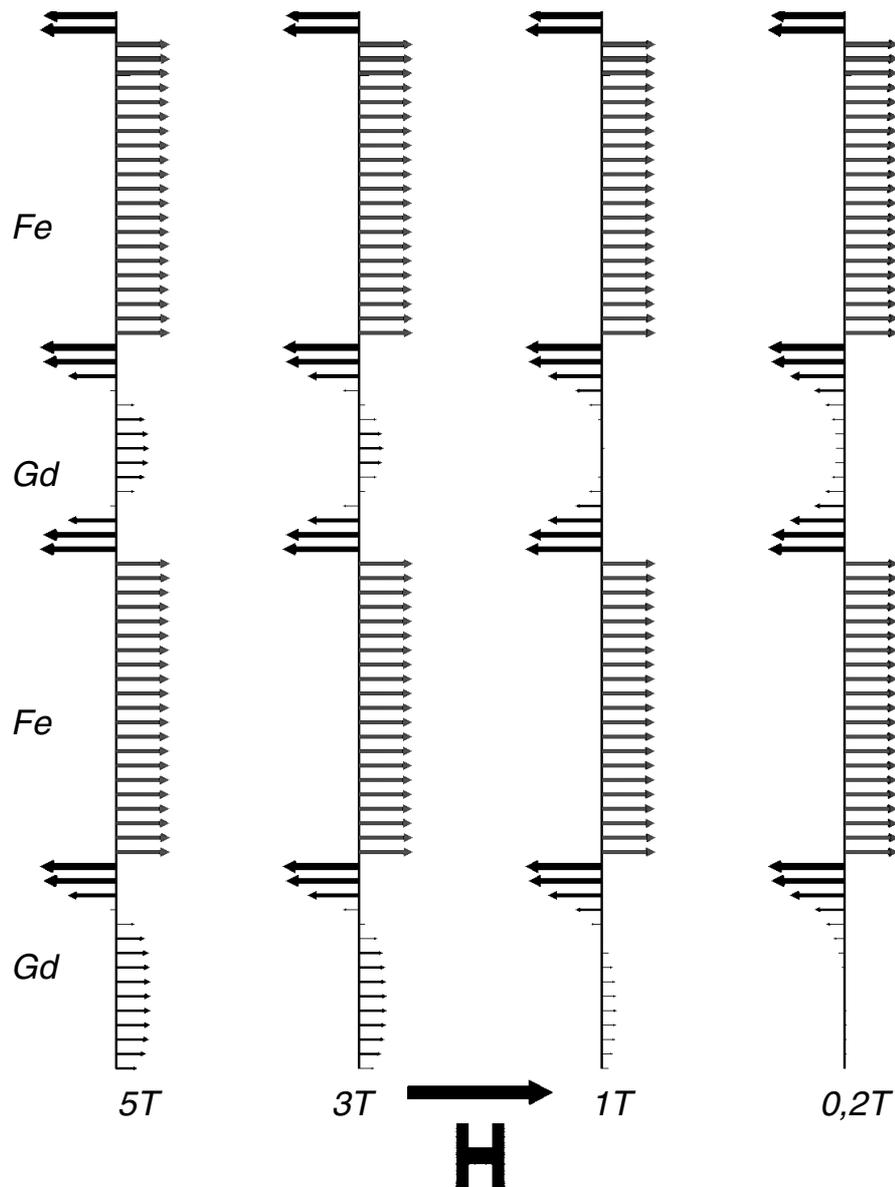
sind. In den Gadoliniumlagen sind dagegen jeweils nur die grenzflächennahen Momente ausgebildet. Ihre Richtung ist entgegengesetzt zum äußeren Feld.

Wie nicht anders zu erwarten äußert sich die Sättigung der Magnetisierungskurve darin, daß sich auch die Spinstruktur mit dem äußeren Feld kaum ändert. Nur bei genauem Hinsehen erkennt man, daß sich jeweils in der Mitte der Gadoliniumlagen mit steigendem Feld ein schwaches Moment ausbildet, das in Feldrichtung weist und den leichten Anstieg in der Magnetisierungskurve verursacht. Dieses Verhalten ist auch verständlich, wenn man bedenkt, daß massives Gadolinium bei 295 K paramagnetisch ist. Nur die grenzflächennahen Momente sind durch die Kopplung an das Eisen ferromagnetisch geordnet und weisen entgegen der Feldrichtung.

Dieses Verhalten ist bei 200 K noch stärker ausgeprägt (vgl. Abbildung 44). Bei dieser Temperatur ist massives Gadolinium ferromagnetisch. Dies erkennt man in der Spinstruktur daran, daß die inneren Gadoliniumlagen auch bei sehr niedrigen äußeren Felder eine endliche Magnetisierung aufweisen.

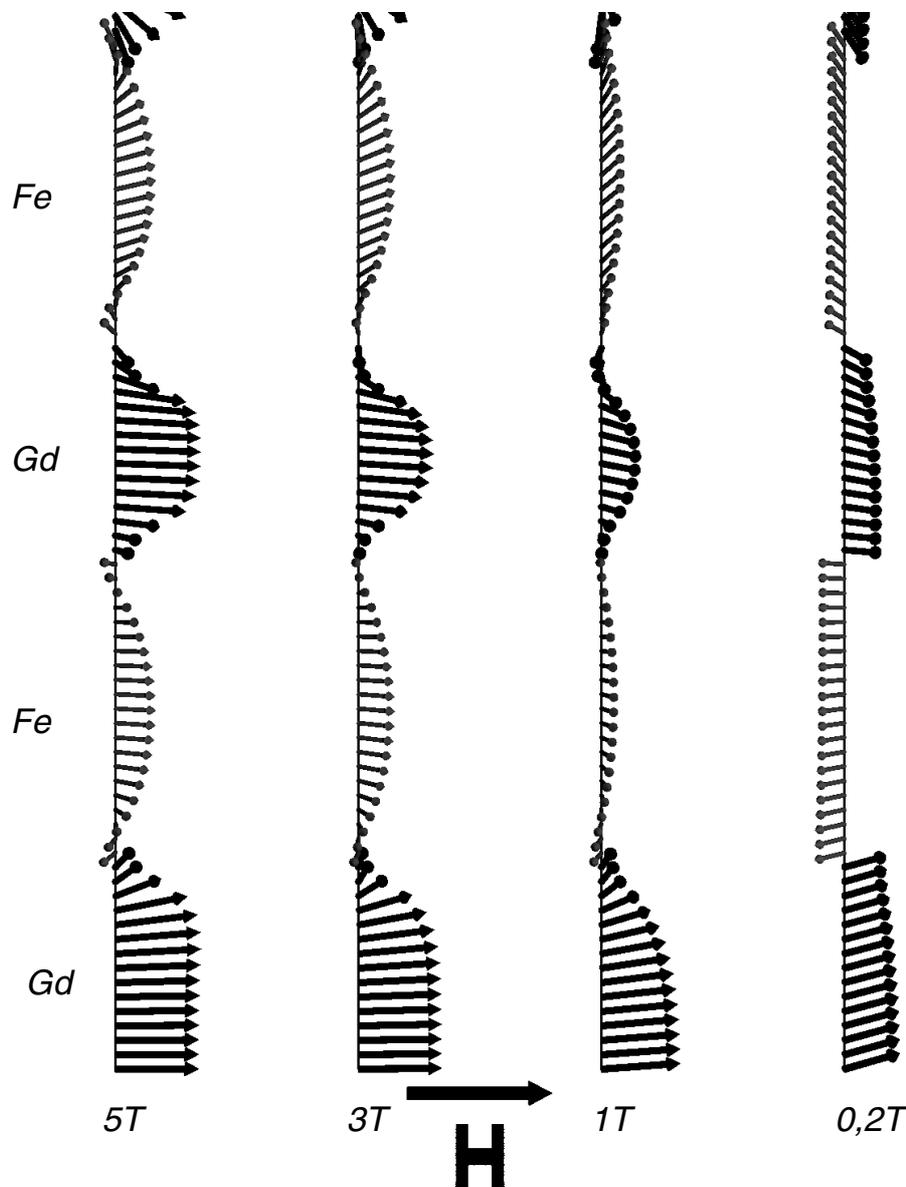
Bei starken äußeren Feldern kommt es allerdings trotz der ferromagnetischen Ordnung des Gadoliniums dazu, daß nur die grenzflächennahen Momente antiparallel zum Eisen, und damit antiparallel zum äußeren Feld ausgerichtet sind. Um die große Zeemannenergie dieser antiparallelen Stellung zu verringern, können sich die Momente im Inneren der Gadoliniumlagen in Feldrichtung ausrichten.

Die Hochfeldsuszeptibilität wird im "aligned state" durch die Momente im Inneren der Gadoliniumlagen verursacht. Da diese bei 200 K stärker ausgeprägt sind als bei 295 K, ist die Hochfeldsuszeptibilität bei der niedrigeren Temperatur größer.



**Abbildung 44:** Berechnete Magnetisierungsverteilung einer Fe / Gd - Viellagenschicht mit  $d_{Fe} = 41 \text{ \AA}$  und  $d_{Gd} = 43 \text{ \AA}$  bei einer Temperatur von 200 K und verschiedenen äußeren Feldern. Nur die untersten Lagen sind abgebildet.

Ganz anders sieht die Spinstruktur der betrachteten Viellagenschicht bei einer Temperatur von 10 K aus (vgl. Abbildung 45).



**Abbildung 45:** Berechnete Spinstruktur in den untersten Lagen einer Viellagenschicht mit  $d_{Fe} = 41 \text{ \AA}$  und  $d_{Gd} = 43 \text{ \AA}$  bei einer Temperatur von 10 K und verschiedenen äußeren Feldern.

Hier sind die einzelnen Momente nicht mehr parallel beziehungsweise antiparallel zum äußeren Feld ausgerichtet. Statt dessen schließen sie endliche Winkel zueinander ein. Die Probe befindet sich bei dieser Meßtemperatur also im “twisted state”. Dabei sind die Spins an der Grenzfläche nahezu antiparallel ausgerichtet und stehen in etwa in einem Winkel von etwa  $90^\circ$  zum äußeren Feld. Sie drehen sich dann um so mehr in Feldrichtung, je weiter sie von der Grenzfläche entfernt sind. Diese Verdrehung hängt von dem äußeren Feld ab.

Zusammenfassend läßt sich sagen, daß es in den hier betrachteten Viellagenschichtsystemen zu sehr unterschiedlichen Spinstrukturen kommen kann. Hauptsächlich bei hohen Temperaturen tritt der sogenannte "aligned state" auf, bei dem die magnetischen Momente der einzelnen Atomlagen entweder parallel oder antiparallel zum äußeren Feld ausgerichtet sind. Der Betrag des magnetischen Moments in den Lagen ist nicht konstant. Vor allem im Gadolinium mit seiner niedrigen Curietemperatur von 290 K tragen hauptsächlich die nahe an der Grenzfläche lokalisierten Momente zum Gesamtmoment bei. Bei starken äußeren Feldern können sich im Inneren der Gadoliniumlagen sogar Bereiche ausbilden, in denen die magnetischen Momente parallel zum Eisen ausgerichtet sind. Da diese schwach gekoppelten Bereiche in ihrer Magnetisierung sehr variabel sind, verursachen sie eine endliche longitudinale Suszeptibilität im Hochfeldbereich.

Bei tieferen Meßtemperaturen ändert sich der Zustand in den sogenannten "twisted state". Dieser ist dadurch ausgezeichnet, daß die magnetischen Momente der Atomlagen nicht mehr streng parallel oder antiparallel zum äußeren Feld ausgerichtet sind. Statt dessen schließen sie endliche Winkel miteinander ein. Diese endlichen Winkel führen dazu, daß die Schichtsysteme über den ganzen Feldbereich eine anhaltend hohe Suszeptibilität aufweisen.

In beiden Fällen ist die Magnetisierung in den Einzellagen nicht homogen. Um aus den Meßwerten physikalische Größen zu ziehen ist es also unbedingt notwendig, die Meßkurven anzupassen. Herkömmliche Auswertungsmethoden können liefern dagegen hier falsche Werte.

## 8. Zusammenfassung

Ziele dieser Arbeit waren zum einen Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten bezüglich der Struktur und dem Magnetismus von amorphem Eisen zu charakterisieren und zum anderen die magnetischen Eigenschaften der Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten in starken äußeren Feldern zu klären.

Die Schichtsysteme wurden durch Magnetronspütern hergestellt. In umfangreichen strukturellen und magnetischen Untersuchungen wurde die kritische Dicke gemessen, bei der sich das Eisen aus der amorphen in die bcc - Struktur umwandelt. Diese beträgt bei den im Rahmen dieser Arbeit hergestellten Schichtsystemen bei Fe / Y - Viellagenschichten 26 Å, bei Fe / Gd - Viellagenschichten 29 Å und bei Fe / Dy - Viellagenschichten 32 Å.

Insbesondere durch die Messungen der Elektronenbeugung und die anschließenden Auswertung mit Hilfe der lateralen Paarverteilungsfunktion konnte erstmals die Reichweite der strukturellen Ordnung in amorphem Eisen annähernd bestimmt werden. Für diese läßt sich in den Schichten, deren Eisenlagendicke unterhalb der kritischen Schichtdicke  $d_c$  liegt, eine Obergrenze von etwa 2 nm angeben.

Die Interpretation, daß es sich nicht um amorphes Eisen sondern nur um eine amorphe Legierung handelt, konnte durch Röntgenreflektometrie und Elektronenbeugung widerlegt werden. Dabei zeigten sich in der Röntgenreflektometrie sehr gut ausgebildete Viellagenstrukturen mit rms - Rauigkeiten, die im Bereich von nur wenigen Angström liegen.

In den lateralen Paarverteilungsfunktionen wurde die Häufigkeit der in der Schichtebene vorkommenden Atomabstände gemessen. Dabei wurden an ungetemperten Proben hauptsächlich Fe - Fe und Gd - Gd Abstände detektiert. Erst durch das Tempern der Schichten entstehen Fe - Gd Abstände. Dies läßt den Schluß zu, daß die Viellagenschichten nach der Herstellung scharfe Grenzflächen aufweisen. Erst durch nachträgliches Tempern läßt sich eine Durchmischung der Grenzflächen erzeugen.

Interessanterweise führt die Temperbehandlung nicht zum Auskristallisieren des amorphen Eisens. Eine Erklärung dafür könnte sein, daß die amorphe Phase des Eisens durch die Grenzflächen stabilisiert wird. Das amorphe Eisen in den Eisen / Seltenerdmetall - Viellagenschichten stellt also keine metastabile, sondern eine stabile Phase dar.

Obwohl sich in den strukturellen Untersuchungen keine Unterschiede zwischen amorphen Eisenmodifikationen in verschiedenen Viellagenschichten ergaben, hängt der Magnetismus des

amorphen Eisens doch stark davon ab, welches Seltenerdmetallen verwendet wurde. Während Fe / Gd - Viellagenschichten bei Zimmertemperatur ein ausgeprägtes spontanes magnetisches Moment aufweisen, liegen Fe / Dy - und Fe / Y - Viellagenschichten paramagnetisch vor. Bei tieferen Temperaturen haben Fe / Y - Viellagenschichten sogar Eigenschaften, die auf die Existenz eines Spinglaszustands hinweisen.

Da bei Yttrium nie ein spontanes magnetisches Moment auftritt, kann der Schluß gezogen werden, daß amorphes Eisen in dünnen Schichten ein Spinglas darstellt, wenn es keine magnetische Kopplung zu den benachbarten Lagen gibt. Sobald es jedoch ein magnetisches Moment an der Grenzfläche gibt, werden die magnetischen Momente im Eisen stärker geordnet, und es findet ein Übergang zum Ferromagnetismus statt.

Da in theoretischen Arbeiten eine starke Abhängigkeit der magnetischen Eigenschaften des amorphen Eisens von dessen Massendichte berechnet wurde, wurde diese hier erstmals bestimmt. Dabei stellte sich heraus, daß im Rahmen der Meßgenauigkeit die Massendichte des amorphen Eisens identisch mit der Massendichte von bcc - Eisen ist. Das von Krauss und Krey bei dieser Massendichte errechnete magnetische Grundzustandsmoment [Kra91] von  $1,5 \mu_B$  konnte durch Messungen an Fe / Y - Viellagenschichten bestätigt werden.

Bei endlichen Temperaturen zeigt sich, daß das magnetische Moment je nach Seltenerdmetall nicht immer homogen über die Schicht verteilt ist. Bei Fe / Gd - Viellagenschichten ist das mittlere Hyperfeinfeld in Schichten mit dünnen Eisenlagen stärker ausgeprägt als in Schichten, deren Eiseneinzellagendicke knapp unterhalb der kritischen Schichtdicke liegt. Dies ist in Fe / Dy - Viellagenschichten nicht der Fall. Die inhomogene Verteilung des magnetischen Moments erschwert dessen Bestimmung erheblich.

Zur Aufklärung des Ursprungs der nicht verschwindenden Hochfeldsuszeptibilität wurde ein Modell verwendet, das auf einer Molekularfeldnäherung basiert. Zum Teil konnten mit diesem Modell die gemessenen Kurven simuliert werden. Dabei zeigt sich, daß in manchen Temperaturbereichen eine nicht kollineare Anordnung ("twisted state") der magnetischen Momente existiert. Diese nicht kollineare Anordnung verursacht eine hohe Hochfeldsuszeptibilität.

In den Temperaturbereichen mit paralleler beziehungsweise antiparalleler Ausrichtung der magnetischen Momente ("aligned state") ist die Hochfeldsuszeptibilität niedriger, aber immer noch meßbar. Die Ursache dieser endlichen Hochfeldsuszeptibilität ist, daß die magnetischen Momente innerhalb der Einzellage ihre Richtung ändern können. So zeigt sich in den hier durchgeführten Rechnungen, daß bei kleinen Feldern die Eisenmomente parallel, die Gadoliniummomente dagegen antiparallel zum äußeren Feld ausgerichtet sind. Mit wachsendem äußeren Feld bilden sich in den Gadoliniumlagen Bereiche aus, die parallel zum Feld orientiert sind.

Dieser Prozeß verläuft nicht abrupt, sondern kontinuierlich und verursacht somit eine leichte Hochfeldsuszeptibilität.

Die Anpassung der Simulation an die experimentell gemessenen Magnetisierungskurven lieferte die Grundzustandsmomente der beteiligten Elemente mit guter Genauigkeit. Die Kopplungsenergien konnten dagegen nur sehr ungenau ermittelt werden, vermutlich deshalb, weil keine Spinwellenanregungen berücksichtigt wurden. Könnten diese in den Simulationen berücksichtigt werden, so könnte durch die Anpassung auch die Kopplungsenergie zwischen den Eisen- und den Seltenerdmetallagen bestimmt werden.

Leider ließen sich die Magnetisierungskurven von Schichtsystemen, bei denen das Eisen amorph vorliegt, durch die Simulation nicht anpassen. Wahrscheinlich ist der Magnetismus in den amorphen Lagen zu komplex, als daß er sich durch ein eindimensionales Modell beschreiben ließe.

Insgesamt zeigen die hier vorgestellten Ergebnisse den starken Einfluß, den die benachbarten Lagen aufeinander ausüben. Nur wegen der starken Wechselwirkung mit den benachbarten Lagen ist es möglich, daß Strukturen, wie zum Beispiel das amorphe Eisen, existieren können. Auch im Magnetismus der Viellagenschichten spielt die Wechselwirkung über die Grenzflächen eine herausragende Rolle.

## 9. Literaturverzeichnis

- Are92 E. Arenholz, Diplomarbeit, Universität Regensburg (1992)
- Bay89 G. Bayreuther, Habilitationsschrift, Universität Regensburg (1989)
- Bec97 A. Bechert, R. Trautsch, J. Zweck, W. Andrä, H. Hoffmann,  
Phys. Stat. Sol. **161** (1997) 483
- Bel95 R. Bellissent, G. Galli, T. Hyeon, S. Magazu, D. Majolino, P. Migliardo,  
K. S. Suslick, Physica Scripta **T57** (1995) 79
- Blo30 F. Bloch, Z. Physik **61** (1930) 206
- Bra92 R. A. Brand, Normos Mössbauer Fitting Program (1992)
- Bru96 W. Brunner, Diplomarbeit, Universität Regensburg (1996)
- Bru97 H. Brückl, pers. Mitteilung (1997)
- Buc90 W. Buckel, Supraleitung, VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim (1990)
- Cam88 R. E. Camley, Phys. Rev. B **37** (1988) 3413

- Cam93 R. E. Camley, R. L. Stamps, J. Phys.: Condens. Matter **5** (1993) 3727
- Cam97 R.E. Camley, Phys. Rev. B **56** (1997) 2336
- Chi66 Soshin Chikazumi, Physics of Magnetism, John Wiley & Sons. Inc.,  
New York (1966)
- Chl97 M. Chaldek, c. Dorner, M. Matner, H. Hoffmann, V. Valvoda,  
J. Phys.: Condens Matter **9** (1997) 4557
- Cho79 K. L. Chopra, Thin Film Phenomena, McGraw-Hill, New York (1979)
- Coe78 J.M.D Coey, J. Appl. Phys **49** (1978) 1646
- Coe89 R.Coehorn, Phys. Rev. B **39** (1989) 13072
- Con86 C. A. N. Connel, J. Magn. Magn. Mat. **54-57** (1986) 1561
- Dor 96 C. Dorner, Dissertation, Universität Regensburg (1995)
- Dub96 J. Dubowik, F. Stobiecki, H. Rohrmann, K. Röhl,  
J. Magn. Magn. Mat. **152** (1996) 201
- Ern99 M. Ernst, Diplomarbeit, Universität Regensburg (wird 1999 fertiggestellt)

- Gon75 U.Gonser, Mössbauer Spectroscopy, Springer - Verlag (1975)
- Hah95 W. Hahn, M.Loewenhaupt, Y.Y. Huang, G. P. Felcher, S. S. P. Parkin,  
Phys. Rev. B. **52** (1995) 16041
- Han89 P. Hansen, C.Clausen, G. Much, M. Rosenkranz, K. Witter,  
J. Appl. Phys. **66** (1989) 756
- Han90 P. Hansen, S. Klahn, C. Clausen, K. Witter, J. Appl. Phys. **69** (1990) 3194
- Han93 S.Handschuh, J. Landes, U. Kobler, Ch. Sauer, G. Kisters, A. Fuss, W. Zinn,  
J. Magn. Magn. Mater. **119** (1993) 254
- Her96 U. Herr, H. Geisler, K. Samwer, Materials Science Forum **225-227** (1996) 127
- Hof98 H. Hofmann, Diplomarbeit, Universität Regensburg (1998)
- Hol93 V. Holy, J. Kubena, I. Ohlidal, K. Lischka, W. Plotz,  
Phys. Rev. B **38** (1993) 15896
- Hon96 S. Honda, M. Nawate, I. Sakamoto, J. Appl. Phys. **79** (1996) 365
- Kak97 Y. Kakehashi, T. Uchida, M. Yu, Phys. Rev. B **56** (1997) 8807
- Ker90 I. Kerschensteiner, Diplomarbeit, Universität Regensburg

- Kip98 T. Kippes, Diplomarbeit, Universität Regensburg (1998)
- Kra91 U. Krauss, U. Krey, J. Magn. Magn. Mater. **98** (1991) L1
- Lan86 Landolt - Börnstein New Series III / 19a, Springer Verlag  
Berlin Heidelberg, New York, London, Paris, Tokyo (1986)
- Lan91 J. Landes, Ch. Sauer, B. Kabius, W. Zinn, Phys. Rev. B **44** (1991) 8342
- Lan98a B. Lanchava, Dissertation, Universität Regensburg (1998)
- Lan98b B. Lanchava, K. Prügl, H. Hoffmann,  
Materials Science Forum **287 - 288** (1998) 44
- Lan98c B. Lanchava, H. Hoffmann, J. Phys. D: Appl. Phys. **31** (1998) 1991
- Lan98d B. Lanchava, N. Nestle, S. Kreuzer, K. Prügl, Physikalische Blätter (1998)
- Leu74 P. K. Leung, J. G. Wright, Phil. Mag. **30** (1974) 995
- Lor95 R. Lorenz, J. Hafner, J. Magn. Magn. Mater. **139** (1995) 209
- Luk93 W. Lukas, Diplomarbeit, Universität Regensburg (1993)
- Mal89 H. Maletta, W. Zinn, "Spin Glasses" in "Handbook on the Physics and  
Chemistry of Rare Earths" **12** Elsevier science Publishers (1989)

- 
- Man95 M. Mansuripur, *The Physical Principles of Magneto-Optical Recording*,  
Cambridge University Press (1995)
- Pom94 J. Pommier, J. P. Jamet, J. Ferré, P. Houdy, P. Boher, F. Pierre,  
*J. Magn. Magn. Mater.* **136** (1994) 251
- Pre90 W. H. Press, B.P Flannery, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling,  
*Numerical Recipes in C*, Press Syndicate of the University of Cambridge,  
(1990)
- Ros96 F. Rose, O. Schulte, P. Schaaf, W. Lohstroh, W. Felsch,  
*Appl. Phys. A* **63** (1996), 183
- Saj94 M. Sjedidine, Ph. Bauer, K. Cherifi, C. Dufour, G. Marchal, R. E. Camley  
*Phys. Rev. B* **49** (1994) 8815
- Sch93 R. Scherschlicht, *Diplomarbeit Universität Regensburg* (1993)
- Sch98 T. Schmidt, *Diplomarbeit, Universität Regensburg* (1998)
- Sha90 Z. S. Shan, D. J. Sellmayer, *J. Appl. Phys.* **67** (1990) 5714
- Sha90 Shan, Sellmayr, *Phys. Rev. B.* **40** (1990) 10446

- Tak92 K. Takanashi, Y. Kamiguchi, H. Fujimori, M. Motokawa,  
J. Phys. Soc. Jpn **61** (1992) 3721
- Tew93 M. Tewes, Dissertation, Universität Regensburg (1993)
- Tew94 M. Tewes, J. Zweck, H. Hoffmann, J. Phys.: Condens. Mater **6** (1994) 835
- Thi92 J. Thiele, F. Klose, A. Schurian, O. Schulte, W. Felsch, O. Bremert,  
J. Magn. Magn. Mat. **119** (1993) 141
- Vio71 C. E. Violet, D. N. Pipkorn, J. Appl. Phys. **42** (1971) 4339
- War30 B. E. Warren, X-Ray Diffraction, Addison-Wesley, Massachusetts (1996)
- Xia87 Gang Xiao, C. L. Chien, J. Appl. Phys. **61** (1987) 3246
- Yod88 K. Yoden, N. Hosoito, K. Kawaguchi, K. Mibu, T. Shinjo,  
Jpn. J. Appl. Phys **27** (1988) 1680
- Zwe96 J. Zweck, M. Tewes, H. Hoffmann, J. Phys.: Condens. Mater **8** (1996) 649

## Danke

Zum Schluß möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben:

Herrn Prof. Dr. H. Hoffmann für die interessante Themenstellung und die Betreuung während der harten Jahre der Arbeit

Den "Mößbauern" T. Kippes und M. Ernst mit ihrem Chef G. Bayreuther für die Durchführung der Mößbauerexperimente

Herrn W. Brunner und Herrn H. Hofmann mit ihrem Chef J. Zweck für die Durchführung der elektronenmikroskopischen Experimente und der langwierigen Paarverteilungsauswertung.

Herrn Dr. J. Vancea und Herrn F. Dorfner für die Durchführung von Augertiefenprofilen und die Messungen der Röntgenfluoreszenzanalyse.

Frau C. Mayer, Herrn G. Rödl, Herrn D. Schierl für die Hilfe bei organisatorischen und technischen Fragen

Allen jetzigen und ehemaligen Lehrstuhlmitgliedern, die zum Teil für eine recht angenehme Arbeitsatmosphäre sorgten, darunter vor allem den Fußballern und den Lustwarten.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft für die Finanzierung der Arbeit

Meiner Frau Doris für ihre Geduld, beim Ausbessern der sprachlichen Ungereimtheiten und ihre Unterstützung in allen Lebensbereichen.