

## Multiréteg struktúrák mágneses tulajdonságai

### Szakmai beszámoló a T48965 számú kutatásokról

Kutatásaink fő vonalakban a munkatervben felállított program alapján történtek. Mössbauer spektroszkópia és SQUID mágneszettség mérések segítségével vizsgáltuk ultravékony (1 nm alatti) Fe rétegeket tartalmazó Fe-Al és Fe-Ag multirétegek, valamint különböző vastagságú Fe rétegeket tartalmazó Fe-Ag multiréteg heteroszerkezetek mágneses tulajdonságait. Ezekben a rendszerekben az ultravékony Fe rétegek szuperparamágneses viselkedést mutatnak és méréseink elsősorban arra irányultak, hogy vizsgáljuk az összefüggést a mágneses tartományok mérete, anizotrópia tulajdonságai, a mágneses szemcsék közötti kölcsönhatás és a szuperparamágneses tulajdonságok között. Ehhez járultak hozzá azok a vizsgálatok is amelyekben ugyanezen összetevőkből más módszerekkel állítottunk elő ugyancsak nanoszerkezetű, de eltérő struktúrájú kompozitot. Kutatásaink másik lényeges célkitűzése volt, hogy a rövid távú rendre érzékeny Mössbauer spektroszkópia segítségével vizsgáljuk a rétegek határfelületén történő keveredés mértékét, az ennek során keletkező, többnyire nem egyensúlyi ötvözetek összetételét. A határrétegben lejátszódó szilárdtest amorfizáció tanulmányozásához az irodalomban eddig nem vizsgált, három elemű (Fe-B-Ag) multiréteg szerkezeteket állítottunk elő és vizsgáltuk a három komponens által lehetővé tett rétegsorrend permutáció hatását a multiréteg szerkezetre. A multiréteg szerkezetre vonatkozó megállapításainkat mindegyik vizsgált rendszeren összehasonlítottuk transzmissziós elektronmikroszkópos (TEM) vizsgálatok eredményeivel is. A munkatervben vázolt programból a minta síkjával párhuzamos irányú mágneses térbe helyezhető egyedi tervezésű kriosztát elkészítése nem valósult meg, mert az időközben meghibásodott, kutatásaink szempontjából alapvető fontosságú zártkörű hűtőberendezés javítására kellett fordítanunk az erre szánt pénzeszközt. A beruházási tervnek megfelelően ugyanakkor beszerzésre került egy új Mössbauer mozgó egység és a hozzá tartozó korszerű elektronika.

#### Fe-Al multirétegek és golyós malomban nanokristályosított ötvözetek vizsgálata.

A multirétegek Mössbauer vizsgálatát a 4.2 K és 300 K közötti hőmérséklet tartományban végeztük, esetenként 7 T-ig terjedő külső mágneses térben. Elektronmikroszkópos vizsgálatokkal összhangban megállapítottuk, hogy  $Al_5Fe_2$  összetételű nem mágneses ötvözet képződik a határrétegben. A nem ötvöződött Fe tartományok vastagságának növekedésével markáns változásokat tapasztaltunk azok hiperfinom terének hőmérséklet és külső mágneses tér függésében. Ezt a két monoréteg és az annál vastagabb rétegekben található Fe atomok lényegesen különböző mágneses viselkedésének tulajdonítottuk. A jelenséget párhuzamba állítottuk a mechanikai őrléssel

előállított nanokristályos FeAl ötvözetben tapasztalható mágneses viselkedéssel, ahol az antifázisú szemcsehatárok megjelenése hoz létre két monoréteges Fe tartományokat, többségében a nem mágneses FeAl szemcsék felületén.  $\text{Fe}_{50+x}\text{Al}_{50-x}$  mechanikailag örölt minták esetén a Fe többlet a nem szokványos mágneses tulajdonságok gyors megszűnését eredményezi. Ezeket a kutatásokat az OTKA T46795 és T31854, valamint az OTKA-NKTH K 68612 kutatásokkal együttműködésben végeztük és az alábbi közleményekben találhatóak:

J. Balogh, D. Kaptás, L.F. Kiss, T. Kemény, L. Bujdosó, and I. Vincze:  
Thickness dependence of the magnetic anisotropy of Fe layers separated by Al  
Hyperfine Interactions 169, 1343–1347 (2006)

D. Kaptás, J. Balogh, T. Kemény, L.F. Kiss, L. Bujdosó, A. Kovács, A. Hirata, and I. Vincze:  
Mössbauer study of ultra-thin Fe/Al multilayer films  
Phys. Rev. B 75, 014417 (2007)

L. F. Kiss, J. Balogh, D. Kaptás, T. Kemény, and I. Vincze:  
Magnetic Properties of Ball-milled Fe-rich  $\text{Fe}_{50+x}\text{Al}_{50-x}$  Alloys  
Rev. Adv. Mater. Sci. 18, 505-508 (2008)

#### Fe-Ag multirétegek, heteroszerkezetek és granuláris ötvözetek vizsgálata.

A Fe nanoszemcsék méretének meghatározása ebben a rendszerben a szokásos szerkezetvizsgálati módszerekkel (röntgen diffrakció, TEM) nem lehetséges. Kutatásunk egyik fontos eredménye volt, hogy a granuláris multirétegek szuperparamágneses tulajdonságaiból az egyes mintákra Mössbauer és SQUID mágnesezettség mérések segítségével meghatározott mágneses szemcseméretnek jó egyezést mutattak egymással. Az így meghatározott szemcseméretet alátámasztották a 4.2 K-en, nagy mágneses térben mért statikus hiperfinom terek is, amelyekben megkülönböztettünk Fe szemcsén belüli és felületi járulékokat. Eredményeink alátámasztották azokat az elméleti számításokat amelyek a tömbi Fe értékhez viszonyítva az Ag határolta felületen megnövekedett mágneses momentumot, de kisebb hiperfinom teret jósoltak. Vizsgáltuk a különböző lehetséges (hőtágulás, fedőréteg, szubsztrát okozta) mechanikai feszültségek és a granuláris multirétegekben megjelenő merőleges mágneses anizotrópia esetleges összefüggését és megállapítottuk, hogy azok az anizotrópia tulajdonságokat nem befolyásolják jelentősen. Vizsgáltunk a komponensek együttes párologtatásával, a multirétegekhez hasonló körülmények között készült, úgynevezett granuláris ötvözeteket is. Ezek a granuláris multirétegektől két lényeges tulajdonságban különböztek, nem volt megfigyelhető merőleges mágneses anizotrópia és a szemcseméret eloszlás szélesebb volt. Ezeket a kutatásokat az OTKA T46795 és T32096 kutatásokkal együttműködésben végeztük és az alábbi közleményekben találhatóak:

J. Balogh, D. Kaptás L. F. Kiss<sup>1</sup>, T. Kemény, I. Vincze, K. Temst, and C. Van Haesendonck :  
Fe-Ag Granular Multilayers and Heterostructures Studied in Applied Magnetic Field

Hyperfine Interactions 165, 49–53 (2005)

J. Balogh, D. Kaptás, I. Vincze, K. Temst, and C. Van Haesendonck:  
Determination of the size of Fe grains in Ag by Mössbauer spectroscopy  
Phys. Rev. B 76, 052408 (2007)

J. Balogh, Cs. Fetzer, D. Kaptás, L. F. Kiss, I. S. Szűcs, I. Dézsi, and I. Vincze:  
Perpendicular anisotropy in Fe/Ag multilayers  
phys. stat. sol. (a) 205, No. 8, 1828–1830 (2008) / DOI 10.1002/pssa.200723632

L. F. Kiss, D. Kaptás, J. Balogh, F. Tanczikó, M. Major, and I. Vincze:  
Magnetic properties of Fe-Ag granular alloys  
Journal of Alloys and Compounds in press

### Szekvencia permutált Fe-B-Ag multirétegek

Régóta közismert tény, hogy a multirétegekben különbség lehet egy réteg "alsó" illetve "felső" határrétege között mivel a rétegnövekedés folyamata megváltozhat amikor a két elem szerepe felcserélődik a szubsztrát és a növekvő réteg összefüggésében. A nanométeres skálájú multirétegekben az alsó és felső határrétegek közötti különbség vizsgálata nyilvánvalóan csak atomi felbontású szerkezetvizsgálati vagy olyan lokális tulajdonságokra érzékeny módszerrel lehetséges mint például a Mössbauer spektroszkópia. Korábbi Mössbauer spektroszkópiai vizsgálatok azt a módszert alkalmazták, hogy a természetes Fe rétegen belül (amely 2 at%-ban tartalmaz a Mössbauer mérésekre alkalmas izotópot,  $^{57}\text{Fe}$ -et) meghatározott pozícióban (pl. első vagy utolsó atomi sík)  $^{57}\text{Fe}$  réteget helyeztek el. Ennek a módszernek nyilvánvaló hátránya, hogy a Fe öndiffúziója mintakészítés vagy egy esetleges hőkezelés során lényegesen befolyásolja a  $^{57}\text{Fe}$  mélységi eloszlását a Fe rétegben, ezért kvantitatív eredményt az esetek többségében nem várhatunk.

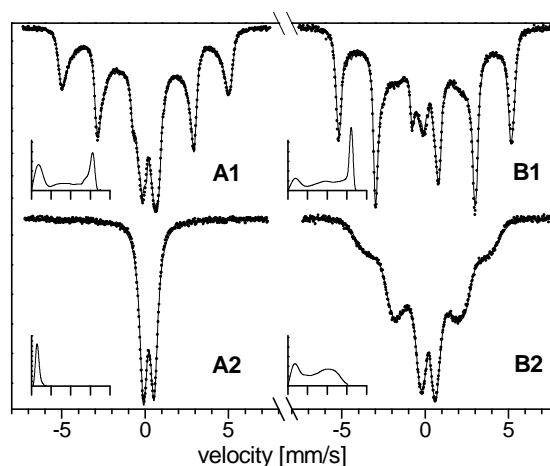
A különböző típusú határrétegek vizsgálatára új módszert javasoltunk, amelyet az alábbiakban részletesen ismertetünk. Három elemű multiréteg esetén két különböző rétegsorrendű mintát készíthetünk (esetünkben Fe/B/Ag ill. Fe/Ag/B) és ezekben bármely két elempárt tekintve különböző típusú lesz a határréteg. Az azonos vastagságú rétegeket tartalmazó, de különböző rétegsorrendű minták összehasonlításából az "alsó" illetve "felső" határrétegek közötti különbségekre következtethetünk. Az általunk vizsgált Fe-B-Ag rendszerben mind a Fe-Ag mind a B-Ag egymással nem keveredő (pozitív képződéshőjű) elempár, míg a Fe-B rendszerben több egyensúlyi ( $\text{FeB}$ ,  $\text{Fe}_2\text{B}$ ) és nem egyensúlyi ( $\text{Fe}_3\text{B}$ , amorf Fe-B) ötvözet is képződhet. Ez a különbség tükröződik abban, hogy a Fe-Ag multirétegekben a határfelületek lényegesen élesebbek mint a Fe-B multirétegekben, ahol az elemi rétegek között egy 1-2 nm vastag amorf tartomány figyelhető meg. (Korábbi vizsgálataink azt mutatták, hogy utólagos hőkezeléssel ez a tartomány még növelhető is.) A szekvencia permutált Fe-B-Ag minták Mössbauer spektrumából elsősorban a

Fe/B és a B/Fe határfelületeken képződő amorf rétegekről kapunk információt. A szekvencia permutált mintapárok mindig együtt készültek oly módon, hogy két elem — a Fe és vagy a B vagy az Ag — együtt lett párologtatva két szubsztrátra, míg a harmadik elem párologtatása közben az egyik szubsztrát mindig ki volt takarva a forrás elől. Így a mintapárokból a Fe rétegvastagságok valóban tökéletesen egyezők voltak. Két ilyen mintapár szobahőmérsékleten mért Mössbauer spektruma látható az 1. ábrán.

A szobahőmérsékleten mért spektrumok erősen függenek mind a rétegvastagságtól mind a rétegsorrendtől. A különbségek értelmezéséhez ki kellett zárni azt a lehetőséget, hogy a kis mágneses szemcseméretből adódó szuperparamágneses

relaxációs idő eloszlása okozza a széles és többnyire két csúcsú hiperfinom téreloszlást. Ehhez alacsony hőmérsékleten illetve külső mágneses térben végzett mérések voltak szükségesek. Ezek azt mutatták, hogy bár kis mértékben szuperparamágneses részecskék is találhatóak a mintákban (ezek egy része a leginkább a minta felületén található oxid) a szekvencia permutált párok közötti különbség alacsony hőmérsékleten illetve nagy mágneses térben is kimutatható volt. Ezeknél a méréseknél a hiperfinom téreloszlások különbsége egyértelműen a Fe és a B rétegek közti keveredés nagyobb mértékéből származott az A1 illetve A2 mintákban a B1 illetve B2 mintákhoz viszonyítva.

A B/Ag illetve Ag/B határfelületeket transzmissziós elektronmikroszkópos mérésekkel vizsgáltuk. Az A1-B1



1. ábra

Szobahőmérsékleten mért Mössbauer spektrumok az alábbi mintákra:

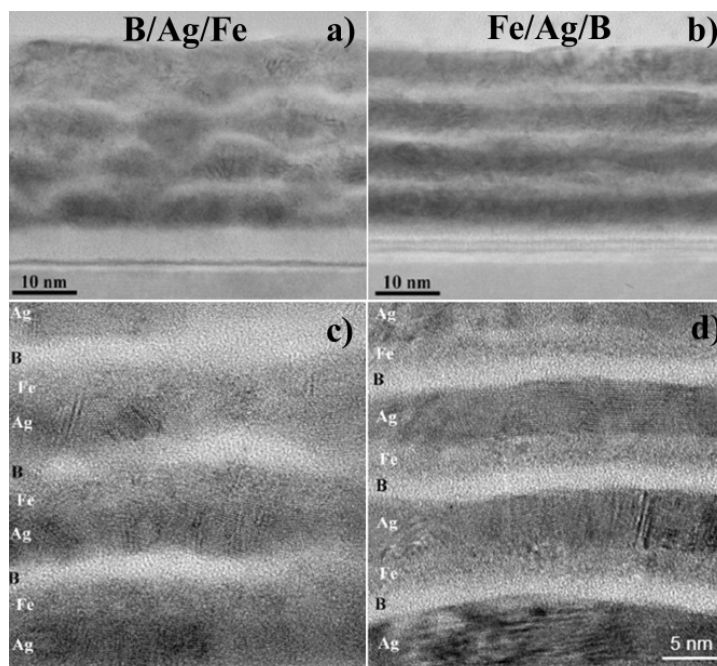
A1: Si / [5 nm Ag / 2 nm  $^{57}\text{Fe}$  / 2 nm B]<sub>4</sub> / fedő réteg

B1: Si / [5 nm Ag / 2 nm B / 2 nm  $^{57}\text{Fe}$ ]<sub>4</sub> / fedő réteg

A2: Si / [5 nm Ag / 1 nm  $^{57}\text{Fe}$  / 1 nm B]<sub>4</sub> / fedő réteg

B2: Si / [5 nm Ag / 1 nm B / 1 nm  $^{57}\text{Fe}$ ]<sub>4</sub> / fedő réteg

A fedő réteg minden esetben 50 nm Ag / 100 nm B volt. A spektrumokból számított hiperfinom téreloszlások a 0T -40T tartományban vannak feltüntetve a spektrumok mellett.

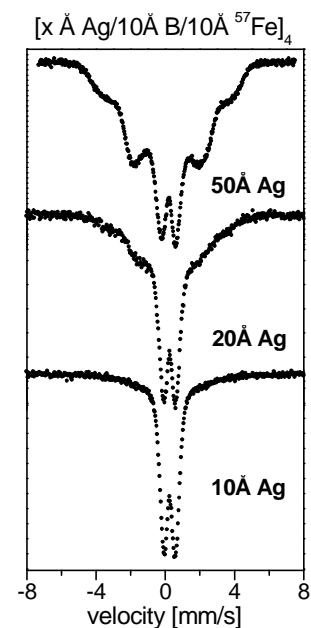


2. ábra

Az A1 (a, c) és B1 (b, d) minták transzmissziós elektronmikroszkópos képe.

mintapár világos látóterű (a, b) illetve nagyfelbontású (c, d) képe látható a 2. ábrán.

Jól látható, hogy a rétegsorrend lényegesen befolyásolja a multiréteg szerkezet morfológiáját. Az irodalmi adatokkal történő összevetésből megállapítható volt, hogy ennek legfőbb oka az Ag nem egyenletes, klaszteres növekedése a B felületén. Új eredmény az a megállapításunk, hogy ugyanakkor a B viszonylag egyenletesen képes növekedni az Ag felületén, így egy harmadik komponens és megfelelő rétegsorrend segítségével előállítható Ag és B rétegeket tartalmazó, de kis felületi hullámosságú multiréteg. (Ag-B multirétegeket korábban megpróbálták előállítani röntgen tükrök céljára.) A Fe és B rétegek közötti keveredés szempontjából az elválasztó Ag rétegek vastagságának egyenetlenségei játszanak fontos szerepet. Azokon a tartományokon ahol a Fe réteg alul és felül is B réteggel érintkezik nagyobb lesz a keveredés mértéke, ami abban nyilvánul meg, hogy az amorf komponens aránya nő a bcc-Fe-hoz viszonyítva, illetve az amorf komponens B koncentrációja



**3. ábra**

*A jelzett mintákon szobahőmérsékleten mért Mössbauer spektrumok.*

növekszik. Ez utóbbi figyelhető meg abban az esetben például amikor a B2 mintában az Ag rétegek vastagságát csökkentjük, amint az a 3. ábrán látható. 1 nm Ag rétegvastagság esetén a minta szinte teljesen egészében paramágneses, ami az amorf Fe-B ötvözetek irodalmi adatai alapján azt jelzi, hogy a B koncentráció több mint 55 at%, azaz közelít a nominális Fe és B vastagságokból számítható 60 at%-hoz. Ebben a rendszerben tehát, a két elem közötti keveredés mértékét egy harmadik, a két másikkal nem keveredő elem mennyiségével tudjuk változtatni.

A szekvencia permutált Fe-B-Ag multirétegekben a Fe és B közötti keveredés mértékét az Ag réteg vastagságának egyenetlensége és a Fe és B rétegek egymáshoz viszonyított helyzete, azaz az "alsó" és "felső" határrétegek különbözősége, egyaránt befolyásolja. A rétegek ismétlődési számának csökkentésével megállapítottuk, hogy 5 nm Ag rétegvastagság esetén főleg az "alsó" és "felső" Fe-B határrétegek különbözősége okozza a szekvencia permutált minták közötti különbséget. Ezek az eredmények az alábbi közleményekben találhatóak:

J. Balogh, D. Kaptás, L. Bujdosó and I. Vincze:  
Interface mixing in Fe-B-Ag multilayers  
Hyperfine Interactions in press

J. Balogh, L. Bujdosó, D. Kaptás, T. Kemény, I. Vincze, A. Kovács, and L. Tóth:  
Interface Properties in Sequence Permutated Fe-B-Ag Multilayers  
J. Appl. Phys. közlésre beküldve