

PhD értekezés

MÁGNESES VÉKONYRÉTEGEK VIZSGÁLATA ÉS  
MÓDOSÍTÁSA

Merkel Dániel Géza

MTA KFKI Részecske- és Magfizikai Kutatóintézet

Témavezető:

Dr. Bottyán László, a fizikai tudomány kandidátusa

Eötvös Loránd Tudományegyetem Természettudományi Kar

Fizika Doktori Iskola

Anyagtudomány és Szilárdtestfizika Program

A doktori iskola vezetője: Prof. Horváth Zalán

A doktori program vezetője: Prof. Lendvai János

2011

Édesapám emlékének ajánlom

## Tartalomjegyzék

I	Bevezetés .....	8
II	Elméleti alapok.....	11
II.1	Ferromágnesség .....	11
II.2	Mágnesezési folyamatok .....	11
II.3	Lokális mágnesezettség és hiperfinom tér.....	13
II.4	Mágneses anizotrópia.....	13
II.4.1	Alakanizotrópia .....	13
II.4.2	Magnetokristályos anizotrópia .....	14
II.4.3	Magnetoelasztikus anizotrópia .....	14
II.5	Szuperparamágnesség .....	15
II.6	Diffúzió .....	15
II.6.1	A diffúzió fenomenológiai leírása.....	16
II.6.2	A diffúzió atomi mechanizmusai .....	17
II.7	Ion-szilárdtest kölcsönhatások.....	17
II.8	Az ionsugaras keveredés mint diffúziós folyamat.....	19
III	Kísérleti és kiértékelési módszerek.....	21
III.1	Magnetooptikai Kerr-effektus.....	21
III.1.1	A magnetooptikai Kerr-effektus elmélete .....	21
III.1.2	Kísérleti berendezés.....	22
III.2	Neutronreflektometria .....	24
III.2.1	Kísérleti berendezés.....	29
III.3	Rezonáns fotonaszórás: laboratóriumi és szinkrotronos-Mössbauer spektroszkópia .....	31
III.3.1	Hiperfinom kölcsönhatások.....	31

III.3.1.1	Elektromos kölcsönhatások.....	31
III.3.1.2	Mágneses felhasadás .....	32
III.3.1.3	Téreloszlások.....	32
III.3.1.4	A mágnesszettség hatásvonalának meghatározása a spektrumvonalak intenzitásarányából .....	33
III.3.1.5	A Mössbauer-effektus valószínűsége.....	33
III.3.2	A Mössbauer-spektroszkópia kísérleti megvalósítása és konverziós-elektronok detektálása.....	34
III.3.3	A szinkrotronsugárzás nukleáris rezonanciaszórása.....	35
III.4	Szinkrotron-Mössbauer-reflektometria .....	37
III.5	Egyéb alkalmazott mérési technikák .....	38
III.5.1	Röntgendiffrakció.....	38
III.5.1.1	Szuperrács intenzitások .....	40
III.5.1.2	A szemcseméret meghatározása.....	41
III.5.1.3	A rétegfeszültség meghatározása sűrűlódó beeséses diffrakcióból.....	41
III.5.2	Rutherford-visszaszórás.....	43
III.5.3	Elektronmikroszkópia és -diffrakció .....	45
III.5.4	Pasztázó képalkotó módszerek .....	46
III.6	Mintakészítés és -kezelés.....	47
III.6.1	Vékonyrétegek előállítása.....	47
III.6.2	Párolgatás .....	47
III.6.3	Porlasztás .....	49
III.6.4	Hőkezelés.....	50
III.6.5	Mintabesugárzás .....	50
III.6.6	Ionnyaláb litográfia.....	51
III.7	Reflektogramok kiértékelése .....	51

III.7.1	Diffúziós tényező meghatározása a multiréteg Bragg-csúcsainak magasságából .....	52
III.7.2	Diffúziós tényező meghatározása a Fick-törvényből a teljes reflektogram illesztésével .....	53
IV	Mérési eredmények és diszkusszió .....	55
IV.1	Nikkel-rétegek besugárzása .....	55
IV.1.1	Bevezetés, motiváció .....	55
IV.1.2	Rutherford-visszaszórási spektrometria mérések .....	56
IV.1.3	Magnetooptikai Kerr-effektus mérések .....	60
IV.1.4	Röntgendiffrakciós mérések .....	63
IV.1.5	Az eredmények értelmezése .....	66
IV.2	Fe/Si feszültségmentesítése He besugárzással .....	67
IV.2.1	Bevezetés, motiváció .....	67
IV.2.2	Röntgendiffrakciós vizsgálatok .....	68
IV.2.3	Magnetooptikai Kerr-effektus mérések .....	69
IV.2.4	Konverzióelektron-Mössbauer-spektroszkópia mérések .....	71
IV.2.5	Polarizált neutronreflektometriai mérések .....	73
IV.2.6	Az eredmények értelmezése .....	74
IV.3	Bragg-tükrök optikai tulajdonságainak testre szabása .....	76
IV.3.1	Bevezetés, motiváció .....	76
IV.3.2	Polarizált neutronreflektometria mérések .....	77
IV.3.3	Az eredmények értelmezése .....	80
IV.4	A vas öndiffúziójának vizsgálata metastabilis FePd ötvözetben reflektometriával az izotópperiodikus multirétegek módszerével .....	83
IV.4.1	Bevezetés, motiváció .....	83
IV.4.2	Egyes FePd ötvözetfázisok szerkezete .....	84

IV.4.3	Mintaelőállítás és összetétel-meghatározás .....	86
IV.4.4	Hőkezelések .....	88
IV.4.5	Szinkrotron-Mössbauer-reflektometria és neutronreflektometria mérések .....	88
IV.4.6	Konverzióelektron-Mössbauer-spektroszkópia mérések .....	90
IV.4.7	Az eredmények értelmezése .....	91
IV.4.8	A neutron- és szinkrotron Mössbauer-reflektometria módszerének összehasonlítása hőkezelt FePd mintákon .....	94
IV.5	Szerkezeti változások rendezett FePd-ban hélium-ion-besugárzás hatására..	97
IV.5.1	Átlagos szerkezeti változások vizsgálata röntgendiffrakcióval.....	97
IV.5.2	Nanométeres szerkezeti változások vizsgálata elektronmikroszkópiával .....	100
IV.5.3	Mágneses szerkezeti változások vizsgálata konverzióelektron-Mössbauer-spektroszkópiával.....	103
IV.5.4	Az eredmények értelmezése .....	105
IV.6	Szerkezeti változások rendezett FePd-ban különböző energiájú He <sup>+</sup> -ionsugaras keveredés hatására.....	109
IV.6.1	Mágneses és szerkezeti változások követése konverzióelektron-Mössbauer-spektroszkópiával.....	110
IV.6.2	A rétegszerkezet változásainak követése SMR-rel izotópperiodikus multirétegeken.....	113
IV.6.3	Az eredmények kvantitatív értelmezése .....	115
IV.7	A hőkezelés és az ionsugaras keveredés összehasonlítása .....	119
IV.8	Ionnyaláb-litográfiával készült síkbeli mágneses mintázatok FePd filmekben	122
IV.8.1	Bevezetés, motiváció .....	122
IV.8.2	A mágneses szerkezet vizsgálata konverzióelektron-Mössbauer-spektroszkópiával.....	124
IV.8.3	Mágneses mikroszerkezet.....	127

IV.8.4	A nanomintázatu réteg átlagos mágnesezettsége.....	128
IV.8.5	Az eredmények értelmezése .....	129
V	Összefoglalás .....	131
VI	Summary .....	132
VII	Tézisek .....	133
VIII	A bírálók javaslatait tartalmazó átfogalmazott tézispontok.....	136
VIII.1	A tézispontokhoz tartozó közlemények.....	139
IX	Köszönetnyilvánítás .....	140
X	Hivatkozások .....	141

## I Bevezetés

A fenntartható fejlődés napjaink kutatásainak vezérfonala, amely a tudományos és technikai haladás minden területén felmerül. Az anyagtudomány ehhez az anyagok különböző tulajdonságainak feltérképezése és ezen ismeretek felhasználásával előnyösebb tulajdonságú anyagok előállítására, hatékonyabb, esetenként energiatakarékos megoldások kidolgozása révén járul hozzá. Széles körben elterjedt nézet, hogy – mivel a 100 nm-nél kisebb anyagméretek tartományában az objektumok és eszközök tulajdonságai makroszkópikus megfelelőikétől eltérőek – ilyen fejlődés a nanotudományok és nanotechnológia segítségével lehetséges. A 100 nm alatti kiterjedés szerint osztályozva 3D nanokristályos anyagokról, 2D rétegszerkezetekről, 1D nanodrótokról és nulladimenziós nanopöttyökről tesz említést a szakirodalom.

A kétdimenziós nanorétegek a szilárdtest összenergiájának az elektronszerkezeti változásokra visszavezethető megváltozása, valamint a határfelületen lévő atomok arányának megnövekedése következtében mutatnak sajátos tulajdonságokat. Az utóbbi évtizedekben felfedezett nanomágneses tulajdonságok közül kiemelkedik az óriás mágneses ellenállás 1988-89-es – 2007-ben fizikai Nobel-díjjal is jutalmazott [1] – felfedezése, mivel ez a mágneses érzékelés, tárolás valamint memóriakutatás és fejlesztés lehetőségeit korábban soha nem látott mértékben kitágította. A merevlemez-technológiák gyökeres átalakulása mindennapi életünk átforgatódásához vezetett. Ez a forradalmi átalakulás a merevlemezek tároló anyagainak, valamint a bitek kiolvasási technológiájának területén ma is tart. A tároló rétegekben az igényelt mind nagyobb bitsűrűség az egyes bitek méretének folyamatos csökkenéséhez, egyszersmind a korábban használatos anyagokban a lemez síkjában megformálható bitek hőmérsékleti fluktuációjához, gyakorlati értelemben már szobahőmérsékleten azok hosszútávú megbízhatatlanságához vezetett. Ezért a mai diszkekben már általános a 150 Gbit/inch<sup>2</sup> feletti bitsűrűségű ún. merőleges mágneses tárolás, amely utóbbi alatt a bitek mágnesezettségének a lemez síkjára merőleges irányítottságát értjük. Ehhez értelemszerűen új típusú, merőleges mágneses anizotrópiát („perpendicular magnetic anisotropy”, PMA) mutató tároló anyagok is kellek. A mágneses anizotrópia a spin-pálya kölcsönhatás következménye, és mint ilyen a mágneses atom környezetének aszimmetriájával kapcsolatos. A mágneses anizotrópia eredhet (az adott kristályrács pontcsoportjaitól függő) magnetokristályos, egytengelyű feszültség következtében fellépő magnetoelasztikus, vagy a réteghatárokon fellépő szimmetriasértés miatt



keletkező határfelületi anizotrópiából. Ilyen hatások egyes alkalmas anyagokban, pl. az  $L1_0$  (lapcentrált tetragonális [2]) anyagcsaládba tartozó CoPt, CoPd, FePt, FePd ötvözetekben felülmúlják a makroszkópos alakanizotrópiát, ami a film síkjára merőleges könnyű mágnesezési irányt eredményezhet. Jelen munkában vizsgált anyagok, jelenségek és eljárások egy része ehhez az anyagcsaláddhoz tartozik.

A hagyományos adattároló eszközökben a bit határát a mágneses doménfal szabta meg, ami a bit helyzetét gyakran bizonytalanná tette. Amennyiben a mágneses egységek egymástól tökéletesen el vannak szigetelve, ez a bizonytalanság megszüntethető, például ha a rétegben mintázatot hozunk létre. Ez történhet úgy, hogy a filmben különböző egymástól jól elszigetelt, periodikus alakzatokat hozunk létre és ennek elemei tárolják az információt. Egy másik megoldás, ha a rétegben különböző szerkezetek más-más mágneses tulajdonságokkal vannak jelen (pl. lapcentrált köbös, illetve lapcentrált tetragonális szerkezetek váltakozása). Ekkor megoldható, hogy a mágneses bitek egymástól kellően el legyenek szigetelve, így lehetővé téve a stabil mágneses adattárolást. Ez utóbbi megoldásra kidolgoztam egy, a nagysűrűségű mágneses tárolásban esetleg jelentős, ionnyaláb-litográfias módszert, periodikus laterális mágneses mintázat létrehozására.

A mágneses vékonyrétegek kutatásában a neutronreflektometria kiemelt szerepet játszik. Polarizált neutronnyalábbal, a szórt neutronok polarizációjának mérése útján információt kaphatunk a vizsgált minta szerkezetéről és az abban jelen lévő mágneses tér mélységi, illetve laterális eloszlásáról. Az ilyen vizsgálatokhoz szükséges neutronoptikai eszközök kutatása nagy erővel folyik. Az egyik kiemelt feladat a polarizáló mágneses szupertükrökben a növesztés után visszamaradt belső feszültség csökkentése, mivel ez az eszköz tönkremenetelét okozhatja. Egy másik fontos megoldandó feladat, hogy a mérés során a mintához csupán a szükséges hullámhosszú neutron jusson el, lehetőleg a legkisebb veszteséggel. Ehhez olyan multiréteg monokromátort kell kifejleszteni, amely a megfelelő rétegprofil segítségével a neutronnyalábból kiszűri a nem kívánt magasabb rendű reflexiókat.

A rétegek tulajdonságainak kontrollált módosítására legelterjedtebb a hőkezelés, de nem számít egzotikusnak, ha a tulajdonságok módosítását ionbesugárással érjük el. Ez utóbbi előnye, hogy szükség esetén az anyagnak csupán egy kiválasztott, eltemetett részét módosítjuk.

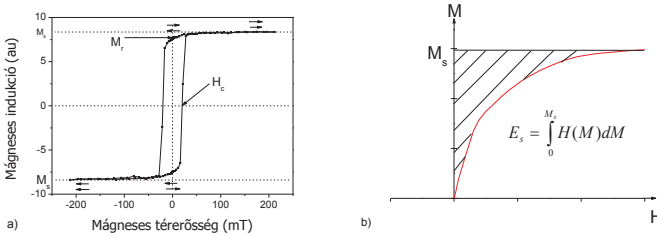
Dolgozatom egyik fontos vonulata a merőleges mágnesezettséggű FePd vékonyrétegszerkezetű szerkezeti és mágneses tulajdonságainak megismerése, valamint ebben a rendszerben hőkezelés

és kisenergiás ionbesugárzás hatására végbemenő keveredési, diffúziós folyamatok vizsgálata. Ilyen mágnesesen anizotrop vékonyrétegek kutatásában azonban mintául szolgáltak a különböző módszerekkel készített fémes nikkellétegek is, amelyekben a  $Ni^{2+}$  sajáti ionbesugárzás hatására bekövetkező mágneses és szerkezeti változásokat vizsgáltam. A fenti kutatások alkalmazásaként két gyakorlati problémát is megvizsgáltam a neutronkutatásban jelentős Fe/Si mágneses tükrök gyártmányfejlesztésének területéről. Egyfelől tanulmányoztam a Fe/Si mágneses szupertükrök előállításában a multirétegben visszamaradó, hátrányos belső feszültség ionbesugárzással történő csökkentésének lehetőségeit, másfelől megvizsgáltam polarizáló Fe/Si neutron monokromátorok tulajdonságainak javítási lehetőségeit egyedi rétegszerkezetek megalkotásával, illetve ionbesugárzás által.

## II Elméleti alapok

### II.1 Ferromágnesség

Egy ferromágnesben állandó makroszkópikus mágneses momentummal rendelkező tartományok alakulnak ki. Az anyag mágnesezettsége ( $M$ ) azt jellemzi, hogy milyen mértékben járul hozzá az anyag a külső mágneses térhez a külső tér által orientált mágneses dipóljainak tere révén. Ezen anyagokban spontán mágneses polarizáció lép fel, amely a külső tér sokszorosa is lehet (relatív permeabilitásuk elérheti a  $10^6$ -t). Mágnesezettségüket megtartják akkor is, amikor a külső mágnesező tér megszűnik, azaz „elélekeznek” mágneses előéletükre, ami mágneses hiszterézisre vezet. Az indukció és térerősség közötti nemlineáris és a mágneses előélettől függő kapcsolat a mágneses hiszterézisgörbe (1.a ábra), amely a remanens ( $M_r$ ) és a telítési mágnesezettséggel ( $M_s$ ) és a koercitív erővel ( $H_c$ ) jellemezhető.



1. ábra a) Egy 75 nm vastag nikkelréteg (longitudinális magnetooptikai Kerr-mérésből meghatározott, síkbeli) hiszterézisgörbéje b) Telítési energia meghatározása a hiszterézis görbéből

A hiszterézis görbéből meghatározható még továbbá a telítési energia ( $E_s$ ), amelyet a hiszterézis mentes (a hiszterézis görbe két ágának átlagolásából kapott) görbe integrálásából kaphatunk meg [3] (1.b ábra). A minta akkor van remanenciában, ha megelőzően külső mágneses tér segítségével a legnagyobb mágnesezettségű állapotba hoztuk („telítésig mágneseztük”), majd a külső teret megszüntettük. A mágnesezettség megszüntetéséhez szükséges külső mágneses tér nagysága a koercitív erő [4]. Az említett paramétereket egy 75 nm vastag nikkel-rétegen felvett hiszterézisgörbén (1. ábra) szemléltetem.

### II.2 Mágnesezési folyamatok

A mágneses hiszterézis magyarázatához a mágneses domének elmélete szükséges [5,6,7]. Az elmélet szerint a ferromágneses anyagokban léteznek olyan tartományok (domének), melyeken belül az összes mágneses momentum azonos irányba mutat, de a domének egymáshoz képest

eltérő makroszkópikus momentummal rendelkezhetnek. A könnyű- és nehéz irányú mágnesezettség a rendszer számára az energetikailag legkedvezőbb, illetve legkedvezőtlenebb állapot. Ezek közvetlen kapcsolatban állnak a mágneses anizotrópia jelenségével. Egy „szűz” (mágneses térrel még nem befolyásolt) mintában a domének mágnesezettsége általában olyan irányeloszlású, hogy a makroszkópos (kívülről mérhető) mágnesezettség nulla. Külső mágneses tér alkalmazásával a mágneseződési folyamat történhet doménfalmozgással és a domének mágnesezettségének forgásával.

- Doménfalmozgás: Azok a tartományok, amelyekben a mágneses momentumok nagyjából a külső mágneses tér irányába mutatnak, megnövekednek, míg a többi tartomány mérete csökken az őket elválasztó doménfalak mozgása által. Tökéletes egykristályban a doménfalak mozgása nem igényli energia befektetését, ezért az ilyen anyagokban a mágnesezettség megváltoztatása főképpen doménfalmozgással történik.
- A mágnesezettség forgása: Abban az esetben, ha a mintában nincs olyan mágneses tartomány, amelynek könnyű mágnesezési iránya a külső mágneses tér irányával megegyezik, akkor a mágnesezési folyamat nem tud kizárólag doménfalmozgással végbemenni. Ekkor a doménbeli mágneses momentumok a könnyű irányból a külső mágneses tér iránya felé koherensen elfordulnak, egészen addig, amíg a teljes telítődés meg nem történik. A mágnesezettség elfordulásához szükséges energia az anyag mágneses anizotrópiájától függ és általában lényegesen nagyobb, mint a doménfalmozgáshoz szükséges energia [4].

A remanens mágnesezettség és a koercitív erő fogalmait a doménszerkezet, illetve annak változási mechanizmusai ismeretében értelmezhetők. A reális anyagokban vakanciák, diszlokációk, szemcsehatárok és egyéb folytonossági hibák a mágneses momentumok átfordulását és a doménfalak szabad mozgását akadályozzák, így a külső térrel energiát kell befektetnünk ahhoz, hogy a rendszer leküzdje ezeket az akadályokat.

Egy anyag mágneseesen stabil állapotát a teljes energia,

$$E_s = E_{\text{MAG}} + E_{\text{EX}} + E_A + E_{\text{ME}} + E_Z. \quad \text{II.1}$$

minimuma határozza meg, ahol  $E_{\text{MAG}}$  a magnetosztatisztikus,  $E_{\text{EX}}$  a kicserélődési,  $E_A$  az anizotrópia,  $E_{\text{ME}}$  a magnetoelasztikus és  $E_Z$  a Zeeman energia [7,8]. A domének azért alakulnak ki, mert keletkezésük által a teljes mágneses energia csökken.

### II.3 Lokális mágnesezettség és hiperfinom tér

A hiszterézisgörbe a ferromágneses anyag makroszkopikus tulajdonságait írja le. Átmeneti fémek (vas, nikkell, kobalt) esetében e tulajdonságokat a delokalizált 3d elektronok spinpolarizációja határozza meg [9,10]. A makroszkópiusan mérhető mágnesezettség mellett azonban az atommagra ható ún. hiperfinom (hf) mágneses tér is megfigyelhető, mely három tagból tevődik össze: az elektron-spinek és az elektronok pályamozgásából eredő mágneses momentumból, dipolus-kölcsönhatásából, valamint a mag illetve az elektronok (polarizált  $s$  elektronok) hullámfüggvényének a mag helyén történő átlapolásából. [11,12]. Az atommag mágnesezettsége és a kristály közötti szoros kapcsolat miatt az anyag mágneses tulajdonságairól magfizikai módszerekkel (Mössbauer-spektroszkópia, magmágneses rezonancia stb.) fontos információk szerezhetők a hiperfinom kölcsönhatások segítségével.

### II.4 Mágneses anizotrópia

Mágneses anizotrópiáról akkor beszélünk, ha a rendszer belső energiája megváltozik a mintán belüli mágnesezettség elfordulásával. A mágneses anizotrópia oka a mágneses dipólus-dipólus, illetve a spin-pálya kölcsönhatás. Ezek a hatások függenek a minta alakjától, kristálytani szerkezetétől és a belső feszültségektől is [13].

#### II.4.1 Alakanizotrópia

Ha egy minta alakja nem gömbszimmetrikus ki lehet mutatni, hogy – homogén mágnesezettséget feltételezve – a belső energia függ a minta tengelyének irányítottágától. Ez a jelenség a

$$E_{\text{MAG}} = \frac{1}{2\mu_0} NM^2V \quad \text{II.2}$$

magnetosztatikussal magyarázható. Itt  $M$  jelöli a mágnesezettséget a  $V$  térfogatban.  $N$  a lemágnesezési tényező, melyet egy a test alakjára jellemző tenzormennyiségből és a mágnesezettség irányából lehet kiszámítani.

Vékonyrétegek alakja olyan ellipszoiddal közelíthető, amelynek síkból kifelé mutató  $z$  kiterjedése a többi mérethez képest nagyon kicsi. Ekkor a magnetosztatikussal energia [6]:

$$E_{\text{MAG}} = \frac{1}{2\mu_0} M_s^2 V \cos^2 \theta, \quad \text{II.3}$$

ahol  $\theta$  a mágnesezettség irányának szöge a minta  $z$  tengelyéhez képest. A képlet szerint az alakanizotrópia igyekszik a vékonyréteg minta mágnesezettségét a minta síkjában tartani. Ez a hatás különösen jelentős néhány nanométeres vastagságú rétegeknél. A még ennél is vékonyabb rétegeknél azonban a felületi és a határfelületi anizotrópia válik jelentősebbé [3,14].

#### II.4.2 Magnetokristályos anizotrópia

Egy mágneses egykristály belső energiája függ a mágnesezettség kristálytani tengelyekhez viszonyított irányától. A magnetokristályos anizotrópia a spin-pálya kölcsönhatás eredménye [ 15 ], de a mágneses dipólus, illetve a kicserélődési kölcsönhatás is befolyásolhatja. A magnetokristályos anizotrópia belső („intrinsic”) tulajdonság. Habár első elvekből is levezethető [ 16 ], célszerűbb anizotrópiaállandók ( $K_i$ ) bevezetésével fenomenologikus megközelítést alkalmazni. A magnetokristályos energiát köbös rendszerekben a mágnesezettségnek a kristályrács tengelyeire vonatkozó iránykoszinuszai definiálják [17]:

$$E_s = E_0 + K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2) + \dots, \quad \text{II.4}$$

ahol  $E_0$  az izotrop energiajárulékot jelöli,  $K_1$ ,  $K_2$  (... $K_n$ ) az anizotrópiaegyütthatók,  $\alpha_1 = \sin\theta\cos\varphi$ ,  $\alpha_2 = \sin\theta\sin\varphi$ ,  $\alpha_3 = \cos\theta$ , ahol a szokásos jelöléssel  $\theta$  a  $z$ -tengely és a mágnesezettség közötti,  $\varphi$  pedig az  $x$ -tengely és a mágnesezettség  $x$ - $y$  síkja vetett vetülete közötti szög. A  $(\theta, \varphi)$  polárkoordinátákat használva  $\alpha_i$  helyett [6] a magnetokristályos energia:

$$E_s = E_0 + \frac{K_1}{4}\sin^2 2\theta + \frac{K_3}{16}\sin^2 2\theta + \dots \quad \text{II.5}$$

Köbös kristályban a négyfogságú szimmetria következtében ez a következőképpen módosul:

$$E_\Lambda = E_0 + K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta + K_3 \sin^6 \theta + \dots \quad \text{II.6}$$

Az anizotrópiaállandók erősen függenek a hőmérséklettől és a kristályszimmetriától.

#### II.4.3 Magnetoelasztikus anizotrópia

Ferromágneses anyagok külső mágneses térben kisebb-nagyobb mértékben megváltoztatják alakjukat: általában a tér irányú megnyúlás, arra merőlegesen összehúzódás figyelhető meg. Ez a magnetoelasztikus hatás, vagy magnetostrikció. Egy ferromágneses anyag magnetoelasztikus energiája a feszültségtenzor és a mágnesezettség-vektor relatív irányától függ:

$$E_{ME} = -K_{ME} \cos 2\theta, \quad \text{II.7}$$

ahol  $K_{ME}$  a magnetoelasztikus állandó .

A kísérletekkel meghatározott magnetoelasztikus állandó lényegesen nagyobb a kristályanizotrópia állandónál. Ez különösen fontos lehet epitaxiális rétegeknél, ahol a hordozó és a film egymástól eltérő rácsparamétereinek következtében jelentős feszültségek keletkezhetnek. Egy kritikus ( $t_c$ ) értéknél vékonyabb rétegben, amennyiben a rácsparaméterek eltérése nem jelentős, az egyik rétegben húzófeszültség, míg a másikban nyomófeszültség ébred, aminek következtében a film és a hordozó síkbeli rácsparamétere azonossá válhat. Ezért nagyon vékony rétegekben a magnetoelasztikus energia nem függ a rétegvastagságtól. A kritikuskál vastagabb rétegekben energetikailag kedvezőbbé válik parciális diszlokációk keletkezése, ami csökkenti a filmben a rácsparaméterek eltéréséből adódó feszültséget. Ebben a tartományban a magnetoelasztikus energia fordítottan arányos a rétegvastagsággal.

## II.5 Superparamágnesség

Egy ferro-, vagy ferrimágneses domén méretének csökkenésével előfordulhat, hogy a mágnesezettsége már jóval a Curie-hőmérséklet alatt viszonylag alacsony értékre csökkenjen [18]. Feltéve, hogy a '0' és az '1' a rendszer két stabil állapota egy anizotrópiagáttal elválasztva, a mágneses szemcse (tobábbiakban: bit) mágnesezettsége a két állapot között átlagosan

$$\tau_N = \tau_0 \exp\left(\frac{KV}{k_B T}\right)$$

időnként véletlenszerűen átugrik. (Itt  $K$  és  $V$  az anizotrópiaállandó és a

bittérfogat,  $k_B T$  a termikus energia,  $\tau_0$  pedig egy a különböző anyagokra jellemző, tipikusan  $10^{-9}$ - $10^{-10}$ s értékű anyagi állandó. A  $KV=25k_B T$  összefüggésből számolt térfogatot szokás superparamágneses határnak nevezni. Ennél kisebb bittérfogat, vagy ennél magasabb hőmérséklet esetén a termikus energia még Curie-hőmérséklet alatt is elég nagy ahhoz, hogy a mágneses szemcsék véletlenszerű elrendeződését eredményezze. A superparamágneses mérhetően tipikusan 1-10 nm-es szemcseméretnél esetén jelentkeznek. Az alapvető különbség a paramágnesség és superparamágnesség között az, hogy míg az első esetben a termikus energia az atomi mágneses momentumai közötti csatolást győzi le, addig az utóbbinál a szemcsén belül megmarad az atomok közötti mágneses csatolás, de a szemcsék mágnesezettsége egymáshoz képest már tetszőlegesen tud változni.

## II.6 Diffúzió

A kémiai diffúzió egy termodinamikai rendszer egyes  $i=1,2, n$  komponenseinek, a rendszerben jelen lévő kémiai potenciálkülönbségek kiegyenlítésére irányuló spontán anyagárama, amely a termodinamikai egyensúly elérésekor megszűnik [ 19 ]. Az öndiffúzió a spontán atomi

mozgásnak kémiai hajtóerő nélküli, zérus anyagáramú, mikroszkóposan azonos formája. Vizsgálatára többek közt az ad lehetőséget, ha egyes komponensek kémiai azonosságuk mellett különböző izotópokat tartalmaznak, és valamely izotópzérékeny módszerrel mozgásuk követhető.

### II.6.1 A diffúzió fenomenológiai leírása

A diffúziós anyagtranszport első közelítésben a klasszikus Fick-egyenletekkel írható le:

$$\mathbf{J}_i = -D_i \text{grad } c_i, \quad \text{II.8}$$

ahol  $c_i$  az  $i$ -edik komponens helytől és időtől függő koncentrációja. A komponenstranszport adott  $i$  komponensre annak  $J_i$  anyagáram-sűrűségével írható le (Fick első törvénye). Az egyenlet szerint az  $i$ -edik (kémiai, vagy izotóp-) komponens  $J_i$  anyagáramsűrűség-vektora a csökkenő koncentrációk felé mutat; az arányossági tényezőt diffúziós (izotóparám esetén öndiffúziós) tényezőnek nevezik.

A transzport során a teljes anyagmennyiség időben állandó, azaz

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} + \text{div } \mathbf{J}_i = 0. \quad \text{II.9}$$

$\mathbf{J}_i$  helyére behelyettesítve II.8 egyenlet jobb oldalát, Fick második törvénye adódik:

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = D_i \text{div } \text{grad } c_i. \quad \text{II.10}$$

A legegyszerűbb kísérleti elrendezésben a diffúziós tényező egy olyan téglalakú próbatesten mérhető, amely a  $t=0$  időben az  $x=0$  helyen egy elhanyagolhatóan kis hosszban  $c_0$  koncentrációban tartalmazza a vizsgált komponenst és ezt a próbatestet  $t$  ideig  $T$  abszolút hőmérsékleten tartjuk. A II. 10 megoldása  $t$  idő múlva a forrástól számított  $x$  távolságra

$$c(x,t) = c(0,0)e^{-\frac{x^2}{4D_i t}}, \quad \text{II.11}$$

azaz a diffúzió karakterisztikus távolsága, az ún. *diffúziós hossz* ( $n$  dimenziós esetben):

$$L_d = \sqrt{4nD(T)t}. \quad \text{II.12}$$

Diffúziós folyamatokban a diffúziós tényező hőmérsékletfüggése a kísérleti tapasztalatok szerint:

$$D(T) = D_0 e^{-\frac{E_a}{k_B T}} \quad \text{II.13}$$



alakú, ahol a  $D_0$  preexponenciális tényező első közelítésben független a hőmérséklettől. Itt  $k_B$  a Boltzmann-állandó és  $\varepsilon_a$  az aktiválási energia, ami a diffúziós folyamat megindulásához, a transzportfolyamat lezajlását gátló potenciálgát leküzdéséhez szükséges. Az  $\varepsilon_a$  energia megszerzését aktiválásnak, az ilyen folyamatokat aktivált folyamatoknak nevezik.

## II.6.2 A diffúzió atomi mechanizmusai

Egy kristályos anyag rácspontjaiban, a potenciális energiájának minimuma van. Az atomok ezeken a helyeken „szeretnek” tartózkodni, de bizonyos körülmények között képesek az egyik minimumból egy másikba átjutni. Ez nem túl alacsony hőmérsékleten és nem túl könnyű részecskék esetén ugrással történik, és számos mechanizmusa lehet [20]:

- Direkt rácsközi mechanizmus: Az atom egy rácsközi (intersticiális) pontból egy másik szintén rácsközi pontba ugrik. Tipikusan a mátrix atomjainál lényegesen kisebb atomok esete (pl. hidrogén szilíciumban).
- Indirekt rácsközi mechanizmus: A rácsközi atom úgy jut át egy másik rácsközi helyre, hogy közben egy üres rácspontba ugrik.
- Gyűrűmechanizmus: Egy rácspontbeli helyettesítéses (szubsztitúciós) atom kicserélődik a szomszédos rácspontban elhelyezkedő atommal.
- Vakanciamechanizmus: A rácspontban lévő atom a mellette lévő üres rácshelyre ugrik.
- Kicserélődéses mechanizmus: Egy atom helyet cserél a mellette lévő atommal.

Egy anyagon belül a diffúzió sebessége nagyságrendekkel különbözhet attól függően, hogy a diffúzió a tömör anyagban, diszlokációk mentén, felületen, vagy a szemcsehatáron, stb. megy végbe. A diffúziót gyorsító rács hibákat diffúziós rövidzáraknak is nevezik.

## II.7 Ion-szilárdtest kölcsönhatások

Amikor egy ion a minta felületének ütközik, számos folyamat mehet végbe. Ezek egy része közvetlenül a felületen történik, ilyen a porlódás, többségük viszont a minta belsejében fellépő fékeződéssel kapcsolatos. A legfontosabb jelenségek az ion-sugaras keveredés, metastabilis fázisok képződése és az ion-sugaras növesztés (ion-beam assisted deposition, IBAD) [21,22,23].

Miközben az ion behatol a mintába, energiája egy részét átadja az anyagban található atomok elektronjainak, illetve magjának, ezáltal veszít a sebességéből, míg végül (elég vastag anyag esetén) teljesen megáll. Az anyagban megtett út hossza az atomok rendszámától és azok felületi sűrűségétől függ. A fékeződést a

$$\frac{dE}{dx} = \left( \frac{dE}{dx} \right)_e + \left( \frac{dE}{dx} \right)_n, \quad \text{II.14}$$

képlet írja le, ahol az e és n index az elektronokon történő (elektronikus, illetve nukleáris) fékeződést jelöli. Nagy (MeV-es) energiákon és kistömegű ion besugárzása esetén az elektronikus fékeződés a meghatározó, ellentétben a kis energiájú (keV-os és kisebb) nagy tömegű ionnal történő besugárzással, amikor a nukleáris fékeződés a domináns. A nukleáris fékeződéskor átadott energia:

$$E_i = E_0 \frac{4M_1M_2}{(M_1 + M_2)^2} \cos^2 \psi, \quad \text{II.15}$$

ahol  $M_1$  és  $M_2$  a besugárzó ion és a szóró atom tömege,  $E_0$  az ion kezdeti energiája, és  $\psi$  a szórási szög. Az energiaátadás során a céltárgy atomjai kimozdulhatnak a rácspontokból és másik rácspontba léphetnek át, vagy megállhatnak rácsközi pozícióban, ezáltal megváltoztatva az anyag szerkezetét.

Az ion-szilárdtest kölcsönhatás időben több szakaszra bontható. Kezdetben, két test ütközése, a besugárzó ion és a céltárgy egyik atomja közötti kölcsönhatás (az elsődleges meglökődés) játszik szerepet. Ekkor - ha a besugárzó ion energiája nagyobb, mint a kilökődéshez szükséges  $E_d$  energia - a céltárgy atomja kimozdul. Ezt az elsődleges szakaszt ütközési szakasznak („collisional phase”) nevezik és az ion belépésétől számítótól  $10^{-13}$ -tól  $10^{-12}$  másodpercig tart.

Az elsődlegesen kilökött atomok, amennyiben rendelkeznek elegendő (fémekre 20-30 eV) energiával, maguk is előidézhetnek másodlagos, vagy magasabb rendű kilökődéseket, (az ún. ütközési kaszkádokat). Mivel az elmozdult atom mozgási energiája, és ennek következtében szabad úthossza minden egyes szórási folyamatban csökken, az elmozdult atomok sűrűsége az adott helyen idővel megnövekszik, míg végül egy meghatározott kaszkádkörnyezet („spike”) mozgásba kerül. Ez tulajdonképpen lokális olvadásként értelmezhető, ahol az atomok hasonlóan viselkednek, mint egy magas hőmérsékleten létrejött diffúziós folyamatban [24], ezért ezt a tartományt termikusan aktivált tartománynak („thermal spike phase”) nevezik. Átmeneti fémekre jellemző hővezetést, illetve hőkapacitást feltételezve, tipikus fékeződési értékek esetén, a termikusan gerjesztett térfogat hőmérséklete általában 1200 K felett van [23]. A termikusan gerjesztett tartomány élettartama kb.  $10^{-11}$  másodperc [25]. Y. T. Cheng [26] megállapítása szerint csak húsznál nagyobb atomszámú elemek képesek termikusan aktivált térfogatot létrehozni.

Fémes és félvezető anyagokban az ionsugaras keveredés legfőbb mechanizmusa a fent említett termikusan aktiváció. A szórási folyamatok következtében elmozdult atomok ballisztikus folyamatai mellett a kémiai hatások is fontos szerepet játszhatnak. Mivel az egyes atomok a gerjesztett térfogatban más-más keveredési hővel rendelkezhetnek, így azok elkülönülhetnek, vagy összekeveredhetnek egymással. Az olvadási folyamatot az atomok kohéziós energiája is befolyásolja az atomok mobilitása által [21]. Az ionsugaras keveredés következtében a határfelületen koncentráció kiegyenlítődés megy végbe, amit a meglőkötött atomok száma és az azoknak átadott energia határoz meg.

A termikusan aktivált térfogat „kihülése” után a besugárzott térfogatban iononként akár több ezer atermikus hiba is visszamaradhat. Kellően nagy céltárgyhőmérséklet esetén ez a nem-egyensúlyi állapot a besugárzás által keltett hibák termikusan aktivált mozgása következtében ugyanakkor relaxálódhat is. Ezt nevezik a besugárzás relaxációs szakaszának és ez az oka a sugárzás-erősített („radiation enhanced”) diffúzióknak.

## II.8 Az ionsugaras keveredés mint diffúziós folyamat

Az anyagban ionbesugárzás hatására jelentős atomi átrendeződés, ionsugaras keveredés mehet végbe, amit a különböző anyag-ion kölcsönhatási (ballisztikus, elektronikus, illetve kaszkád-) folyamatok befolyásolnak. A besugárzó ion energiájának, illetve tömegének változtatásával ezen folyamatok egymáshoz viszonyított mértéke is változik. Pl. nagyobb ionenergia a nukleáris ütközés során nagyobb energiaátvitelt eredményez. Általánosságban két (A és S) réteg határfelülete mentén keletkező keveredés [27]:

$$Q \propto \left[ \phi \left( \frac{dE}{dx} \right)_n \right]^{1/2} = \left[ I_{ion} \cdot t \left( \frac{dE}{dx} \right)_n \right]^{1/2}, \quad \text{II.16}$$

ahol  $\phi$  egységnyi felületen áthaladó ionszám, azaz fluencia. Vékonyrétegek ionbesugárzásakor a fluencia állandónak tekinthető, így állandó  $I_{ion}$  beeső ionáram-sűrűség mellett az egységnyi felületen áthaladó ionok mennyisége arányos az idővel. Következésképpen II.16 szerint a keveredés mértéke – hasonlóan a II.12 képlethez - az eltelt idő négyzetgyökével arányos [28]. Ezért a keveredett réteg vastagsága [29]

$$W \propto (\tilde{D}t)^{1/2} \propto L_d \quad \text{II.17}$$

alakba írható és így az ionnyaláb-keveredés leírható a diffúzióra érvényes képletekkel, ha azokba

$\tilde{D} = I_{\text{ion}} \cdot \left( \frac{dE}{dx} \right)_n$  effektív (keveredési) diffúziós együtthatót helyettesítünk.

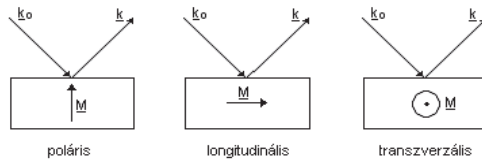
### III Kísérleti és kiértékelési módszerek

#### III.1 Magnetooptikai Kerr-effektus

Ezzel a módszerrel nikkell rétegeken, valamint mágneses szupertükrökben vizsgáltam a mágneses anizotrópia változását besugárzás hatására.

##### III.1.1 A magnetooptikai Kerr-effektus elmélete

Ha lineárisan polarizált fény mágnesezett felületről verődik vissza, akkor a fény polarizációja általában elfordul. Ez a magnetooptikai Kerr-effektus, röviden MOKE [30]. A polarizáció elfordulása a minta mágnesezettségének lineáris függvénye. Hasonló jelenség a Faraday-effektus [31], amelynek során a fény áthalad a mágneses mintán. A Kerr-effektus három fajtája (2. ábra):



2. ábra MOKE-elrendezések

- Poláris elrendezésben a mágnesezettség merőleges a minta felületére. Ekkor a lineárisan polarizált hullám egy újabb komponenst generál, amely akkor a legerősebb, amikor a beesés szöge nulla.
- Longitudinális esetben a mágnesezettség párhuzamos a felülettel és a beeső valamint a tükrözött nyaláb hullámszámvektoraival ( $k_0, k$ ) által kifeszített beesési síkba esik. A MOKE hatására a visszaverődött fény polarizációja elfordul. Attól függően, hogy a polarizáció a beesés síkjába esik (p-polarizáció), vagy arra merőleges (s-polarizáció), az elfordulás mértéke különböző.
- Transzverzális MOKE esetén a minta mágnesezettsége a felület síkjában a beesés síkjára merőleges. p-polarizált beeső hullám esetén csak a reflektált amplitúdó változik, a polarizáció iránya változatlan marad, míg s-polarizált hullám esetén nincs effektus.

A magnetooptikai Kerr-effektus leírásához a fény terjedését kell vizsgálnunk anizotrop közegben [32]. A komplex Kerr-szögek a következőképpen vannak definiálva [33]:

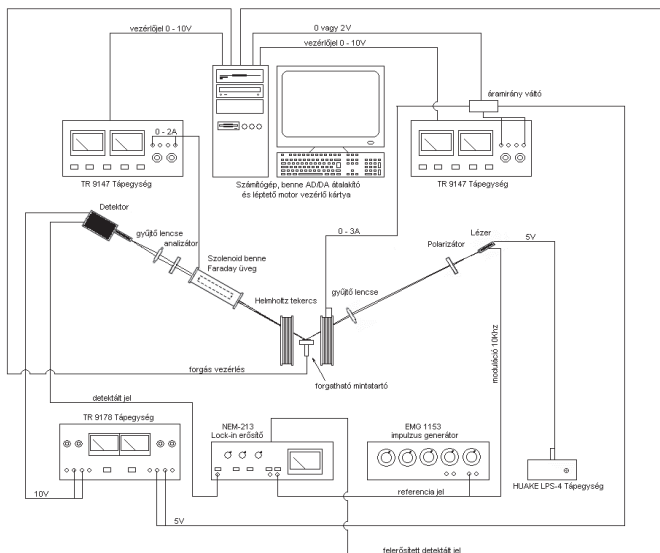
$$\Theta_K^p = \theta_K^p + i\varepsilon_K^p = \frac{r_{sp}}{r_{pp}}, \quad \text{III.1}$$

$$\Theta_K^s = \theta_K^s + i\varepsilon_K^s = \frac{r_{ps}}{r_{ss}}, \quad \text{III.2}$$

itt  $\theta_K^{s,p}$  és  $\varepsilon_K^{s,p}$  a Kerr-forgatás és ellipszicitás a beeső fény s-, illetve p- polarizációja esetére. Az  $r_{ij}$  paraméterek a reflexiós mátrix elemei A reflexiós mátrix teremt kapcsolatot a beeső elektromágneses hullám p- és s- polarizációjú komponensei, illetve reflektált nyaláb megfelelő komponensei között. Az  $r_{ij}$  komponensek a beérkező  $i$  polarizált elektromos mező és a reflektált  $j$  polarizált elektromos mező arányát mutatják meg.  $r_{ss}$  az ún. Fresnel-féle reflexiós együttható,  $r_{pp}$  pedig a Fresnel-féle reflexiós együttható plusz egy mágnesezettségtől függő tag. Ha a ferromágneses film vastagsága az anyagban terjedő fény hullámhosszához képest nagy, akkor a MOKE-jel független a rétegvastagságtól. Ha a réteg vastagsága a hullámhosszal összemérhető, vagy kisebb, akkor a jel vastagságfüggő. Ha a film ultravékony ( $< 200$  nm), akkor ez az összefüggés lineáris. Ekkor már többszörös reflexiót és interferenciát is figyelembe kell venni.

### III.1.2 Kísérleti berendezés

A doktori munkám során két MOKE berendezéssel dolgoztam. Az egyik a KFKI RMKI-ban általam épített berendezés, a másik a göttingeni Georg-August Egyetemen használt berendezés. A két berendezés működése megegyezik: A lézerből kilépő nyaláb áthalad a polarizátoron, amely úgy van beállítva, hogy a lézernek csak a beesési síkra merőleges komponensét engedje át. A fényt lencsével fókuszáljuk a mintára, amely egy Helmholtz-tekerespár centrumában, vagy egy vasmagos elektromágnes pófái között van elhelyezve úgy, hogy a mágneses tér a minta és egyszerűsre a beesési síkjában fekszik (longitudinális elrendezés). Végül egy lencse fókuszálja a nyalábot egy Si fotodiódára. Az általam épített longitudinális MOKE mérési elrendezését a 3. ábra mutatja.



3. ábra KFKI RMKI-ban épített MOKE berendezés vázlatos felépítése

A polarizátor és az analízátor egymásra merőlegesen van beállítva, ezért ha a minta mágnesezettséggel arányos Kerr-forgatása nulla, az analízátor mögött nincs fényintenzitás. Ha azonban a mintában (a lézertolt méretére átlagolt eredő) mágnesezettség van, akkor a minta felületéről reflektált nyaláb polarizációja a MOKE következtében elfordul, és a reflektált nyalábnak lesz olyan polarizációjú komponense, amelyet az analízátor átenged. A detektor ezt a fényintenzitást érzékeli. A háttérfény, a lézer-, és egyéb zajok hatásának elnyomása céljából a detektor jele nem közvetlenül, hanem egy lock-in erősítőn keresztül jut el az analóg-digitális (A/D-) átalakítóba. A fontosabb technikai paramétereket az 1. táblázat tartalmazza.

	KFKI RMKI	Georg-August egyetem
Lézer	Félvezető, 5 mW, 670 nm	He-Ne, 2mW, 632.8 nm
Moduláció	Elektronikus nyalábszaggatás 1kHz – 20kHz	Polarizáció moduláció (±45°) 50kHz
Mágnes	Helmholtz tekercs (30 mT) Vasmagos mágnes (420 mT)	Helmholtz tekercs (20 mT)
Detektor	Szilícium fotódióda Aktív felület 5×5mm <sup>2</sup>	Szilícium fotódióda Aktív felület 10×10mm <sup>2</sup>
Hőmérséklet	Szobahőmérséklet	Szobahőmérséklet
Maximális mintaméret	60×60 mm <sup>2</sup> / 20×50 mm <sup>2</sup>	60×60 mm <sup>2</sup>

1. táblázat Az alkalmazott MOKE-berendezések technikai adatai

### III.2 Neutronreflektometria

A neutron az anyagba jutva az atommagokkal az erős, mágneses momentuma révén a belső mágneses terekkel az elektromágneses kölcsönhatáson keresztül hat kölcsön. A neutron kvantumrészecske  $\lambda_0$  hullámhosszát a de-Broglie képlettel számolhatjuk,

$$\lambda_0 = \frac{h}{m_n v}, \quad \text{III.3}$$

ahol  $v$  a neutron sebessége. Egy szabad neutron energiája a Schrödinger egyenletből számolva:

$$E = \frac{\hbar^2 \mathbf{k}^2}{2m_n}. \quad \text{III.4}$$

A termikus illetve hideg neutronok hullámhossza a néhány Å nagyságrendbe esik, ami megfelel az atomok közti távolságnak, energiájuk pedig  $\sim 20$  meV, ami a szilárdtestek elemi gerjesztéseinek nagyságrendje. Ennek következtében neutronokkal gyakran párhuzamosan szerezhetünk információt az anyag szerkezetéről és dinamikai tulajdonságairól. A neutronok fontos jellemzője, hogy szórási hatáskeresztmetszetük nem a rendszámmal ill. tömegszámmal arányos, ezért egymáshoz közeli, vagy könnyű elemek (H, He) szórását is tanulmányozni lehet, ami röntgensugárzással nem, vagy csak korlátozottan lehetséges. Mivel a neutron az anyaggal csak kis mértékben hat kölcsön, nagy áthatólképességgel rendelkezik, ezért nagy, akár 10 cm



vastag minták is tanulmányozhatók. A neutron mágneses momentumának következtében különösen alkalmas mágneses anyagok tanulmányozására.

A neutronreflektometria (NR) a sík felületű rétegek szóráshossz-sűrűségének mélységfüggését vizsgálja. Ez a módszer mágneses multirétegek, biológiai struktúrák, szilárd-folyadék határfelületek, vagy más rétegszerkezetek síkra merőleges profiljának, illetve a határfelületek minőségének vizsgálatára alkalmas.

A beeső neutronnyalábot hullámként kezeljük [34]. Ha beeső nyaláb paraméterei olyanok, hogy nem teljesítik a Bragg-feltételt, akkor a beeső neutron csak egy állandó  $V_0$  potenciállal hat kölcsön, amely a  $b$  koherens szóráshosszal a következő egyszerű kapcsolatban áll:

$$V_0 = \frac{2\pi\hbar^2}{m_n} b\rho, \quad \text{III.5}$$

ahol  $m_n$  a neutron tömege,  $\rho$  a közegbeli atomsűrűség. A  $b\rho$  szorzatot átlagos koherens szóráshossz-sűrűségnek nevezik, és gyakran  $N_b$ -vel is jelölik. Mivel a szórási hossz - néhány kivételtől eltekintve pozitív - ezért a potenciál is pozitív értéket vesz fel, aminek hatására csökken a neutronoknak mozgási energiája, azaz behatolva a hullámhosszuk megnő. Ha egy neutronokból álló nyaláb egy végtelen mélységű, állandó  $V_0$  potenciállal jellemezhető közeg felületére esik, és a felület strukturálatlan, akkor a potenciálgadiensnek és így az erőnek is csak a felületre merőleges komponense van. Ezért a beeső hullám hullámszámvektorának csak a felületre merőleges komponense  $k_{\perp}$  változik, és az ehhez tartozó kinetikus energia

$$E_{\perp} = \frac{(\hbar\mathbf{k}_i \sin\theta_i)^2}{2m_n} \quad \text{III.6}$$

határozza meg, hogy a beeső nyaláb teljes visszaverődést szenved-e vagy sem. Ha  $E_{\perp} < V_0$ , a nyaláb teljes visszaverődést szenved. A visszaverődés kritikus impulzusátadása  $q_c$  az  $E_{\perp} = V_0$  egyenletből számolható:

$$q_c = \sqrt{16\pi N_b} \quad \text{és} \quad q = 2k_i \sin\theta_i. \quad \text{III.7}$$

Rugalmas kölcsönhatás esetén, az energiamegmaradás és a tangenciális impulzusmegmaradás miatt a visszaverődés spekuláris, vagyis megfelel a geometriai optika visszaverődési törvényének. Bármilyen egyéb (offspekuláris) szórással, egy a felülettel párhuzamos potenciálgadiensből származik.

Ha  $E_{\perp} > V_0$  akkor a neutron nemcsak reflektálódik a felületről, hanem be is hatol a közegbe. Az behaladó nyaláb megtörik, azaz a hullámszámvektor felületre merőleges komponense is megváltozik:

$$\mathbf{k}_{\perp}^2 = \mathbf{k}_{\perp}^2 - 4\pi N_b. \quad \text{III.8}$$

Ebből az összefüggésből a törésmutató:

$$n^2 = \frac{\mathbf{k}_i^2}{\mathbf{k}_i^2} = \frac{\mathbf{k}_{\parallel}^2 + (\mathbf{k}_{\perp}^2 - 4\pi N_b)}{\mathbf{k}_i^2} = 1 - \frac{4\pi N_b}{\mathbf{k}_i^2} = 1 - \frac{\lambda^2 N_b}{\pi}. \quad \text{III.9}$$

Általában hideg neutronokra az  $N_b$  szóráshossz-sűrűség  $1 \text{ \AA}^{-2}$ -nél jóval kisebb, ezért jó közelítéssel sorba fejthető:

$$n \approx 1 - \frac{\lambda^2 N_b}{2\pi}. \quad \text{III.10}$$

A felülethez közeli neutron kvantummechanikai hullámfüggvényét a következő egyenlet adja meg:

$$\frac{\partial^2 \Psi}{\partial z^2} + \mathbf{k}_{\perp}^2 = 0, \quad \text{III.11}$$

ahol 
$$\mathbf{k}_{\perp}^2 = \frac{2m_n}{\hbar^2} (E_i - V) - \mathbf{k}_{\parallel}^2.$$

Az egyenlet felület feletti és a felület alatti megoldása

$$\Psi_{z>f} = e^{ik_{\perp}z} + r e^{-ik_{\perp}z} \quad \text{és} \quad \Psi_{z<f} = t e^{ik_{\perp}z}, \quad \text{III.12}$$

ahol  $r$  és  $t$  a reflexiós és transzmissziós valószínűségi amplitúdók. A hullámfüggvényre és annak deriváltjára a felületen vonatkozó folytonossági feltételből a következő összefüggéseket kapjuk:

$$1 + r = t \quad \mathbf{k}_{\perp} (1 - r) = t \mathbf{k}_{\perp}. \quad \text{III.13}$$

Ezeket az egyenleteket tovább vizsgálva a klasszikus optikából jól ismert Fresnel- együtthatókat kapjuk:

$$r = \frac{k_{\perp} - k_{\perp}}{k_{\perp} + k_{\perp}} \quad \text{és} \quad t = \frac{2k_{\perp}}{k_{\perp} + k_{\perp}}. \quad \text{III.14}$$

A mérés során intenzitást mérünk, ami a valószínűségi amplitúdó abszolút értékének a négyzete:

$$R = r^2 = \left[ \frac{q - \sqrt{q^2 - q_c^2}}{q + \sqrt{q^2 - q_c^2}} \right]^2. \quad \text{III.15}$$

Ha  $q \gg q_c$  akkor az egyenlet tovább egyszerűsödik:

$$R \approx \frac{16\pi^2}{q^4} N_b^2. \quad \text{III.16}$$

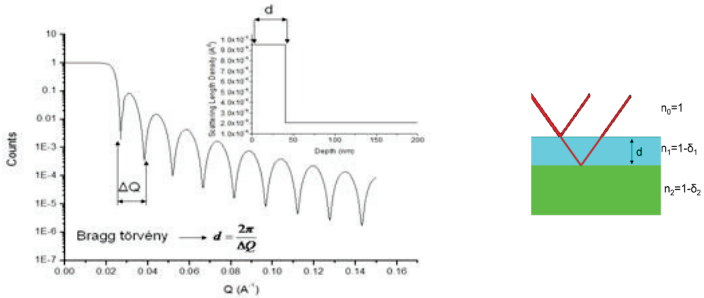
Ez a reflektivitás kifejezése Born-közelítésben [32].

Ha a minta nem egy félvégtesen rétegből, hanem két rétegből áll (4. ábra), akkor a réteghatáron számolt reflexiók együtthatók a következőképpen állnak elő:

$$r_{01} = \frac{k_{0\perp} - k_{1\perp}}{k_{0\perp} + k_{1\perp}} \quad \text{és} \quad r_{12} = \frac{k_{1\perp} - k_{2\perp}}{k_{1\perp} + k_{2\perp}}, \quad \text{III.17}$$

ahol  $k_i = n_i k_0$  és így a teljes reflektivitás:

$$r = \frac{r_{01} + r_{12} e^{2ik_1 d}}{1 + r_{01} r_{12} e^{2ik_1 d}}. \quad \text{III.18}$$



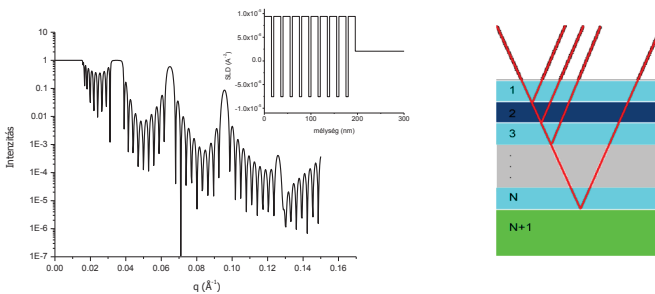
4. ábra Reflektivitás két rétegen

$N$  darab réteg esetén a reflektogram előállításához rekurzív algoritmust (Parratt-módszer) alkalmazunk:

$$r_{i,i+1} = \frac{k_{i\perp} - k_{i+1\perp}}{k_{i\perp} + k_{i+1\perp}} \quad \text{és} \quad r_{N,N+1} = r_{N,N+1} \quad \text{III.19}$$

$$r_{N-1,N} = \frac{r_{N-1,N} + r_{N,N+1} e^{2ik_{N-1} d_{N-1}}}{1 + r_{N-1,N} r_{N,N+1} e^{2ik_{N-1} d_{N-1}}}. \quad \text{III.20}$$

Egy szilícium hordozóra növesztett  $[\text{}^{58}\text{Ni}^{62}\text{Ni}]_{10}$  izotóp-multirétegszerkezetet és annak szimulált neutronreflektogramját az 5. ábra mutatja.



5. ábra [ $^{58}\text{Ni}/^{62}\text{Ni}$ ] $_{10}$  multirétegről készült szimulált reflektogram és a rétegszerkezet vázlata

Az  $E_{\perp} < V_0$  (vagy  $k_{\perp} < 4\pi N_b$ , vagy  $q < q_c$ ), feltételek mellett, a következő kifejezés valós értéket vesz fel:

$$\Psi_{z < f} = te^{i\sqrt{k_{\perp}^2 - 4\pi N_b} z} = te^{\frac{z}{2}\sqrt{q_c^2 - q^2}} \quad \text{III.21}$$

A fenti képletből következik, hogy annak ellenére, hogy a részecske felületre merőleges impulzusához tartozó energiája alacsonyabb a potenciálgátnál, a neutron hullámfüggvénye mégis behatol a közegbe. Ez az evanescens hullám  $k_{\parallel}$  hullámvektorral a felszín mentén terjed és igen rövid időn belül kilép a közegből spekuláris irányban. Ha a felszíni réteg vastagsága kisebb, vagy nem sokkal nagyobb, mint a behatolási mélység, akkor már az alatta lévő réteget is figyelembe kell venni a reflektivitás kiszámolásakor.

A mért reflektivitásgörbéből a szóráshossz-sűrűség mélységfüggését visszanyerni igen összetett feladat, és sok egymástól különböző rétegszerkezet is eredményezheti ugyanazt a reflektivitásgörbét [35,36,37,38].

A valóságban az anyagoknak véges abszorpciós hatáskeresztmetszetük van. Ezt úgy vesszük számításba, hogy a koherens szórási hosszhoz egy képzetes részt adunk.

$$b_{\text{teljes}} = b_{\text{koherens}} + ib_{\text{abszorpciós}} \quad \text{III.22}$$

Az abszorpció figyelembevételével mind az átmenő, mind a reflektált intenzitás exponenciálisan csökken. Még a kritikus visszaverődési tartományában is, ahol a reflektált nyaláb az anyag felületéhez közeli tartományában halad, fellép az elnyelődés, ami a totálreflexiós amplitúdót egység alá csökkenti.

Ha az anyag mágneses, akkor az előbb említett potenciálon kívül egy további, a neutronok mágneses dipólus-momentuma és a mágneses indukció vektor közötti kölcsönhatásból eredő potenciál is hat. Ezt a kölcsönhatást kihasználva lehetőségünk nyílik az anyag mágnesezettségének a vizsgálatára spinpolarizált neutronok segítségével. Ez a módszer a polarizált neutronreflektometria (PNR).

A mágneses kölcsönhatás potenciáljának értéke

$$V_{\text{mag}} = -\vec{\mu}_n \cdot \vec{B}(\vec{r}), \quad \text{III.23}$$

ahol  $\vec{\mu}_n$  a neutron mágneses dipólus-momentuma és  $\vec{B}(\vec{r})$  a mágneses indukció-vektor. Ha a beeső nyaláb a mintában lévő mágnesezettség irányához képest fel vagy le irányban polarizálva van, akkor a mágneses potenciál előjelet vált, ezáltal a teljes szórási hossz polarizációfüggő lesz, ahol a pluszjel arra az esetre vonatkozik, ahol a neutron mágneses nyomatéka és a közegbeli mágnesezettség párhuzamos, a negatív arra, amikor ellentétes:

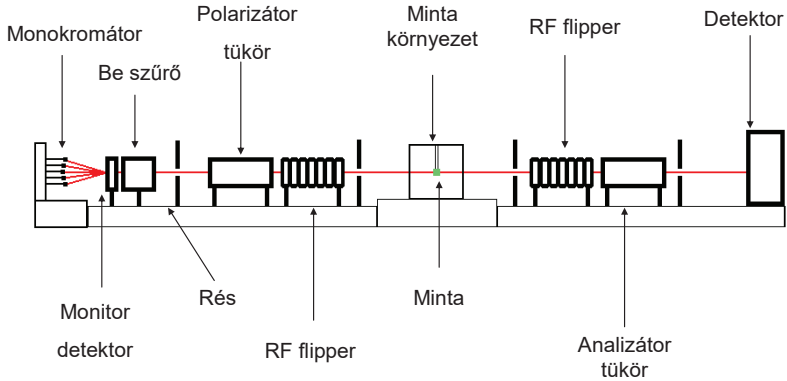
$$b_{\text{teljes}} = b_{\text{atom}} \pm b_m. \quad \text{III.24}$$

A polarizált neutronreflektometriával kapcsolatban fontos megemlíteni, hogy csak akkor lép fel mágneses reflexió, ha a mágneses potenciál megváltozik, ami a  $\vec{B}(\vec{r})$  ugrását jelenti. Ha a minta a mágneses réteg síkjában van mágnesezve, és a beérkező nyaláb ebben a síkban polarizált, akkor a Maxwell-egyenletek szerint a réteg határán a  $\vec{B}(\vec{r})$  ugrása  $\mu_0 \vec{M}(\vec{r})$ , ahol  $\vec{M}(\vec{r})$  a minta mágnesezettségsűrűsége. Ha a minta a réteg síkjára merőlegesen van mágnesezve,  $\vec{B}(\vec{r})$  a határon folyamatos megy át, azaz a potenciálban nincs ugrás. Mágneses reflexió csak abban az esetben lép fel, ha a mágnesezettség a beérkező neutronok spinjével párhuzamos irányban változik. Ha a mágnesezettség a spinek irányára merőleges, akkor az nem reflexiót, hanem a spin irányának elfordulását okozza. Így előfordulhat, hogy a teljesen polarizált nyalábban ellentétes spinű komponensek is megjelennek. Ennek az ún. spin-flip jelnek a vizsgálatával mérhettük meg a neutronok spinjére merőleges síkbeli mágnesezettséget [ 39 , 40 ]. Polarizált neutronreflektometria méréseket a FePd rendszer, a mágneses szupertükrök és Bragg tükrök mágneses tulajdonságainak vizsgálatához alkalmaztam.

### III.2.1 Kísérleti berendezés

Ahhoz, hogy polarizált reflektometriai méréseket végezzünk, természetesen, szükség van a neutronok spinjének polarizálására, illetve analizálására. A dolgozatomban felhasznált méréseimet az stuttgarti Max-Planck-Institut für Metallforschung által a Müncheneri Műszaki

Egyetem garchingi FRM II reaktoránál működtetett NREX<sup>+</sup> neutronreflektométernél, illetve a KFKI RMKI-ban a PhD munkám során részben általam épített GINA neutronreflektométernél (6. ábra) végeztem.



6. ábra A KFKI RMKI-ban 2010-ben elkészült GINA neutronreflektométer vázlatos rajza

A jelen konfigurációban a 4,6 Å hullámhosszú monokromatikus neutronnyaláb kicsatolásáról 5 db 25×25mm<sup>2</sup> felületű pirolitikus grafit egykristály gondoskodik. A kristályok egyenként mozgathatók, ezáltal téve lehetővé téve a nyaláb fókuszálását a mintára. A kicsatolt nyaláb intenzitását egy <sup>3</sup>He-mal töltött monitor-detektor figyeli, melynek hatásfoka kisebb, mint egy ezrelék. A neutronnyalábban a monokromátor által szintén kiválasztott töredék hullámhosszak (magasabb rendű Bragg-reflexiók, „felharmonikusok”) kiszűrését egy cseppfolyós nitrogénnel hűtött berilliumtömb végzi, amely a teljes intenzitásnak kb. 80 %-át engedi át. Az ekkor még széles nyalábot egy rés kollimálja. Polarizált mérés esetén egy (transzmissziós) polarizáló szupertükör gondoskodik a megfelelő polarizáció kiválasztásáról. Ezután egy adiabatikus rádiófrekvenciás (RF) flipperrel a spinek a mintán lévő térrel parallel, illetve antiparallel állapotba hozhatók. A mintára eső nyaláb divergenciájának csökkentésére a minta előtt még egy rést alkalmazunk. A reflektométer centrumában lévő egységen található a mintakörnyezet, mely szükség esetén alkalmas a minta mágneses térben, vagy alacsony hőmérsékleten történő mérésére. Teljes polarizáció-analízis mérése esetén a reflektált nyaláb ismét áthalad egy adiabatikus RF flipperen, majd egy analízáló mágneses szupertükörön. Végül a neutronokat egy <sup>3</sup>He/CF<sub>4</sub> gázkeverékkel töltött helyzetérzékeny detektor fogja fel. Minden egyes szögnél a felvett mérési pont egy 128×128 képpontos detektorképpnek felel meg, amit eltárolunk. Végül az általam

írt vezérlőprogram a képeknek a mérés szempontjából fontos részeit („regions of interest”) feldolgozza és reflektivitásgörbévé alakítja.

### III.3 Rezonáns fotonszórás: laboratóriumi és szinkrotronos-Mössbauer spektroszkópia

#### III.3.1 Hiperfinom kölcsönhatások

Az atommag kölcsönhatásban áll a környezetében lévő elektronokkal és magokkal, valamint a külső elektromos és mágneses terekkel. A mag helyén lévő elektromos és mágneses terek következtében a mag eredeti energianívói  $10^{-6}$ – $10^{-9}$  eV-tal eltolódnak, felhasadnak. Ezek a hiperfinom kölcsönhatások pl. a Mössbauer-effektus felhasználásával mérhetők. A Mössbauer effektussal [ 41 , 42 , 43 , 44 , 45 ] egyedülállóan nagy, akár  $10^{-13}$  -  $10^{-15}$  mértékű relatív energiafelbontás is elérhető.

##### III.3.1.1 Elektromos kölcsönhatások

Az elektromos kölcsönhatások vizsgálatából fontos következtetéseket vonhatunk le az atommag kémia környezetéről, továbbá a magot körülvevő kristály szimmetriájáról. A mag és az elektronok elektrosztatikus kölcsönhatási energiája [46]:

$$E_{el} = \int \rho(\mathbf{r})\Phi(\mathbf{r})d^3\mathbf{r} , \quad \text{III.25}$$

ahol  $\Phi(\mathbf{r})$  az elektronok elektromos potenciálja a magon belül, és  $\rho(\mathbf{r})$  a mag töltés-eloszlása, amelyre  $\int \rho(\mathbf{r})d^3\mathbf{r} = Ze$  teljesül. Az elektromos potenciál Taylor-sorba fejthető, és az

$$E_{el} = E^{(0)} + E^{(1)} + E^{(2)} + \dots \quad \text{III.26}$$

kölcsönhatási energia egyes rendjei más-más kölcsönhatásként értelmezhetők.

- $E^{(0)}$  a ponttöltésnek tekintett mag Coulomb-energiája, a gerjesztett és az alapállapot energiaszintjeit azonos mértékben tolja el, a kisugárzott  $\gamma$ -foton energiájára nincs hatással.
- $E^{(1)}$  a mag elektromos dipól-momentuma és az elektromos térerősség szorzata. A mag elektromos dipólus-nyomatéka zérus és ez a tag nulla.

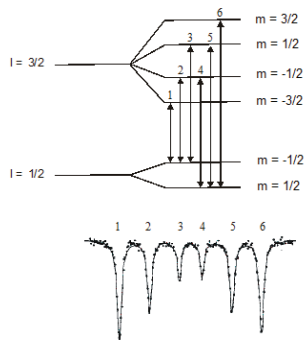
- $E^{(2)}$  energiát két részből, az  $E_C$  monopólus kölcsönhatásból és az  $E_Q$  elektromos kvadrupólus kölcsönhatásból tevődik össze.
- A magasabb rendű tagok kicsik, ezért általában elhanyagolhatók.

### III.3.1.2 Mágneses felhasadás

A mag  $m$  mágneses dipólus-momentuma és a mag helyén mérhető  $B$  mágneses indukció

$$E_m = -mB = -g_N \mu_N B_z m_l \quad \text{III.27}$$

kölcsönhatási energiára vezet, ahol  $g_N$  a mag Landé-tényezője,  $\mu_N$  a mag-magneton,  $B$  mágneses indukció  $2I+1$  darab, egymástól  $g_N \mu_N B$  távolságra lévő alszintet hoz létre. Az alap- és a gerjesztett állapot egyaránt felhasad, a mágneses dipólátmenet kiválasztási szabálya:  $\Delta m = 0, \pm 1$ . A  $^{57}\text{Fe}$  mag alap- és első gerjesztett állapota közötti Mössbauer-átmenet ennek a kiválasztási szabálynak megfelelő hatvonalas spektruma és nívósémája a 7. ábrán látható.



7. ábra A  $^{57}\text{Fe}$   $1/2 \rightarrow 3/2$ -es magátmenetének felhasadása mágneses dipólus kölcsönhatás esetén

### III.3.1.3 Téreloszlások

A mért Mössbauer-spektrum vonalai kiszélesednek, ha a hiperfinom paraméterek nagysága és/vagy iránya (hiperfinom mágneses tér, elektromos térgradiens, izomér eltolódás) nem egyetlen diszkrét értéket vesznek fel, hanem statisztikus eloszlással rendelkeznek. Ez olyankor lép fel, amikor a rezonáns magok környezete nem teljesen rendezett. Ebben az esetben a Mössbauer-spektrum kiértékelése nem triviális. A dolgozatomban olyan esetekkel foglalkozom, ahol a mágneses hiperfinomtér-eloszlás dominál, amelyeket hisztogram-eloszlással illeszttem. Ez azt jelenti, hogy a mintáról feltételezett modell alapján meghatároztam egy hiperfinom



tértartományt, és ezt egyenlő – egyedi hiperfinom térértékkel rendelkező – részekre osztva, azoknak a tereknek a spektrumhoz való hozzájárulásait illetve értékelttem ki a mért Mössbauer-spektrumot. Erre a célra a széles körben használt Normos [47] kódot használtam.

### III.3.1.4 A mágnesezettség hatásvonalának meghatározása a spektrumvonalak intenzitásarányából

Az alap- és gerjesztett állapothoz tartozó alnívók közötti átmentekhez tartozó vonalintenzitások  $3x:1:1:x:3$  arányban viszonyulnak egymáshoz, ahol az

$$x = 4 \cdot \frac{1 - \cos^2 \Theta}{1 + \cos^2 \Theta}, \quad \text{III.28}$$

közötti intenzitásarányok méréséből a bejövő  $\gamma$ -foton és a mintában lévő mágneses tér  $\Theta$  szöge meghatározható. A mintáról a mágneses felhasadás hordozza a legtöbb információt és az felhasználható rácshely-, fázis-, és elemanalízisre, mágneses transzformációk vizsgálatára, az elektronsűrűség ötvözetekben történő meghatározására, fémüvegek rövid távú rendjének, ötvözetek rendezettségének, valamint fázisátalakulások nyomon követésére.

### III.3.1.5 A Mössbauer-effektus valószínűsége

Egy gerjesztett állapotú rögzített atommag legerjesztődésekor egy  $E$  energiájú foton kibocsátásának  $W(E)$  valószínűsége:

$$W(E) = \frac{\Gamma}{2\pi} \frac{1}{(E - E_0)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \frac{1}{1 + \alpha}, \quad \text{III.29}$$

ahol  $\alpha$  a belső konverziós együttható,  $\Gamma$  pedig a természetes vonalszélesség. A gerjesztett állapot  $\tau$  élettartama és a természetes vonalszélesség között fennáll a  $\Gamma\tau = \hbar$  összefüggés, ahol  $\hbar = 2\pi\hbar$  a Planck-állandó. Egy vékony abszorbensben az alapállapotban lévő mag egy  $E$  energiájú foton

$$\sigma(E) = \sigma_0 \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2 \frac{1}{(E - E_0)^2 + \left(\frac{\Gamma}{2}\right)^2} \quad \text{III.30}$$

hatáskeresztmetszettel abszorbeál, ahol  $\sigma_0 = 2\pi\hbar^2 e^2 \frac{2I_g + 1}{2I_a + 1} \cdot \frac{1}{E^2} \cdot I_g$  és  $I_a$  a gerjesztett, illetve az alapállapot spinje. Az teljes emissziós és abszorpciós hatáskeresztmetszet:

$$\sigma_{\text{eff}} = \int_0^{\infty} W(E) \sigma(E) dE. \quad \text{III.31}$$

A legerjesztődési folyamat során az impulzus megmarad, ezért az atommag visszalökődik, így a kibocsátott foton energiája

$$E_R = \frac{E_\gamma^2}{2Mc^2} \quad \text{III.32}$$

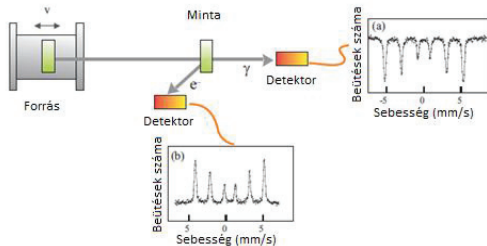
mértékben lecsökken. Ez az energiaeltolódás szabad atommagok esetében drasztikusan lecsökkenti a rezonancia abszorpció valószínűségét. Ha azonban mind a forrás, mind az abszorbens atomjai a kristályban kötött állapotban vannak, a III.32 képlet csak statisztikus átlagban teljesül, miközben a visszalökődési energiát nagy valószínűséggel a teljes rács veheti fel és így végbemehet a visszalökődés-mentes emisszió és abszorpció. A rezonanciaabszorpció valószínűségét az

$$f \cong e^{-k_0^2 \langle x^2 \rangle} \quad \text{III.33}$$

Mössbauer-Lamb tényező adja meg, ahol  $k_0 = E_0 / \hbar c$  a foton hullámszámvektora,  $\langle x^2 \rangle$  a kvantumoscillátor kitérésnégyzetének várható értéke.

### III.3.2 A Mössbauer-spektroszkópia kísérleti megvalósítása és konverziós-elektronok detektálása

Munkám során a Mössbauer spektroszkópiát a vékonyréteg mintákban jelenlévő különböző  $^{57}\text{Fe}$  környezetek meghatározására használtam, konverziós-elektronok detektálásával kombinálva. A Mössbauer-mérés során egy  $\gamma$ -forrást  $v$  sebességgel mozgatunk, amivel – a Doppler-hatás következményeként ( $\Delta E = E_\gamma \frac{v}{c}$ ) – az emissziós energiatartomány környezetét letapogatjuk. A mozgást vezérlő függvénygenerátor szinkronizálva van egy sokcsatornás analízátorral, ezáltal az azonos sebességhez tartozó beütéseket azonos csatornába gyűjti. Az emittált foton a vizsgálni kívánt minta atommagjai, bizonyos valószínűséggel abszorbeálja, ami a transzmisszióban elhelyezett  $\gamma$ -detektorban intenzitás-csökkenésként jelenik meg (8. ábra).



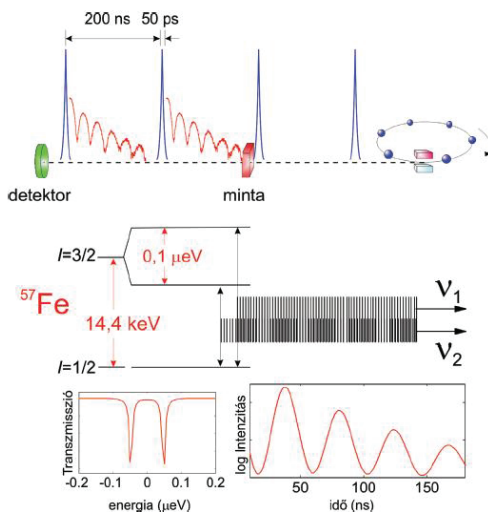
8. ábra A Mössbauer-spektroszkópiai mérések elrendezése transzmisszióban és konverziós elektronok detektálása esetén [48]

A reemissziós folyamat során a gerjesztett állapotban lévő  $^{57}\text{Fe}$  atommag 9 % valószínűséggel 14,4 keV energiájú  $\gamma$ -fotont, 91 % valószínűséggel (az M, L és K héjakról származó 14,3 keV, 13,6 keV és 7,3 keV energiájú konverziós elektronokat) emittál, így lehetőség van fotonok helyett a konverziós elektronokat detektálni (konverzióelektron-Mössbauer-spektroszkópia: CEMS). A módszer nagy előnye, hogy míg a hagyományos transzmissziós geometriában a vizsgált minta vastagsága korlátozott (néhány-száz mikron), addig CEMS esetén tetszőleges vastagságú minták vizsgálhatók, és mindenképpen csak a felületközelí,  $^{57}\text{Fe}$  esetében tipikusan 100 nm-es tartományról, nyerünk információt.

### III.3.3 A szinkrotronsugárzás nukleáris rezonanciaszórása

1985-ös felfedezése óta [49], a nukleáris rezonanciaszórás (NRS) fontos szerepet játszik a szilárdtestekben lévő hiperfinom kölcsönhatások és dinamikus jelenségek tanulmányozásában [50]. Ez a módszer jól egészíti ki a Mössbauer-spektroszkópia lehetőségeit a lokális elektromos, mágneses, valamint szerkezeti tulajdonságok meghatározásában [51]. A módszer nagy előnye, hogy a harmadik generációs szinkrotronforrások nagy nyalábintenzitással és kis nyalábdivergenciával rendelkeznek, ezáltal lehetővé teszik a nyaláb extrém kollimálását, illetve fókuszálását, így egészen kis minták különleges körülmények között (nagy nyomáson, nagyon magas, illetve nagyon alacsony hőmérsékleten, nagy mágneses térben) is vizsgálhatók. A kis minták, pontosabban a kis látószögű minták különleges esete a vékonyrétegek sűrűlő beesésben történő vizsgálata, a következő fejezetekben bemutatandó reflektometria, amelynek Mössbauer-spektroszkópiai változata gyakorlatilag csak szinkrotronsugárzással valósítható meg.

A mintába behatoló foton az atomi elektronokon, illetve az atommagon is szóródhat. Az elektron szórás karakterisztikus ideje  $10^{-15}$  s nagyságrendű. Ettől az azonnali, "prompt" jeltől jól elkülöníthető a magrezonancia-szórásból eredő tipikusan  $10^{-8}$ - $10^{-7}$  másodperccel késleltetett jel. Az időbeli szétválás miatt, a magrezonancia-szórásból származó (késleltetett) spektrumok gyakorlatilag háttérmentesek. A szórás speciális koherenci tulajdonságai miatt a bomlásból származó sugárzás szinte teljes egészében a beeső sugárzás irányát követve lép ki (magrezonáns előszórás, Nuclear Forward Scattering, NFS). A másik gyakori elnevezés a szinkrotron-Mössbauer-spektroszkópia (SMS, Synchrotron Mössbauer Spectroscopy), amelynek időspektrumai lényegében a Mössbauer-spektrumok Fourier-transzformáltjainak tekinthetők. Mivel a szinkrotronnyaláb monokromálása néhány meV nagyságrendben megoldott, ami még mindig jóval szélesebb a magátmenetek kb. 100 neV-nyi sávszélességénél, a rezonáns magok különböző átmenetei egyszerre gerjesztődnek, majd bomlanak le, ezáltal kvantumlebegést, okoznak az időspektrumban. Ezek frekvenciája a hiperfinom kölcsönhatás erősségével arányos, hasonlóan a Mössbauer-spektrumokban tapasztalt energiafelhasadásokhoz (9 ábra).



9 ábra Fent: A magrezonanciaszórás mérési elrendezése. Középen a magátmenetek következtében létrejövő kvantumlebegést szemléltetem. Lent: Egy hagyományos kétvonalas Mössbauer-spektrum és az annak megfelelő szinkrotron-Mössbauer-spektrum.

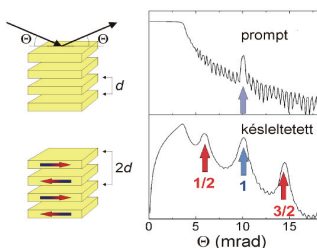
Fent leírtak következtében az NFS érzékeny az atommag körüli elektronsűrűség szimmetriájára, valamint a mágneses tér nagyságára és irányára. A nyaláb behatolási mélysége változik a

mintára eső nyaláb szögével, ezáltal lehetővé téve mélységérzékeny fázisanalízist [52,53]. A nyaláb energiájának hangolhatósága folytán a módszerrel elvben olyan magok vizsgálata is elérhetővé válhat, amelyek használatára a hagyományos Mössbauer-spektroszkópia – alkalmas sugárforrás híján – nem ad módot.

### III.4 Szinkrotron-Mössbauer-reflektometria

A szinkrotron Mössbauer spektroszkópia vékonyrétegek vizsgálatára alkalmazott változata a szinkrotron Mössbauer reflektometria. Ezt a módszert is alkalmaztam izotópperiodikus FePd rétegekben végbemenő öndiffúziós folyamatok vizsgálatára.

A röntgensugarak az anyaggal gyengén hatnak kölcsön, ezért az anyagok törésmutatója kicsi, közel 1. Továbbá, a vákuum törésmutatójánál ( $n=1$ ) valamivel ( $10^{-5}$  nagyságrendben) kisebb. Ezért a röntgensugarak sima felületeken külső totálreflexiót szenvednek. A belső határfelületekről visszaverődő röntgensugárzás miatt azonban a totálreflexió tartományánál nagyobb szögeknél is kaphatunk jelentős reflektált intenzitást. Ezen hullámok interferenciájából a vékonyréteg szerkezetéről szerezhetünk értékes információt. Ez a módszer a röntgenreflektometria. Abban az esetben, ha magrezonáns előreszórásnál a detektorban az azonnali (prompt) sugárzás a meghatározó, akkor a foton-elektron szórásból nyerhetünk információt, míg a magrezonancia-szórásból származó („késleltetett”) fotonok megszámlálásával (a megfelelő időablakban integrálva) a szög függvényében a foton magszórását vizsgálhatjuk. Ez az utóbbi eset a szinkrotron-Mössbauer-reflektometria (SMR). A beesési szög változtatásával a röntgenreflektometria (XRR), vagy neutronreflektometria (NR) mérésekhez hasonló reflektometriai görbét mérhetünk.



10. ábra Szinkrotron Mössbauer- (alul), valamint röntgen reflektometria (felül) mérések Fe/Cr multirétegen. A baloldalon jelzett rétegszerkezetről készített XRR-spektrumon csupán a kémiai rétegszerkezethez tartozó periodicitás látszik, míg az SMR-spektrumon mind a kémiai, mind a mágneses szerkezetnek megfelelő csúcsok megjelennek. [54]. A spektrumban feltüntetett számok a csúcsok rendjét jelölik (Egész szám szerkezeti, tört szám mágneses szuperszerkezet Bragg csúcsát jelöl)

A 10. ábra egy Fe/Cr multiréteg szerkezetéről készült röntgenreflektometria, valamint szinkrotron-Mössbauer-reflektometriai mérés eredménye látható. Az XRR spektrumon a  $d$  periódusú szerkezetnek megfelelő multiréteg Bragg-csúcs látható. A görbén végigvonuló, a felszínről és a hordozóról visszaverődő röntgensugárzás interferenciájából származó (Kiessig-)oszillációból a teljes mintavastagság határozható meg. Az SMR-görbéken is jelen van a szerkezetre jellemző Bragg-csúcs [55], de a mintában jelenlévő antiferromágneses csatolás miatt az SMR-mérésben csak minden második rétegpár tekinthető ekvivalensnek. Megfelelő polarizációs viszonyok között a mágneses szuperszerkezetre jellemző jel ( $1/2$ ) és annak egy felharmonikusa ( $3/2$ ) is megjelenik a késleltetett fotonok detektálásakor. Éppen ezért az SMR jól alkalmazható mágneses rétegszerkezetek vizsgálatára. SMR diffúz szórással a minta mágneses doménszerkezete is vizsgálható [56]. Ha a rezonáns (jelen esetben  $^{57}\text{Fe}$ ) izotópra nézve periodikus multiréteget készítünk, az SMR-görbén az izotópperiodikus szerkezetnek megfelelő Bragg-csúcs jelenik meg.

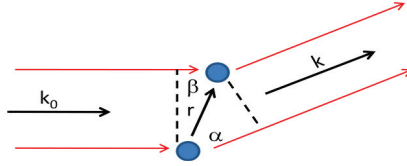
A dolgozatban szereplő SMR-kísérleteket a European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) ID18, illetve ID22-es nyalábján végeztem. Ezeknél a nyaláboknál a használt monokromátortól függően néhány meV-os felbontás érhető el a 14–30 keV-es tartományban és a nyaláb mérete nem haladja meg a 100  $\mu\text{m}$ -t. A gyors APD (Avalanche Photo Diode) detektorok pedig néhány ns-os időfelbontást tesznek lehetővé a prompt és késleltetett jelek szétválasztására. Ez a  $^{57}\text{Fe}$   $3/2 \rightarrow 1/2$  átmenetének 141 ns-os élettartamához képest rendkívül rövid, ezért a késleltetett magrezonáns időspektrumok és reflektivitásgörbék zavartalanul mérhetők.

### **III.5 Egyéb alkalmazott mérési technikák**

#### **III.5.1 Röntgendiffrakció**

Röntgendiffrakciós mérésekkel vizsgáltam a FePd-rendszer és nikkell vékonyrétegek szerkezetét, valamint mágneses szupertükrök, illetve nikkell vékonyrétegek belső feszültségét és szemcseméretük változásait.

Diffrakcióval a párhuzamos nyalábok interferenciáját vizsgáljuk a végtelenben, amit az interferáló nyalábok közti úthosszkülönbség határoz meg. A szórási geometriáját és jellemző paramétereinek jelölését a 11. ábra mutatja.



11. ábra A szórás sematikus képe

Az úthosszkülönbségek, a következőképpen írhatók:

$$\delta = \frac{2\pi}{\lambda}(r \cos \beta - r \cos \alpha) = \mathbf{k}_0 \mathbf{r} - \mathbf{k} \mathbf{r} = -\Delta \mathbf{k} \mathbf{r},$$

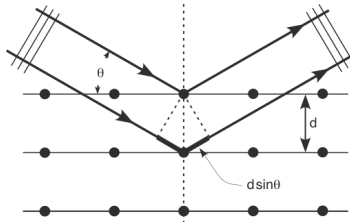
$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k} - \mathbf{k}_0.$$
III.34

Az amplitúdó felírható sorfejtés segítségével:

$$A(k) = \int_V \rho(r) e^{-i\mathbf{k} \mathbf{r}} d^3 r = \sum_{\mathbf{g}} \rho_{\mathbf{g}} \int_V e^{-i(\mathbf{k} - \mathbf{g}) \mathbf{r}} d^3 r =$$

$$= V \sum_{\mathbf{g}} \delta_{\Delta \mathbf{k}, \mathbf{g}} \rho_{\mathbf{g}}.$$
III.35

Itt  $\rho(r)$  a szórócentrumok sűrűsége, ami ha periodikus, a reciprokrács szerint sorba fejthető ( $\rho(r) = \sum_{\mathbf{g}} \rho_{\mathbf{g}} e^{i\mathbf{g} \mathbf{r}}$ ),  $\mathbf{g}$  egy reciprokrács vektor, ahol  $\mathbf{g} = h\mathbf{b}_1 + k\mathbf{b}_2 + l\mathbf{b}_3$ , és  $\mathbf{b}_1, \mathbf{b}_2, \mathbf{b}_3$  a reciprokrács bázisvektorai és  $h, k$  és  $l$  a Miller-indexek. Ez a kifejezés csak akkor különbözik lényegesen nullától, ha  $\Delta \mathbf{k} = \mathbf{g}$ . Ebben az esetben a vonalszélességek nem jelennek meg, más szóval végtelen kristályról beszélünk. A  $\Delta \mathbf{k} = \mathbf{g}$  a Bragg feltétel, amit gyakran  $2d \sin \vartheta = n\lambda$  alakban írunk. Ez azt jelenti, hogy a visszaszórt nyalábok akkor kerülnek konstruktív interferenciába, ha az úthosszkülönbségek a hullámhossz egész számú többszörösei.



12. ábra A párhuzamos rácssíkokról visszaszórt síkhullám úthosszkülönbsége.

Felhasználva a Bragg-feltételt az amplitúdó:

$$A_g = \int_V \rho(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{g}\mathbf{r}} d^3\mathbf{r}. \quad \text{III.36}$$

Az amplitúdó kifejezésekor bevezethetjük az alaktényezőt és a szerkezeti tényezőt:

$$A_g = A_{hkl} = NF_{hkl}, \quad \text{III.37}$$

ahol  $N$  az elemi cellák száma és  $F_{hkl}$  a szerkezeti tényező és

$$F_{hkl} = \sum f_j e^{-i\mathbf{g}\mathbf{r}_j} \quad \text{valamint} \quad \text{III.38}$$

$$f_j(\mathbf{g}) = \int_V \rho_j(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{g}\mathbf{r}} d^3\mathbf{r},$$

Ahol  $f_j$  az alaktényező. A szerkezeti tényező számításakor megfigyelhetünk olyan eseteket, amikor a Bragg-feltétel teljesül, de a spektrumban mégsem jelenik meg csúcás. Ennek oka az elemi cellán belül kialakuló destruktív interferencia. Ilyen eset fordul elő a tércentrált köbös (bcc) kristályban, ha a Miller-indexek összege páratlan, vagy felületen centrált köbös (fcc) szerkezet esetében, amikor a Miller-indexek között páros és páratlan szám egyaránt szerepel.

Vékonyrétegek mérésére gyakran használt módszer a  $\theta/2\theta$  technika. Ebben az esetben monokromatikus nyaláb vetül a mintára  $\theta$  szögben és a  $2\theta$  szögben eltérített nyaláb intenzitását detektáljuk. Ekkor a nyaláb beesési szöge megegyezik a mintáról reflektált nyaláb szögével. A detektorban akkor észlelhető intenzitás, amikor a  $\mathbf{q}$  szórásvektor megegyezik a bejövő és a kimentő hullámszámvektor különbségével ( $\mathbf{q} = \mathbf{k} - \mathbf{k}_0$ ). A minta mikroszerkezeti tulajdonságainak meghatározásához a Bragg-reflexiók pozíciója, alakja és intenzitása szükséges. A mérés eredménye a detektorban érzékelt intenzitás a szög függvényében. A geometriai elrendezésből adódóan a Bragg-reflexiókhoz járulékat csak a minta felületével párhuzamos rácssíkok adnak.

### III.5.1.1 Szuperrács intenzitások

Szuperrács intenzitásról akkor beszélünk, ha olyan helyen mérünk csúcst, ahol az alapszerkezetben tiltva van. Mivel a tiltás oka az elemi cellában a szimmetriák következtében fellépő szisztematikus kioltás, a szuperrács reflexió akkor fordul elő, ha az elemi cella torzul. Ennek oka lehet pl. a mintában létrejövő rétegződési hiba, amelynek következtében nem teljes elemi cellák alakulnak ki. Egy másik előfordulási lehetőség, ha az elemi cella változik meg, pl. felületen lapcentrált köbösről felületen lapcentrált tetragonálisra (fct). A szuperrács-reflexiók megjelenése nagyban elősegíti az azonos összetételű anyagban megjelenő különböző kristályos



szerkezetek azonosítását. A dolgozatban ezt használtam az fcc és fct szimmetriájú FePd-környezetek észlelésére és mennyiségi meghatározására.

### III.5.1.2 A szemcseméret meghatározása

A Bragg-csúcs szélességét a szerkezetnek a szórásvektor irányában mutatott koherenciahossza határozza meg. Ezt a reális szerkezetekben általában a véges szemcseméret és a szerkezetben fellépő deformációk korlátozzák. Amennyiben ismert a Bragg-csúcs szélessége, valamint a mintában jelenlévő deformáció, akkor a szemcseméret az alábbi képlet segítségével határozható meg [57].

$$\beta = \left( \frac{k * \lambda}{L * \cos \Theta} \right) + 4\eta * \text{tg} \Theta, \quad \text{III.39}$$

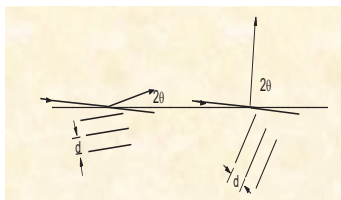
ahol

$$\eta = \frac{a_0 - a}{a_0}. \quad \text{III.40}$$

Itt  $\beta$  a félérték-félszélesség,  $k$  a szemcse alakjától függő Scherrer-állandó,  $\lambda$ : a röntgensugárzás hullámhossza (a használt  $\text{CuK}\alpha$  sugárzásra 0,15406 nm),  $L$ : szemcseméret,  $\eta$  a deformáció,  $a_0$  a feszültség-mentes és  $a$  a valódi rácsparaméter.

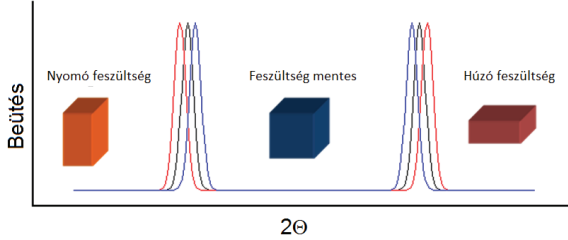
### III.5.1.3 A rétegfeszültség meghatározása súrlódó beeséses diffrakcióból

Ennél az elrendezésnél a mintára eső nyaláb szöge rögzítve van (tipikusan  $\sim 3^\circ$ ). A mintáról reflektált nyalábot detektáljuk a visszaszórás szögének függvényében, amit ebben az esetben is a Bragg-törvény határoz meg. A különbség a hagyományos  $\Theta/2\Theta$  röntgendiffrakcióval szemben az, hogy míg az előbbi esetben csupán a felületre merőleges szerkezetről kapunk információt, addig a súrlódó beeséses módszernél a felülettel párhuzamos szerkezetről is.



13. ábra A súrlódó beeséses röntgendiffrakció szemléltetése

Egyes mintákban a jelenlévő belső feszültségeket sűrűlő beesési röntgendiffrakcióval, az adott Miller-indexű csúcsok eltolódásából, az alábbiak szerint határoztam meg (14. ábra)



14. ábra a csúcsok elmozdulása a mintában jelenlévő rácsstorzulás hatására

A számoláshoz először a Bragg-feltételt kell felírni [58]:

$$\sin \theta = \frac{\lambda}{2d} = \frac{\lambda}{2} \frac{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}{a} \quad \text{III.41}$$

Innen:

$$\begin{aligned} \Delta \theta = \theta - \theta_0 &= -\tan \theta \frac{\Delta d}{d} \quad \text{és} \\ \theta_0 &= \theta + \tan \theta \frac{\Delta d}{d}. \end{aligned} \quad \text{III.42}$$

Sikban izotrop és homogén  $\sigma$  feszültség jelenlétében:

$$\frac{\Delta d}{d} \approx \frac{\Delta \tilde{d}}{d_0} = \frac{d - d_0}{d_0} = \frac{\sigma}{E} [(1 + \nu) \sin^2 \psi - 2\nu], \quad \text{III.43}$$

ahol  $E$  a Young-modulusz,  $\nu$  a Poisson-szám,  $\psi$  a felület normálisa és a nyaláb szórásvektora közötti szög. A fenti képleteket összevetve:

$$\sin \theta_0 = \sin \left( \theta + \frac{\sigma}{E} \tan \theta [(1 + \nu) \sin^2 \psi - 2\nu] \right) = \frac{\lambda}{2} \frac{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}}{a_0}, \quad \text{III.44}$$

amiből:

$$\begin{aligned} Y(\theta) &= a_0 \sin \theta_0 = a_0 \sin \left( \theta + \frac{\sigma}{E} \tan \theta [(1 + \nu) \sin^2 \psi - 2\nu] \right) \\ &= \frac{\lambda}{2} \sqrt{h^2 + k^2 + l^2}, \end{aligned} \quad \text{III.45}$$

ahol  $\theta_0$  a feszültségmentes mintához tartozó csúcs pozíciója,  $\theta$  a csúcs mért pozíciója és  $\psi$  a röntgennyaláb beesési szöge. A fenti képlet segítségével az adott Miller-indexű csúcsok  $Y(\theta)$

pozíciójának illesztéséből a mintában jelenlévő belső feszültségek, valamint a valós és feszültség nélküli rácsparaméterek is meghatározhatók.

### III.5.2 Rutherford-visszaszórás

Ezt a módszert a dolgozatomban felhasznált mintákban, a rétegek elemösszetételének és vastagságának meghatározására használtam.

A Rutherford-visszaszórási spektrometria (Rutherford Backscattering Spectrometry, RBS) a mérendő minta atomjain történő rugalmas szóródáson alapuló mérési módszer [59]. A minta felületére becsapódó monoenergetikus ionnyaláb (leggyakrabban 1–3 MeV energiájú  ${}^4\text{He}^+$ ) ionnyaláb kétféle mechanizmuson keresztül veszíti el energiáját: a) a céltárgy atommagjain történő rugalmas szóródásban (ami a céltárgy atomok és a bombázó ionok tömegétől függ) és az elektronokon való rugalmatlan ütközésekben (ami a céltárgy kémiai összetételétől és az adott réteg mintabeli mélységétől függ). Ez a két mechanizmus mind tömegfüggő, mind mélységfüggő analízist lehetővé tesz. Rugalmas ütközés esetében, amikor egy  $M_1$  tömegű,  $E_0$  energiájú ion egy  $M_2$  tömegű atomon  $\theta$  szögben  $E_1$  energiával szóródik, az ütközés előtti és utáni energiák hányadosát, a  $k$  ún. kinematikai tényezőt a következő módon adhatjuk meg:

$$k = \frac{E_1}{E_0} = \left[ \frac{M_1 \cos \theta + \sqrt{M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta}}{M_1 + M_2} \right]^2. \quad \text{III.46}$$

Különböző tömegű atomokra a kinematikai tényezőt különböztetik, tehát a mérő ionnyaláb a céltárgy egyes összetevőiről különböző energiákkal szóródik vissza. A különböző tömegű atomok csökkenő energia felé irányuló mélységskálája különböző energiánál kezdődik. A rugalmas szórás differenciális hatáskeresztmetszetének elméleti közelítését Rutherford határozta meg [60]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left| \frac{Z_1 Z_2 e^2}{2E \sin^2 \theta} \right| \frac{\left[ \cos \theta + \sqrt{1 - \left( \frac{M_1}{M_2} \sin \theta \right)^2} \right]^2}{\left| 1 - \left( \frac{M_1}{M_2} \sin \theta \right)^2 \right|}, \quad \text{III.47}$$

ahol  $\sigma$  a rugalmas szórás hatáskeresztmetszete,  $\Omega$  az a térszög, amelyben a detektor a szóródó ionokat regisztrálja,  $Z_1$ ,  $Z_2$ , illetve  $M_1$  és  $M_2$  rendre a beeső ion és a céltárgy atomjainak

rendszáma, illetve tömege,  $E$  az ion energiája az ütközés előtt,  $\theta$  pedig a szóródás szöge. Az átlagos hatáskeresztmetszetet a

$$\sigma = \frac{1}{\Omega} \int \frac{d\sigma}{d\Omega} d\Omega \quad \text{III.48}$$

kifejezés adja. Az  $N$  koncentrációjú,  $t$  vastagságú céltárgyról visszaszóródó részecskék száma:

$$H = \Phi \cdot \sigma \cdot \Omega \cdot N \cdot t, \quad \text{III.49}$$

ahol  $\Phi$  a felületegységre időegység alatt beeső részecskék száma (fluenciája). Ebből látható, hogy ha a vizsgált réteg sűrűsége, vagy vastagsága nem ismert, akkor az anyagmennyiség az RBS-mérésből csak atom/cm<sup>2</sup> egységekben határozható meg.

Több elemet tartalmazó minta esetén a csúcsok felületi magasságának arányából meghatározható a minta anyagösszetétele. Az anyag-ion kölcsönhatás következtében az ion energiát veszít, ezt nevezük fékeződésnek. Ez az energiavesztés bonyolult módon függ a beeső ion energiájától, tömegétől és a minta összetételétől. Az ion által egységnyi úton elszenvedett fajlagos energiavesztés (fékezési erő, „stopping power”):

$$S(E) = \frac{dE}{dx}, \quad \text{III.50}$$

ahol  $dE$  az energiavesztés,  $dx$  megtett úton.

A fajlagos fékeződést több kölcsönhatás alkotja: elektromos (az ion rugalmatlan kölcsönhatása az elektronfelhővel), nukleáris (rugalmas ütközés az atommagokkal) és sugárzási fékeződés (Bremsstrahlung, Cserenkov-sugárzás), valamint magreakciók (utóbbiak csak nagyon nagy energiáknál fontosak). A nukleáris fékeződés kisebb ionenergiáknál jelentős, ugyanis nagy energiákon az ion csak az atomok elektronfelhőjét „látja”, és a kölcsönhatás ideje kicsi az atommagokkal való ütközések létrejöttéhez.

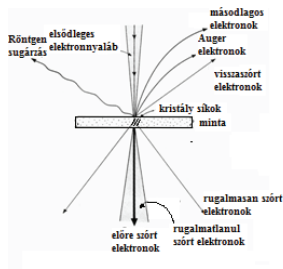
A mérések kiértékelésénél jól használható a felületi közelítés. Ennek lényege, hogy az  $S(E)$  függvényt az ion befelé irányuló útja esetén az  $S(E_0)$ , az ion kifelé irányuló útja esetén az  $S(kE_0)$  állandó értékkel helyettesítjük. Ekkor az  $x$  mélységben levő atomról visszaszóródott ion a detektorba olyan  $E_1$  energiával fog beérkezni, amelyre

$$\Delta E = kE_0 - E_1 = \left[ k \frac{S(E_0)}{\cos \theta_1} + \frac{S(kE_0)}{\cos \theta_2} \right] x \equiv [S]x, \quad \text{III.51}$$

ahol  $\theta_1$  és  $\theta_2$  a befelé, illetve kifelé haladás szöge a felületi merőlegeshez képest. Így az  $[S]$  energiaveszteségi tényező segítségével az RBS-spektrum energiaskáláját mélységskálává lehet konvertálni.

### III.5.3 Elektronmikroszkópia és -diffrakció

Az elektronmikroszkópiát pásztázó és diffrakciós módban a FePd rendszer jellemzésére, illetve  $\text{He}^+$  besugárzás következtében végbemenő változások megfigyelésére alkalmaztam. Az elektronmikroszkópiában az elektronnyaláb és a minta kölcsönhatása következtében keletkezett termékeket detektáljuk (15. ábra) és ezekből határozhatók meg a minta tulajdonságai.



15. ábra Az elektron-anyag kölcsönhatás következtében keletkező termékek

- Előre szórt elektronok: Nincs energiaveszteség, nincs irányváltozás. A transzmissziós elektronmikroszkópiában (TEM) a világos látóterű (bright-field, BF) képhez használhatók.
- Rugalmatlanul szóródó elektronok: Kis energiaveszteség, kis szögben szóródás. Felhasználhatók: elektron-energiaveszteségi spektroszkópiában és speciális képalkotásra.
- Rugalmasan szóródó elektronok: Nincs energiaveszteség, az irányváltozás néhány fok nagyságrendű. Kristályos anyag esetén az irányt a Bragg-törvény szabja meg. TEM diffrakció, TEM sötét látóterű kép (dark field, DF), és a nagyfelbontású elektronmikroszkópia (HREM) használja.
- Szekunder elektronok: A minta nyaláb felőli oldalán. Gyengén kötött, külső héjon lévő elektronoktól ered, amelyeket a nyaláb kiüt a helyükről. Összegyűjtve topografikus (felületi) információt adnak a pásztázó elektronmikroszkópiában (SEM).
- Visszaszórt (backscattered) elektronok: Az eredeti nyalábból rugalmas és rugalmatlan nagyszögű szórását szenvedett elektronok. Képpalkotásra használható fel (SEM).

- Röntgen-sugárzás: Az elsődleges nyaláb hatására belső héjon elektron vakancia keletkezik. A betöltődés során röntgen foton távozik. Az analitikus elektronmikroszkópiában (AEM) a legáltalánosabban használt jel. Kémiai összetétel meghatározásra használható.
- Auger-elektronok: Az elektron nyaláb a minta atomjának belső héjáról elektront lök ki, majd elektron→röntgen foton→Auger-elektron folyamatok következnek be. Az Auger-elektron spektroszkópia használja. A minta kémiai összetételről ad információt.

A transzmissziós elektronmikroszkópban (TEM) a mintán áthaladó, rugalmasan szórt elektronok teszik lehetővé a képképzést, illetve a diffrakciós szerkezetanalízist, míg a rugalmatlan szórásokon alapulnak az analitikai módszerek. Az eszközök és leképezési elméletek fejlesztésének három jól elkülöníthető szakaszát különböztethetjük meg: Amplitúdó-kontraszton alapuló hagyományos transzmissziós üzemmódok (TEM) [61,62], fáziskontrasztot alkalmazó nagyfelbontású transzmissziós elektronmikroszkópia (HRTEM) [63,64] és legújabban a korrigált változtatható szférikus aberrációjú mágneses lencsével megvalósított negatív szférikus aberrációval végzett leképezés (negative spherical-abberation imaging, NCSI)[65].

Az Abbe-elmélet szerint a mintát az  $f(x,y)$  komplex függvény írja le. Ezt az objektív lencse a hátsó fókusz síkjába képezi le. A fókusz síkban az  $f(x,y)$  függvény Fourier-transzformáltja jelenik meg:

$$F(u, v) = T\{f(x, y)\}. \quad \text{III.52}$$

A lencse úgy működik, hogy a hátsó képsíkban ismételt Fourier-transzformáció eredményeképpen

$$\Psi(x, y) = T\{F(u, v)\} = Nf(x, y), \quad \text{III.53}$$

azaz a tárgy nagyított képe jelenik meg. Általában nemcsak egy lencsét, hanem egy lencserendszert használnak.

A képernyőre vagy a lencse képsíkját, vagy a hátsó fókusz síkját képezik le. Az első esetben az ernyőn a tárgy valós képének felnagyított mása jelenik meg, míg a második esetben a nagyított diffrakciós képet láthatjuk.

### III.5.4 Pásztázó képképző módszerek

Az atomerő-mikroszkópia (atomic force microscopy, AFM, [66, 67]) az alagútmikroszkópiával (scanning tunneling microscopy - STM) vetekedő igen népszerű és hatékony felületvizsgálati

módszer. Lényege, hogy egy (néhány atomnyi) nagyon hegyes tű a felületet szinte érintve végigpásztázza a mintát. A képkalkotás a felületet pásztázó tű és a felület atomjai között fellépő erők mérésén alapul. Üzem módtól függően ezek az erők a következők: nem-kontakt módban: van der Waals, elektrosztatikus, magnetosztatikus és kapilláris erők, kontakt üzemmódban: az elektronfelhők átfedésének következtében az árnyékolás tökéletlenségéből származó, a magok között ható, valamint a Pauli-féle kizárási elvből az elektronok között ható taszítóerő. Kontakt üzemmódban atomi felbontás is elérhető. Az érzékelő a minta felületén mozog, és közben az érzékelő elmozdulását mérik a kapacitásdetektor, vagy optikai nyalábelmozdulás, optikai interferencia, vagy alagútáram mérése segítségével. Legtöbb esetben az állandó erő üzemmódot alkalmazzák, amelynek során a pásztázó tű a felületre merőlegesen úgy van beállítva, hogy állandó erővel nyomja a mintát. Létezik továbbá állandó magasság- súrlódási erő-, torziós- és ütőgetű üzemmód is. A tű hegye szinte egyatomos, ezáltal a felületi deformáció minimális és az érintkezési felület kicsi. Binning első készülékében gyémánttű működött arany fólián [67], újabban a tű piramis alakú vagy kónuszos és  $\text{Si}_3\text{N}_4$  vagy  $\text{SiO}_2$  lapkára van erősítve.

Ha egy minta mágneses tulajdonságait akarjuk meghatározni, mágneseserő-mikroszkópot (Magnetic Force Microscopy, MFM) használhatunk. Ez csupán abban különbözik az atomerő-mikroszkóptól, hogy az érzékelő tű egy állandó mágnesből van, (pl. Co), vagy induktív módon mágnesezett. A mérési üzemmódok megegyeznek az atomerő mikroszkópnál tárgyaltakkal, viszont ennél a módszernél a tű és a minta között döntően mágneses erők hatnak.

### **III.6 Mintakészítés és –kezelés**

#### **III.6.1 Vékonyrétegek előállítása**

#### **III.6.2 Párolgatatás**

Valamilyen anyag párolgatatásakor [68] az atomokat a forrás fűtésével visszük gőzfázisba. Elvben minden 0 K-tól eltérő hőmérsékletű anyag párolog. Ez a folyamat melegítéssel, pl. ellenállásfűtéssel, elektronbombázással, vagy lézerrel gyorsítható. Az ellenállásfűtés lehet direkt-, vagy indirekt. A direkt fűtést magas olvadáspontú fémek (W, Ta, Mo) esetén célszerű alkalmazni. Itt az elektródák közvetlenül az anyagra csatlakoznak, amelyen néhány voltnyi feszültség mellett akár több száz amper erősségű áram folyik. Indirekt fűtés esetén a párolgatatandó anyag kerámia- vagy grafittegelyben, vagy magas olvadáspontú fémből készült csónakban van. Ekkor a tegely vagy csónak anyaga is párolgathat, szennyezheti a mintát, illetve kémiai reakcióba léphet a párolgatatandó anyaggal. Elektronbombázással történő párolgatatás

esetén a párologtatandó anyag és az elektronforrás (volfrám-katód) közé nagyfeszültséget, 5-20 kV-ot kapcsolnak, majd a feszültségkülönbség hatására gyorsuló elektronokat mágneses tér segítségével irányítják a párologtatandó anyagra, ami egy kis foltban megolvad (a teljesítménysűrűség 1-10 kW/cm<sup>2</sup>). Az anyag tehát a „saját anyagából készült tégelyben” van, ezáltal elkerülhető az idegen tégely anyagából történő szennyeződés, illetve az esetleges kémiai reakció. A módszer az ellenállásfűtésnél tisztább és jobban is szabályozható. Lézeres párologtatásnál impulzus-üzemben működő lézerrel világítják meg az anyagot, amely, ha az illető lézerfényt elnyeli, a megvilágítás helyén megolvad és párolog. A módszer előnye a nagy tisztaság dolgozik, mivel a hőt termelő egység a vákuumrendszeren kívül van. Nagyon magas olvadáspontú anyagok is párologtathatók így, és bármilyen atmoszféra lehet a forrás körül. Ugyanakkor az anyag-lézerfény-kölcsönhatás folyamán nemcsak párolgás történik, hanem a párolgó anyagból akár μm nagyságú részecskék (klaszterek) is kiszakadhatnak, amelyek alapvetően befolyásolhatják a növekvő réteg szerkezetét.

A párologtatással történő mintakészítés leginkább kifinomult változata a molekulanyaláb-epitaxia (molecular beam epitaxy, MBE) [69], egy olyan mintanövesztési módszer, amely során a hordozóra ultra-nagy vákuumban (ultra-high vacuum, UHV) párologtatjuk fel az atomokat, illetve a molekulákat. Az UHV biztosítja, hogy csak az általunk kívánt atomok jussanak a hordozóra és az ne szennyeződjék maradékgáz-molekulákkal. A „molekulanyaláb” jelző a párologtatás módjára utal. A párologtatás történhet Knudsen-cellából, vagy elektronágyúval. A Knudsen-cella egy, az átmérőjéhez viszonyítva apró lyukkal ellátott edény, amelynek a belsejében található a forrás. A forrás melegítésével kialakul a cellában az adott hőmérsékletre jellemző egyensúlyi gőznyomás, melyet elhanyagolható mértékben módosítanak a nyíláson át távozó atomok. Elektronágyú esetén az elektronbombázás hatására a rézcészában helyet foglaló anyag párolog el.

A dolgozatomban felhasznált FePd izotóp-periodikus multirétegek, illetve a mágneses mintázathoz használt FePd réteg a Magyarországon egyedüli, az RMKI-ban található MBE berendezésen készültek. Munkám során kifejlesztettem a berendezés automatizálását szolgáló vezérlő szoftvert is.

A FePd rétegek növesztését a következőképpen végeztem: MgO (001) kristályra először 3 nm króm magképző réteg került, melyet 15 nm Pd puffér réteg követett. Erre növesztettem a [<sup>nat</sup>Fe<sub>47</sub>Pd<sub>53</sub>(3 nm)/<sup>57</sup>Fe<sub>47</sub>Pd<sub>53</sub>(2 nm)]<sub>10</sub> izotóp-periodikus multiréteget, vagy a mágneses mintázat előállításához a 30 nm vastag <sup>57</sup>Fe<sub>47</sub>Pd<sub>53</sub> réteget. Az oxidáció elkerülésére, a kész mintára egy



1 nm vastag Pd réteg került. A minél nagyobb arányban rendezett  $L1_0$  szerkezetet tartalmazó minta előállítása céljából a hordozó  $350\text{ }^\circ\text{C}$ -on, míg rendezetlen szerkezet előállítása céljából szobahőmérsékleten tartottam. A növesztés során a felpárolgotatott anyagmennyiséget két független kvarckristály-monitorral követtük nyomon. A  $^{57}\text{Fe}$  növesztése Knudsen-cellából történt  $1410\text{ }^\circ\text{C}$ -on, az összes többi anyagot elektronágúból párologtattuk. A minták azonosságának érdekében a különböző anyagok növesztési sebessége minden esetben azonos volt, az  $^{57}\text{Fe}$ ,  $^{\text{nat}}\text{Fe}$  esetén  $\sim 0.06\text{ \AA/s}$ , a Cr  $\sim 0.07\text{ \AA/s}$  és a Pd  $\sim 0.04\text{ \AA/s}$ . Az MBE kamrában a nyomás a kezdeti néhányszor  $10^{-10}$  mbar-ról a növesztés közben  $2.8 \times 10^{-9}$  mbar-ra emelkedett.

Az epitaxiális nikkell monoréteg, a Katholieke Universiteit Leuven egyetem MBE-berendezésen készült.  $7 \times 10\text{ mm}^2$  Si(100) hordozóra, szobahőmérsékleten 75 nm vastag nikkell réteget növesztve, gondosan ügyeltek arra, hogy a rögzítés során ne legyen a minta mechanikai feszültséggel terhelve. A nikkell növekedési sebessége  $\sim 0,07\text{ \AA/s}$  volt. A nyomás a kezdeti  $\sim 10^{-10}$  mbar-ról a növesztés során  $\sim 10^{-9}$  mbar-ra csökkent. A laterális homogenitás érdekében a mintákat a növesztés során forgatták.

A polikristályos nikkell minták a Göttingeni Georg-August-Universität egyetemen készültek az elektronsugaras párologtatás módszerével, ugyancsak  $7 \times 10\text{ mm}^2$  Si(100) hordozóra. A növesztés alatt a nyomás mindvégig  $10^{-8}$  mbar alatt maradt. A párologtatóban a forrás és a hordozó közötti viszonylag nagy (40 cm) távolság egyenletes vastagságú rétegnövesztést tett lehetővé

### III.6.3 Porlasztás

Porlasztás [70, 71] esetén a vékonyréteg forrása egy ionbombázásnak kitett céltárgy (target). A bombázó ionokat gyakran egyenáramú gázkisülésből nyerik. A céltárgyra 1000 V körüli feszültséget kapcsolnak, a hordozó le van földelve. Ezután körülbelül  $10^{-3}$  mbar nyomású Argázt engednek a vákuumrendszerbe, és az ennek hatására létrejövő gázkisülés ionjaival (plazma) bombázzák a céltárgyat. A becsapódó ion a legfelső néhány atomrétegben több ütközést is elszenved, az ütközések során energiája több atomra oszlik el. Ez az energia elegendő lehet ahhoz, hogy egy a felületen lévő atom kilépjen a forrásból, azaz porlódjék. Gyakorlati megvalósításkor a céltárgyat vízzel hűtött, egyik oldalán földelt árnyékolóval ellátott lapra rögzítik. Ehhez a laphoz csatlakoztatják az 1000 V körüli egyenfeszültség negatív pólusát, a pozitív pólus a földre csatlakozik. Ez a dióda típusú porlasztó. Ha a fent említett, vízzel hűtött lap alá mágnesekeket helyezünk, azok stabilizálják a gázkisülést, és növelik a porlasztási hozamot. Ez a magnetron-típusú porlasztó [7072]. Porlasztással viszonylag jó minőségű rétegek állíthatók

elő. A növekedési sebesség 1 és 10 Å/s közé esik. A porlasztásra használt gáz bekerülhet a rétegbe, ezáltal ronthatja annak tisztaságát, illetve módosíthatja annak tulajdonságait.

A Fe/Si neutron-szupertükör és Bragg-tükör előállításához a Mirrotron Kft.-ben található DC porlasztó berendezést [73] használtam. Az  $m=2$  szupertükört (az  $m$  paraméter magyarázatát ld. a IV.2 fejezetben)  $4 \times 3 \text{ cm}^2$  üveghordozókra párologtattuk. A szupertükör 152 réteget tartalmazott, és benne szilícium- és vasrétegek felváltva követték egymást. Az üveghordozóra először 71 Å vastag szilícium majd ezt követően egy 83 Å vastag vas réteg került. A vastagságok a rétegszám függvényében folyamatosan [74] növekednek, vasnál 400 Å-re, míg szilíciumnál 141 Å-re. A felületre az oxidáció elkerülésére egy vékony szilícium réteg került. A növesztés során az Ar munkagáz nyomása szilíciumnál 500 W teljesítmény mellett  $2.6 \times 10^{-3}$  mbar volt, vas növesztésénél 750 W teljesítménynél  $1.3 \times 10^{-3}$  mbar volt.

Bragg-tükörből a fenti berendezésen háromfajta szerkezetet készült. Az első egy  $[\text{Fe}(84 \text{ nm})/\text{Si}(109 \text{ nm})]_{12}$  összetételű periodikus multiréteg. A második típushoz kétféle szinuszos jellegű kettősrétegprofillal rendelkező minta tartozott, ahol az egyik egy 22 alrétegből álló 138,5 Å kettősréteg-vastagságú, a másik egy 18 alrétegből álló 143,1 Å vastagságú kettősréteg szerkezet volt (40-szer, illetve 20-szor ismételve). Végül a harmadik fajta egy 69 rétegből álló minta, amelyben a vas és szilícium rétegvastagsága egy számítógépes szimuláció által előírt véletlenszerű módon változott 60 és 100 Å között.

### III.6.4 Hőkezelés

A hőkezelések az RMKI-ban található MBE berendezés UHV kifűtő kamrájában történtek, ahol a minták mindvégig ultra-nagy vákuumban voltak. Mivel a minta melegítését a rögzítésre szolgáló blokk fűtésével értük el, ezért a minta felületének hőmérséklete nem egyezett meg pontosan a beállított hőmérséklettel. Szükséges volt a teljes kezelés alatt a minta valódi hőmérsékletének infravörös kamera segítségével történő korrigálására. A felfűtés és lehűtés időtartama egyaránt 20-20 perc volt.

### III.6.5 Mintabesugárzás

A minták besugárzása négy helyen történt. A 100-400 keV energiájú ionokkal az RMKI nehézion kaszkád (NIK) berendezésén implantáltunk. A nyaláb laterális homogenitás céljából minden alkalommal separtetve volt, azaz a nyaláb egyenletesen éri a minta teljes felületét. Dolgozatom során ezen a berendezésen vas (100 keV) és hélium (130-400 keV) ionok besugárzása történt  $10^{-5}$  mbar nyomáson, szobahőmérsékleten.

A 100 keV-os  $\text{Ni}^+$  besugárzás a göttingeni IONAS ionimplantáló berendezésen történt szobahőmérsékleten  $10^{-7}$  mbar nyomás alatt. Besugárzás alatt a minták a felületük normálisához képest  $5^\circ$ -kal meg voltak döntve és a nyaláb sepertetve volt. Besugárzás alatt, semmilyen külső mágneses tér, vagy mechanikus feszültség nem érte a mintát.

Az 500 keV-os héliumbesugárzás az RMKI EG2 Van de Graaf gyorsítójában történt. Mivel a nyaláb sepertetése nem volt lehetséges, ezért a nyaláb egyszerre csak a minta egy részét érte. A teljes minta homogén besugárzása érdekében a mintát mozgattuk úgy, hogy minden része azonos fluenciát kapjon. A nyomás ennél a berendezésnél  $10^{-6}$  mbar volt.

Végül a 60 keV hélium és a 35 keV  $\text{Ne}^+$  besugárzások az MTA KFKI MFA-ban található neonimplanter gyorsítón történtek.

### **III.6.6 Ionnyaláb litográfia**

FePd filmek laterális mintázat szerinti besugárzása céljából egy 30 nm vastag, 75 %-ban  $\text{Li}_1$  szerkezetű FePd rétegre 200 nm vastag szilíciumdioxid gömbökből álló réteget növesztettünk Langmuir-módszerrel [75,76]. A gömbök Stöber-technikával készültek [77], tetraetil-ortoszilikát ellenőrzött hidrolízisével. A  $\text{SiO}_2$ -gömbök felviteléhez először a mintát függőlegesen a növesztő kád vizébe mártottuk, majd a  $\text{SiO}_2$ -gömböket szétterítettük a víz felszínén. Ezután a réteg felületi feszültségének ellenőrzése mellett a réteget két gát óvatos mozgásával síkban rendezett állapotba hoztuk. Ezután a mintát óvatosan kihúztuk a vízből ügyelve arra, hogy ezalatt a felületi feszültség ne változzék, azaz a gömböcskékből álló összefüggő réteg ne szakadjon el. Ennek következményeképpen egy rendezett, stabil  $\text{SiO}_2$ -gömbökből álló réteg került a FePd réteg felületére.

A mágneses mintázat úgy készült, hogy ezeket a rétegeket 35 keV-os neonionokkal, illetve 100 keV-os vasionokkal sugároztuk be. Végül a  $\text{SiO}_2$ -gömböket egyszerű alkoholos mosással eltávolítottuk.

### **III.7 Reflektogramok kiértékelése**

Egy reflektogramot számos paraméter határoz meg. Ezeket a paramétereket alapvetően két csoportra lehet osztani: a mérés körülményeit jellemző és a mintát jellemző paraméterekre. Az első csoportba tartoznak a

- Polarizációt leíró paraméterek (polarizátor és analizátor Poincaré-vektorai, azaz a polarizációs állapot geometriai reprezentációja)

- Külső mágneses tér
- Nyalábdivergencia
- Hullámhossz-divergencia
- Nyalábintenzitás
- Háttér
- Esetenként további paraméterek

A mintákat a következő paraméterekkel jellemezhetjük

- Rétegszerkezet (rétegszám, sorrend)
- A rétegek vastagságai
- A rétegekhez tartozó szuszceptibilitások, illetve szóróhossz-sűrűségek
- A belső mágneses tér nagysága, iránya
- A réteghatárok érdessége

### III.7.1 Diffúziós tényező meghatározása a multiréteg Bragg-csúcsainak magasságából

Egy izotópperiodikus multirétegben, esetünkben a  $^{nat}\text{Fe}_{47}\text{Pd}_{53}/^{57}\text{Fe}_{47}\text{Pd}_{53}$ , a  $^{57}\text{Fe}$  mélységi koncentrációprofilja Fourier-sorba fejthető az alábbi módon [78]:

$$C(z) = \sum_n C_n \exp(ik_n z), \quad \text{III.54}$$

ahol  $k_n = 2\pi/\Lambda$  és  $\Lambda$  a periodikus multiréteg Fe/Pd kettősrétegének vastagsága. Öndiffúzió esetén a  $C_n$  Fourier amplitúdó a diffúzió előrehaladtával lecsökken. A (II.10) diffúziós egyenlet egydimenziós megoldásával a Fourier együtthatóra a következő kifejezést kapjuk:

$$C_n = C_{0n} \exp(-k_n^2 D(T)t). \quad \text{III.55}$$

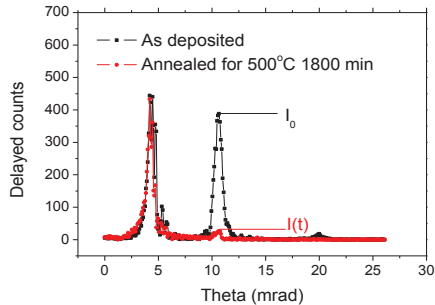
$D(T)$  az adott  $T$  hőmérsékleten mérhető diffúziós együttható és  $t$  a hőn tartás ideje. Mizogouchi és csoportja az  $n$ -edik Bragg-csúcs  $t = 0$ -beli ( $I_0$ ) és  $t$  idő elteltével mérhető  $I(t)$  intenzitása között az alábbi összefüggést találta [79]:

$$\ln\left(\frac{I(t)}{I_0}\right) = -\frac{n^2 \pi^2}{\Lambda^2} D(t)t. \quad \text{III.56}$$

Az ehhez tartozó kettősrétegbeli diffúziós hossz 1D-ban:

$$L_d = \sqrt{2D(t)t}. \quad \text{III.57}$$

A fenti képlet szerint a Bragg-csúcs intenzitásának változásából a diffúziós együttható meghatározható.



16. ábra multiréteg Bragg-csúcs intenzitáscsökkenése hőkezelés következtében csökkenés az SMR spektrumban

A 16. ábra két izotóp-periodikus FePd mintán végzett SMR-mérés görbéi láthatók a növesztés, illetve egy hőkezelés után. Jól látszik, hogy a rétegek összekeveredése következtében a magasabb rendű Bragg csúcsok drasztikusan lecsökkentek.

Gyakorlatban azonban a Bragg csúcs intenzitásának meghatározása problémákba ütközhet, mivel azt a diffúzió kívül jelentősen befolyásolhatják a rétegben fellelhető szerkezetek paraméterei [80], azok eloszlása, valamint a mintán a  $\theta = 0$  szög beállítása következtében, a Kiessig-oszcillációk Bragg-csúcsához képesti esetleges elhelyezkedése, stb.

### III.7.2 Diffúziós tényező meghatározása a Fick-törvényből a teljes reflektogram illesztésével.

A fent említett nehézségek miatt a Bragg-csúcs intenzitásának megfelelő kiértékeléshez a teljes reflektivitásgörbe olyan illesztésére van szükség, amely az összes a mintára és magára a mérésre vonatkozó paramétert figyelembe veszi. A diffúziós együtthatókat periodikus multirétegekben határoztam meg. Az illesztés során a fedőrétegben és a hordozóban elhanyagoltam a diffúziót, bár azt részben egy érdességparaméter bevezetésével figyelembe vettem. Az illesztés menete a következő volt:

1. A periodikus rétegszerkezetben a III.55 egyenlet szerint Fourier-soros megoldást alkalmaztunk.
2. A kezdeti kettősréteg-szerkezetben (koncentráció-profil) Fick II szerinti  $Dt$  keveredést számoltunk
3. A számolt koncentráció profilból előállítottuk a közelítő rétegszerkezetet

4. Erre a szerkezetre kiszámoltuk az SMR, illetve az NR-görbét és összehasonlítottuk a mért spektrummal.
5. A diffúziós állandót, vagy az időt, esetleg ezek szorzatát ( $Dt$ ) használjuk illesztési paraméternek. Az illesztés hibáját a FitSuite programmal minimalizáljuk [81].
6. Mivel a  $Dt$  a koncentráció profilt határozza meg, ezért az iterációnál a listában a 2. pontra lépünk vissza

## IV Mérési eredmények és diszkusszió

PhD munkám során számos anyagrendszeren több kísérleti módszerrel végeztem méréseket. Bár gondolatilag mind illeszkedik a bevezetésben említett láncolatba, ezen mérési projektek motivációja eltérő volt. A könnyebb követhetőség céljából ezért a következőkben a mérési eredményeket és azok diszkusszióját az egyes mérési projektek szerinti szerkezetbe csoportosítottam. Ezek után egy általánosabb, valamennyi projektre vonatkozó összefoglaló következik és csak ezt követi a tézispontok felsorolása.

### IV.1 Nikkel-rétegek besugárzása

#### IV.1.1 Bevezetés, motiváció

Ferromágneses vékonyrétegek ionbesugárzása megváltoztathatja a film mikroszerkezetét és mágneses tulajdonságait. E változások vizsgálata különösen fontos szerepet tölthet be minden olyan alkalmazás során, amely valamilyen módon az anyag mágneses tulajdonságaira épül. Sajátionnal történő besugárzás előnye, hogy idegen atomok nem maradnak vissza a rétegben és a későbbiekben sem befolyásolják a kialakított tulajdonságokat. Ezen vizsgálatok tapasztalatait, később a IV.2 fejezetben tárgyalt Fe/Si rétegszerkezetben visszamaradt feszültség csökkentéséhez használtam fel.

75 nm nominális vastagságú polikristályos és epitaxiális Ni-réteget növesztettünk szobahőmérsékleten  $7 \times 10 \text{ nm}^2$  Si(100) hordozókra, amit néhány nanométer natív oxid ( $\text{SiO}_2$ ) réteg fed. A polikristályos minták elektronágyús párologtatással (Electron Gun Evaporation, EGE), az epitaxiális minták molekulanyaláb epitaxial (MBE) módszerével készültek. Az elektronágyúval párologtatott mintákat 100 keV energiájú 1, 10, 50, 100 és  $500 \times 10^{14}/\text{cm}^2$ , míg az MBE-mintákat ugyanekkora energiájú 1, 10, 30, 60 és  $100 \times 10^{14}/\text{cm}^2$   $\text{Ni}^+$  ionfluenciával sugároztunk be. A minták jellemzését RBS módszerrel végeztem. A nikkelrétegekben a mágneses anizotrópia változásait MOKE-mérésekkel, a belső deformációk által okozott feszültségek kialakulását és relaxációját pedig röntgenvizsgálatok segítségével tanulmányoztam.

A besugárzás energiáját úgy választottam meg, hogy a SRIM [ 82 ] szimuláció szerinti eloszlásprofil a nikkel-réteg közepére essen.

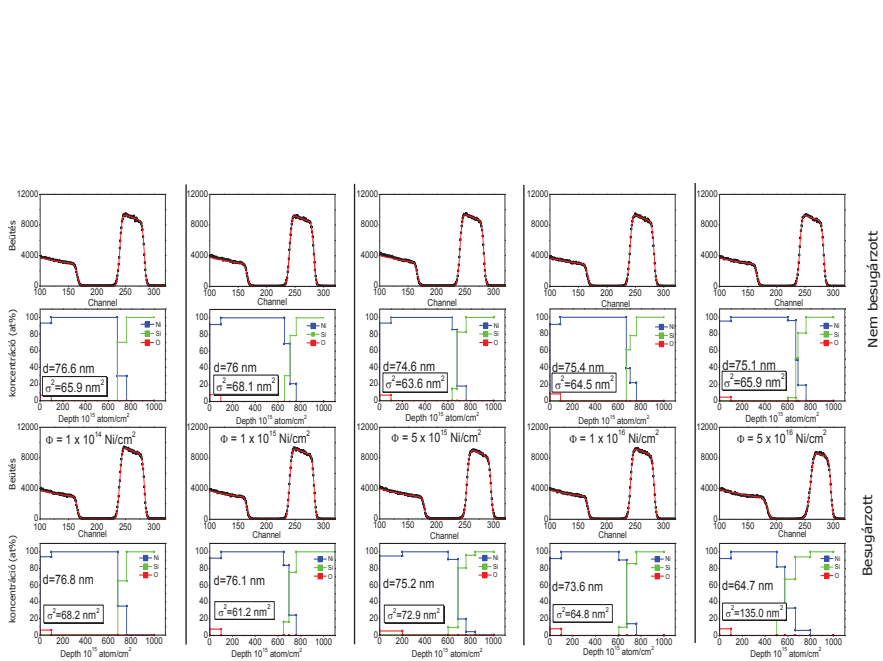
Ezzel a feltétellel a szimuláció a besugárzó ion energiájára 100 keV-et adott. Ennél az energiánál a besugárzó Ni-ionoknak csupán 0,3 %-a jut át a hordozóba. A szimuláció szerint minden bejövő ion átlagosan 1121 vakanciát generál. A minta homogén besugárzására  $X$ - $Y$  sötétítést

alkalmaztunk. Besugárzás alatt semmilyen külső mágneses tér, vagy mechanikus feszültség nem érte a mintát. A valódi rétegvastagságok megállapítására RBS-mérések történtek, mind a besugárzás előtt mind után.

#### **IV.1.2 Rutherford-visszaszórási spektrometria mérések**

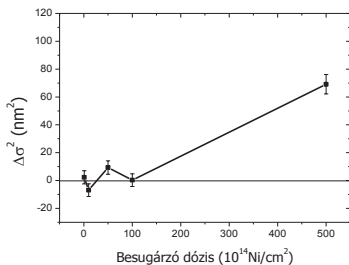
Az RBS-méréseket a göttingeni IONAS gyorsítón (R-30 nyaláb) végeztem. A mérések merőleges beesésben 0,9 MeV energiájú  $\text{He}^+$ -ionokkal történtek. A mélységfelbontást a detektor energiafelbontása (tipikusan 12,5 keV), valamint a nyaláb energiaeloszlása (50-100 eV) korlátozta. A határfelületek szélességét az elemprofilból határoztam meg. A kiértékelésben a Ni, illetve a felületi Si sűrűségét  $9,13 \times 10^{22}$  at/cm<sup>2</sup>-nek, illetve  $4,98 \times 10^{22}$  at/cm<sup>2</sup>-nek vettem. A határfelület – más szóval a Si-hordozóban a Ni-eloszlás – meghatározása a határprofil illesztésével történt. A 84 at% és 16 at% Ni-tartalom közötti mélységkülönbséget  $2\sigma$ -val jelöltem, de a változások jobb szemléltetése céljából az ábrázolásnál  $\sigma^2$ -et használtam. Az 17. ábra a polikristályos mintákon végzett RBS-mérések eredményét mutatja.





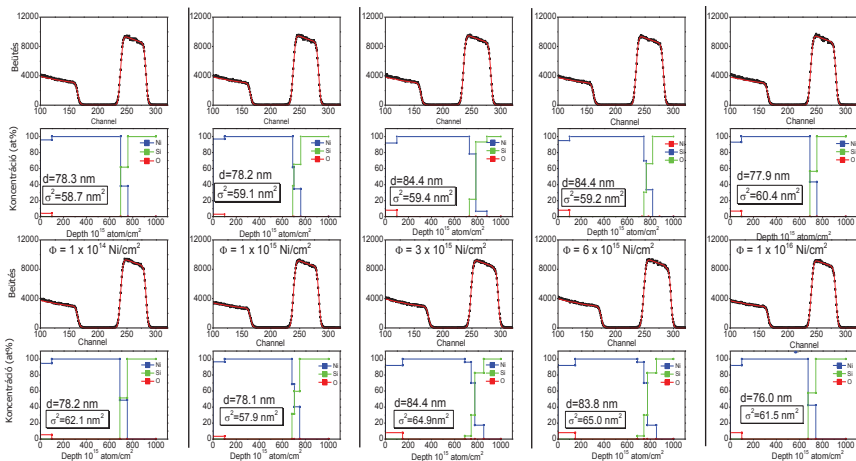
17. ábra A polikristályos minták RBS-görbéje és az abból származtatott koncentráció profil a nem besugárazott (fent) és besugárazott minták esetén (lent)

A mérésekből megállapítottam, hogy polikristályos minták Ni rétegvastagsága 74,6 nm és 76,6 nm között változott, ami nagyon jól egyezik a nominális értékekkel. A Ni porlódása  $10^{16}$  Ni/cm<sup>2</sup> fluenciánál kezdődött és 1,8 nm vastagságcsökkenést, míg a legnagyobb fluenciánál jelentős, 10,4 nm vastagságcsökkenést eredményezett. A nem besugárzott mintákon a  $\sigma^2$  63,6 nm<sup>2</sup> és 65,9 nm<sup>2</sup>. A 18. ábra a Ni/Si határfelület vastagságának változását mutatja a besugárzás hatására. Egészen a nagy fluenciákig a határfelület vastagságának változása elhanyagolható volt, majd jelentős kiszélesedés történt.



18. ábra A Ni/Si határréteg változása besugárzás hatására

Annak érdekében hogy a további mágneses és szerkezeti összehasonlítások nagyjából egyforma rétegvastagságú mintákon történjenek - ezzel kiküszöbölve a vastagság különbségből adódó egyéb effektusokat - a további összehasonlításokban a legnagyobb fluenciával besugárzott minta nem vesz részt.

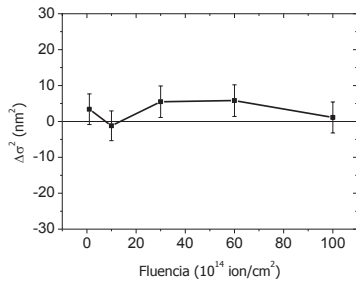


Nem besugározott

Besugározott

19. ábra Epitaxiális minták RBS-görbéje és az abból származtatott koncentráció-profil a nem besugározott (fent) és besugározott minták esetén (lent)

A 19. ábra az epitaxiális minták RBS-spektrumait mutatja. Az epitaxiális mintákban a Ni rétegvastagsága 77,9 nm és 84,4 nm közé esett, ami valamelyest nagyobb az elektronágyúval párologtatott mintáknál tapasztaltnál, valamint a 75 nm-es nominális értékénél. A besugárzás hatására nem történt lényeges porlódás (0,1 nm kis fluenciánál, 1,9 nm nagy fluenciánál). Az alap mintákon a  $\sigma^2$  58,7 nm<sup>2</sup> és 60,4 nm<sup>2</sup> között változott, ami 5 nm<sup>2</sup>-el kevesebb, mint amit az elektronágyúval párologtatott mintáknál tapasztaltam. A besugárzás következtében bekövetkezett határfelületi vastagságváltozást a 20. ábra mutatja. Megfigyelhető, hogy a határfelületek vastagsága nem változott jelentősen.



20. ábra Az epitaxiális minták Ni/Si határfelületének vastagságának változása besugárzás hatására.

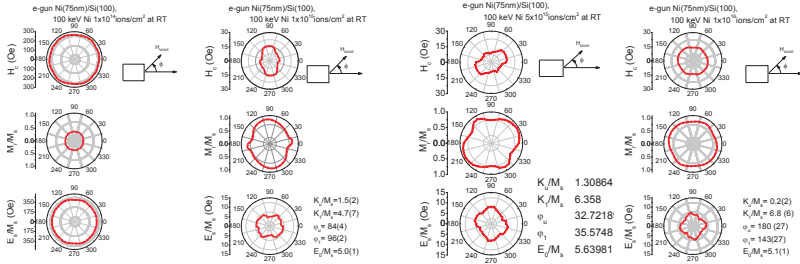
#### IV.1.3 Magnetooptikai Kerr-effektus mérések

A mintában végbemenő mágneses tulajdonságok változásának tanulmányozásához az összes mintán magnetooptikai Kerr méréseket végeztem. A nem besugárzott, a  $10^{14}$ ,  $10^{15}$ ,  $5 \times 10^{15}$ ,  $10^{16}$  és  $5 \times 10^{16}$  Ni/cm<sup>2</sup> fluenciával besugárzott mintákon a  $\phi$  azimut szög függvényében felvettem a MOKE görbéket a mágneses anizotrópia meghatározása céljából. A  $\phi=0$  a minta hosszabbik oldalával párhuzamos irányt jelenti. A polikristályos mintáknál a nem besugárzott mintán és a legkisebb fluenciánál az általunk elérhető 20 mT tér nem volt elegendő a telítéshez, ezért az azon mért görbék belső hurkok

A különböző fluenciával besugárzott polikristályos mintákon meghatározott koercitív erő ( $H_c$ ), relatív remanencia ( $M_r/M_s$ ) és relatív telítési energia ( $E_s/M_s$ ) a 21. ábra látható. Egy egytengelyű és egy négyfogatású mágnesesen anizotrop anyag esetében a mágneses energiasűrűség a következőképpen írható:

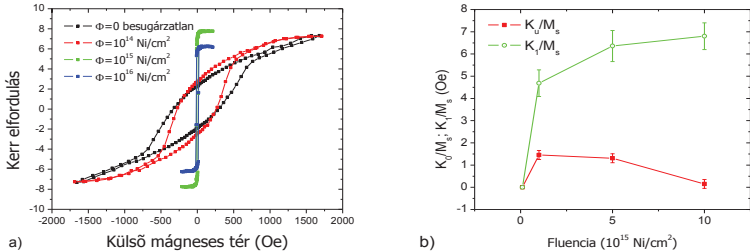
$$\frac{E_s}{M_s} = \frac{E_0}{M_s} + \frac{K_u}{M_s} \sin^2(\phi - \phi_u) + \frac{K_1}{M_s} \sin^2[2(\phi - \phi_1)], \quad \text{IV.1}$$

ahol  $E_0/M_s$  az izotrop járulékot jelöli, ( $K_u/M_s$ ), illetve ( $K_1/4M_s$ ) az egytengelyű és négyfogatú mágneses anizotrópiatagok,  $\phi_u$  és  $\phi_1$  pedig a könnyű irányok és a minta oldala által bezárt szögek.



21. ábra A koercitív erő, a relatív remanencia és a mágneses energia szögfüggése elektrongyúlvál növesztett mintákon  $10^{14}$ ,  $10^{15}$ ,  $5 \times 10^{15}$  és  $10^{16} / \text{cm}^2$  fluenciájú  $\text{Ni}^+$  ion besugárzás után

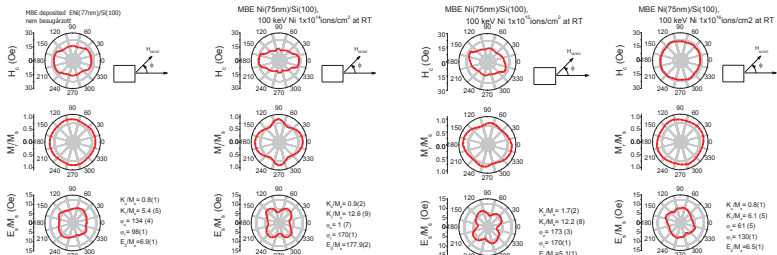
Növesztés után a koercitív erő izotrop volt,  $10^{15} \text{ Ni/cm}^2$  fluenciá után egytengelyű anizotrópiát mutatott, majd nagyobb fluenciáknál ismét izotroppá vált. A  $H_c$  értéke a kezdeti 300 Oe értékről jelentősen lecsökkent egészen 30 Oe-ig, ami a tömbi nikkelle jellemző értéknek felel meg [83]. A relatív remanencia, a koercitív erőhöz hasonló viselkedést mutatott. Az  $M_r/M_s$  mennyiség a kezdeti 0,3-ról 0,9-re emelkedett. Más szóval, a hiszterézisgörbe jellege négyzetesebbé vált (22. ábra, a).



22. ábra a) Az elektrongyúlvál párologtatott mintákon mért MOKE-görbék változása a besugárzás hatására. b) Az egytengelyű és négyfogatú anizotrópia változása a besugárzás hatására polikristályos mintákon.

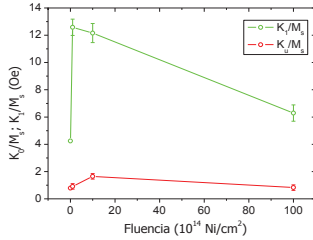
A relatív telítési energia a preparáció utáni izotrop jelleget követően a fluencia függvényében anizotroppá vált. A  $K_1/M_s$  mennyiséget folytonos növekedés jellemzi, míg  $K_u/M_s$  a  $10^{15}$   $\text{Ni}^+/\text{cm}^2$  fluenciánál maximumot mutat, majd  $10^{16}$   $\text{ion}/\text{cm}^2$  fluenciánál teljesen eltűnik, ezáltal szinte tökéletes négyfogású mágneses anizotrópiát jelez, ahol  $K_u/M_s = 0,2$  és  $K_1/M_s = 6,8$  értéket vesz fel (22. ábra, b).

Hasonlóan az eddig tárgyalt polikristályos mintákhoz, a nem besugárzott, illetve a  $10^{14}$ ,  $10^{15}$  és  $10^{16}$   $\text{ion}/\text{cm}^2$  fluenciával besugárzott epitaxiális mintákon is elvégeztem a MOKE-méréseket a  $\phi$  azimut szög függvényében. Egészen  $10^{15}$   $\text{Ni}/\text{cm}^2$  fluenciáig a  $H_c$  koercitív erő szögfüggése egy négyfogású és egy egytengelyű anizotrópia szuperpozícióját mutatja. A legnagyobb fluenciánál ez a jelleg eltűnt és a szögfüggés izotroppá vált és egyúttal a koercitív erő átlagos értéke is megnőtt 16 Oe-ről 21 Oe-re. A relatív remanencia kezdeti izotrop jellege után már a legkisebb fluenciánál is megjelent az egytengelyű és négyfogású anizotrópia szuperpozíciója, ami azonban a legnagyobb fluenciánál eltűnt. A minta. A 23. ábra jól szemlélteti, hogy a besugárzás egészen a legnagyobb fluenciáig erős négyfogású anizotrópiát kelt a relatív telítési energia szögfüggésében is, mely a legnagyobb fluenciánál, hasonlóan a relatív remanenciánál tapasztalttal, újra csökkenni kezdett.



23. ábra A koercitív erő, a relatív remanencia és a mágneses energia szögfüggése a nem besugárzott, illetve a  $10^{14}$ ,  $10^{15}$  és  $10^{16}$   $\text{ion}/\text{cm}^2$   $\text{Ni}^+$  ionfluenciával besugárzott epitaxiális mintákon

A 24. ábra a  $K_u/M_s$  és  $K_1/M_s$  mennyiségek egytengelyű és négyfogású mágneses anizotrópia paraméterek változását mutatja a besugárzási fluencia függvényében.

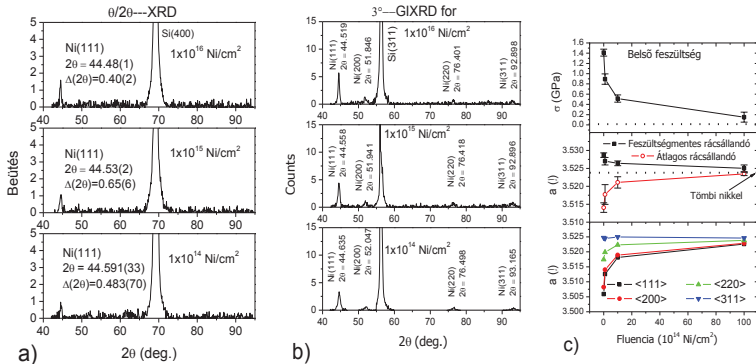


24. ábra Az egytengelyű és négyfogatú anizotrópia változása a besugárzás hatására.

Az egytengelyű anizotrópia paraméternél  $10^{15} \text{ ion/cm}^2$  fluenciáig folyamatos növekedést tapasztaltam, majd a legnagyobb fluenciánál ismét csökkenést mutatott. A kezdeti 0,79 érték, a maximális 1,65 után 0,82-re változott. A négyfogatú anizotrópia paraméter már a legkisebb besugárzó fluenciánál jelentősen megnövekedett (4,2-ről 12,5-re). A nikkel besugárzó fluencia további növelésével azonban folyamatosan csökkent. Ez a minta mágneses textúrája szempontjából azt jelenti, hogy a kezdeti, lényegében izotrop mágneses jelleg kisebb fluenciák esetén anizotroppá vált. A legnagyobb fluenciánál már ismét izotóp jelleg volt megfigyelhető.

#### IV.1.4 Röntgendiffrakciós mérések

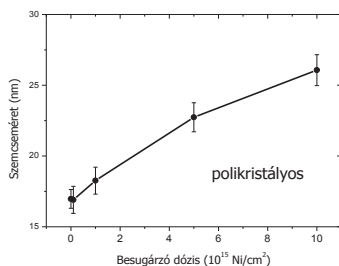
A polikristályos mintákon  $\theta$ - $2\theta$  és  $3^\circ$ -os GIXRD (25. ábra) méréseket végeztem Bruker AXS D8 advance diffraktométeren Cu-K $\alpha$  ( $\lambda=1,54 \text{ \AA}$ ) hullámhosszon. Az mérések eredményét, a számolt belső feszültségeket, valamint a rácsparamétereket a 25c ábra szemlélteti.



25. ábra a)  $\theta$ - $2\theta$  röntgen diffraktogramok b)  $3^\circ$ -GIXRD röntgen diffraktogramok c) a belső feszültségek, valamint az átlagos feszültségmentes rácsparaméterek változása polikristályos Ni-mintákon.

A 3<sup>o</sup>-s sűrűlő beeséses röntgendiffrakciós görbéken (25b ábra) a hordozó csúcsa mellett a nikkell (111), (220), (200) és (311) csúcsai láthatók, melyek pozíciójából III.45 szerint a belső feszültséget meghatározom. A feszültség figyelembevételével megállapítható, hogy a besugárzás fluenciájának növelésével a belső feszültségek fokozatosan eltűnnek és ezzel párhuzamosan, a rácsparaméter növekedést mutat. Növesztés után a mintában 1,41 GPa belső feszültség volt jelen, ami a nagy fluenciánál egészen 0,15 GPa-ra csökkent le. A rácsparaméter a kezdeti 3,5140 Å-ről 3,5234 Å-re nőtt, ami már nagyon megközelíti a tömbi nikkell 3,5238 Å-ös értékét (JCPDS file card no. 04-0850).

A polikristályos mintákon készült röntgendiffrakciós mérésekben (25a ábra) a hordozó erős csúcsa mellett a Ni (111) csúcsa figyelhető meg, melynek csúcshélességéből és a belső feszültség ismeretében meghatározom a polikristályos mintákban végbemenő szemcseméret-változást (26. ábra).

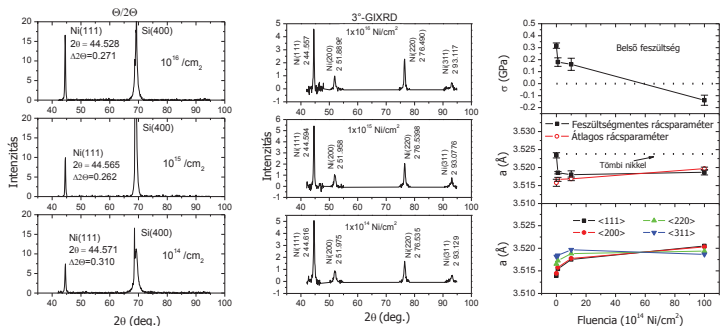


26. ábra Polikristályos minta szemcseméret változása a besugárzás függvényében

Azt tapasztaltam, hogy növesztés után a szemcseméret 17 nm körül volt és a növekvő fluenciájú besugárzás hatására monoton növekedést mutatott. A  $10^{16}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciánál a szemcseméret 26 nm.

Az epitaxiális mintákon is megismételtük ugyanazon méréseket, mint a polikristályos mintákon. Az eredményeket a 27. ábra mutatja.

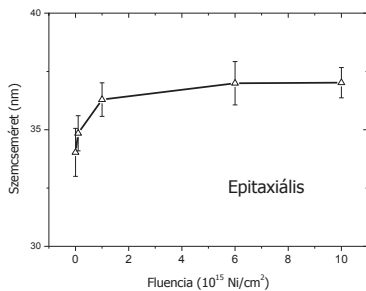




27. ábra  $\theta$ -2 $\theta$ ,  $3^\circ$ -GIXRD mérési eredmények, illetve a belső feszültségek, az átlagos és feszültségmentes rácsparaméterek változása az epitaxiális Ni-mintákon.

A  $3^\circ$ -GIXRD felvételen a hordozó csúcsa nem látható, mivel a jobb statisztika érdekében csak a fontosabb csúcsok körül mértem. A belső feszültség a besugárzás hatására folyamatosan csökkent, a kezdeti 0,31 GPa-ról, előjelet váltva -0,13 GPa-ra változott. Az előjel megváltozása azt jelenti, hogy a mintában kezdetben a minta síkjában jelenlévő húzófeszültség nyomófeszültséggé változott. Az átlagos rácsparaméter mindvégig az egyensúlyi rácsparaméter alatt maradva 3,5151 Å-ről 3,5292 Å-re nőtt.

A besugárzás hatására a szemcseméret növekedett (28. ábra).



28. ábra Az epitaxiális minták szemcseméretváltozása a besugárzás függvényében

A nem besugárzott minta esetében a szemcseméret 33 nm-re adódott, majd ez az érték a legnagyobb fluenciánál 37 nm-re emelkedett.

#### IV.1.5 Az eredmények értelmezése

Megállapítható, hogy a minta mágneses és szerkezeti tulajdonságai, valamint a besugárzás hatása jelentősen függ a növesztés módjától. Az elektronagyús párologtatással készült minták mágneses és szerkezeti tulajdonságai nagyban eltértek az egyensúlyi értékektől, míg ez az eltérés jóval kisebb volt az MBE-vel készült minták esetében. Az előbbi esetben a kezdeti rácsparaméter  $3,514 \text{ \AA}$  volt, míg az utóbbiban ez  $3,515 \text{ \AA}$ . Belső feszültséget és a koercitív erőt vizsgálva az eltérés már lényegesen nagyobb. Míg az elektronagyúval növesztett mintában a koercitív erő  $300 \text{ Oe}$  és a belső feszültség  $1,41 \text{ GPa}$  volt, addig az MBE-s mintákban  $16 \text{ Oe}$  és  $0,31 \text{ GPa}$ . Mindkét esetben a belső feszültségek relaxálódtak besugárzás hatására, de az MBE-s mintáknál a  $10^{16} \text{ ion/cm}^2$  fluenciánál előjelet is váltottak, ami a húzófeszültség nyomófeszültséggé alakulására utal. A szemcseméreték változása is azonos tendenciát mutatnak. Kezdetben az MBE-s mintákon jóval nagyobb szemcseméreteket figyeltünk meg ( $33 \text{ nm}$  a  $17 \text{ nm}$ -el szemben), de az elektronagyúval növesztett mintáknál a besugárzás hatására a növekedési ütem nagyobb volt és a legnagyobb fluenciánál  $27 \text{ nm}$ -re, míg az MBE-s mintánál  $37 \text{ nm}$ -re növekedett. A besugárzás jelentősen befolyásolja a mágneses anizotrópia kialakulását is. Megfigyelhető egy párhuzam a belső feszültségek jelenléte és a négyfogású mágneses anizotrópia között. Azokban az esetekben, amikor a mintában jelentős feszültség volt, a koercitív erő, a relatív remanencia, valamint a relatív mágneszettségi energia izotrop jelleget mutatott. Ahogy a belső feszültségek relaxálni kezdtek, úgy nőtt a négyfogású anizotrópia. Az MBE-s mintáknál, ahol a legnagyobb fluenciánál a feszültség a relaxálódás után ellenkező előjellel ismét növekedni kezdett, ott a négyfogású anizotrópia ismét csökkent.

## IV.2 Fe/Si feszültségmentesítése He besugárással

### IV.2.1 Bevezetés, motiváció

A szupertükrök (SM) nélkülözhetetlen eszközök a neutronkutatóban. Annak érdekében, hogy a neutron teljes visszaverődési szögterületét megnöveljék, a tükrök növekvő periodicitású multiréteg sorozatból állnak [74]. Amennyiben a tükrök váltakozva ferromágneses (Fe, vagy Co) és nem mágneses rétegeket (Ge, Si, Ti) tartalmaz, neutronpolarizátorként is alkalmazható [84,86,87].

A multirétegekben megjelenő mechanikai feszültségek kialakulását leggyakrabban a kristályrács hibái, rácsparaméter eltérés, vegyület képződése, vagy az anyagok eltérő hőtágulási együtthatóival magyarázzák [88]. Korábbi vizsgálatok 1 GPa feletti belső feszültségeket mutattak FeCo/Si szupertükrökben [89]. A belső feszültség szintje kritikus, mivel az elronthatja a réteg neutron-optikai tulajdonságait és végső esetben a réteg le is válhat a hordozóról.

DC magnetron porlasztással 152 réteg, váltakozva Fe-ből és Si-ből álló,  $m=2$  szupertükröt növesztettünk float-üveg hordozóra. Az  $m$  érték a neutron szupertükrök jellemzésére szolgáló paraméter, amely a tükrök kritikus szögét adja meg a természetes nikkelle jellemző kritikus szög egységeken. A szilícium vastagsága, a hordozó felől kiindulva, folytonosan növekedett 71 Å-ról 141 Å-re, míg a vasrétegek 83 Å-ről 800 Å-re. A teljes vastagság 1.6  $\mu\text{m}$  volt. A rétegszerkezet szilíciummal kezdődött és azzal is végződött.

A mintákat - egy kivétellel - a növesztési belső feszültségek csökkentésének esélyeit vizsgáló besugárást helium-ionokkal 1, 24, 50 és  $100 \times 10^{14}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciákkal. A besugárzás energiájának meghatározásához két egymással ellentétes hatást kellett figyelembe venni. Egyrészt, mivel a nukleáris hatáskeresztmetszet az energia növekedésével csökken, a besugárzó ion energiája a felületen elég kicsi kell legyen a megfelelő hatás eléréséhez, különösen mivel a vastagabb rétegek a felülethez közel vannak és ismeretes, hogy a visszamaradó mechanikai feszültség a rétegvastagsággal nő [90]. Másrészt a besugárzó ion energiájának elég nagyra kell lennie ahhoz, hogy az ion a mélyebb rétegekbe is eljusson. Számos SRIM szimuláció után a besugárzó helium energiáját 500 keV-ben határoztam meg. Ennél az energiánál a helium hatótávolság profiljának maximuma a szupertükrök szerkezet alsó harmadába esik. A besugárzás a KFKI RMKI EG2 típusú Van de Graaf-gyorsítóban történt.

A besugárzásnak a szupertükrő neutron-optikai tulajdonságaira gyakorolt hatását polarizált neutronreflektometriával vizsgáltam.

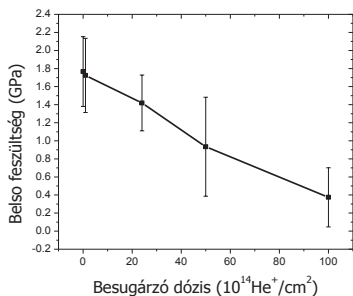
A belső mechanikai feszültségek alakulását sűrűlódó beeséses röntgendiffrakcióval követtem. A szemcseméretet nagyszögű röntgendiffrakcióval vizsgáltam Bragg-Brentano geometriában.

MOKE-méréseket is végeztem abból a célból, hogy megállapítsam milyen hatással volt a héliumbesugárzás a minta mágneses tulajdonságaira.

#### IV.2.2 Röntgendiffrakciós vizsgálatok

A röntgen mérések a KFKI MFA Bruker AXS D8 advance diffraktométerén történtek Cu-K $\alpha$  ( $\lambda=1,54 \text{ \AA}$ ) hullámhosszon. Az egyéb hullámhosszak kiszűrésére egy LiF egykristály monokromátor volt felszerelve a diffraktált nyaláb útjába. A berendezést feladattól függően kétféle geometriában használtam. Bragg-Brentano ( $\theta-2\theta$ ) geometriát a felülettel párhuzamos rácsparaméterek és szemcseméret meghatározására, míg sűrűlódó beeséses diffrakciót a belső deformáció meghatározására.

A szupertükrőkben a belső feszültségeknek a különböző fluenciájú héliumbesugárzások hatására létrejött változását sűrűlódó beeséses röntgen-diffrakcióval vizsgáltam. A számolt eredményeket a 29. ábra mutatja. A feszültséget a vas Bragg-csúcsainak pozíciójából határoztam meg a III.5.1.3 bekezdésben tárgyaltak alapján.

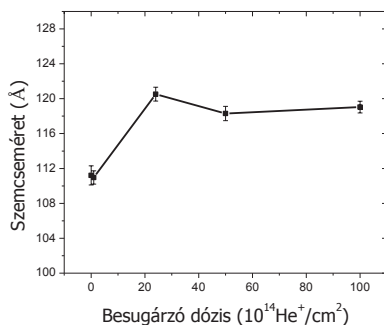


29. ábra A különböző fluenciákkal besugárzott szupertükrő szerkezetben mért belső feszültség változása.

Fontos megjegyezni, hogy CuK $\alpha$  energián (8,041 keV), 3°-on a röntgenfoton behatolási mélysége 4  $\mu\text{m}$  (a szupertükrő vastagsága 1,6  $\mu\text{m}$ ), ezáltal az eredményül kapott belső feszültségek a rétegszerkezeten belüli átlagot képviselik. A növesztés utáni mintában 1,76 GPa

nagyágú húzófeszültséget tapasztaltam a felülettel párhuzamosan. Ez a mechanikai feszültség már képes lehet arra, hogy időben megváltoztassa a rétegszerkezet tulajdonságait vagy végső esetben a réteg leválását okozza a hordozóról. A számolások alapján megállapítottam, hogy növekvő fluenciájú héliumbesugárzás hatására a belső mechanikai feszültségek folytonosan csökkentek, és a legnagyobb fluenciánál ( $10^{16}$  ion/cm<sup>2</sup>) csupán 0,37 GPa húzófeszültség volt a mintában.

A szemcseméret változását, nagyszögű szimmetrikus röntgendiffrakció segítségével határoztam meg a vas legintenzívebb csúcsának (110) szélességéből a Scherrer-képlet alkalmazásával (30. ábra).

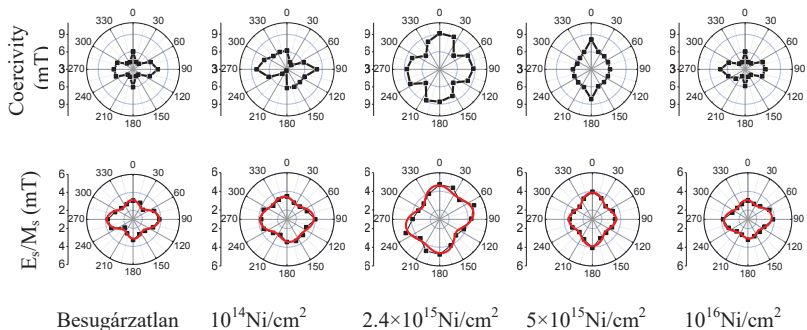


30. ábra Szemcseméret változása növekvő fluenciájú héliumbesugárzás hatására.

Az eredmények csupán enyhe növekedést mutatnak a szemcseméretben a növekvő fluenciájú besugárzás hatására. A kezdeti 111 Å  $24 \times 10^{14}$ /cm<sup>2</sup> fluenciánál 120 Å-re növekszik és a továbbiakban lényegében változatlan marad.

#### IV.2.3 Magnetooptikai Kerr-effektus mérések

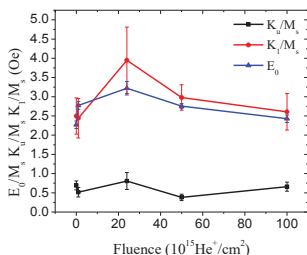
A longitudinális MOKE-méréseket az RMKI MOKE berendezésén mértem 620 nm hullámhosszú lézertiódia alkalmazásával. A hiszterézisgörbékét a mintának a külső térhez viszonyított különböző irányokban vettem fel, így lehetővé téve az esetlegesen létrejött mágneses textúra vizsgálatát. A 31. ábra a koercitív erő és mágneses energia sűrűség polárdiagramjait szemlélteti növekvő fluenciájú héliumbesugárzás hatására.



31. ábra A koercitív erő és a relatív telítési energia polárdiagramjai különböző fluenciájú héliumbesugárzást követően.

A növesztés utáni minta elemzése a mágneses momentum síkbeli komponensének anizotrópiáját mutatja az 1 mm-es átmérőjű MOKE lézer folt alatt. Mind a telítési energia, mind a koercitív erő egytengelyű és négyfogású anizotrópia szuperpozícióját mutatja. A telítési energia polárdiagramjai végig hasonló jelleget mutatnak, csupán a nagyság és az orientáció változik. A koercitív erő esetén más a helyzet. A kezdeti egytengelyű és négyfogású anizotrópia  $24 \times 10^{14}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciánál szinte teljesen négyfogásúvá válik, emellett az átlagos koercitív erő növekedése is megfigyelhető. A héliumbesugárzás fluenciáját tovább növelve,  $10^{16}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciánál a kezdeti állapothoz nagyon hasonló mágneses textúrát figyeltünk meg.

A relatív telítési energiát illesztve ( $E_s/M_s$ ), meghatároztam az egytengelyű ( $K_u/M_s$ ), négyfogású anizotrópia paramétereit ( $K_1/M_s$ ) és az izotrop energia járulékot ( $E_0/M_s$ ). A számolt értékeket az 32. ábra mutatja.

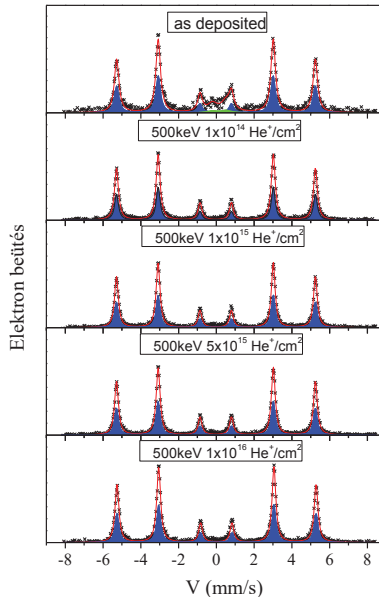


32. ábra izotrop energia tag, egytengelyű és négyfogású anizotrópia paraméterek változása a besugárzás fluenciájának függvényében

Az összes paraméter  $24 \times 10^{14}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciánál mutatja a legnagyobb értéket. A legjelentősebb változás a négyfogású anizotrópia paraméterének esetében volt megfigyelhető, ahol a kezdeti 2,5-ről ez az érték egészen 4-re nőtt, majd a legnagyobb fluenciánál visszacsökkent 2,6-ra. Az egytengelyű anizotrópia paramétere fluktuáló jellegű mutat. A kezdeti 0,7 érték 0,66-ra csökken a legnagyobb fluenciánál, közben 0,38-as minimum és 0,8-as maximumértéket vesz fel. Az izotrop komponens a négyfogású anizotrópia paraméterrel azonos tendenciát mutat. A kezdeti 2,27 értékről elérve a 3,22-es maximumot ismét csökkeni kezd és a legnagyobb fluenciánál 2,43 lesz. Mivel a MOKE-jel csupán a legfelső vasrétegről hordoz információt, ezért nem határozható meg közvetlen kapcsolat a mágneses anizotrópia változása és a belső feszültség csökkenése között.

#### **IV.2.4 Konverzióelektron-Mössbauer-spektroszkópia mérések**

A szupertűkőr rétegszerkezetben jelenlévő vaskörnyezetek meghatározása céljából CEMS-méréseket végeztem a nem besugárzott, és az 1, 24, 50 és  $100 \times 10^{14}$ /cm<sup>2</sup> fluenciával besugárzott mintákon (33. ábra). CEMS mérésekhez, forrásként egy egyvonalas <sup>57</sup>Co(Rh) Mössbauer-forrást használtam. A detektorként egy házi készítésű egyhuzalozs proporcionális számlálót alkalmaztam, amely 4,7% metánt tartalmazó He-gázzal működött 850 V előfeszítéssel.



33. ábra Egy  $m=2$  Fe/Si szupertűkör szerkezetűn a feltüntetett különböző fluenciájú héliumbesugárzás után felvett CEMS spektrumok.

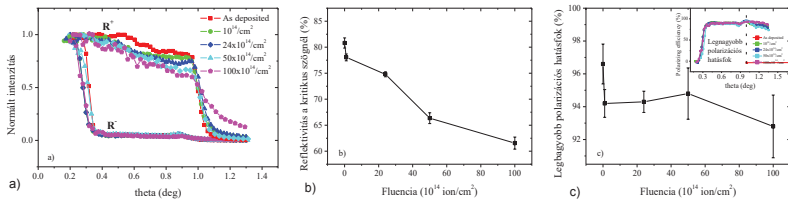
A növesztés utáni minta CEMS-spektruma két komponens felhasználásával volt illeszthető. A fő komponens, mely 94 %-ban járult hozzá a teljes spektrumhoz, a tiszta  $\alpha$ -vas hiperfinom paramétereirez hasonló értéket mutatott, nevezetesen: izomér eltolódás  $(-0,023 \pm 0,01)$  mm/s, kvadrupólusfelhasadás  $(0,014 \pm 0,02)$  mm/s, mágneses hiperfinom tér  $(32,621 \pm 0,01)$  T (a minta síkjában). A másik komponens egy nagy eloszlással rendelkező dublettel volt leírható, amelynek kvadrupólusfelhasadása  $(-0,728 \pm 0,039)$  mm/s, izomér eltolódása  $(0,159 \pm 0,026)$  mm/s volt. Az irodalomban a hasonló hiperfinom paraméterekkel rendelkező vas környezetet  $\epsilon$ -Fe $_{1-x}$ Si $_{0,5}$  -vel azonosították [91, 92] ahol  $0 < x < 0,5$ . A legvalószínűbb magyarázat ennek a komponensnek a megjelenésére, hogy a határfelületen a szilícium reagált a vassal és így cézium-klorid típusú ( $\epsilon$ ) vasszilicid keletkezett. Mivel a CEMS információs mélysége csupán  $\sim 500$ - $1000$  Å és a legfelsőbb vas réteg  $800$  Å vastag, ezért a mért FeSi komponens a legfelső Fe/Si határfelületről ered. A besugárzott minták esetén a teljes CEMS-spektrum egy hatvonalas spektrummal volt



illeszthető, melynek paraméterei megegyeztek az  $\alpha$ -vas irodalmi értékeivel [93]. Ennek oka, hogy a vas szilicid környezete miatt tűnik el már a legkisebb fluenciájú besugárzás hatására, még nem megoldott.

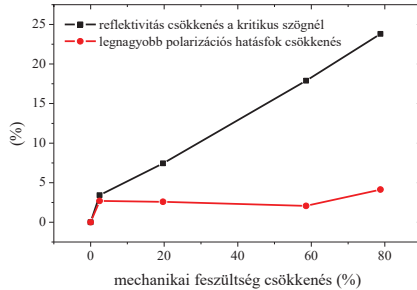
#### IV.2.5 Polarizált neutronreflektometriai mérések

A fentebb említett belső mechanikai feszültség relaxálódásának csak akkor lehet gazdasági jelentősége, ha eközben a szupertűkör neutron-optikai tulajdonságai nem romlanak jelentősen. Ennek vizsgálatára az RMKI GINA reflektométerén a mintákon 200 G külső térben polarizált neutronreflektometria méréseket végeztem a térrel párhuzamos és azzal ellentétes irányú neutron polarizációval (34. ábra).



34. ábra a) Polarizáltneutron-reflektogramok, a minta helyén lévő 200 G térrel párhuzamos és azzal ellentétes neutron polarizációval b) a reflektivitás a kritikus szögél c) a maximális polarizációs hatások reflexiós geometriában a nem besugárzott mintára vonatkoztatva 0, 1, 24, 50 and  $100 \times 10^{14}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciájú héliumbesugárzás hatására

A polarizált neutron spektrumokból meghatározott (reflexiós geometriában mért) maximális polarizációs hatások és a szupertűkör kritikus szögénél mért reflektivitásának változását a 34. ábra b) és c) ábrák szemléltetik. A nem besugárzott rétegszerkezet reflektivitása 80,8 % volt 96,6% polarizáció mellett. A besugárzó héliumion fluenciájának növelésével az eredmények arra utaltak, hogy az egymás melletti rétegek valamelyest összekeveredtek, mivel a reflektivitás 61,5%-ra míg a maximális polarizációs hatások 92,8 %-ra esett vissza. A jobb szemléltetés érdekében érdemes a reflektivitás és a polarizáció csökkenését a belső feszültség csökkenésének függvényében vizsgálni (35. ábra).



35. ábra A kritikus szögénél mért reflektivitás, valamint a maximális polarizációs hatásfok csökkenése (a nem besugárzott mintához viszonyítva) a visszamaradó feszültség csökkenésének függvényében

Az ábrán jól látható, hogy a reflektivitás romlása lényegében lineárisan nő a szupertükrök rétegszerkezetben visszamaradó belső feszültség csökkenésével. Ez a jelenség a polarizáció hatásfokára már jóval kisebb. Az eredmények szerint 60 %-os belső feszültségcsökkenés 17 % reflektivitás- és 2 % polarizációs hatásfokromlást eredményez. 80 % feszültségcsökkenés esetén ezek az értékek sorrendben már 24 %-ra és 4 %-ra nőnek. Az eredményeket figyelembe véve megállapíthatjuk, hogy a szupertükrökben visszamaradó mechanikai feszültségből eredő élettartam-csökkenés javítható besugárzással, de ekkor intenzitásvesztéssel és kisebb polarizációs hatásfokkal kell számolni.

#### IV.2.6 Az eredmények értelmezése

DC magnetron porlasztóberendezéssel készült Fe/Si mágneses szupertükrökben vizsgáltam a visszamaradó feszültség csökkentésének lehetőségét. Ebből a célból 500 keV héliumionokkal sugároztam be a rétegeket 1, 24, 50 és  $100 \times 10^{16}/\text{cm}^2$  fluenciával. A sűrűlő beeséses röntgendiffrakciós mérésekből megállapítottam, hogy a mintában növesztés után 1,79 GPa mechanikai feszültség volt jelen, ami a legnagyobb fluenciájú besugárzás hatására 0,37 GPa-ra csökkent. Az átlagos szemcseátmérő csupán kis mértékben változott, 111 Å kezdeti értékről 120 Å-re. MOKE-mérésekből megállapítottam, hogy a minta legfelső rétegében a mágneses anizotrópia egytengelyű és négyfágású komponensből tevődik össze (annak ellenére, hogy polikristályos szerkezetre ez nem jellemző), és ezen anizotrópia paraméterek maximuma  $2.4 \times 10^{15}/\text{cm}^2$  fluenciánál figyelhető meg. A CEMS mérések azt mutatták, hogy a kezdeti, nem besugárzott mintában  $\epsilon$ -FeSi van jelen, de ez a besugárzott mintákon már nem volt megfigyelhető és azokban az esetekben a spektrum egyetlen vaskomponenssel illeszthető volt. A

neutron-optikai tulajdonságok változását PNR mérésekkel vizsgáltam. Az eredmények alapján a legalkalmasabb besugárzási fluencia  $5 \times 10^{15}/\text{cm}^2$ , mivel a belső feszültség ebben az esetben 60%-ot redukálódik, ami elégséges lehet a réteg stabilitása szempontjából. Ekkor a reflektivitás a kritikus szögnél 17%-ot, a polarizációs határfok 2%-ot romlott. A legnagyobb fluenciánál ugyan 80% volt a belső feszültség csökkenése, de ez 24% reflektivitás- és 4% polarizációs határfokvesztést eredményezett.

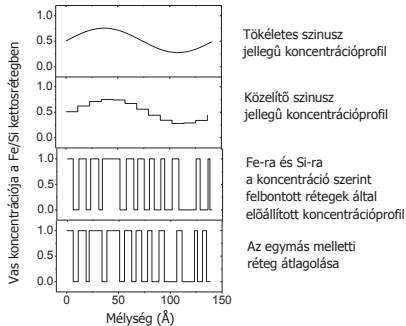
## IV.3 Bragg-tükrök optikai tulajdonságainak testre szabása

### IV.3.1 Bevezetés, motiváció

Multiréteg tükrök szerepe a lassú neutronok alkalmazásában rendkívül kiterjedt. A két eltérő neutronoptikai potenciállal rendelkező anyagból álló periodikus rétegszerkezettel működő tükrök monokromátorként használható [94,95]. A nagy szóráshossz-különbségük miatt a nikkell és a titán erre a célra széleskörűen használatos [96,97]. Abban az esetben viszont, ha polarizált nyaláb szükséges, a Ni/Ti multirétegek nem használhatók, mivel a nikkell mágneseles momentuma nem elegendő ehhez. Erre a feladatra váltakozva erősen ferromágneseles (Fe, Co) és nem mágneseles (Ge, Si) rétegekből álló szerkezet szükséges [84,85,86]. Multiréteg rendszerű monokromátor alkalmazásakor a legnagyobb problémát a magasabb rendű reflexiók jelentik, amelyeket a mérések során ki kell szűrni. Nem mágneseles multiréteg monokromátoroknál (pl. Ni/Ti) ezt úgy próbálták megoldani, hogy a kettősréteget szinusz jellegű rétegprofillal helyettesítették [98]. Mivel a reflektivitásgörbe a szóráshosszakat tartalmazó rétegszerkezet refrakcióval korrigált Fourier-transzformálva, a szinuszos kettősrétegprofilhoz egyetlen Bragg-csúcot tartalmazó reflektivitásgörbe tartozik. Tökéletes szinuszos rétegeconcentráció-profil előállítása azonban ipari porlasztóberendezésekben együttes porlasztással nem lehetséges, mert a két komponens külön céltárgyból, külön kamrában porlasztják. Ezért más megoldások szükségesek.

Három, ipari berendezésekben is viszonylag egyszerűen előállítható rétegszerkezet tulajdonságait vizsgáltam. Először közvetlenül próbáltam meg átlagosan közel szinuszos rétegprofilt előállítani a növesztési paraméterek gondos megválasztásával. Utána egy olyan rétegszerkezettel próbálkoztam, amelynek paramétereit a megvalósítani kívánt szimulált neutronreflektogramm illesztéséből kaptam meg. Végül egy tökéletes szögletes multiréteg szerkezetből kiindulva 350 keV neon besugárzással próbáltam meg elérni a lekerekített szinuszos jellegű rétegprofilt. A rétegek neutron-optikai tulajdonságait polarizált neutron reflektometriával vizsgáltam.

A megközelítőleg tökéletes szinusz rétegprofil növesztése nem egyszerű, mivel a nagyon kis rétegvastagságok együttes porlasztásának ellenőrzése több száz rétegben szinte lehetetlen. Ezért egy olyan módszert fejlesztettem ki, ami lényegesen leegyszerűsíti az ilyen rétegek előállítását. A profil tervezésének folyamatát a 36. ábra szemlélteti.



36. ábra A szinuszos jellegű rétegprofil tervezésének szakaszai

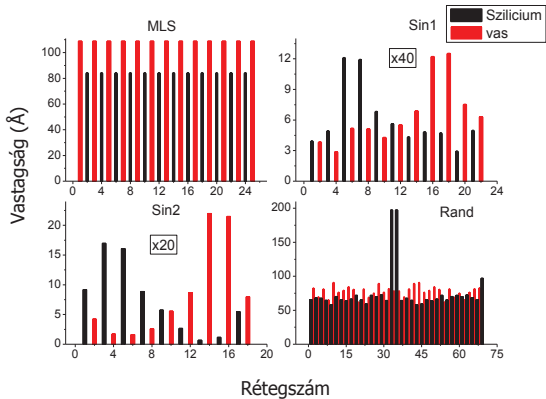
A tervezés folyamán, a Fe/Si kettősrétegben, egy tökéletes szinuszos vaskoncentráció-profilból indultam ki. Ezután ezt egy lépcsős profillal közelítettem. Utána, egy adott koncentrációnál a kevert réteget két tiszta rétegre osztottam, ahol a rétegvastagságokat úgy határoztam meg, hogy az összkoncentráció ne változzék. Az egyszerűbb növesztés érdekében a rétegvastagság eloszlását úgy csökkentettem, hogy az egymás melletti rétegek vastagságát kiátlagoltam. Ezzel a módszerrel két minta készült. Egyikben a 138,5Å vastagságú kettősréteget 22 alrétegből állítottam elő, amit utána 40-szer ismételttem (sin1), a másikban 143,1 Å vastagságú kettősréteget 18 alrétegre osztottam és a kettősréteget 20-szer ismételttem (sin2).

Egy másik megközelítésben a megvalósítani kívánt PNR spektrumot illesztve kaptam meg a rétegszerkezet paramétereit. Ez a tükör 69 rétegből állt, szilíciummal kezdődött és azzal is végződött (rand).

### IV.3.2 Polarizált neutronreflektometria mérések

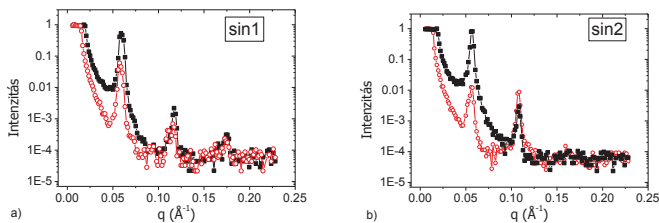
Végül egy tökéletes szögletes kettősréteggel rendelkező  $[Fe/Si]_{12}$  multiréteg mintát növesztettem, ahol a vas 84 Å, a szilícium 109 Å vastag volt (MLS). A minta földarabolása után, egyet érintetlenül hagyva, a mintákat a kettősrétegprofil lekerekítése céljából 350 keV,  $(1-27) \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciájú neon ionokkal sugároztuk be. A besugárzás energiáját úgy állapítottam meg, hogy a SRIM szimuláció szerint a besugárzó ion mélyen a hordozóban álljon meg, így a rétegben az ion energiája állandónak tekinthető legyen.

A különböző módszerekkel előállított rétegszerkezeteket a 37. ábra mutatja.



37. ábra A különböző módszerekkel előállított Bragg tükrök rétegszerkezete

A szinuszos jellegű rétegszerkezettel rendelkező mintákon (sin1, sin2) végzett PNR-mérések eredménye a 38. ábrán látható. A polarizált neutron reflektometriai méréseket az RMKI GINA reflektométerén végeztem, 4,6 Å hullámhosszon. A minták az erre a célra épített 500 G külső teret előállító mintatartóban voltak. Ezzel a térrel párhuzamos (down) és ellentétes (up) polarizációs reflektogramokat rögzítettem.



38. ábra A szinuszos jellegű rétegszerkezettel rendelkező minták PNR-reflektogramjai (fekete R', piros R'' reflektivitás görbe)

A „sin1” jelű mintán, ahol a 138,5 Å kettősréteg 22 alrétegből állt, a reflektogram kiértékeléséből azt kaptam, hogy „up” polarizáció esetén az első Bragg-csúcs 53%-a volt totálreflexió értékének, ami a periodicitásban kialakult tökéletlenséget jelzi. Magasabb  $q$  értékeknél, a magasabb rendű ( $n=2, 3$ ) csúcsok is megfigyelhetők, 0,2 % és 0,03 % hozzájárulással. A tükrő polarizáció hatásfokát a

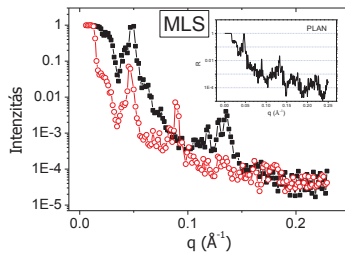
$$P = \frac{I^+ - I^-}{I^+ + I^-}$$

IV.2

adja meg [99], ahol,  $I^+$  és  $I^-$  egy adott  $q$  érték mellett az „up” és a „down” polarizációban mért intenzitást jelöli. A fenti képletet alkalmazva, az első Bragg-csúcs pozíciójában a polarizáció hatásfoka 79 % volt.

A „sin2” (kettősréteg-vastagság 148,1 Å 18 alrétegre osztva) mintánál „up” polarizációban, az előbbinél lényegesen nagyobb Bragg-csúcs intenzitás látszik (82 %). A magasabb rendű csúcsok közül egyedül az  $n=2$  látszik 0,29 % intenzitással, az ennél magasabb rendű csúcsok eltűntek. A polarizáció is lényegesen nagyobb, 97,1 % lett, ami jó érték.

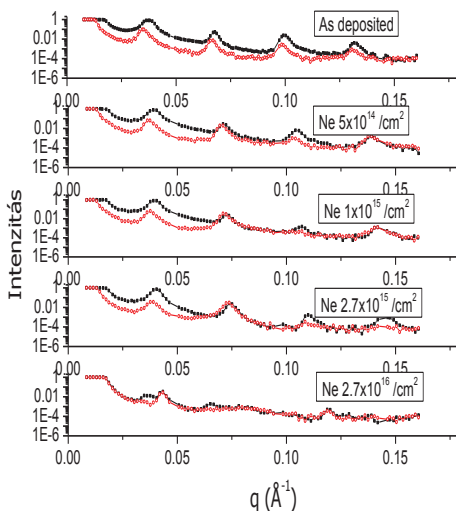
A 69 réteget tartalmazó „rand” minta PNR görbéjét a 39. ábra mutatja.



39. ábra Az illesztéssel meghatározott rétegszerkezetű mintáról készült PNR görbék (fekete  $R^+$ , piros  $R^-$  reflektivitás görbe). A belső ábrán az illesztett spektrum látható

A görbe vizsgálatából látható, hogy az „up” polarizációban az  $n = 2$  és  $n = 4$  csúcsok eltűntek és csak az  $n = 1$  és  $n = 3$  Bragg-csúcsok vannak jelen 92 % és 0,4 % normált intenzitással. A másik polarizációban (down) azonban három csúcs is látható. Az első Bragg-csúcsnál számolt polarizációs hatásfok 87 % -nak adódott.

A 350 keV neon besugárzásnak az Fe/Si multiréteg neutron-optikai tulajdonságára gyakorolt hatásának vizsgálatához minden besugárzási ciklus után PNR-méréseket végeztem. A 0, 5, 10, 27 és  $270 \times 10^{15}/\text{cm}^2$  350 keV energiájú neonnal besugárzott mintákon végzett mérések eredményeit a 40. ábra szemlélteti.



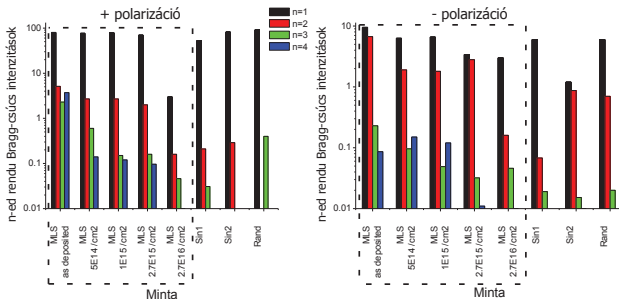
40. ábra PNR mérések eredménye a 0, 5, 10, 27 és  $270 \times 10^{15} / \text{cm}^2$  fluenciájú 350 keV energiájú neonnal besugárzott mintákon (fekete  $R^-$ , piros  $R^+$  reflektivitás görbe)

A nem besugárzott minta PNR görbéjén a Bragg-csúcsok mindkét polarizációban egészen a 4. rendig látszanak. Egészen a legnagyobb fluenciáig ( $2,7 \times 10^{16} / \text{cm}^2$ ), a Bragg csúcsok elemzése azt mutatja, hogy a magasabb rendű csúcsok relatív intenzitása folyamatosan csökken, miközben egy kisebb mértékű, 80%-ról 70%-ra történő csökkenés figyelhető meg az első Bragg-csúcsnál. A legnagyobb fluenciánál azonban, a rétegek nagymértékű összekeveredésének következményeképpen, már az első Bragg-csúcs is lényegesen (3 %-ra) lecsökken, ami lehetetlenné teszi monokromatorként való alkalmazását.

### IV.3.3 Az eredmények értelmezése

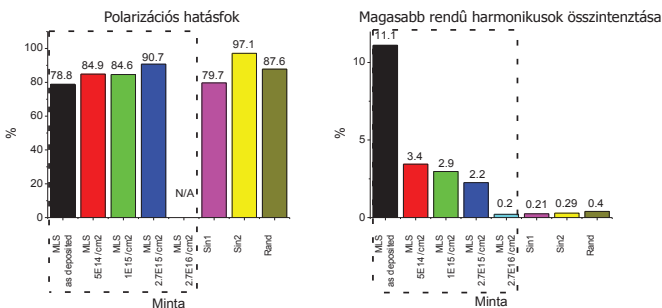
A jobb összehasonlítás érdekében, a különböző mintákon a Bragg-csúcsok intenzitásait a 41. ábrán mutatom.





41. ábra A PNR mérésekből számolt Braggcsúc-intenzitások a különböző módszerrel meghatározott rétegszerkezetű mintákon. Szaggatott vonallal határolt téglalapon belül a multiréteg mintákat mutatom.

A legnagyobb fluenciával besugárzott mintát nem számítva megállapítható, hogy a besugárzás elősegítette a multiréteg (MLS) minták monokromatizálási hatásfokát azáltal, hogy a magasabb rendű csúcsok összintenzitása 22 %-ról 2.2 %-ra csökkent anélkül, hogy az első Bragg-csúcsban mért reflektált intenzitása drasztikusan lecsökkent volna (kevésbé, mint ha BeO szűrőt alkalmaznánk, ahol a veszteség 20 % [100]). Az összes mintát egybevetve megállapítható, hogy a legnagyobb Bragg-reflektivitás a „rand” minta esetén volt (92 % az  $n=1$  csúcsnál), amit a „sin2” minta követett (82 % az  $n=1$  csúcsban). További következtetések megállapítására az összes mintán meghatározott polarizációs hatásfokot és a felharmonikus csúcsok összintenzitását a 42. ábrán ábrázoltam.



42. ábra PNR-mérésekből meghatározott polarizációs hatásfokok és magasabb rendű Bragg-csúcsok összintenzitása a különböző eljárással meghatározott szerkezetű mintákon. Szaggatott vonallal határolt téglalapon belül a multiréteg mintákat mutatom.

Az eredmények alapján megállapítható, hogy a besugárzás a polarizációs hatásfokot is jelentősen növelte, 78,8 %-ról 90,7 %-ra. A legjobb polarizációs érték azonban a „sin2” mintára jött ki, ahol

elérte a 97,1 %-t. A „rand” mintánál is magas, nevezetesen 87,6 % lett a polarizációs határfok. Ebben a mintában a diffúziós keverés esetleges intenzitásnövelő hatásának vizsgálatára a NIK gyorsító meghibásodása következtében eddig nem került sor.

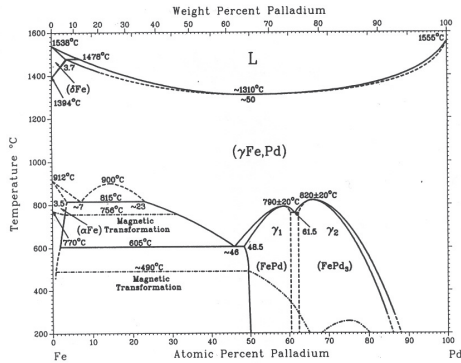
## IV.4 A vas öndiffúziójának vizsgálata metastabilis FePd ötvözetben reflektometriával az izotópperiodikus multirétegek módszerével

### IV.4.1 Bevezetés, motiváció

A számítógépek mágneses merevlemezeinek kapacitása az elmúlt évtizedekben exponenciális kapacitásnövekedést mutatott. A lemezek felületének parányi elemén a síkbeli mágnesezettség iránya úgy hordozta az információt, hogy ha az pl. balra állt, akkor állapota logikai „1”, ha jobbra, akkor „0”. Ha elég sok mágneses atom beállása ad egy bitet, akkor az állapot stabil, a diszk megbízható, évtizedekig „nem felejt”. A bitek azonban minden határon túl nem sűrítethők, mert ha túl kevés atom ad egy bitet, a termikus hatások már szobahőmérsékleten, hetes-hónapos időskálán bitátforduláshoz, információvesztéshez (szuperparamágneses relaxációhoz) vezetnek (II.5 fejezet). Mai igény a szokásos mágneses anyagokat felhasználva a longitudinális (síkbeli) tárolásban már meghaladta ezt az elvi korlátot A bitsűrűség további növelésére mégis adódott megoldás. Egyrészt nagyobb anizotrópiájú anyagok használata, másrészt a síkbeli mágnesezettség helyett a média síkjára merőleges bitekben való tárolása, illetve ezek együttesen. A merőleges tárolás azért lehet (kb. háromszorosan) nagyobb sűrűségű, mert a legnagyobb sűrűségű és ezért legkritikusabb '01010101...' bitmintázat esetén a síkban, egy sávban írt bitek mint mágneses dipólusok azonos pólusai, míg merőleges tárolás esetén ellentétes pólusai kerülnek egymás mellé, ami az adott bitméretben az utóbbi technológiánál stabilizáló, míg az előbbinél destabilizáló tényező. A mai diszkekben használatos nagysűrűségű adattárolás a merőleges rögzítési technológiával, nagy mágneses anizotrópiával rendelkező anyagok használatával vált lehetségessé. A FePt, a CoPt, FePt és FePd fémközi vegyületek tetragonális (ún.  $L1_0$ ) szerkezettel rendelkező fázisai olyan nagy ( $\sim 1$  joule/cm<sup>3</sup>) anizotrópiával rendelkeznek, ami tovább, az 1 terabájt/cm<sup>2</sup> fölé növelheti a tárolók fajlagos kapacitását. Alaptudományi érdekességén felül ezért izgalmas kulcskérdés az anyagtudomány és a gyakorlati alkalmazások számára az  $L1_0$  atomi- és az ehhez tartozó anizotrop mágneses szerkezet stabilitása és az azt meghatározó rövid távú diffúzió. Az  $L1_0$  tetragonális szerkezetben az egyik irány kitüntetett, így várhatóan a diffúziós állandó is irányfüggő. Fenti ötvözetek, pl. a vizsgálatunk tárgyává választott FePd rendezett ( $L1_0$ ) és rendezetlen (lapcentrált köbös) szerkezetei közötti átalakulás néhány atomnyi méretben bekövetkezik. Ez a hagyományos módszerek segítségével nem követhető. Izotópspecifikus módszerek (NR, SMR) és izotópperiodikus multirétegek alkalmazásával azonban az atomi mozgások már néhány tized nanométernyi skálán megfigyelhetők. Különböző szerkezetű FePd ötvözetminták esetén erre tettem kísérletet.

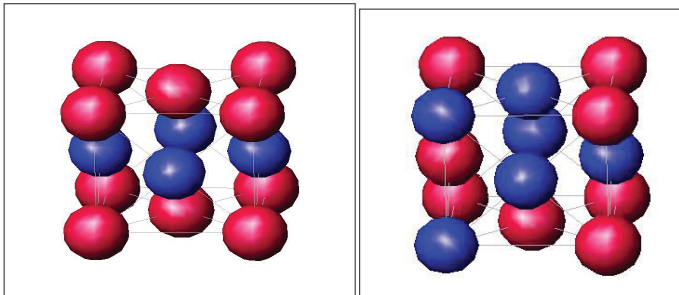
#### IV.4.2 Egyes FePd ötvözetfázisok szerkezete

A Fe-Pd rendszer fázisdiagramját a 43. ábra szemlélteti.



43. ábra A Fe és Pd kétalkotós rendszer fázisdiagramja [101]

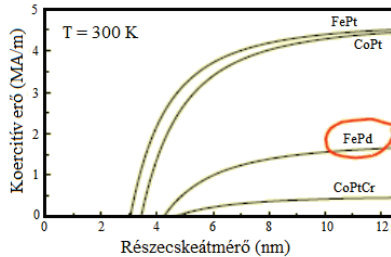
A 44. ábra a lapcentrált köbös, valamint a rendezett L1<sub>0</sub> (CuAu(1)) FePd szerkezetet mutatja.



44. ábra FePd különböző szerkezetei. Bal oldalon L1<sub>0</sub>, jobb oldalon rendezetlen lapcentrált köbös szerkezet látható.

A rendezett L1<sub>0</sub> szerkezetben a Pd és Fe atomi síkok felváltva követik egymást a rendszer *c*-tengelye ([001] kristálytani iránya) mentén, ezáltal a teljes rendszer összesen egy darab négyfogasú szimmetriával rendelkezik. Az ismétlődő síkok következtében a köbös elemi cella torzul és tetragonális lesz. A könnyű mágnesezés iránya, a kristályanizotrópia miatt, a kristálytani *c*-tengely [001] irányba mutat [102,103]. Az anizotrópiaállandó nagy, a  $K = 1 \text{ J/cm}^3$  [104, 105, 106] nagyságrendjébe esik, emiatt potenciális mágneses tárolóanyag a FePd.

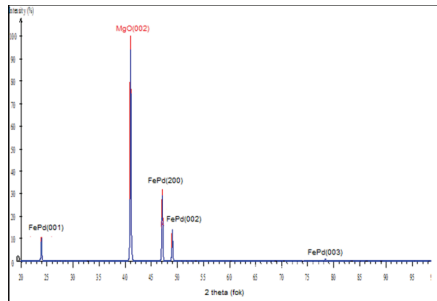
Mágneszettsége a termikus fluktuációknak akár nanoméretekben is képes ellenállni. Különböző  $L1_0$ -szerkezetű anyagok koercitív erejének szemcseméret függését a 45. ábra mutatja.



45. ábra A FePd, FePt, CoPd és CoPt koercitív erejének változása az anyagok szemcseméretének függvényében.

Látható, hogy nem a FePd rendelkezik a legnagyobb koercitív erővel egy adott szemcseméretnél, mégis gyártási szempontból kedvezőbb anyag lehet, mint a többi jelölt, hiszen a rendeződés FePd esetében már a technológia számára kedvező, alacsonyabb hőmérsékleten megtörténik.

Az  $L1_0$  szerkezet a röntgendiffraktogramon jól azonosítható, mert az (Cu  $K\text{-}\alpha$  sugárzás esetén)  $23^\circ$  körül megjelenik a [001] indexű csúcsa, ellentétben a lapcentrált köbös szerkezettel, amelynek a páratlan Miller-indexű csúcsai nem jelennek meg.



46. ábra MgO(001) hordozón lévő  $L1_0$  FePd szimulált röntgendiffraktogramja

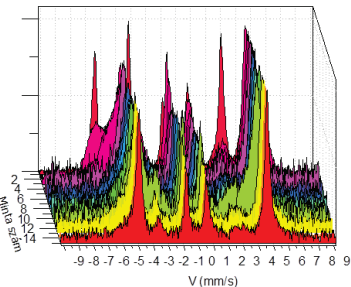
A 46. ábra röntgendiffraktogramján lévő csúcshelyek kiértékeléséből az egyes mintákban a rendezett  $L1_0$  valamint a rendezetlen fcc rácsparamétereit meghatároztam. Az  $L1_0$  szerkezet esetében az  $a$ - és  $c$ - rácsparaméter 0,3855 nm-nek, illetve 0,3712 nm-nek adódott. A két tengely aránya  $c/a=0,96$ . A lapcentrált köbös szerkezet rácsparamétere a  $a=0,38$  nm.

Konverzióelektron-Mössbauer-spektroszkópiával értékes információt szereztem a FePd rendszerben jelenlévő atomi környezetekről. FePd esetében még nem sikerült előállítani kizárólag  $L_{10}$  fázist tartalmazó mintát. Bizonyos mennyiségű fcc szimmetriájú „fázis” (környezet) minden esetben megfigyelhető volt a mintában és gyakran nanoméretű vasban dús (azaz nagy átlagos hiperfinom-terű) kiválások is (49. ábra). Mivel a minta növekedése nem tökéletesen egyensúlyi, ezért a különböző környezeteknek eloszlása van. Ennek legvalószínűbb oka az  $L_{10}$  szerkezetben kialakuló nagyszámú antifázis-határ [107], ami az atomi Fe- (és Pd-) síkok sűrű megszakadásához, következésképpen számos, kissé különböző szimmetriájú lokális környezet kialakulásához vezet. A legkisebb (26,7 T) átlagos hiperfinom-terű  $^{57}\text{Fe}$ -komponens a rendezett  $L_{10}$  szerkezetre jellemző. Ebben a szerkezetben a hiperfinom tér iránya a mintára merőleges, az izomer eltolódás 0,18 mm/s és a kvadrupólusfelhasadás 0,38 mm/s [108,109]. A rendezetlen fcc komponens hiperfinom tere 30 T körül található. Egyes publikációkban ezt a környezetet a domének közötti tartománnyal azonosították [110], de mivel ennek aránya akár 50 % is lehet, s mi több, készíthető olyan minta is, amely kizárólag ilyen szerkezettel rendelkezik, ezt a feltevést kizárhatjuk. A mágnesezettség iránya és a felület normálsa közötti szög ebben a tartományban  $54^\circ$  és  $90^\circ$  között változik. A CEMS-mérések szerint a legnagyobb (34 T) átlagos hiperfinom-terű komponensben a mágnesezettség az  $L_{10}$  fázishoz hasonlóan a minta síkjából kifelé mutat. Curin és csoportja [109] megmutatta, hogy a vasszomszédok számának növekedésével a hiperfinom mágnese tér lineárisan változik, ezáltal valószínűsíthető, hogy ez a tartomány vasban dús (részletes értelmezés a IV.5.3 bekezdésben). Ez a spektrumrész a mintában véletlenszerűen előforduló, esetlegesen az antifázis-határok körül kialakuló nanoméretű, vasban dús kiválásokhoz rendelhető hozzá. Mivel a vas köbös szerkezetéből mágnesezes textúra nem következik, feltételezhető, hogy ezek a kiválások az  $L_{10}$  mátrixba be vannak ágyazódva, ezáltal ahhoz mágnesezesen csatlóznak, így indokolva a szintén a kitüntetetten a felületre merőleges mágnesezesettségüket.

#### **IV.4.3 Mintaelőállítás és összetétel-meghatározás**

A FePd rendezett  $L_{10}$  szerkezet előállítása komoly előkészítést és megfelelően kontrollált növesztési paramétereket igényel. Tizenöt növesztési kísérletet végeztünk, mire eljutottunk odáig, hogy a minta 80 %-ban  $L_{10}$  szerkezetet mutatott. A minta szerkezeti rendezettsége és epitaxiális viszonyai a CEMS-spektrumokban megjelenő lokális környezetek alapján kitűnően jellemezhetőek. Ezért a továbbiakban az  $L_{10}$ , fcc és vasban gazdag „fázist” CEMS-alspektrumok mintázatával azonosítom és koncentrációjukat azok spektrális hányadával teszem egyenlővé

(azaz feltételezem, hogy valamennyi Fe-környezethez azonos Mössbauer-Lamb-tényező tartozik). Az esetlegesen tiszta Pd fémfázissal nem foglalkozom. A IV.5.2 fejezetben látni fogjuk, hogy ezek a környezetek Gibbs-i értelemben fázisnak bizonyosan nem tekinthetők, mert elektronmikroszkópos képük alapján sem elkülöníthetők, ugyanakkor lokálisan, legalábbis néhány atomtávolságnyi méretben jól elkülöníthető környezeteket jelentenek. A Fe-Pd kétalkotós fázisdiagramból kiindulva (43. ábra), a Fe-Pd összetételt az 50 % Pd koncentráció környezetében módosítottam, mert azt tapasztaltam, hogy ez kedvez az egyensúlyi  $L_{10}$  fázis kialakulásának. A FePd réteg alatt elhelyezkedő pufferréteg vastagságát is változtattam, hogy ezzel elősegítsem az  $L_{10}$  szerkezet kialakulásához szükséges tetragonális torzulást. Összességében a koncentrációk Fe 44 % Pd 56 % és Fe 50 % Pd 50 % között változtak, míg a pufferréteg vastagsága 0 és 500 nm között változott. A döntően  $L_{10}$  szerkezetű FePd létrehozásának egyes lépéseit a 47. ábra mutatja CEMS-spektrumaikkal jellemezve.



Minta szám	Vas koncentráció (%)	Palládium koncentráció (%)	Pufferréteg vastagsága (nm)	Magkérző réteg Cr(3nm)	Növesztés hőmérséklete (K)	Mágnese réteg
1	50	50	50	van	620	<sup>57</sup> FePd
2	47	53	50	van	620	<sup>57</sup> FePd
3	44	56	50	van	620	<sup>57</sup> FePd
4	47	53	50	van	700	<sup>57</sup> FePd
5	44	56	50	van	700	<sup>57</sup> FePd
6	45	55	50	van	620	<sup>57</sup> FePd/ <sup>57</sup> FePd
7	46	54	0	van	720	<sup>57</sup> FePd
8	46	54	0	nincs	620	<sup>57</sup> FePd
9	44	56	0	van	700	<sup>57</sup> FePd
10	44	56	0	van	620	<sup>57</sup> FePd. Nagyon lassú növesztés (0.01A/s)
11	44	56	0	van	823	<sup>57</sup> FePd
12	50	50	0	van	620	<sup>57</sup> FePd
13	47	53	25	van	620	<sup>57</sup> FePd
14	47	53	15	nincs	620	<sup>57</sup> FePd/ <sup>57</sup> FePd
15	47	53	15	van	620	<sup>57</sup> FePd/ <sup>57</sup> FePd

47. ábra A FePd mintakészítés kísérletei. Hátl: az első minta. Elöl: 15. minta, amelyben az  $L_{10}$  szerkezet részaránya már ~80 %. A mellékelt táblázat az adott mintára jellemző növesztési paramétereket tartalmazza.

Hátl a legelső mintanövesztés után felvett CEMS-spektrum figyelhető meg. Itt a spektrum még egyáltalán nem mutatja a rendezett szerkezetre jellemző hiperfinom paramétereket. A későbbiekben a mágnese felhasadt hatvonalas CEMS-spektrumban megfigyelhető a kettősötös vonal fokozatos csökkenése, ami az  $L_{10}$  szerkezetre jellemzően, a hiperfinom térnek a minta felületéhez képest merőleges beállítását mutatja. Az egyes-hatos vonal lekeskenyedése a FePd-ra jellemző többi szerkezet (fcc-FePd,  $\alpha$ -vas) eltűnésével hozható összefüggésbe. A legutolsó kísérleti növesztés esetén az  $L_{10}$  szerkezet aránya a teljes spektrumban 80 %, míg a rendezetlen

fcc környezeté csupán 20 %. A nagyterű, vasban dús környezet nem volt megfigyelhető ebben a mintában.

A  $[\text{Fe}_{47}\text{Pd}_{53}(3\text{nm})/^{57}\text{Fe}_{47}\text{Pd}_{53}(\text{nm})]_{10}$  izotóp-periodikus multiréteg mintákat (a hazánkban csak a KFKI RMKI-ban fellelhető technika, a molekulanyaláb-epitaxia (MBE) segítségével  $\text{MgO}(001)$  hordozóra magképző- és pufferréteg alkalmazásával növesztettem. Amennyiben arról külön említést nem teszek, a továbbiakban a „FePd izotópperiodikus multiréteg” minták alatt minden esetben az  $\text{MgO}(001)/\text{Cr}(3\text{nm})/\text{Pd}(15\text{nm})/[\text{Fe}_{47}\text{Pd}_{53}(3\text{nm})/^{57}\text{Fe}_{47}\text{Pd}_{53}(89\text{nm})]_{10}\text{Pd}(3\text{nm})$  nominális szerkezetű mintát értem. A Cr magképző és a Pd pufferrétegre az ötvözet multiréteg epitaxiális növekedése, a Pd fedőrétegre az esetleges oxidáció elkerülése céljából volt szükség. Ezek vastagságát és a FePd rétegek növesztési hőmérsékletét a fent említett növesztési kísérlet sorozatban úgy optimaltunk, hogy a mintában az  $L1_0$  fázis kristálytani  $c$ -tengelyével a  $\text{MgO}(001)$  hordozó síkjára merőleges legyen és részaránya (a CEMS-mérések szerint) maximális legyen. Ezt  $350^\circ\text{C}$ -on, a megjelölt pufferréteg vastagsánál, Cr magképző réteggel értük el. Ezen kívül készültek szobahőmérsékleti hordozóra is minták (azonos nominális rétegszerkezettel). A  $350^\circ\text{C}$ -on növesztett minták döntően (mintegy 80 %-ban) a rendezett  $L1_0$  fázist, a szobahőmérsékleten növesztett minták kizárólag fcc-FePd fázist tartalmaztak.

#### IV.4.4 Hőkezelések

Az MBE módszerrel növesztett  $20 \times 20 \text{ mm}^2$  felületű  $^{nat}\text{Fe}_{47}\text{Pd}_{53}/^{57}\text{Fe}_{47}\text{Pd}_{53}$  izotópperiodikus multirétegmintákat feldaraboltuk és az MBE berendezés előkészítő kamrájában ultravákuumban hőkezeltük. A hőkezelés során a minta felületének hőmérsékletét infravörös hőérzékeny kamerával követtük. A hőmérséklet  $500 \text{ K}$  és  $800 \text{ K}$  között változott, míg a hűtési ideje, mintától függően,  $90$  és  $1800$  perc között változott, összesen ötven különböző állapotú ( $^{57}\text{FePd}/^{nat}\text{FePd}$ ) multiréteg mintát állítva így elő. Minden mintáról CEMS-spektrumot vettünk fel a hőkezelés előtt és után.

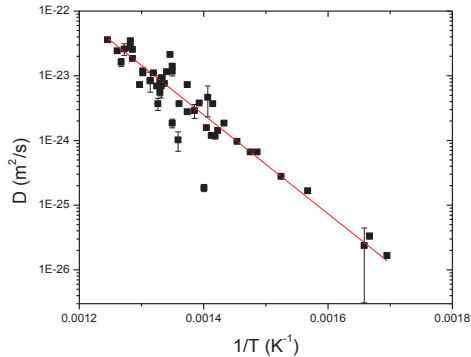
#### IV.4.5 Szinkrotron-Mössbauer-reflektometria és neutronreflektometria mérések

Az izotópperiodikus multiréteg kémiaiilag (elektronoszórását tekintve) egynemű, viszont egy  $^{57}\text{Fe}$  atommag rezonanciaenergiájával rendelkező röntgenyalábbal, (vagy neutronnyalábbal) megvilágítva multiréteggént viselkedik, így reflektogramjában az ismétlődő kettősréteg vastagságára jellemző szögnel megjelenik az izotóp multiréteg Bragg-csúcs. A csúcs nagysága és a reflektogram alakja elsősorban a rétegek izotópkontrasztjától, másodsorban a határfelületek



profiljától, érdességétől „elmosódottságától”<sup>1</sup> függ. A réteghatárok elmosódottsága a diffúzió előrehaladtával nő, a rétegek szórási kontrasztja csökken. A rétegek összekeveredésének mértékét SMR, illetve NR görbék illesztéséből határoztam meg. A reflektivitásgörbék III.7.1 és III.7.2 fejezetben leírt módon történő illesztéséből a mélységprofil és a rétegre merőleges diffúziós állandó meghatározható volt. A mért spektrumokat a FitSuite programrendszerrel ([www.fs.kfki.hu](http://www.fs.kfki.hu)) értékeltem ki.

Az 48. ábra az illesztésből meghatározott diffúziós együtthatókat ábrázolja a reciprokhőmérséklet függvényében. A pontok illesztéséből a FePd minta átlagos szerkezetére a diffúziós aktiválási energiát, valamint az ahhoz tartozó pre-exponenciális tényezőt meghatároztuk. Az aktiválási energiára  $1,51 \pm 0,3$  eV, míg a pre-exponenciális tényezőre  $(1,38 \pm 7,58) \times 10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  adódott.



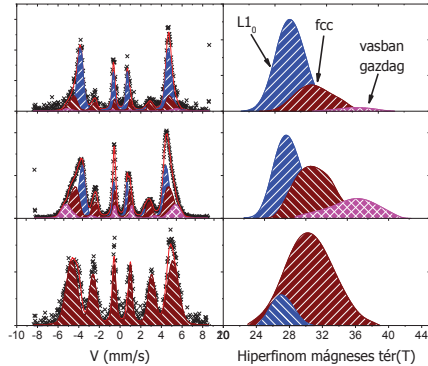
48. ábra A mért reflektogramokból (SMR, NR) illesztéssel meghatározott diffúziós együtthatók, a reciprokhőmérséklet függvényében

A várakozásokkal ellentétben a mért reflektogramokból (SMR, NR) illesztéssel meghatározott diffúziós együtthatók, a reciprokhőmérséklet függvényében jelentős szórást mutatnak (48. ábra). A legtöbb pontnál a mérések hibája nem tér el jelentősen a szimbólumok méretétől, ezért valószínűleg ez a jelleg nem mérési hiba következménye.

<sup>1</sup> A Bragg-csúcs magassága és alakja SMR esetén kis mértékben függ a mágneses rétegek hiperfinom terétől, NR esetén a rétegek esetleges mágneses rétegeközi érdességétől is.

#### IV.4.6 Konverzióelektron-Mössbauer-spektroszkópia mérések

Annak alátámasztására, hogy az 48. ábra pontjai szórásának mélyebb anyagszerkezeti okai vannak a CEMS spektrumokat hívtuk segítségül, meghatározandó, hogy milyen komponensek voltak a mintában. A korábban már tárgyalt környezetek, nevezetesen a kisterű (~27 T) rendezett  $L1_0$ , a nagyterű (~35 T) vasban gazdag nanoklaszterek, valamint a közbelső átlagos hiperfinomterű (~30 T) rendezetlen FePd szerkezet voltak megfigyelhetők.



49. ábra Néhány kiválasztott CEMS spektrum. Felül a 78 %-ban rendezett, középen a 40 %-ban rendezett, alul a rendezetlen FePd multiréteg minta spektruma.

Az 49. ábra három kiválasztott CEMS-spektrumot és a kiértékeléseként kapott hiperfinom téreloszlást mutatja. A CEMS-spektrumokat a Normos kód [111] segítségével illeszttem. A teljes spektrum három alspektrumként, hisztogram típusú hf-téreloszlással lett kiértékelve. A különböző komponensekhez tartozó hf-tértartomány úgy lett megválasztva, hogy megfelelő hf-téreloszlások alakja közel szimmetrikus legyen. A felső spektrumban a rendezett  $L1_0$  környezet dominál (78 %), és a rendezetlen fcc tartomány csupán 16% és a vasban gazdag klaszterek jelenléte szinte elhanyagolható (6 %). A középső spektrumhoz a rendezett  $L1_0$  és a rendezetlen fcc tartományok közel azonos (40 %) súllyal járulnak hozzá és a nagyterű komponens is jelentős (20 %). Az alsó ábrán mutatott FePd mintában a nagyterű komponens jelenléte nem megfigyelhető és a rendezett  $L1_0$  környezet is csupán 13 %-ban van jelen. A minta jellegét szinte kizárólag a rendezetlen fcc környezet határozza meg. Ezen eredmények alapján a minta szerkezetileg nem tekinthető homogénnek. Ezért a diffúziós együttható származtatásának módja is megkérdőjeleződik.

#### IV.4.7 Az eredmények értelmezése

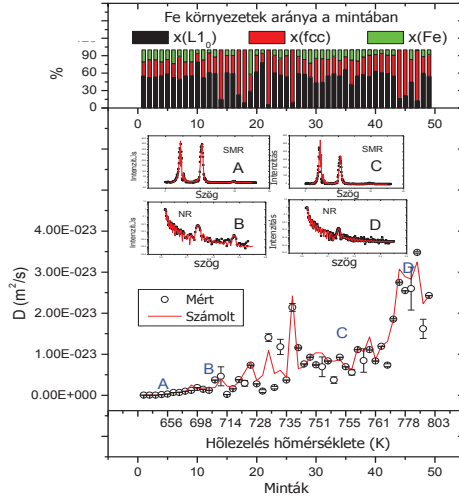
Láttuk, hogy a diffúziós hőkezelések előrehaladtával a mintában más arányban lesznek jelen az egyes lokális környezetek, amelyeknek értelemszerűen más  $D(T)$  diffúziós együtthatója lehet, ezért a minta jellemzése egyetlen együtthatóval nem indokolt. Legközelebbi legegyszerűbb lehetőségként feltételeztem, hogy a diffúziós együttható egy tetszőleges méretű térfogatban szakaszonként állandó. A Fe mozgását a multirétegben úgy modellezem, mintha egy véletlen ötvözetben diffundálna, azaz a diffúziós együttható a különböző vaskörnyezetekre jellemző diffúziós együtthatóknak a környezetek előfordulási valószínűségével (koncentrációjával) súlyozott összege:

$$D = x_{L10} D_{L10} + x_{fcc} D_{fcc} + x_{Fe} D_{Fe} \quad \text{IV.3}$$

Ahol  $x_{L10}$ ,  $x_{fcc}$ , és  $x_{Fe}$  az  $L1_0$ , a rendezetlen  $fcc$ , valamint a vasban gazdag tartományokhoz tartozó spektrális hányadok kiinduló- és végállapotokból meghatározott átlagértéke,  $D_{L10}$ ,  $D_{fcc}$ , és  $D_{Fe}$  pedig a megfelelő tartományokhoz tartozó diffúziós együtthatók. A fenti egyenletet kifejtve, a következő összefüggéshez jutunk:

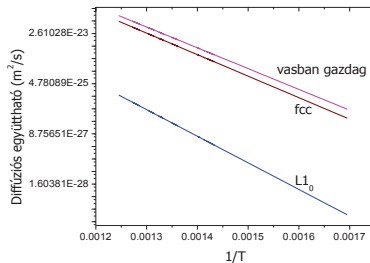
$$D(T) = x_{L10} D_{L10}^0 e^{-\frac{Q_{L10}}{kT}} + x_{fcc} D_{fcc}^0 e^{-\frac{Q_{fcc}}{kT}} + x_{Fe} D_{Fe}^0 e^{-\frac{Q_{Fe}}{kT}} \quad \text{IV.4}$$

Az NR és SMR mérések kiértékeléséből kapott diffúziós értékeket illetve az összes (50) mintára, az adott komponens aktivációs energiája ( $Q$ ) és pre-exponenciális tényezője ( $D^0$ ) meghatározható volt. Az 50. ábra mutatja a mért diffúziós együtthatók illesztett értékeit, valamint szemléltetésképpen néhány kiválasztott minta NR és SMR spektrumát. Az ábra tetején a mintákhoz tartozó összetétel van ábrázolva.



50. ábra Alul: FePd mintákon, NR és SMR mérésekből meghatározott diffúziós együtthatók a hőmérséklet függvényében. Középen: A jelölt pontokhoz (A, B, C, D) tartozó SMR, illetve NR görbék. Fent: Az egyes mintákhoz tartozó belső környezeti összetétel.

Az illesztésből az  $L1_0$ , fcc és vasban gazdag környezetek pre-exponenciális tényezőire és aktiválási energiáira a következő értékek adódtak:  $D_{L1_0}^0 = (5,76 \pm 0,35) \cdot 10^{-14} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ,  $Q_{L1_0} = (1,82 \pm 0,38) \text{ eV}$ ,  $D_{fcc}^0 = (1,32 \pm 0,45) \cdot 10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ,  $Q_{fcc} = (1,48 \pm 0,26) \text{ eV}$ ,  $D_{Fe}^0 = (1,01 \pm 0,61) \cdot 10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  és  $Q_{Fe} = (1,39 \pm 0,23) \text{ eV}$ . Az 51. ábra a különböző FePd környezetekre a megfelelő Arrhenius-görbéket szemlélteti.



51. ábra A különböző FePd-környezetek diffúziója a reciprok hőmérséklet függvényében

Mivel mind az NR és SMR mérések a minta felületére merőleges periodicitásról hordoznak információt, ezért ezek az értékek a kristallográfiai  $c$  irányra érvényesek. Az ábrán jól látszik,

hogy a legnagyobb diffúziójú komponens a vasban gazdag környezet. Mivel azonban ez csak kis százalékokban van jelen a mintákban, ezért a diffúziót főleg az fcc környezet határozza meg, melyben kb. kétszer lassabb a diffúzió, viszont dominál, mert lényegesen nagyobb arányban van jelen a mintákban. A rendezett  $L1_0$  komponensben hőmérséklettől függően 1-2 nagyságrenddel lassabb a diffúzió mint az fcc-ben, ami más szóval azt jelenti, hogy az atomi mozgás ebben a szerkezetben a kristálytani  $c$ -irányban erősen gátolva van. A hőmérséklet növelésével a különböző környezetek diffúziós együtthatói közötti eltérés csökken.

Korábbi kísérletekben [112]  $^{59}\text{Fe}$  radioaktív nyomjelzős módszerrel vizsgálták a vas diffúzióját FePd-ben. Különböző összetételű FePd rendszerekben mérték a diffúziós paramétereket az 1373 és 1523 K közötti hőmérséklettartományban. Az aktivációs energiára 2,73 eV értéket, míg a pre-exponenciális tényezőre  $9,5 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  kaptak. Ezek az értékek jóval meghaladják az általunk az 500–800 K hőmérséklettartományban mért értékeket. Más részről, az aktivációs energia a vakanciaképződési energia ( $E_F$ ) és a mozgási aktiválási ( $E_M$ ) energia összege [113]. Sűrűség-funkcionál elméleti számolással  $L1_0$  FePd-ra,  $E_F=1,7$  eV és  $E_M=0,4$  eV értékeket határoztak meg [114]. Az így számolt érték  $Q=2,1$  eV már lényegesen közelebb van az általam kapott 1,82 eV-os értékhez.

Hasonló jelenséget mutatnak, a FePd-hoz nagyon hasonló FePt-n végzett diffúziós mérések [115]. Rennhofer és munkatársai szintén MBE módszerrel [ $^{57}\text{FePt}(20\text{Å})/^{60}\text{FePt}(30\text{Å})$ ]<sub>10</sub> izotópperiodikus multiréteget növesztettek. Az általuk végzett röntgendiffrakciós mérések a rendparaméterre  $S=0,77$  értéket adtak, amely a hőkezelések során 0,96-ra emelkedett. A hőkezeléseket 773 K, 823 K, 848 K és 873 K-en végezték. A mintákon SMR méréseket is végeztek, és a totálreflexiós csúcs, valamint a Bragg-csúcs intenzitásának arányából a meghatározták meg a diffúziós együtthatót. Az általam és általuk használt módszer között a két alapvető különbség az, hogy ők a mintát homogénnek tekintették, valamint nem vették figyelembe a totálreflexiós csúcsot befolyásoló különféle (a dolgozat korábbi részében említett) effektusokat. Kiértékelésüket még az is nehezítette, hogy mintájuk nem sikerült periodikusra, egy  $^{57}\text{Fe}$  réteg kimaradt. Emiatt a Bragg-csúcs megduplázódott. Rendezett  $L1_0$  FePt kristálytani  $c$ -irányában az általuk vizsgált hőmérséklettartományban a diffúziós aktiválási energia  $1,65 \pm 0,29$  eV-nak adódott. Ez az érték is jóval alacsonyabbak a magashőmérsékleti tartományban nyomjelzős technikával tömbi anyagon meghatározott  $Q=(3,59 \pm 21)$  eV közötti értékeknél [116].

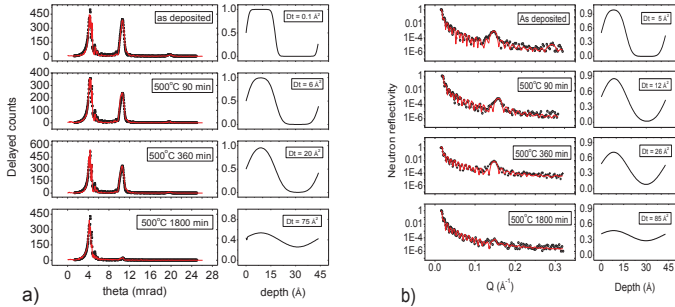
#### IV.4.8 A neutron- és szinkrotron Mössbauer-reflektometria módszerének összehasonlítása hőkezelt FePd mintákon

A mérésekhez részlegesen rendezett (52 %  $L_{10}$ ) izotópperiodikus multirétegeket használtam. Ugyanazon állapotú egyazon mintán alkalmam volt mind NR, mind SMR méréseket végezni. A mintákon ezen mérések előtt és részben után CEMS-méréseket is végeztünk, meghatározva a mintában az egyes már ismertett lokális környezetek koncentrációit. Elfogadva az előző fejezetben kidolgozott szakaszonként állandó diffúziós állandó fogalmát, a részleges rendezettség nem okoz gondot, mert a kiinduló és hőkezelt állapotban is meghatároztuk a lokális környezetek koncentrációit. Az NR mérésekhez a kezdetben  $20 \times 20 \times 2 \text{ mm}^3$  méretű mintákat négy egyenlő ( $10 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$ ) részre daraboltuk. Egyetlen mintát meghagytam növesztés utáni állapotban, míg a többi 500 C-on 90, 360 és 1800 percig hőkezelttem ultravákuum-körülmények között. Az NR kísérlethez  $^3\text{He}$ -mal töltött pozícióérzékeny detektort és polarizálatlan  $5 \text{ \AA}$  hullámhosszú monokromatikus nyalábot használtunk az NREX<sup>+</sup> reflektométernél. (MPI-MF Stuttgart, FRM II, Garching [117,118]). A neutronnyaláb felharmonikusainak kiküszöbölésére szupertűkőr szűrőt alkalmaztunk.

Az SMR mérések az ESRF ID18 jelű nukleáris rezonanciányalábján [119] történtek 16-csomag üzemmódban. Ezekhez a mérésekhez a korábban NR módszerrel már megmért mintákat félbevágtuk ezzel  $5 \times 10 \times 2 \text{ mm}^3$  méretű mintákat kialakítva. A mintákról készletetett időintegrális szinkrotronos Mössbauer-, valamint prompt röntgenreflektogramok készültek. A laterálisan fókuszált röntgennyaláb a minta 0,2 mm széles sávját világította meg.

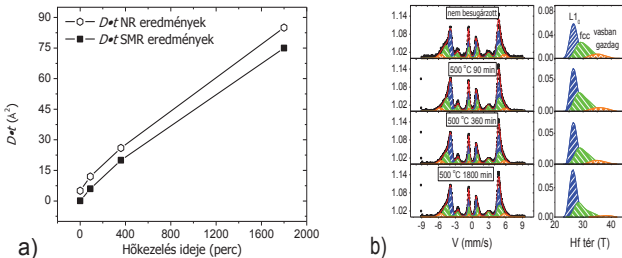
A számos paramétertől függő SMR-kiértékelési feladatot – a FitSuite program segítségével – a rezonáns és nemrezonáns görbék *együttes* illesztésével oldottam meg. A rétegek közötti érdekességeket úgy vettem figyelembe, hogy a hordozó, a puffer és a fedőréteg saját, az izotóp-multiréteg pedig periodikusan közös érdekességértékeket vehetett fel. A program a diffúziós határfelületi érdekességet egy 1D diffúziós profil alakjában kezeli, amit  $D$ - $t$  paraméter jellemez és ennek a paraméternek a változtatásával a reflektivitásgörbék kiértékelhetők. Mivel mind a diffúziós profil, mind az érdekesség hibafüggvény-jellegű, ezért az érdekességet a nem hőkezelt mintán történt illesztésből meghatározva állandónak tekintettük, és a további változást már kizárólag a minta síkjára merőleges diffúziós keveredés következményének tekintettük. A mért NR-görbék illesztésénél további független mérés felhasználására nem volt lehetőség. Itt az egyes  $D$ - $t$ -khez tartozó reflektogramokat függetlenül értékeltük ki.

A Pd(3nm)/[<sup>nat</sup>Fe<sub>47</sub>Pd<sub>53</sub>(3 nm)/<sup>57</sup>Fe<sub>47</sub>Pd<sub>53</sub>(2 nm)]<sub>10</sub>/Pd(15nm)/Cr(3nm)/MgO(001) multirétegen mért és illesztett SMR (a) és NR (b) görbék mutatja az 52. ábrásor. Az ábrák jobb oldalán az illesztésből meghatározott diffúziós profilok láthatók.



52. ábra 500°C-n 0, 90, 360 és 1800 percig hőkezelt izotópperiodikus FePd multirétegen mért SMR (a) és NR (B) görbék. A jobboldali oszlopban a megfelelő kettősréteg-diffúziós profilok láthatók.

Megfigyelhető, hogy a hőtartás idejének növelésével a diffúzió következtében a profil ellaposodik, mutatva az egymás melletti rétegek keveredését. A minták azonos állapotára vonatkozó illesztett  $D \cdot t$  értékek ugyan nem egyeznek páronként az SMR és NR kísérletekre (52. ábra a) és b)), de a két görbe párhuzamosan halad, tehát ugyanez a különbség már a hőkezeletlen mintánál is megfigyelhető. Jellemzően az SMR mérésekből származtatott diffúziós profil szögletesebb, mint az ugyanazon mintán mért NR görbéből származtatott. A hőkezeletlen mintán az az érték SMR esetében  $0,1 \text{ \AA}^2$ , míg NR esetén  $5 \text{ \AA}^2$ .



53. ábra Az NR és SMR mérésekből származtatott négyzetes diffúziós hossz ( $Dt$ ) változása a hőkezelés hatására (a), valamint a megfelelő hőkezelési lépések után készült CEMS mérések és a hozzátartozó hiperfinom téreloszlások (b).

A négyzetes diffúziós hossz a 0, 90, 360 és 1800 perces 500°C-os hőkezelések során 0,1, 6, 20, 75 Å<sup>2</sup> volt SMR esetén és 5, 12, 26 és 85 Å<sup>2</sup> NR méréseknél (53. ábra (a)). Mivel a kétféle mérés során ugyanazokat a mintákat használtuk (csupán az SMR-méréshez félbe lettek vágva) ennek a különbségnek nem lehet oka a minták eltérő szerkezete. Felmerülhet még az a feltevés, hogy a kétféle mérés között eltelt idő alatt a minták öregedtek, ezáltal a belső szerkezetükben változás történt. Ez is kizárható azonban, mivel a minták többségén a második, az NR-mérés után is történt CEMS-mérés, és az nem mutatott semmiféle eltérést az eredeti szerkezethez képest. Továbbá néhány mintán az NR-méréseket követően is történtek SMR-mérések, amelyek változatlan  $D \cdot t$  értékeket mutattak. Az eltérés oka tehát a módszerekben magukban keresendő. Ilyen eltérést okozhat a kétféle kísérletben használt nyaláb lenyomatának eltérő mérete. NR esetében, a reflektált nyaláb a minta egy sokkal szélesebb tartományáról hordoz információt, ezáltal kiátlagolva a határfelületek laterális érdesség és vastagságmodulációit, ami egy kezdeti látszólagos diffúziós érdességet okoz, és ez tükröződik a Bragg-csúcs általános csökkenésében és egy mesterségesen nagyobb  $D \cdot t$ -ben. Ez az effektus lényegesen kisebb SMR mérésnél, hiszen a röntgennyaláb csupán 0,2 mm széles volt, szemben a 10 mm-es neutronnyalábbal. Természetesen NR kísérletnél is lehetőség lenne a nyaláb szélességének csökkentésére, de ez olyan jelentős intenzitásvesztést okozna, ami a nyalábidő korlátozottsága miatt nem tolerálható. Megfigyelhető továbbá, hogy a négyzetes diffúziós hossz különbsége a két mérés során a leghosszabb hőn tartás esetén (1800 perc) eléri a 10 Å<sup>2</sup>-t szemben a 6 Å<sup>2</sup>-s értékkel a rövidebb idejű hőkezeléseknél. Ez magyarázható azzal, hogy mikor az egymás melletti rétegek már majdnem teljesen összekeveredtek, akkor a kiértékelésben a hiba megnő, akár több Å<sup>2</sup> is lehet.



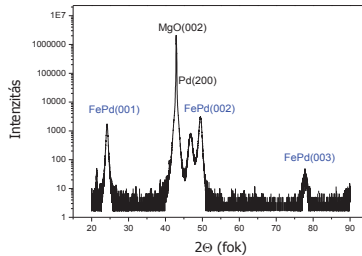
## IV.5 Szerkezeti változások rendezett FePd-ban hélium-ion-besugárzás hatására

CEMS-mérések alkalmazásával, a besugárzás következtében végbemenő rendezetlenné válási folyamatok, már olyan kis (néhány Å) tartományokban is nyomon követhetőek, ami egyéb módszerekkel nem lehetséges. Az így megszerzett információkat összevetve a röntgendiffrakciós és elektronmikroszkópos mérésekkel, a FePd-ban jelenlévő tartományok méretéről, eloszlásáról és szerkezetéről vontam le következtetéseket

A kezdetben  $10 \times 10 \text{ mm}^2$  felületű rendezett  $L1_0$  izotópperiodikus  ${}^{\text{nat}}\text{Fe}_{47}\text{Pd}_{53}/{}^{57}\text{Fe}_{47}\text{Pd}_{53}$  mintákat nyolc egyenlő részre ( $10 \times 5 \times 2 \text{ mm}^3$ ) vágtuk, majd a minták, a felületre merőlegesen 130 keV energiájú  $\text{He}^+$  ionnal besugároztuk. A fluencia  $10^{14}$  és  $1,49 \times 10^{16} \text{ at/cm}^2$  között változott. A mintákat egyszerre helyeztük be a besugárzó kamrába, majd az egyes fluencia értékek elérése után egyenként kivettük azokat és a maradékot vákuumba leszívás után tovább sugároztuk mindaddig, amíg csak a legnagyobb fluenciát kapott minta maradt. Minden mintán CEMS és röntgendiffrakciós mérések végeztem. Eztán a mintákból egy kis darabot levágva nagyfelbontású transzmissziós elektronmikroszkópos felvételeket készülték.

### IV.5.1 Átlagos szerkezeti változások vizsgálata röntgendiffrakcióval

Nagyszögű röntgendiffraktogramon a MgO hordozó (002) Miller-indexhez tartozó csúcsa, a Pd pufferréteg és a FePd réteghez tartozó csúcsok figyelhetők meg. (54. ábra).



54. ábra Rendezett FePd növesztés utáni nagyszögű röntgendiffraktogramja (Cu  $K_{\alpha}$ -sugárral,  $\lambda=1.54 \text{ \AA}$ ).

Az intenzív szuperrács-reflexió  $24^{\circ}$  ( $d \approx 0,37 \text{ nm}$ ) körül, a rendezett  $L1_0$  FePd következménye. A hosszútávú rendparamétert ( $S$ ) az alábbiak szerint számoltam [120].

$$S = \frac{r_{\text{Fe}} - x_{\text{Fe}}}{y_{\text{Pd}}} = \frac{r_{\text{Pd}} - x_{\text{Pd}}}{y_{\text{Fe}}} \quad \text{IV.5}$$

ahol  $r_{Fe}$ ,  $r_{Pd}$  azon Fe, illetve Pd rácshelyek aránya a mintában, ahol a megfelelő atom található,  $x_{Fe}$  és  $x_{Pd}$  az összetételnek megfeleltethető atomi koncentrációk, míg  $y_{Fe}$  és  $y_{Pd}$  az összes Fe, illetve Pd helyek arányát jelöli a kristályban. A tökéletes L1<sub>0</sub> szerkezet esetében  $y_{Fe} = y_{Pd} = 0,5$ . Az  $S$  rendparaméter maximális értékét ( $S=1$ ), a tökéletesen rendezett kristály esetén veszi fel, és eltűnik ( $S=0$ ), amennyiben tökéletesen rendezetlen a kristály. A FePd(001) szuperrács-reflexióhoz tartozó csúcs, valamint a FePd(002) (fundamental) reflexióhoz tartozó csúcs területe az alábbi módon számolható [121].

$$A_{fund} = Km(LP)(FF^*)_{fund} \quad \text{és} \quad \text{IV.6}$$

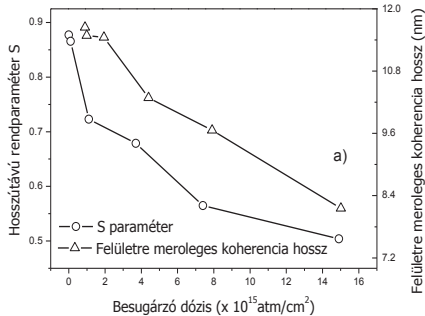
$$A_{sup} = Km(LP)(FF^*)_{sup} \quad \text{ahol} \quad \text{IV.7}$$

$$(FF^*)_{fund} = 16[(x_{Fe}f_{Fe}e^{-M_{Fe}} + x_{Pd}f_{Pd}e^{-M_{Pd}})^2 + (x_{Fe}\Delta_{Fe}e^{-M_{Fe}} + x_{Pd}\Delta_{Pd}e^{-M_{Pd}})^2] \quad \text{IV.8}$$

$$\text{valamint } (FF^*)_{sup} = 4S^2[(f_{Pd}e^{-M_{Pd}} - f_{Fe}e^{-M_{Fe}})^2 + (\Delta_{Pd}e^{-M_{Pd}} + \Delta_{Fe}e^{-M_{Fe}})^2] \quad \text{IV.9}$$

$K$  és  $m$  (multiplicitási) állandók,  $(LP)$  a Lorentz-polarizáció,  $f$  és  $\Delta$  az atomszórási tényező [122] valós, illetve képzetes része és  $e^{-M}$  a Debye–Waller-tényező [123]. Az  $S$  hosszútávú rendparaméter a szuperszerkezetre jellemző FePd(001) csúcs FePd(002)-re történő normálásából számítható ( $A_{sup}/A_{fund}$ ) [124,125,126].

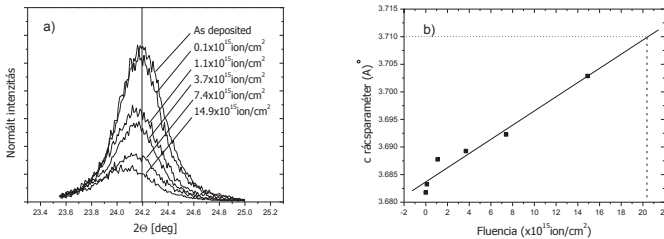
A besugárzó fluencia növekedésével az  $S$  rendparaméter folyamatosan csökkent, a kezdeti 0,87-ről 0,5-re [127].



55. ábra A hosszútávú rendparaméter, valamint a felületre merőleges koherencia hossz változása, növekvő fluenciájú 130keV He<sup>-</sup>-besugárzás hatására

A besugárzás hatására kialakuló rendezetlenebb szerkezet alapvetően két folyamat eredménye lehet: a) az atomi elmozdulások következtében keletkező ponthibák, amelyek elsősorban Frenkel párok, másodsorban az ütközés hatására kicserélődött atomok (anti-site atoms) és b) ütközési kaszkádokban létrejött kiterjedt, az egyensúlytól távoli összetételű és szerkezetű tartományok. Mivel 130 keV  $\text{He}^+$ -ra végzett SRIM-szimulációk (2006 és 2008 verzió) azt mutatják, hogy ezen az energián a  $\text{He}^+$  nem okoz ütközési kaszkádot, ezért a második folyamat elhanyagolható és csak a ponthibák keletkezésére kell figyelmünket fordítani.

A röntgendiffraktogramból számolt besugárzatlan minta rácsparamétere  $c=3,67 \text{ \AA}$ , kisebb, mint az irodalomban fellelhető  $3,71 \text{ \AA}$  tömbi érték [128]. A növekvő fluenciával a (001) csúcs közepe kisebb szögek felé tolódik el, ami a rácsparaméter növekedésére utal (56. ábra a,b).



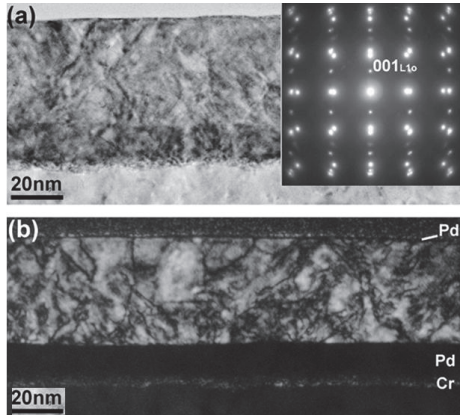
56. ábra a) FePd(001) csúcs változása b)  $\text{Li}_0$  FePd c rácsparaméterének változása növekvő fluenciájú besugárzás hatására. A szaggatott vonal a tömbi rácsparaméter értéket jelöli.

A tömbi rácsparaméter értéket  $20,4 \times 10^{15} \text{ at/cm}^2$  fluenciánál éri el az  $\text{Li}_0$  FePd.

Az  $\text{Li}_0$  FePd-ra jellemző felületre merőleges kémiai koherenciahossz a (001) csúcs szélességéből számolható [129]. A fluencia növekedésével a csúcs folyamatosan kiszélesedik, ami csökkenő merőleges koherenciahosszra utal (55. ábra) és a kezdeti 11,6 nm-ről, a legnagyobb fluenciánál, 8,1 nm-re csökken. Ezt összevetve a 0,186 nm atomsík-távolsággal, valamint a 4,8 nm izotóp kettősréteg-periodicitással, azt mondhatjuk, hogy a minta több izotóp rétegen keresztül koherens maradt. A Pd pufferréteg felületre merőleges rácsparamétere a besugárzás következtében változatlan marad ( $3,87 \text{ \AA}$ ) ami nem sokkal marad el a tömbi értéktől ( $3,89 \text{ \AA}$ ), viszont a felületre merőleges nyomó, valamint a felülettel párhuzamos húzó feszültségre utal a Pd pufferrétegben.

#### IV.5.2 Nanométeres szerkezeti változások vizsgálata elektronmikroszkópiával

Növesztés utáni, valamint a besugárzott minták szerkezetének mikroszkópos változását a minták keresztmetszeten végzett transzmissziós elektronmikroszkópiai (TEM) felvételekkel követtük nyomon. A közvetlen kísérletekben (amelyeket Kovács András végzett az Institute of Scientific and Industrial Research, Osaka (Japán) elektronmikroszkóp-laboratóriumában) nem tudtam ugyan részt venni, de az értelmezésben jelentős részem volt, ezért az eredményekről itt számolok be. A vizsgálat kiterjedt a világos látóterű (bright field, BF), a sötét látóterű (dark field, DF) valamint határolt területű diffrakcióra (utóbbi selected area diffraction, SAED). A nem besugárzott  $L1_0$  FePd minta folytonos rétegszerkezetét, a Pd puffer-, valamint a Cr magképző réteggel a 57. ábra mutatja.

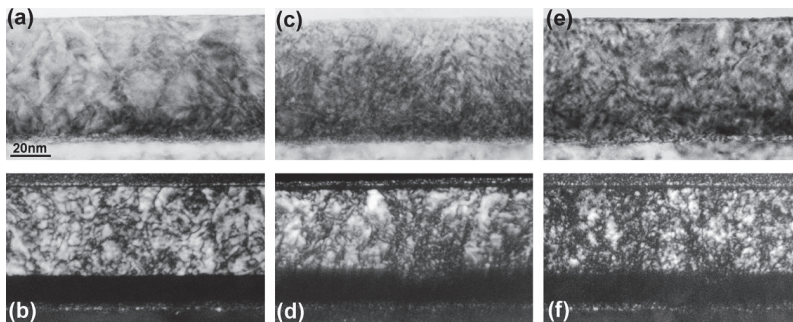


57. ábra Nem besugárzott izotópperiodikus FePd minta TEM képe. a) világos látóterű kép jól mutatja a folytonos rétegszerkezetet, valamint határolt látóterű diffrakciós felvételt (betét), amely az  $L1_0$  fázis jelenlétére, valamint jó epitaxiára utal. b) sötét látóterű felvétel, amely az  $L1_0$  fázis (001) reflexiójával készült.

A felvételen jól látszik (57. ábra a), hogy az  $L1_0$  fázis  $c$  tengelye a felületre merőleges, valamint hogy az epitaxia szinte tökéletes. A rendezett FePd(001) szuperrács-reflexióval készült sötétlátóterű felvétel (57. ábra b) az  $L1_0$  rendezett réteg szerkezetét jellemzi. A sötét vonalak a világos  $L1_0$  rétegben előforduló hibáknak (antifázis-határoknak, rétegződési hibáknak, diszlokációknak) tulajdoníthatók. Mivel a TEM nem izotóppérezékeny vizsgálati módszer, ezért  $^{57}\text{Fe}$ -t, valamint a természetes Fe-t tartalmazó rétegek nem megkülönböztethetők egymástól. Ez egyben azt is jelenti, hogy a mintakészítéskor a  $^{57}\text{Fe}/\text{Pd}$  és  $\text{Fe}/\text{Pd}$  relatív párolgatási sebességeket sikerült azonos értéken tartani. Az alsó és felső sötét rétegek, a Pd puffer, valamint

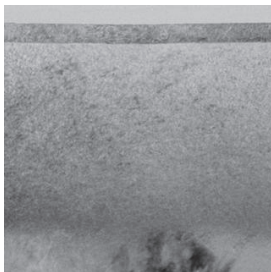
Pd fedőréteggel azonosíthatók. Szerkezeti változások rendkívül kis tartományokban vannak jelen, mivel még nanonyaláb-diffrakcióval, valamint nagyfelbontású TEM-elemzéssel sem sikerült a rendezetlen tartományokról részletesebb információt nyerni a nem besugárzott mintában.

Az alábbi ábrán a  $1 \times 10^{14}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciával (58. ábra a,b), a  $3,7 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciával (58. ábra c,d), valamint a  $14,9 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciával besugárzott (58. ábra e,f) mintákon végzett sötét ill. világos látóterű felvételek láthatók. A sötét látóterű TEM-képek az L1<sub>0</sub> szerkezet szuperrács (001) reflexiójával készültek.



58. ábra Világos és sötét látóterű TEM-képek a kis fluenciával ( $1 \times 10^{14}$  ion/cm<sup>2</sup>) besugározott (a,b), a  $3,7 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciával besugározott (c,d) és  $14,9 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciával besugározott (e,f) mintákról. A sötét látóterű képek az L1<sub>0</sub> FePd (001) reflexiójával készültek. A BF képeken a sötét területek részarányának növekedése a fluencia függvényében, a rendezetlenebb szerkezet következménye.

Az alkalmazott alacsony energiás (130 keV) besugárzás és kis besugárzó tömeg (He) miatt az ütközési (nukleáris) hatáskeresztmetszet viszonylag kicsi ( $5,2 \times 10^{-2}$  MeV cm<sup>2</sup>/mg szemben pl 130keV Xe esetén ahol ez két nagyságrenddel nagyobb  $5,3$  MeV cm<sup>2</sup>/mg), ezáltal minimalizálva a többszörös hibák keletkezését. A kis energia átadás miatt a kilökött atomok továbbiakat már nem tudnak kilököni. A He<sup>+</sup> nyaláb energiája ugyanakkor elegendő ahhoz, hogy az ion keresztülhaladjon a multiréteg filmen (~70 nm) és a rétegvastagság mentén homogén hibaeloszlást eredményezzen a mintában, amint azt a világos látóterű TEM felvételekből megállapítható (59. ábra).

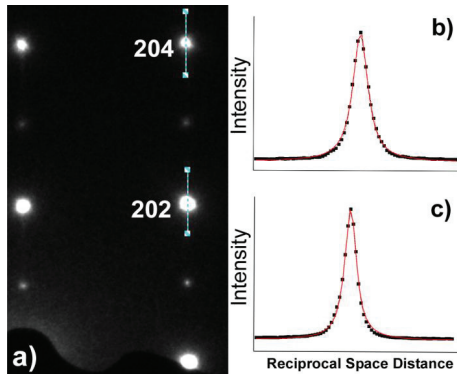


59. ábra  $3,7 \times 10^{15} / \text{cm}^2$  fluenciával besugárzott mintán készült világos látóterű TEM felvétel 80000-es nagyításban

Ezen hibák nagy része relaxál, és a világos látóterű felvételek alapján megállapítható, hogy a hibák jelentős része kb. 700 nm mélységben halmozódik fel a MgO-ban. A sötét látóterű (58. ábra b,d,e) és a megfelelő világos látóterű (58. ábra a,c,e) TEM-képek jól mutatják a minta rétegein keresztülhatoló ionok halmozódó hatását. Jól látszik, hogy a besugárzó  $\text{He}^+$  ionok következtében már a legkisebb fluencia ( $1 \times 10^{14} \text{ ion/cm}^2$ ) esetén is jóval nagyobb a hibák száma, mint a nem besugárzott mintában. A fluencia növekedésével a rendezett területek részarányának csökkenése figyelhető meg. Mivel a SRIM-szimulációk szerint a  $\text{He}^+$ -besugárzás ezen az energián nem okoz ütközési kaszkádokat, a rendezetlenedés fő létrehozója az atomi elmozdulások következtében létrejövő Frenkel párok, valamint az ütközések során létrejövő rácshelyre beülő ellentétes atomok (anít-site defects). A besugárzás következtében a Pd fedő, ill. pufferréteg egy része összekeveredett a mellette lévő FePd réteggel, ezáltal növelve a határrétegek érdességét. A kiinduló pufferréteg vastagsága a képen a besugárzás következtében 15,2 nm-ről a kis fluenciánál 16,3 nm-re, a közepesnél 18,2 nm-re, míg a legnagyobb vizsgált fluenciánál 18,5 nm-re változott.

60. ábra mutatja a nanonyaláb-diffrakciós mintázatot és a reflexiók vonal menti intenzitásait. Az elektronnyaláb átmérője 10 nm volt, így a felvétel csupán a FePd rétegről adjon információt. Az elektrondiffrakciós képen (60. ábra a) jelenlévő foltok a  $g_{hkl}$  rácsvektorokat jelölik a reciproktérben, ahol a párhuzamos síkok sokasága a rács középpontjától  $1/d_{hkl}$  távolságra [ $1/\text{nm}$ ] [130] egyetlen pontnak felel meg. Ezért az elektrondiffrakciós elemzés különösen alkalmas arra, hogy kimutassunk nagyon kis rácsállandó-eltéréseket, amelyek az  $L1_0$  mátrixban kialakult rendezetlen FePd és vaskörnyezetektől eredhetnek. A rendezetlen FePd ( $a_{\text{fcc}}=0,389 \text{ nm}$ ) és az  $L1_0$ -FePd ( $a_{L1_0}=0,387$ ,  $c_{L1_0}=0,377 \text{ nm}$ ) rácsparaméterei nagyon közel állnak egymáshoz. Ebből adódik, hogy az alacsony Miller-indexű (pl. (002)) atomi síkokról jövő diffraktált

elektronnyalábok a diffrakciós képen átfednek, míg a nagyobb indexű síkokról diffraktált nyalábok jól elkülöníthetők. Az  $L1_0$  FePd nanonyaláb-diffrakcióval a (202) és (204) reflexiókról készült vonal menti intenzitások a 60. ábra (b és c) láthatók.

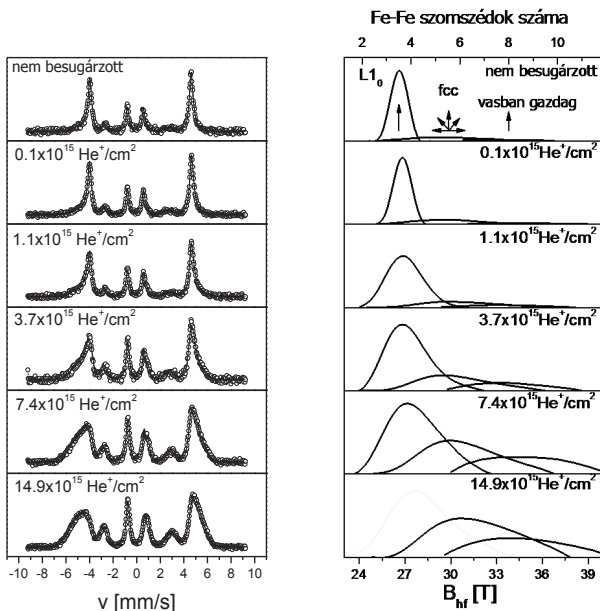


60. ábra Nanonyaláb-diffrakció (a) kép a  $14,9 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciával besugárzott rendezett FePd mintáról és fittelt vonal menti intenzitások (b) a (204) (c) és (202) reflexiókról. A szimmetrikus csúcsok kizárólag az  $L1_0$  szerkezet jelenlétére utalnak.

A felvett intenzitásgörbék alakja jó közelítéssel Gauss-félének tekinthető. Mivel a görbékben nem figyelhetők meg „vállak” ezért a megfigyelt területen belül a szerkezet egyetlen ( $L1_0$ ) fázisnak tekinthető. Ezek az eredmények azt sugallják, hogy a besugárzás következtében kialakuló és a CEMS-spektrumban elkülönülő rendezetlen, valamint a vasban dús környezetek mérete rendkívül kicsi, kiterjedésük nem haladja meg a 0,2–0,4 nm-t. Mivel ezen környezetek elektron-diffrakcióval nem figyelhetők meg, ezért a minta különböző mikrokörnyezetek véletlenszerű keverékének látszik.

#### IV.5.3 Mágneses szerkezeti változások vizsgálata konverzióelektron-Mössbauer-spektroszkópiával

A FePd film mágneses tulajdonsága erősen függ a Fe-Pd lokális rendtől. Az  $L1_0$  mátrix valamint a lokális környezetek változásának nyomon követése céljából a mintákon merőleges beesésű CEMS spektrumokat vettem fel. A hf mágneses tér irányát a III.28 szerint határoztam meg.



61. ábra (a) Konverzióelektron-Mössbauer-spektrum és (b) illesztett  $^{57}\text{Fe}$  mágneses hiperfinom téreloszlás a növekvő  $\text{He}^+$ -fluenciával besugárzott FePd mintában. A fölfelé mutató nyíl, a minta felületére merőleges hiperfinom térre utal, míg a mindenfelé mutató nyílak a véletlenszerű hiperfinom térirányt jelölik.

A 61. ábra látható CEMS spektrumokon megfigyelhető, hogy miként változik a spektrumok alakja a növekvő fluenciájú  $\text{He}^+$ -besugárzás hatására. A változások trendje a következő: A nem besugárzott minta esetében a csúcsok viszonylag keskenyek és a második és ötödik rezonancia vonal intenzitása szinte elhanyagolható, ami a hiperfinom tér felületre merőleges irányának a következménye. A besugárzó fluencia növekedésével a csúcsok kiszélesednek, továbbá a második és ötödik csúcs relatív vonalintenzitása megnövekszik. Ez az eredetileg a felületre merőleges  $^{57}\text{Fe}$  hiperfinom tér irányának a felület normalisához képesti fokozatos véletlenszerűvé válására utal.

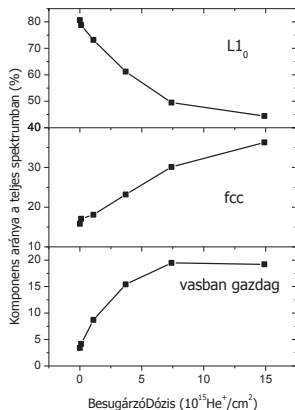
A nem besugárzott mintában három különböző mikrokörnyezet volt megfigyelhető (61. ábra b); Az irodalmi ismeretek alapján [110,127] a legkisebb hf terű (~27 T) alspektrum az  $L1_0$  szerkezet, a legnagyobb hf terű (~34 T) vasban dús fázis, míg a közbenső hf terű (~30 T) a rendezetlen lapcentrált FePd környezettel volt azonosítható. Az illesztés során az alacsony és a nagy hf-terű komponens terének iránya a minta felületére merőleges irányúnak adódott (relatív intenzitások



3:0:1:1:0:3), míg a közbenső komponensben, a beérkező  $\gamma$ -sugár irányához képest, a hf-tér iránya véletlenszerűnek mutatkozott. A nem besugárzott mintánál a rendezett  $L1_0$  komponens a teljes spektrumhoz 81%-ban járult hozzá. A kvadrupólusfelhasadást (QS) 0,43 mm/s-ra adódott, ami határozottan nagyobb mint a tömbi  $L1_0$ -FePd-ra jellemző irodalmi érték (0,38 mm/s) [108,109], viszont az izomér eltolódás reprodukálta az irodalmi értéket (0.18 mm/s). Ennél a komponensnél az átlagos hf tér 26,7 T-ra adódott. Curin [108,109] egy lineáris kapcsolatot figyelt meg a  $^{57}\text{Fe}$  hf tere és a Fe-Fe legközelebbi szomszédok száma között ( $N$ ), mégpedig oly módon, hogy ha kicserélünk egy  $^{57}\text{Fe}$ -tel szomszédos Fe atomot egy Pd atomra, akkor a  $^{57}\text{Fe}$  hf tere 1,6 T-val lecsökken. Felhasználva ezt az összefüggést, a nem besugárzott  $L1_0$ -FePd komponensre, a legközelebbi vas szomszédok számára  $N = 3,6$  adódott. Egy tökéletesen rendezett  $\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$  mintánál ez a szám  $N = 4$  lenne. Ez a különbség a minta növesztése által kontrollált, szándékos, az 50-50 % összetételtől való eltérés következménye. Ugyanezt a Curin-féle kalibrációt alkalmazva a rendezetlen lapcentrált FePd szerkezetnél is, meghatároztuk a legközelebbi vasszomszédok számát. Ebben az esetben  $N = 5,4$ -et kaptunk, az ideális  $N = 12/2 = 6$  helyett, melynek oka megegyezik az  $L1_0$  fázisnál tárgyalttal. A rendezetlen fcc komponens 15,8 %-ban járult hozzá a teljes spektrumintenzitáshoz, a nem besugárzott mintánál. Ez az arány 3,4% (szinte elhanyagolható) a nagy hf térnél található vasban gazdag összetevőnél.

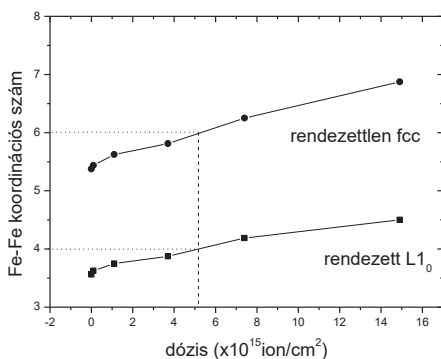
#### IV.5.4 Az eredmények értelmezése

A  $\text{He}^+$ -besugárzási fluencia növekedésével az  $L1_0$  fázis lokálisan fokozatosan átalakul rendezetlen fcc valamint vas jellegű környezetekké. A nanonyalábos TEM-vizsgálatok szerint ezek a környezetek azonban nem tekinthetők önálló fázisnak, hanem inkább az  $L1_0$  mátrixban létrejövő nanoméretű homogén kiválásoknak. A besugárzás előrehaladtával  $0\text{--}14,9 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup> fluencia között a rendezett fázis 81 %-ról 44 %-ra csökkent, míg a rendezetlen környezetek aránya 15 %-ról 36 %-ra és a vas jellegű környezetek aránya 3,4 %-ról 20%-ra növekedett (62. ábra).



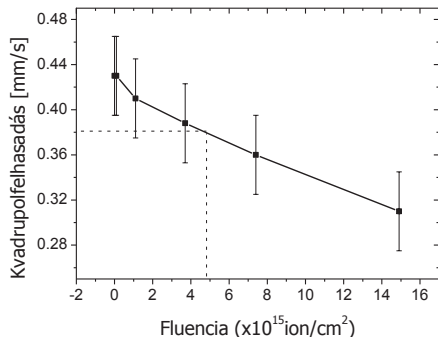
62. ábra A rendezett  $L1_0$ , a rendezetlen lapcentrált köbös és a vasban gazdag környezetek arányának változása a teljes spektrumban, a  $\text{He}^+$ -besugárzás fluenciájának függvényében.

Megfigyelhető, hogy a vasban gazdag környezetek aránya  $7,4 \times 10^{15} \text{ ion/cm}^2$ -nél eléri a maximumát, és nem növekszik tovább. Ennek a „telítődésnek” az lehet az oka, hogy a besugárzás során a rendezett és a rendezetlen fázisok átlagos hf tere növekszik (63. ábra), ezáltal a legközelebbi Fe-Fe szomszédok száma is növekszik és ennek következtében az átlagos összetétel  $\text{Fe}_{47}\text{Pd}_{53}$ -ról  $\text{Fe}_{54}\text{Pd}_{46}$ -ra változik, ezért kevesebb vasatom marad a vasban gazdag környezetek kialakítására.



63. ábra Fe-Fe legközelebbi szomszédok számának változása a különböző FePd környezeteknél a He<sup>+</sup>-besugárzás fluenciájának függvényében. A szaggatott vonal a Fe<sub>50</sub>Pd<sub>50</sub> összetételnek megfelelő, egyensúlyi FePd Fe-Fe koordinációs számot jelöli.

Habár a Mössbauer-spektroszkópia nem érzékeny a Pd-atomra, mégis a vasban gazdag kiválások létrejöttével, a mintában a Fe- és Pd-koncentráció állandóságának feltételezése mellett valószínűsíthető a tisztán Pd-környezetek létezése is, más szóval a He<sup>+</sup>-besugárzás előrehaladtával a Fe és a Pd szegregációja jön létre. Ezen besugárzó energián (130 keV) definiálhatunk egy olyan fluenciát, melynél a Fe-Fe koordinációs szám, valamint a kvadрупólusfelhasadás megfelel az egyensúlyi értékeknek. A koordinációs szám esetében ez a fluencia megkapható a 63. ábra, a kvadрупólusfelhasadás esetén pedig a 64. ábra interpolálásából.



64. ábra Kvadrupólufelhasadás változása növekvő  $\text{He}^+$ -besugárzás hatására. A szaggatott vonal azt a dózist jelöli, ahol a felhasadás mértéke megfelel az egyensúlyi  $\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$  ( $L1_0$ -ra jellemző) értékének (0,38 mm/s).

Az „egyensúlyi összetételi fluencia” ha a koordinációs számból számoljuk akkor  $5,1 \times 10^{15}$  ion/cm $^2$ -re, míg ha a kvadrupólufelhasadásból számoljuk, akkor  $4,7 \times 10^{15}$  ion/cm $^2$ -re adódik, mely értékek jó közelítéssel megegyeznek. Amennyiben ezt az eredményt összevetjük a röntgendiffrakcióból számolt értékkel, nevezetesen, hogy a tömbi rácsparaméter értéket  $15 \times 10^{15}$  ion/cm $^2$  fluenciánál éri el, megállapítható, hogy a kisebb rácsparaméter nem csupán az atomi összetételnek, hanem a mintában jelenlévő, a felületére merőleges irányú nyomó, és a film síkjával párhuzamos húzó feszültségnek is tulajdonítható.

## IV.6 Szerkezeti változások rendezett FePd-ban különböző energiájú He<sup>+</sup>-ionsugaras keveredés hatására

Az előző fejezetben részletesen tárgyaltuk az átlagos és nanoméretű szerkezeti változásokat és az ennek következtében fellépő mágneses szerkezetváltozásokat is rendezett FePd-ban 130keV energiájú He<sup>+</sup>-ionbesugárzás hatására [127,131]. Habár a minták izotópperiodikus multirétegek voltak, az ebből eredő mélységfelbontást, illetve izotópzékenységet nem aknáztuk ki. Nyilván a besugárzás hatására nemcsak szerkezeti változások, hanem az izotóp rétegek bizonyos mértékű keveredése is bekövetkezett. Abban a vizsgálatban a keveredett réteg vastagságát nem határoztuk meg. Az egyetlen energián alkalmazott ionsugaras keverés alkalmas ugyan a keverés mikroszkópos folyamatainak vizsgálatára, de – ahogyan a II.8 bekezdésben röviden utaltunk is rá

– a kevert réteg vastagsága,  $Q \propto \left[ I_{\text{ion}} \cdot t \left( \frac{dE}{dx} \right)_n \right]^{1/2}$  a nukleáris fékezés négyzetgyökével

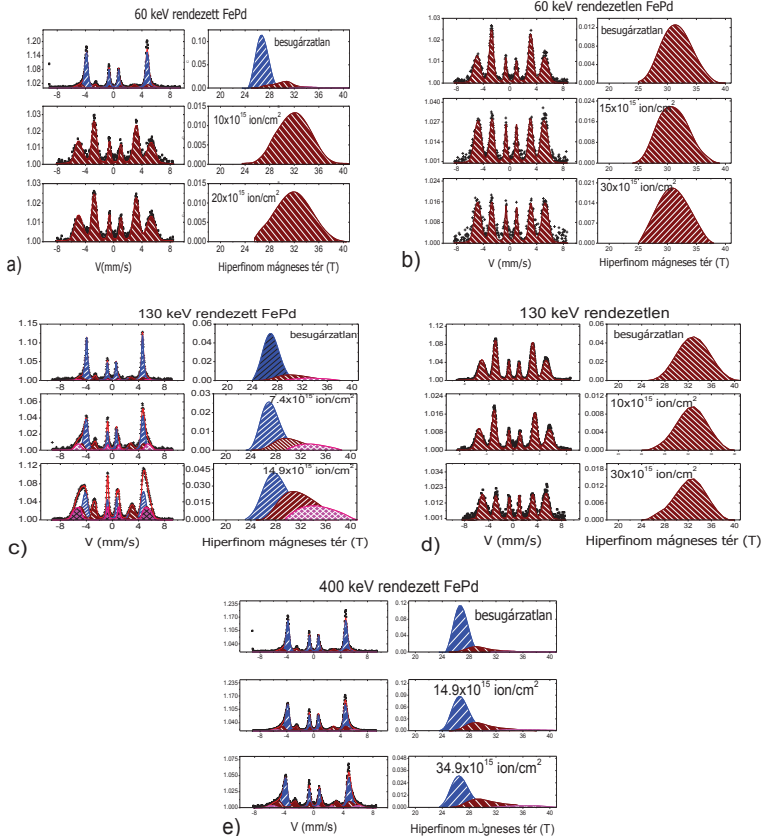
arányos, ezért az ionsugaras keveredés és az atomi diffúzió mikroszkópos összehasonlítása céljából annak legalábbis a besugárzó energiától való függését ismerni kell. Jelen fejezetnek ez a célja, vizsgáljuk a <sup>nat</sup>Fe<sub>47</sub>Pd<sub>53</sub>/<sup>57</sup>Fe<sub>47</sub>Pd<sub>53</sub> multirétegek izotópkeveredését növekvő fluenciájú, három különböző (60, 130 és 400 keV) energiájú He<sup>+</sup>-ionbesugárzás hatására. Továbbá, mint láttuk, az ionbesugárzás hatására a rendezett L1<sub>0</sub> FePd minták szerkezete fokozatosan átalakul rendezetlen fcc FePd-be, ezért (a IV.4 pontban tárgyalt hőkezelések esetéhez hasonlóan) az egyes környezetekhez (és így az fcc FePd-hez) tartozó diffúziós együttható csak nehezen, bonyolult analízis segítségével származtatható. Ezért alacsony hőmérsékleti mintakészítéssel tisztán fcc szerkezetű FePd mintákat is készítettünk és ezekben vizsgáltuk a diffúziós rétegkeveredés előrehaladását ionbesugárzás hatására.

Az MBE-ben növesztett (20x20 cm<sup>2</sup>) rendezett (~80% L1<sub>0</sub>) és rendezetlen izotópperiodikus <sup>nat</sup>Fe<sub>47</sub>Pd<sub>53</sub>/<sup>57</sup>Fe<sub>47</sub>Pd<sub>53</sub> mintákat felvágtuk, mintánként egy darabot referenciának meghagytunk. Ezután a szeleteket széles fluenciatarományban 60, 130 és 400 keV energiájú He<sup>+</sup> ionokkal sugároztuk be az RMKI NIK implanterén. CEMS segítségével meghatároztam a szerkezeti változások mértékét (a különböző lokális környezetek arányát), majd (az ESRF, ID18 rezonanciaszórás nyalábján végzett) SMR-mérések alapján az izotóp Bragg-csúsz fluenciafüggéséből a különböző energiákon meghatároztam a diffúziós tényezőt.

#### IV.6.1 Mágneses és szerkezeti változások követése konverzióelektron-Mössbauer-spektroszkópiával

A mágneses és a nanoszerkezetre vonatkozó ismereteinket röviden a következőkben foglalhatjuk össze: Még a leginkább rendezett (döntően  $L1_0$  szerkezetű) FePd mintákban is három egymástól CEMS mérések alapján megkülönböztethető nanoszerkezet van jelen (65. ábra), amelyek külön fázisnak nem tekinthetők és méretük a néhány Å-öt nem haladja meg. Nevezetesen az alacsony hiperfinom mágneses terű rendezett  $L1_0$ , a nagy hf terű vasban dús és közbülső átlagos hf terű rendezetlen FePd-környezet. A vasban gazdag környezetek az  $L1_0$  mátrixba ágyazottak és azzal mágnesesen csatoltak.

Kísérleti előkészületek: 60 keV energián a rendezett mintát 5, 10,  $20 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup>, a rendezetlen mintát 3,7; 7,4; 14,9 és  $30 \times 10^{14}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciával sugároztuk be. 130 keV-en a rendezett minta 3,7; 7,4;  $14,9 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciával, míg a rendezetlen 3,7; 7,4; 14,9;  $30 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciával lett besugározva. A legnagyobb energián, 400 keV-en csupán a rendezett minta besugárzására volt módunk, 3,7; 7,4; 14,9; 23,7;  $34,9 \times 10^{15}$  fluenciával. Különböző energiákon a besugárzás nélküli, a közepes és a legnagyobb fluenciánál készült CEMS méréseket a 65. ábra mutatja. A legkisebb energiájú besugárzás (60keV) hatására a kezdetben rendezett minta már a legkisebb fluenciájú besugárzás után teljes mértékben rendezetlenné vált – az  $L1_0$  valamint a vasban dús komponensek teljesen eltűntek – és ennél nagyobb fluenciákat követően – hasonlóan a már szobahőmérsékleti preparációval rendezetlenként növesztett mintákhoz – csak a rendezetlen fcc FePd komponens volt megfigyelhető a mintákban (66. ábra a,b). Mivel a kezdetben rendezett és a besugárzás hatására rendezetlenné vált minta hasonló CEMS-spektrumot mutat, ezért nem tárgyalom őket külön.

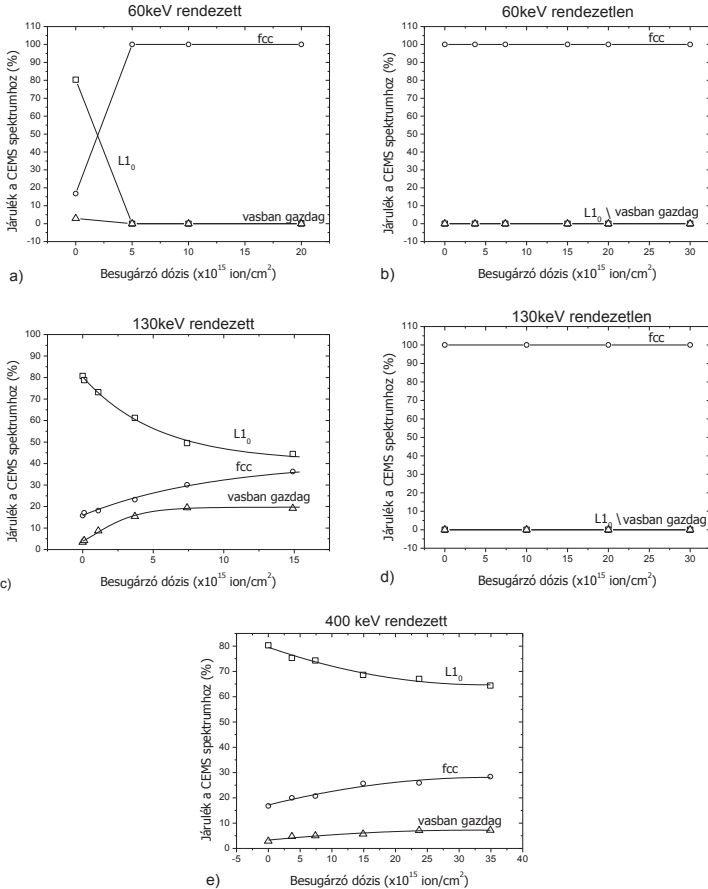


65. ábra CEMS-spektrumok, és hiperfinom tér eloszlás növeztetés utáni állapotban, közepes, illetve nagy fluenciájú besugárzás után.

130 keV-en a növekvő fluenciájú besugárzás hatására a rendezett  $L1_0$  környezet aránya lecsökkent 81%-ról 44%-ra, míg a rendezetlen szerkezetű komponens aránya 15%-ról 44%-ra nőtt. A vasban dús részek aránya is megnőtt 3,4 %-ról 20 %-ra, de a maximumot már  $7,4 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciánál elérte. Mint említettem, a szobahőmérsékleten növeztett rendezetlen minta CEMS-spektruma a rendezett  $L1_0$  valamint a nagyterű komponens teljes hiányát mutatta, kizárólag a rendezetlen FePd környezet volt megfigyelhető (66. ábra c,d)

A legnagyobb energián (400 keV) történt besugárzás hatására a kezdetben rendezett mintában az  $L1_0$  komponens aránya 80 % ról 64 %-ra csökkent, míg a rendezetlen fcc környezetek aránya 17% -ról 28%-ra és a vasban dús helyek aránya 3 %-ról 7 %-ra nőtt. (66. ábra e)

Közvetlenül a növesztés után a rendezetlen minták mágnesezettsége a síkban feküdt, majd a besugárzás hatására az egyes domének irányítottága véletlenszerűvé vált.

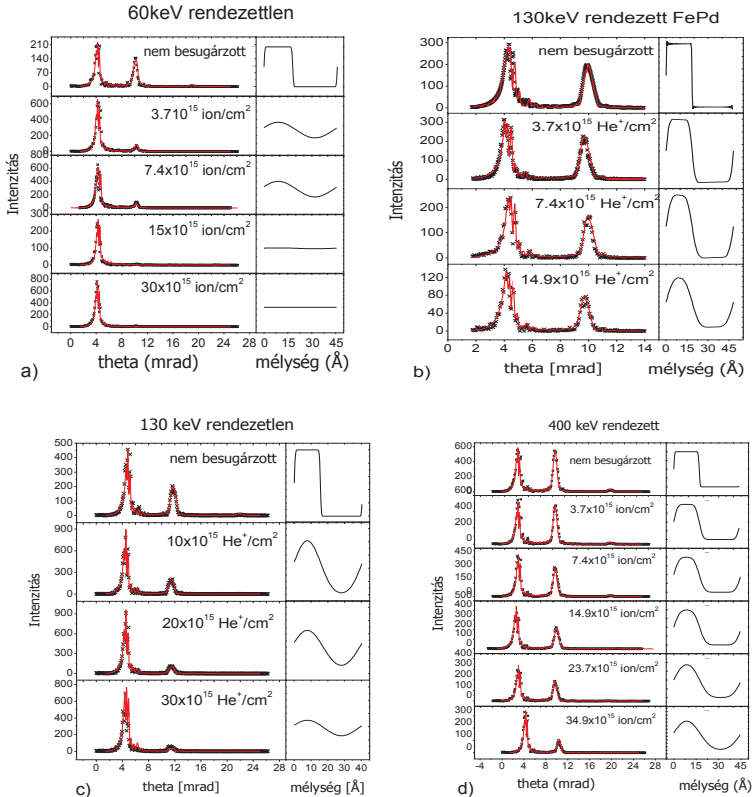


66. ábra A CEMS mérésből származtatott különböző környezetek változása a besugárzás fluenciája és energiája függvényében.



#### IV.6.2 A rétegszerkezet változásainak követése SMR-rel izotópperiodikus multirétegeken

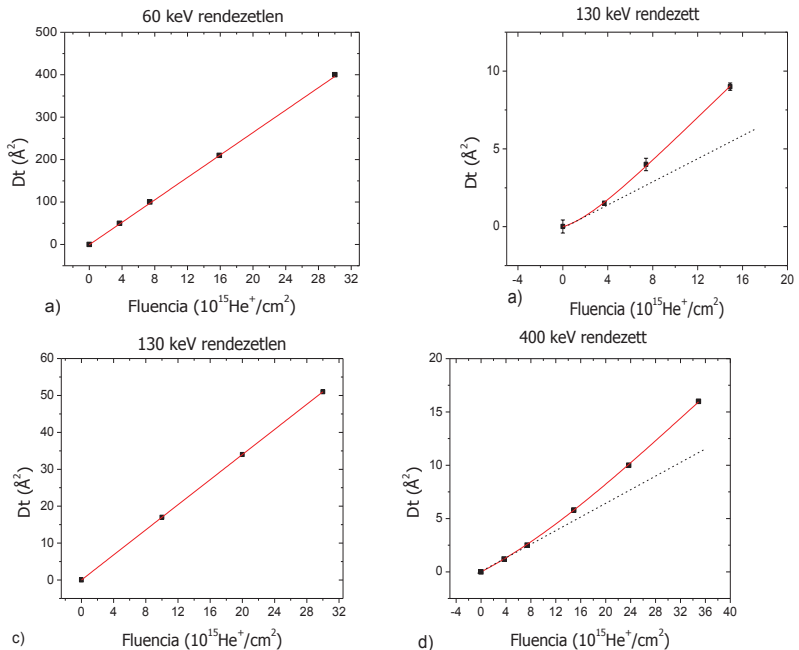
Hasonlóan a IV.4 fejezetben tárgyalt növekvő hőmérsékletű, vagy hőntartási idejű diffúziós hőkezelésekhez, a növekvő fluenciájú besugárzás hatására a kettősréteg izotópkoncentráció-profil kisimulása, következésképpen a multiréteg Bragg-csúcs intenzitásának csökkenés volt tapasztalható. Az SMR görbék illesztését a FitSuite programmal végeztem [132] (67. ábra).



67. ábra A szinkrotron-Mössbauer-reflektogramok és a megfelelő diffúziós profilok változása energiájú  $\text{He}^+$ - besugárzás fluenciája függvényében.

Mint az már a CEMS mérésekből sejthető volt, a különböző energiákon másként keveredtek össze az egymás melletti izotóp rétegek. Alacsony energiákon jobban, míg a nagyobb energiákon kevésbé. A diffúziós hosszak négyzete  $W_t^2$  az egymást követő hőkezelések, vagy az egymás

utáni besugárzások után összehadhatók. A transzmissziós elektronmikroszkópos felvételek alapján megállapítható volt (IV.5.2 fejezet), hogy a besugárzott rétegeknél nem figyelhető meg egymástól határfelülettel elkülöníthető fázisok, ezért a CEMS-vizsgálatok csak meghatározott nagyon lokális, talán csak az első koordinációs héjra kiterjedő környezeteket jellemeznek egy különben homogén mintában. Ennek alapján a következőkben a mintát homogén fázisok véletlen keverékékként kezeltem. 68. ábra az SMR spektrum illesztéséből származó  $Dt$  változását mutatja különböző kezdeti szerkezetű mintáknál a besugárzó  $\text{He}^+$ -fluencia és a besugárzó energia függvényében.



68. ábra A teljes FePd rendszere vonatkozó  $Dt$  változása,  $\text{He}^+$ -besugárzás hatására 60, 130 és 400keV energián. A piros folytonos vonal a valós mintán mért  $Dt$  változást mutatja, míg a szaggatott vonal egy homogén szerkezettel rendelkező minta esetén várt  $Dt$  változást.

A nem besugárzott minták esetében a keveredés mértéke elhanyagolható volt, amit jól szemléltet a négyzetes diffúziós profil (67. ábra), amely a  $^{57}\text{Fe}$  koncentráció eloszlását mutatja egy adott kettősrétegen belül. 60 keV-es  $\text{He}^+$ -besugárzás hatására  $15 \times 10^{15} \text{He}^+/\text{cm}^2$  fluenciánál, a  $Dt$  a rendezett mintáknál  $198 \text{\AA}^2$ -re növekedett. Ez az érték ugyanennél a fluenciánál 130 keV energia

esetén a rendezett mintánál  $9 \text{ \AA}^2$ -re, míg a rendezetlen mintáknál  $21 \text{ \AA}^2$ -re nőtt. A legnagyobb energiájú besugárzásnál a rendezett mintánál a  $D \cdot t \cdot 15 \times 10^{15} \text{ He}^+/\text{cm}^2$  fluenciánál csupán  $5.8 \text{ \AA}^2$ -re emelkedett. Megfigyelhető tehát, hogy a keveredés mértéke nem csupán a besugárzó ion energiájától, hanem a minta szerkezetétől is függ. A rendezett és rendezetlen görbék különböző tendenciákat mutatnak a növekvő besugárzás hatására. Az irodalomból ismert [133], hogy az effektív diffúziós együttható egy szerkezetileg homogén anyag esetében lineárisan függ a besugárzás fluenciájától (68. ábra b) és d), szaggatott vonal), ami megfelel a homogén rendezetlen minták esetén tapasztaltaknak. Ezzel ellentétben a rendezett mintáknál a  $D \cdot t$ -függése enyhe emelkedést mutat. A  $D \cdot t$  egyenestől való eltérésének oka az, hogy a mintában jelenlévő környezetek más-más diffúziós együtthatóval rendelkeznek és ezen környezetek térfogathányadának változásával a minta teljes egészére vonatkozó átlagos diffúziós együttható is változik. A döntően rendezett minták esetében azon komponens aránya, mely blokkolja a diffúziót, a besugárzás hatására lecsökken, míg azok aránya, amelyen keresztül a diffúzió gyorsabb, növekszik, ezáltal a minta egészére vonatkozó diffúziós együttható a besugárzás előrehaladtával nő.

### IV.6.3 Az eredmények kvantitatív értelmezése

A jelenség kvantitatív leírásához feltételeztem, hogy  $\tilde{D}$ , az ionkeveréshez kapcsolható effektív diffúziós együttható szakaszonként állandó, így egy tetszőleges térfogatban egy tetszőleges pozitív  $\tilde{D}_i$  értéket vesz fel. A  $^{57}\text{Fe}$  diffúziós hosszának négyzete  $W \propto (\tilde{D}t)^{1/2}$  a teljes rendszerben, hasonlóan egy véletlen ötvözethez, a mintában jelenlévő különböző vs környezetek diffúziós hosszai négyzetének súlyozott összege. Ekkor a rendszerre vonatkoztatott teljes  $Dt$  a következőképpen írható:

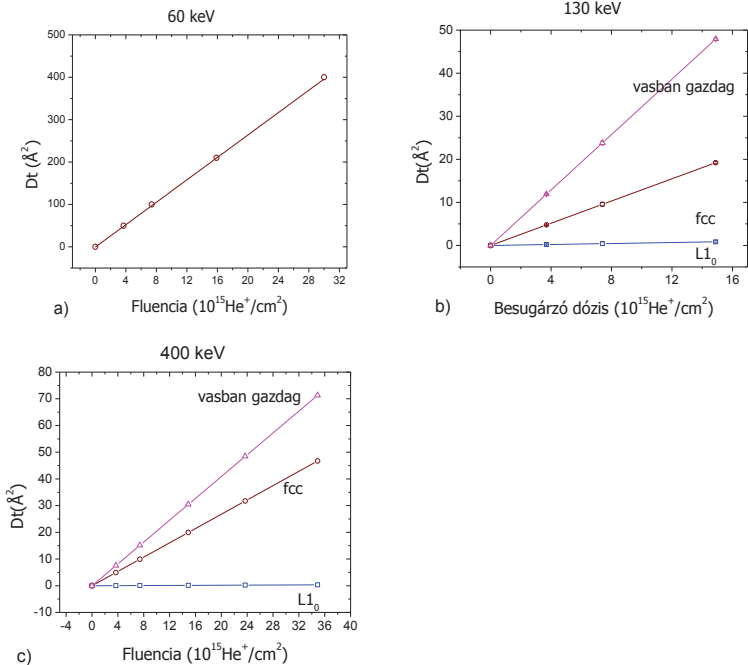
$$\tilde{D}t = x_{L10} \tilde{D}t_{L10} + x_{fcc} \tilde{D}t_{fcc} + x_{PO} \tilde{D}t_{Fe} \quad \text{IV.10}$$

Ahol  $x_{L10}$ ,  $x_{fcc}$ , és  $x_{Fe}$  az  $L1_0$ , a rendezetlen fcc, valamint a vasban gazdag tartományokhoz tartozó spektrális hányadok kiinduló- és végállapotokból meghatározott átlagértéke,  $D_{L10}$ ,  $D_{fcc}$ , és  $D_{Fe}$  pedig a megfelelő tartományokhoz tartozó diffúziós együtthatók. A komponensek koncentrációi, következképpen az effektív diffúziós együttható is függ a besugárzás mértékétől. Az arányok fluenciafüggését a CEMS spektrumok illesztéséből határoztam meg (lásd 66. ábra). Ezekkel a feltételekkel a fenti képlet a következőképpen írható:

$$\tilde{D}t(\phi) = (\tilde{D}t_{L1_0}^0 + a\phi) \frac{1}{\phi} \int_0^\phi x_{L1_0}(\phi) d\phi +$$

$$(\tilde{D}t_{fcc}^0 + b\phi) \frac{1}{\phi} \int_0^\phi x_{fcc}(\phi) d\phi + (\tilde{D}t_{Fe}^0 + c\phi) \frac{1}{\phi} \int_0^\phi x_{Fe}(\phi) d\phi$$

A rendezett és rendezetlen mintán az SMR mérésekből származtatott  $Dt$  fluenciafüggését szimultán illetve (69 ábra) a fenti képlettel, meghatároztam, hogy a különböző környezetek milyen mértékben vesznek részt a multirétegben végbemenő átlagos diffúzióban.

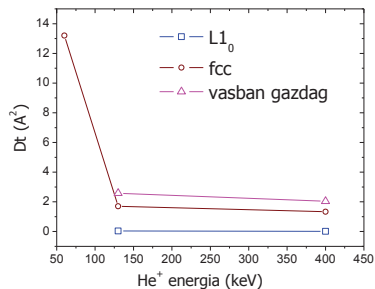


69 ábra A FePd-multirétegben jelenlévő különböző vas környezetekre vonatkozó  $Dt$  változása 60, 130 és 400 keV energiájú  $\text{He}^+$ -besugárzás hatására.

A legkisebb energiájú besugárzás esetén nem volt lehetőség a mintában jelenlévő komponensek effektív diffúziós állandóinak meghatározására, mivel a rendezett minta már a legkisebb fluenciánál rendezetlenné vált, ezáltal lehetetlenné téve a különböző környezetek változásának nyomon követését a besugárzó fluencia függvényében. 130 keV energián az effektív diffúziós paraméterek aránya a rendezett L1<sub>0</sub>, rendezetlen fcc és a részlegesen rendezett vasban gazdag

klaszterek szerkezetekben 1:42:64-re adódott. Ugyanez az arány 400 keV energiájú besugárzásnál 1:153:234. Mivel  $W \propto (\tilde{D}t)^{1/2}$  a diffúziós hosszak az  $L1_0$ , fcc és vasban gazdag szerkezetekben 130 keV-nél 1:6,4:8 szerint arányulnak egymáshoz, míg 400 keV esetén 1:12:15 a mintában jelenlévő szerkezetek  $Dt$ -aránya. Megállapítható, hogy a különböző vaskörnyezetekben a (felületre merőleges) diffúziós hosszak lényegesen különböznek egymástól. Megállapítható továbbá, hogy a minta kristálytani  $c$ -irányában (ami az epitaxiális mintában a közös, a minta síkjára merőleges) a diffúzió az  $L1_0$  fázisban erősen gátolva van és az atomi mozgás a  $^{57}\text{FePd}^{\text{nat}}\text{FePd}$  „határretegen” keresztül elsősorban a részlegesen rendezett vasban dús klaszterek rövidzaráin keresztül történik. Az  $L1_0$  réteges szerkezet kristályszerkezeti anizotrópiájára utalva feltételezhetjük, hogy a rendezetlen komponens diffúziós együtthatója az  $L1_0$  komponens  $c$ -irányú és a síkbeli (a kristálytani  $b$ -irányú) diffúziós együtthatója közé esik, mivel az fcc környezet esetén a vasnak a vakanciadiffúzió során véletlenszerűen, vagy palládiummal, vagy vassal kell helyet cserélnie, míg  $L1_0$  esetben  $c$ -irányban csak palládiummal,  $a$ - $b$  irányban csak vassal kell. Tehát az  $L1_0$  szerkezetben 130 keV energián az effektív diffúziós paraméter a  $c$ -irányban legalább 42-szer és 400 keV-en 153-szor kisebb, mint az  $a$ - $b$  irányban.

A 70. ábra a  $Dt$  görbék meredekségét mutatja a fluxus függvényében, azaz azt, hogy hogyan változik a különböző FePd környezetekben a  $Dt/\Phi$  mennyiség a besugárzás energiájának függvényében ( $\phi$  a besugárzás fluxusa). A 400 keV-es besugárzás esetében tapasztaltuk a legkisebb effektív diffúziós értékeket, míg a legkisebb energián a legnagyobbakat. A rendezetlen komponens esetén egy jelentős ugrást figyelhetünk meg ugyanezen paraméter értékében.



70. ábra Az  $L1_0$ , fcc és vasban dús FePd környezetek négyzetes diffúziós hossz paraméterének a besugárzás fluxusára normált érték változása a besugárzási energia függvényében.

Ez az ugrás nagyobb annál, mint ami pusztán a hatáskeresztmetszet növelésével indokolható lenne, hiszen az a besugárzó ion energiájának négyzetével fordítottan arányos. Ha csak a

hatáskeresztmetszet változása okozná a változást, akkor 60 keV-nél a mért  $13 \text{ \AA}^2$  helyett  $8 \text{ \AA}^2$ -t kellett volna kapnunk. Ez a különbség jóval hibahatáron kívül van, ezért feltételezhetjük, hogy ennél az energiánál a vakanciakeltés mellett már kaszkádfolyamatok is jelentős szerepet kapnak.

## IV.7 A hőkezelés és az ionsugaras keveredés összehasonlítása

Gyakorlati alkalmazások szempontjából igen jelentős lehet a kis energiájú könnyű ionokkal történő besugárzás és adott hőmérsékletű és hőtartási idejű hőkezelés hatásainak összehasonlítása. A hőkezeléssel szemben a besugárzásnak megvan az a nagy előnye, hogy a mintának csak egy, az általunk kívánt területét, illetve, hogy annak besugárzás által nem érintett tartománya mindvégig alacsony hőmérsékleten van, intakt. A hőkezelések hatását gyakran ismerjük, és ezért fontos, hogy tudjuk milyen energiájú és ionáramú besugárzással érhetjük el ugyanazt a hatást.

Az összehasonlítást a FePd-ban jelenlévő környezetek mindegyikére el kell végezni. Mértük a négyzetes diffúziós hosszt a fluxus és a besugárzó ion energiája, illetve a hőmérséklet és a hőtartás idejének függvényében. A diffúziós hossz a két esetben egyenlő, ha

$$\left[ K \Phi \frac{dE}{dx} \Big|_n \right]^{1/2} = \left[ D_o \exp\left(-\frac{Q}{kT}\right) t \right]^{1/2}, \quad \text{IV.12}$$

Ahol  $K$  arányossági tényező,  $\Phi$  a fluencia,  $t$  a hőtartás ideje,  $dE/dx|_n$  a nukleáris fékeződés,  $D_o$  a diffúziós pre-exponenciális tényező,  $Q$  a diffúzió aktiválási energiája és  $T$  hőkezelés abszolút hőmérséklete. A  $dE/dx|_n$ -nek az  $S_n(E)$  fékezési hatáskeresztmetszettel való kapcsolatát az anyag  $N$  atomi sűrűsége teremti meg [19]:

$$\frac{dE}{dx} \Big|_n = NS_n(E). \quad \text{IV.13}$$

Gyakorlati alkalmazások számára az univerzális fékeződés a következő alakban írható:

$$S_n(E_0) = \frac{8.462 \times 10^{-15} Z_1 Z_2 M_1 S_n(\varepsilon)}{(M_1 + M_2)(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})} \quad \text{IV.14}$$

Itt  $\varepsilon$  redukált energia:

$$\varepsilon = \frac{32.53 M_2 E_0}{Z_1 Z_2 (M_1 + M_2)(Z_1^{0.23} + Z_2^{0.23})}. \quad \text{IV.15}$$

Ezzel a redukált nukleáris fékeződés a következőképpen számítható

$$S_n(\varepsilon) = \frac{\ln(1 + 1.1383\varepsilon)}{2(\varepsilon + \varepsilon^{0.21226} + 0.19593\varepsilon^{0.5})}, \quad \text{IV.16}$$

ahol  $M_1$  és  $Z_1$  a besugárzó,  $M_2$  és  $Z_2$  pedig a céltárgyatom tömege, illetve rendszáma és  $E_0$  a besugárzó ion energiája. Ezt felhasználva az adott energiájú besugárzásnak megfelelő hőmérséklet:

$$T = \frac{Q}{k \ln \left( \frac{D_0}{K_1 N S_n(E)} \right)}, \text{ ahol } K_1 = \frac{K\Phi}{t}. \quad \text{IV.17}$$

Látszik, hogy adott besugárzó energiához tartozó hőmérséklet a  $\Phi/t$  hányadostól, azaz a besugárzás ionáramától függ. Ha tehát az ionáram ismert, akkor egy adott energián történő besugárzásnak megfelelő, ugyanazon ideig tartó hőkezelés hőmérséklete meghatározható. Ekkor

$$K_1 = \frac{K I_{ion}}{qe}, \quad \text{IV.18}$$

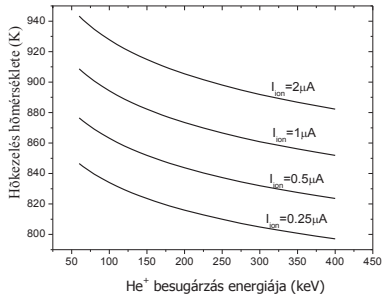
ahol  $I_{ion}$  a felületegységre vonatkozó ionáram-sűrűség ( $A/cm^2$ ),  $q$  az ionizációs fok és  $e$  az elemi töltés. A fenti paraméterek ismeretében az általam alkalmazott besugárzásokra a rendezetlen fcc FePd környezetre adott fluenciájú 60, 130 és 400 keV energiájú adott idejű besugárzással egyenértékű hőkezelési hőmérséklet kiszámolható (2. táblázat).

E(keV)	$I_{ion}$ ( $\mu A$ )	T(K)
60	0,45	872
130	0,2	761
400	0,25	760

2. táblázat Az adott energiájú és ionáramú  $He^+$ -ionbesugárzással egyenértékű, ugyanannyi ideig tartó hőkezelés hőmérséklete rendezetlen fcc FePd esetén

71 ábra látható a különböző ionáramra számolt kapcsolat a besugárzás energiája és a hőkezelés hőmérséklete közt, rendezetlen fcc FePd-ra  $He^+$  besugárzás esetén.

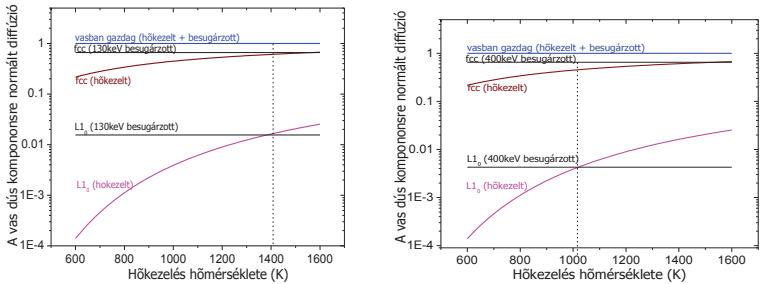




71 ábra Különböző ionáramokhoz tartozó He<sup>+</sup>-al történő besugárzás és hőkezelés kapcsolata. Az ábráról meghatározható, hogy adott ionáram mellett adott energián, milyen hőmérsékletű hőkezelést kell alkalmaznunk rendezetlen FePd esetén, hogy ugyanannyi idő alatt ugyanazt az eredményt kapjuk

Ez a modell csak abban az esetben igaz, ha csupán ballisztikus folyamatokat vizsgálunk, hiszen az esetleges kaszkád és egyéb folyamatok befolyással vannak a  $K$  arányossági tényezőre. A kísérletek alapján megállapítható, hogy 130 keV és annál nagyobb energiáknál ez a feltétel teljesül. Másrészt ez a modell nem veszi számításba a kristályszerkezetet (csupán a sűrűségeen keresztül), tehát a fékeződés szempontjából az L1<sub>0</sub> és fcc FePd ekvivalens, ami természetesen nem igaz.

A fent leírt módszer csak homogén mintára érvényes, hiszen a különböző fázisok diffúziós együtthatóinak hőmérséklet függése különböző. Ha az általunk is használt heterogén FePd rendszer esetében keresünk párhuzamot besugárzás és hőkezelés között, akkor azt a különböző komponensek diffúziós együtthatójának aránya vizsgálatával tehetjük meg (72 ábra). Itt a megfeleltetés feltétele nem az, hogy azonos ideig hőkezeljük, illetve sugározzuk be a mintát, hanem hogy a komponensek diffúziós együtthatójának aránya megegyezzen.



72 ábra A hőkezelt és a 130 keV (fent) ill. 400 keV (alul) energián  $\text{He}^+$ -mal besugárzott mintákon a különböző környezetek diffúziós együtthatójának a vasban gazdag szerkezet diffúziójára normált értékei

130 keV energiájú  $\text{He}^+$  besugárzás esetén található egy olyan hőkezelési hőmérséklet ahol a FePd-ban megtalálható különböző környezetek diffúziós együtthatójának aránya nagyjából megegyezik. Ez azt jelenti, hogy az 1410 K-en hőkezelt mintában a teljes diffúzióban az egyedi komponensek ugyanolyan súllyal vesznek részt, mintha 130 keV energiájú  $\text{He}^+$ -ionokkal sugároztuk volna be. 400 keV esetén a komponensek diffúziójának aránya nem feleltethető meg egyértelműen egy adott hőmérsékletű hőkezelésnek. Ha a rendezetlen komponenst nézzük, akkor a megfelelő hőkezelési hőmérsékletre  $\sim 1500$  K, míg az  $L1_0$  szerkezetre  $\sim 1000$  K adódott volna.

## IV.8 Ionnyaláb-litográfiával készült síkbeli mágneses mintázatok FePd filmekben

### IV.8.1 Bevezetés, motiváció

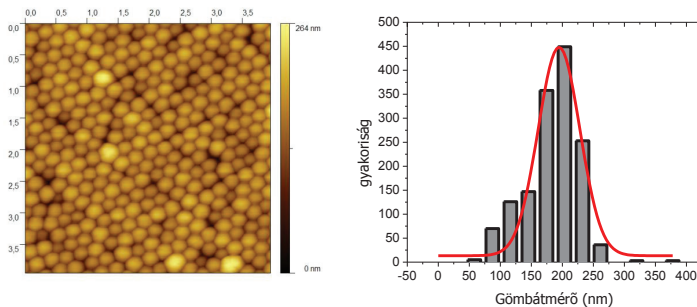
A szuperparamágneses határ leküzdésére a mágneses adattárolásban számos megoldást javasoltak. Egyik megoldás szerint litográfiai módszerekkel merőleges anizotrópiával rendelkező mágneses bevonatból nanorészecskék rendezett periodikus tömbjét hozzák létre nem mágneses hordozón [134, 135, 136]. Nanorészecskék előállítására számos megoldás van a kémiai reduktiótól [137], az UV fotolízisen [138], termikus szétválástáson [139], elektrokémiai szintézisen [140] át egészen az egzotikus szonokémiai szétválástásig [141].  $\text{SiO}_2$ -gömbök segítségével maszkolt ionimplantációjával is létrehozta már nanomintázatokat [142].

Mágneses mintázat létrehozásáról számoltak be CoPt ötvözetekben alacsony energiás  $\text{He}^+$  besugárzással [143]. A mintázatot elektronlitográfiával előállított,  $1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$  platina maszk segítségével 35 keV  $\text{He}^+$ -ionokkal érték el. Az így keletkezett mágneses szerkezet a maszk szerkezetét mintázta. Egy másik csoport, héliumbesugárzással érte el, hogy a SiC-maszkban

létrehozott alakzatok a mágneses mintázatba átmenjenek [144]. Ezekkel a módszerekkel nagyon egyenletes mintázat létrehozása lehetséges, azonban a maszk mérete korlátozott, lényegében legfeljebb 1 $\mu$ m lehet.

A korábbi fejezetekben már tárgyaltam, hogy a kisenergiás héliumbesugárzás hogyan „rontja el” a rendezettséget L<sub>10</sub> FePd-ban. Ezt az ismeretet felhasználva megmutatom, hogy megfelelő maszkon keresztül történő besugárzással lehetséges mágneses mintázat létrehozása, ami későbbi alkalmazásokban jelentőséggel bírhat. Az eredményül kapott mágneses szerkezet tulajdonságait CEMS, longitudinális és poláris MOKE, AFM és MFM mérésekkel határoztam meg.

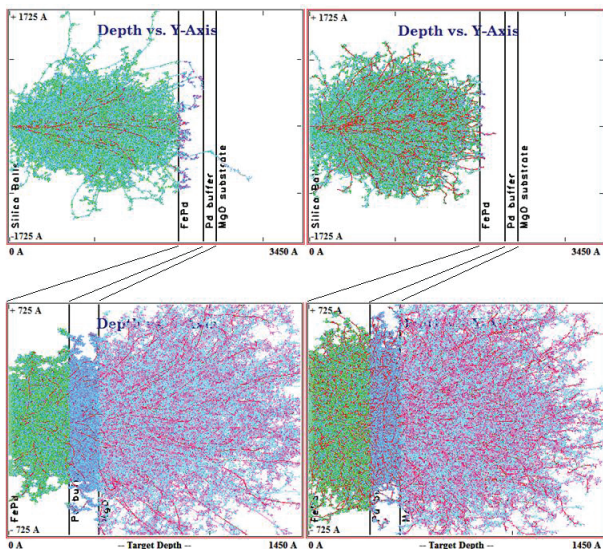
MBE-módszerrel a dolgozatban már több helyen leírt, az L<sub>10</sub> rézsarányra nézve optimális rendezett Cr(3nm)Pd(15nm)<sup>nat</sup>Fe<sub>47</sub>Pd<sub>53</sub>(30nm) rétegszerkezetet készítettünk 350 °C-on tartott MgO(001) hordozóra. Ezután Langmuir-módszerrel [145] a minta felületére 200 nm átmérőjű SiO<sub>2</sub>-gömbökből álló monoréteget vittünk fel.



73. ábra A FePd vékonyrétegre felvitt 200 nm átmérőjű SiO<sub>2</sub>-golyókról készült AFM-kép, valamint a képanalizisből számolt szemcseméret eloszlás

A felvitt rétegről készített AFM-felvételt a 73. ábra mutatja. A kép elemzéséből az átlagos szemcseméret 195 nm és a méreteloszlásra illesztett Gauss-görbe félérték szélessége ~75 nm volt.

Az ily módon maszkolt mintákat ezután Ne<sup>+</sup>, illetve Fe<sup>+</sup>-ionokkal sugároztuk be. A besugárzó energiát úgy terveztük megválasztani, hogy az lényegében ne tudjon áthaladni a SiO<sub>2</sub>-gömbökön, de a gömbök közötti áthaladt ionok közül minél kevesebb álljon meg a FePd rétegben (74 ábra), ehelyett, azon áthaladva, és abban szerkezeti változásokat előidézve, a MgO hordozóban álljon meg.

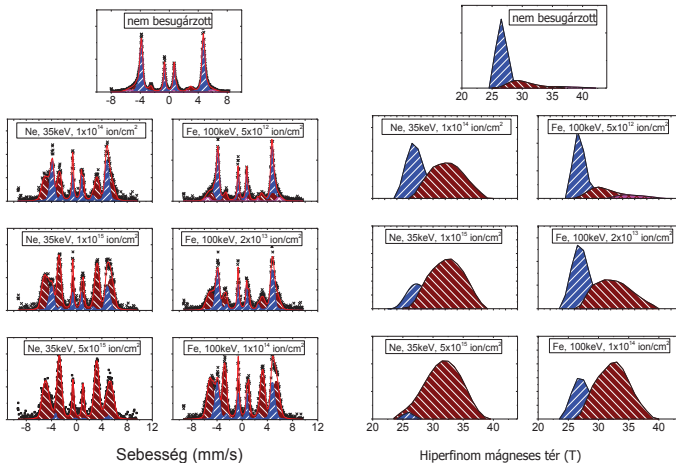


74 ábra A FePd-mintában szimulált besugárzó ionpályák 35 keV neon (balra) és 100 keV vas (jobbra) besugárzás esetén, a monodiszperz SiO<sub>2</sub>-gömbök jelenlétében (fent) és azok nélkül (lent).

A megfelelő energia megállapításához SRIM szimulációkat végeztem, melyből azt állapítottam meg, hogy neon esetén 35 keV, míg vas esetén 100 keV a legalkalmasabb besugárzási energia. Ekkor egy neon ion átlagosan 570, egy vas ion pedig átlagosan 2400 vakanciát kelt. A besugárzás fluenciáját, az ion várható szerkezetmódosító hatása alapján választottam meg. Neon esetén  $10^{14}$ ,  $10^{15}$  és  $5 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup>, míg vas esetén a maszkolt rétegeket  $5 \times 10^{12}$ ,  $2 \times 10^{13}$  és  $10^{14}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciával sugároztuk be.

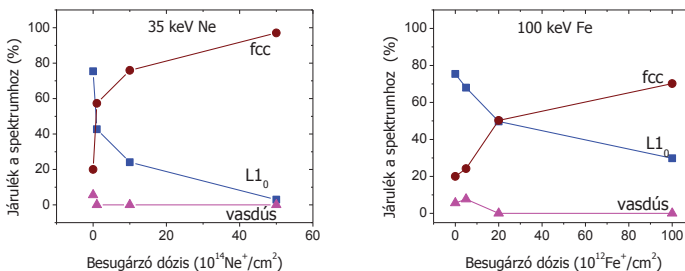
#### IV.8.2 A mágneses szerkezet vizsgálata konverzióelektron-Mössbauer-spektroszkópiával

A belső szerkezet nyomon követése céljából a mintákon CEMS méréseket végeztem. A 75. ábra a növesztés utáni, valamint a besugárzott mintákon mért CEMS spektrumokat, valamint az abból származtatott hiperfinom téreloszlásokat ábrázolja.



75. ábra A nem besugárzott és besugárzott mintákon készült CEMS-spektrumok (balra), valamint a hozzájuk tartozó hiperfinom térelszelés (jobbra),

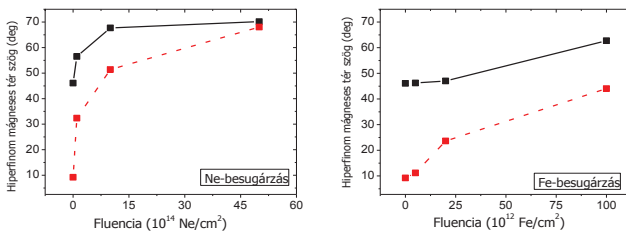
A nem besugárzott mintán megfigyelhető a korábban már részletesen leírt három mikrokörnyezet. Az  $L1_0$  szerkezetű, merőleges mágneses momentummal rendelkező komponens (kék), az fcc szerkezettel rendelkező, véletlen mágneses orientációjú komponens (barna), és a vasban dús merőleges mágneses anizotrópiájú komponens (rózsaszín). A mikrokörnyezetek neon, illetve a vasbesugárzás hatására bekövetkező spektrálishányad-változását szemlélteti a 76. ábra.



76. ábra A neonnal (balra), illetve vassal (jobbra) besugárzott mintákon a különböző mikrokörnyezetek részarányának változása a CEMS-spektrumok alapján.

A IV.5. fejezetben már tárgyaltam, hogy egy rendezett FePd-réteg besugárzás hatására rendezettsége csökken. Most is megfigyelhető volt a minta rendezetlenné válása, más szóval az

fcc környezet kialakulása a rendezett  $L1_0$  környezet rovására. A vasban gazdag környezet föloldódik besugárzás hatására, és kis fluenciáknál sem játszik fontos szerepet. Mint az várható is, a vas, illetve a neonion különböző fajlagos hatásfokkal alakítja át a szerkezetet. A neonnal történt besugárzásnál a legnagyobb  $5 \times 10^{15}$  ion/cm<sup>2</sup> fluencia hatására a minta csaknem teljes egészében rendezetlenné vált (96 % fcc). Vas esetében a legnagyobb alkalmazott fluenciánál is 30 %  $L1_0$  maradt a rétegben. A korábbi He<sup>+</sup>-besugárzásokhoz képest itt egy lényeges különbséget tapasztaltam. Míg a He<sup>+</sup>-ionokkal létrehozott fcc-környezet intenzitásarányai a momentumok véletlenszerű orientációját mutatták, itt a szemcséknek kezdetben a síkból többnyire kiálló mágnesszettsége a nagy fluenciájú besugárzások hatására befeküdt a síkba.

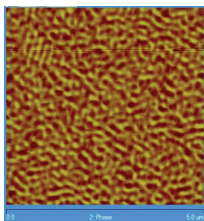


77. ábra A rendezetlen fcc komponens hiperfinom terének a beeső  $\gamma$ -nyalábhoz viszonyított irányváltozása (folytonos vonal) és a teljes mintában jelenlévő mindhárom komponensre vonatkoztatott súlyozott átlag hiperfinom mágneses tere irányának változása (piros szaggatott vonal) a besugárzási fluencia függvényében Ne és Fe implantálása esetén.

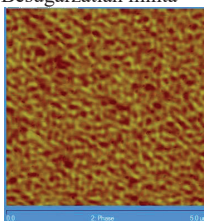
A nem besugárzott mintán a rendezetlen komponensben a hiperfinom tér közel véletlenszerű (46° a bejövő  $\gamma$ -nyalábhoz viszonyítva) beállású, ami a besugárzás fluenciájának növelésével, mind a neon mind a vas esetén a felület irányába fordult (70° és 62°-ra, 77. ábra folytonos vonal). Ez a tendencia az  $L1_0$  és a rendezetlen fcc komponens közti mágneses csatolás eredménye lehet. A várakozásoknak megfelelően az átlagos mágnesszettség (a mintában jelenlévő három környezet súlyozott átlaga) iránya is a minta síkja felé fordul el, amint a rendezett  $L1_0$  spektrális komponens aránya csökken a besugárzás hatására. (9 -ről 68 -ra, illetve 44 -ra a neon, illetve a vas esetében). Mindez úgy értelmezhető, hogy – ellentétben a He<sup>+</sup> besugárzás hatására létrejövő kemény mágneses szerkezethez – a neon- és a vas-besugárzás hatására lágyabb, valószínűleg kisebb szemcseméretű fcc-tartományok jönnek létre, amelyekben a mágneses domének a szemcséken túlnyúlnak ezért az anizotrópia kiátlagolódik.

### IV.8.3 Mágneses mikroszerkezet

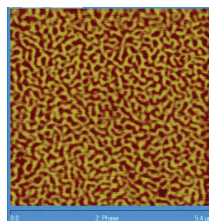
A nem besugárzott mintát mágneses erőmikroszkóppal (MFM) megvizsgálva, az irodalomból ismert csíkos doménszerkezetet tapasztaltam [125].



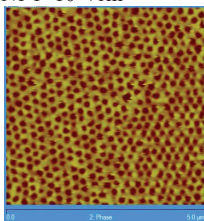
Besugárzatlan minta



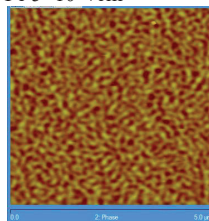
Ne  $1 \times 10^{14}/\text{cm}^2$



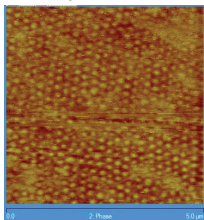
Fe  $5 \times 10^{12}/\text{cm}^2$



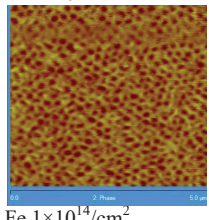
Ne  $1 \times 10^{15}/\text{cm}^2$



Fe  $2 \times 10^{13}/\text{cm}^2$



Ne  $5 \times 10^{15}/\text{cm}^2$



Fe  $1 \times 10^{14}/\text{cm}^2$

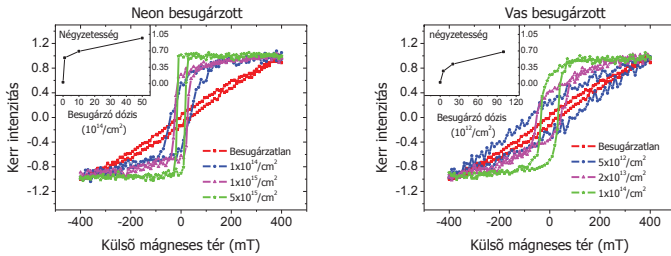
78 ábra Különböző fluenciákkal besugárzott FePd rétegekben jelenlévő mágneses mintázat

A legkisebb fluencia esetén, a besugárzó iontól függetlenül, a szűz mintához hasonló mágneses doménszerkezetet figyeltem meg.  $1 \times 10^{15}/\text{cm}^2$  of Ne and  $1 \times 10^{15}/\text{cm}^2$  neon, illetve vasbesugárzás

következményeképpen a csíkos jelet, egy a  $\text{SiO}_2$ -gömbök mintázatát tükröző mágneses szerkezet váltotta fel. Mivel a besugárzó ionok nem juthattak el a nanogömbök alatti térfogatba (a laterális szóródástól eltekintve), a  $\text{SiO}_2$ -gömbök alatt a mágnesezettség megmaradt az  $\text{L1}_0$  szerkezetre jellemző, a felületre merőleges irányúnak, de a köztes tartományokban, a FePd rendezetlenné válása miatt a mágnesezettség iránya befordult a síkba.

#### IV.8.4 A nanomintázatu réteg átlagos mágnesezettsége

A felülettel párhuzamos mágnesezettséget longitudinális MOKE-mérésekkel vizsgáltam (79. ábra).



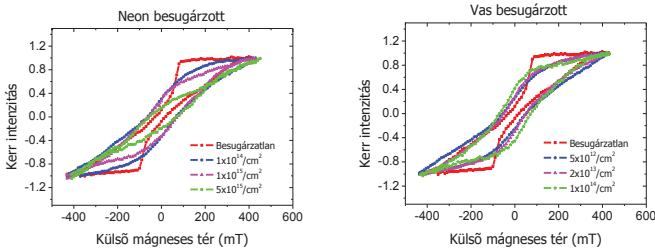
79. ábra Neonnal (balra) és vassal (jobbra) besugárzott mintákon végzett longitudinális MOKE-hurkok, valamint a görbékre jellemző négyzetesség paraméter változása (belső ábra)

A nem besugárzott és a legkisebb vas fluenciával besugárzott minták kivételével, az elérhető 400 mT külső mágneses tér elegendő volt a rétegek telítéséhez. A besugárzás fluenciájának növelésével a görbéket jellemző négyzetesség paraméter (a remanencia mágnesezettség és a telítési mágnesezettség hányadosa) monoton növekedést mutatott, míg koercitív erő ezzel ellentétben, folyamatosan csökkent (79. ábra, bal oldali kép). A legnagyobb fluenciánál, ahol a CEMS eredmények szerint, a FePd szinte kizárólag fcc szerkezetű volt, a minta teljesen telítődött és a koercitív erő 10 mT-ra csökkent (a kisebb fluenciájú mintáknál, a telítődés hiányában nem lehet pontos koercitív erőt megállapítani, csak alsó becslést adni). A négyzetesség paraméter a kezdeti 0,03-ról egészen 0,97-re emelkedett, ami szinte tökéletesen négyzetes hiszterézisgörbét jellemez. Az eredmények alátámasztják, hogy a mintában a merőleges anizotrópiát preferáló kemény mágneses szerkezet ( $\text{L1}_0$ ) folyamatosan átalakul síkban könnyen mágnesezhető lágy mágneses fcc szerkezetekké.

A vassal besugárzott minták esetén is hasonló tendenciát figyeltem meg (79. ábra, jobb kép), habár a legnagyobb alkalmazott fluencia itt nem volt elég a FePd teljes rendezetlenné válásához, ezért a koercitív erő itt csak 30 mT-ra csökkent és a négyzetesség csupán 0,68-ra nőtt.



A felületre merőleges mágnesezettség változását poláris MOKE mérésekkel vizsgáltam (80. ábra).



80. ábra Neonnal (balra) és vassal (jobbra) besugárzott mintákon végzett poláris MOKE görbék, valamint a görbékre jellemző négyzetesség paraméter változása (belső ábra)

A görbék elemzése megfigyelhető, hogy az előbb tárgyaltakkal éppen ellentétes folyamatok mennek végbe, ami nem meglepő, hiszen ebben az esetben a felületre merőleges komponens a besugárzás fluenciájának növelésével csökken, ami nehezebb mágnesezhetőségben jelentkezik a mintára merőleges irányban. Megfigyelhető, hogy míg longitudinálisan a nem besugárzott mintát nem tudtam telítésbe vinni (a mágneses momentumok nem tudtak befordulni a síkba), addig ez a poláris elrendezésben nagyjából 400 mT tér alkalmazásával sikerült (az összes mágneses momentum a felületre merőlegesen állt be). A fluencia növelésével mindkét ionnal történő besugárzás esetén, a görbék kilapulása figyelhető meg, mivel a mágnesezési folyamatot egyre inkább az fcc szemcsék alakánizotrópia-járuléka határozza meg. A hiszterézisgörbe jellege a nem besugárzott mintán, beleértve középen a „befűződést” is, az  $L1_0$  szerkezet és a csíkos doménszerkezet jellegzetessége [146]. A merőleges mágnesezettségű domének viszonylag könnyen telítésbe vihetők doménfalmozgás által, azonban a nagy nukleációs tér következményeképpen, nehéz azokat lemágnesezni [147]. Még a legkisebb besugárzó fluencia is elég ahhoz, hogy létrejöhessenek az ellentétes irányú domének nukleációjához szükséges centrumok, ami a „hagyományos” alakú hiszterézisgörbét eredményezi.

#### IV.8.5 Az eredmények értelmezése

Az MFM-képelemzés során a kerek foltok a teljes terület 30%-t foglalták el. Ez jó egyezést mutat a merőleges komponens CEMS mérésekből számolt aránya csökkenésével, ahol az  $L1_0$  komponens 75%-ról 25%-ra csökkent. Ez azt jelenti, hogy a mintában jelenlévő  $L1_0$  vaskörnyezetek 33%-a nem vált rendezetlenné az adott besugárzási energián és fluenciánál. A merőleges mágneses anizotrópiával rendelkező mágneses foltok átlagos átmérője 140 nm-nek

adódott, a legközelebbi szomszédok közötti 230 nm-es átlagos távolsággal.  $1 \times 10^{14}/\text{cm}^2$  fluenciájú vasbesugárzás esetén is hasonló geometriát figyeltünk meg a mágneses doménszerkezetben.

A legnagyobb fluenciájú neonbesugárzás esetén ( $5 \times 10^{15} /\text{cm}^2$ ) a mágneses mintázat szinte teljesen „kifakult” és a CEMS eredmények alapján csupán 3%  $L1_0$  szerkezetű FePd maradt a mintában. Ez utóbbi a laterális szóródás szerepére hívja fel a figyelmet: a SRIM szimulációk szerint az átlagos behatolási mélység ( $R_p$ ) és annak szórása ( $\Delta R_p$ ) 100 keV vas esetén  $95 \pm 30$  nm, 35 keV neon esetén ( $85 \pm 35$ ) nm, míg a laterális szóródás mindkét esetben 20 nm. Ebből adódóan a maszkolás geometriai feltételei nagyon hasonlóak. Másrésztől viszont a besugárzás következtében létrejött rendezetlenebb szerkezet, az egy atomra vonatkoztatott elmozdulással (displacement per atom, dpa) arányos, és így, a vasra vonatkoztatott normalizált fluencia négyszerese a neon esetén használttal. SRIM-szimulációkból neon esetén 15 dpa és vas esetén 60 dpa adódott 1 nm mély tartományban, maximális roncsolás esetén. Ezeket az adatokat figyelembe véve megállapítható, hogy ha a fluenciafüggést a megfelelő ionra vonatkozó dpa skálára transzformáljuk, akkor mind neon, mind vas esetében hasonló eredményeket kapunk.

A fenti kísérletsorozattal bizonyítottam, hogy Langmuir-módszerrel felvitt nanogömbmaszkon át történő besugárzással periodikus mágneses szerkezet hozható létre nagyrészt rendezett  $\text{Fe}_{47}\text{Pd}_{53}$  ötvözetfilmekben. A maszkra jellemző szerkezet a neon és vasbesugárzás hatására „átöröklődött” a réteg mágneses szerkezetére, és a rendezett  $L1_0$  és rendezetlen fcc FePd-tartományok alakultak ki.

A mágneses bitek sűrűsége a  $\text{SiO}_2$ -gömbök méretének csökkentésével tovább növelhető. Korábban közölték, hogy akár 50 nm átmérőjű gömbök is előállíthatók [148], de ekkor a besugárzó ion energiáját is csökkenteni kell, hogy a gömbök képesek legyenek az ionokat meggátolni abban, hogy behatoljanak a rétegbe. Ezért előnyösebb lenne olyan golyókból álló réteget használni maszknak, amely nagyobb rendszámú anyagokból áll (pl.  $\text{Au}/\text{SiO}_2$  [149],  $\text{TiO}_2$  [150], stb.), így megnövelve a gömbök ionokra gyakorolt fékződését.

## V Összefoglalás

Doktori munkám mind alap-, mind alkalmazott kutatási eredményeket tartalmaz. Alaputatási vonulata különböző fémrétegekben a mágneses anizotrópia ionbesugárással történő módosítása volt. Részletesen vizsgáltam a  $\text{Fe}_{50}\text{Pd}_{50}$ , összetétel körüli, a nagysűrűségű mágneses tárolásban is fontos anyag szobahőmérsékleten metastabilis  $\text{L1}_0$ -szerkezetének stabilitását, átalakulásait, diffúziós folyamatait.

Izotópperiodikus multirétegeket alkalmazva, neutron- és Mössbauer-reflektometriával megállapítottam, hogy a FePd-filmekben jelenlévő különböző szimmetriájú lokális környezetekhez hőkezelés, valamint ionsugaras keverés során ezen környezetek térfogathányadának változásával együtt az átlagos diffúziós együttható is változik, és sikerült ezek, nevezetesen a rendezett  $\text{L1}_0$ , a rendezetlen fcc, valamint vasban gazdag környezet diffúziós együtthatóit külön-külön meghatároznom. A különböző energiákon végzett He-besugárzások során, e környezetek effektív (ionkeverési) diffúziós együtthatóit is meghatároztam, és a hőkezelt mintákkal történt összehasonlításból meghatároztam azt a hipotetikus hőkezelési hőmérsékletet, amelyen azonos mértékű diffúziós keveredés történne. E munkák előtanulmányaként vizsgáltam különböző nikkellrétegek sajátion-besugárzás hatására történő atomi és mágneses szerkezetváltozásait. Ezek jelentősen függtek a rétegnövesztés körülményeitől. A fluencia növelésével a belső feszültségek relaxáltak és előjelet is váltottak. Kapcsolatot találtam a szemcseméret, a mágneses anizotrópia és a belső feszültségek között.

A megszerzett ismereteket a gyakorlatban három területen is alkalmaztam. A mágneses neutron-szupertükrökben a gyártáskor visszamaradt feszültséget 500 keV He-besugárással a reflektivitás számottevő romlása nélkül 80%-kal csökkentettem. Fe/Si mágneses neutron monokromátorban speciális rétegprofil-tervezéssel és ionbesugárással 97 %-os polarizációs hatások mellett a magasabb rendű Bragg-reflexiók arányát sikerült 0,2 %-ra csökkentenem. Kidolgoztam egy a nagysűrűségű mágneses tárolásban hasznosítható (200 nm-es önszerveződő  $\text{SiO}_2$  gömbökből mint maszkoló rácsból álló) ionnyaláb-litográfias módszert periodikus laterális mágneses mintázat létrehozására.

Munkám során a fenti vizsgálatok céljára magnetooptikai Kerr-berendezést fejlesztettem, automatizáltam az RMKI MBE-berendezését és lényeges szerepet vállaltam a Budapesti Neutronközpontban elkészült GINA neutronreflektométer megépítésében.

## VI Summary

These PhD Theses contain basic and applied research results alike. Its basic research section is mainly related to the modification of magnetic anisotropy in various metallic alloy films by charged ion irradiation. I studied the structure and stability of FePd near the equi-atomic concentration and diffusion phenomena in  $L1_0$  structure, metastable at room temperature.

By using the isotope-periodic multilayer method in neutron- and Mössbauer reflectometry, I found the average diffusion coefficient to vary in FePd multilayers during the annealing and ion-beam mixing due to the variation of the volume fractions of three local environments of different symmetries. I was able to determine the individual diffusion coefficients for these, namely for the ordered  $L1_0$ , for the disordered fcc and for the iron-rich environments. I also determined the effective (ion-mixing) diffusion coefficients for He-irradiations of different impact energies and a hypothetical annealing temperature was determined at which the diffusion mixing would be identical with the ion-beam mixing. As a preparation for these studies I investigated the variation of the atomic and magnetic structure of Ni films upon own-ion irradiation and found a significant dependence on the film preparation method. Upon increasing the irradiation fluence, the internal stress relaxed and occasionally changed sign. I found and studied correlations between grain size, magnetic anisotropy and residual stress.

I have utilized the acquired knowledge in three application oriented areas: a) I decreased the detrimental preparation-induced residual stress by 80% in magnetic neutron supermirrors by 500 keV He-irradiation without significant deterioration of the reflectivity, b) I decreased the total higher-order Bragg-peak intensity to 0.2 % in Fe/Si magnetic neutron monochromators by special layer profile design and ion-beam mixing, while maintaining a polarization efficiency of 97 %, c) I developed an ion-beam lithographic method (using 200 nm diameter self-organizing  $\text{SiO}_2$ -spheres as irradiation masks) to produce periodic lateral patterns which may find applications in high density magnetic recording.

For the above studies, during my PhD years I developed a magneto-optical Kerr setup, automated the molecular beam epitaxy laboratory of the KFKI RMKI, and took an important part in developing the GINA polarized-neutron reflectometer at the Budapest Neutron Centre.

## VII Tézisek

1. Molekulanyaláb-epitaxiás (MBE) növesztés optimalizálásával sikeresen növesztettem rendezett (~81 %-ban L1<sub>0</sub>) epitaxiális FePd rétegeket MgO(001) hordozón. Ilyen nagymértékben rendezett FePd-ről eddig (a Web of Science adatbázis szerint) tudományos folyóiratban nem számoltak be [MD1],[KA].
  - a) Megállapítottam, hogy nagy rendparaméter esetén a mintában a kristályszerkezet-átalakulás nyomán bekövetkezett mágneses szerkezetváltozások a <sup>57</sup>Fe Mössbauer-spektrumokban már olyan kis ionbesugárzási fluenciáknál is érzékelhetők, ahol az irodalomban említett más módszerek esetén még nem. Az irodalommal összhangban három elkülöníthető hiperfinom térelosztást találtam, ami az L1<sub>0</sub>-ra jellemző négyfogatású planáris, az fcc fázisban lévő köbös és egy ennél is több közvetlen vasszomszédot tartalmazó „vasdús” lokális Fe-környezetnek feleltethető meg [MD1].
  - b) FePd-mintákban összevetve a Mössbauer-vonalak kvardupólus felhasadása és a rácsállandók besugárzási fluenciafüggését, a minta síkjából kiálló nyomó-, és a minta síkjában ható húzófeszültség jelenlétére következtettem [MD1].
- 2) 60, 130 és 400 keV energiájú He<sup>+</sup>-ionokkal besugárzott rendezett és rendezetlen izotópperiodikus [<sup>57</sup>FePd/<sup>natural</sup>FePd]<sub>10</sub> rétegek szinkrotron Mössbauer-reflektometriai (SMR) és neutronreflektometriai (NR) méréseiből [MD2] megállapítottam, hogy a fent említett Fe-környezetek más-más ionkeveredési effektív diffúziós együtthatóval rendelkeznek, és e környezetek térfogatarányának változása figyelhető meg az átlagos diffúziós együttható változásában. Meghatároztam e környezetek effektív diffúziós hosszainak fluenciafüggését a három alkalmazott He<sup>+</sup>-besugárzási energiára és ebből megállapítottam, hogy az L1<sub>0</sub> fázis kristálytani *c*-irányában, az ionkeveredési diffúzió erősen gátolt. A Fe öndiffúziója ebben az irányban döntően a vasban dús és az fcc környezeteken keresztül történik.
- 3) Izotópperiodikus, (001) növesztésű epitaxiális (<sup>57</sup>FePd/<sup>natural</sup>FePd) multirétegek különböző hőmérsékleteken és hőtartási idővel végzett hőkezeléseiből az SMR, illetve NR-görbék illesztéséből az egyes Fe-környezetek krisztallográfiai *c*-irányára vonatkozó [MD3]

- a) preexponenciális tényezőkre és diffúziós aktiválási energiára rendre:  $D_{L10}^0 = 5,76 \times 10^{-14} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$   
 $Q_{L10} = 1,82 \text{ eV}$ ,  $D_{fcc}^0 = 1,32 \times 10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$   $Q_{fcc} = 1,48 \text{ eV}$ ,  $D_{Fe}^0 = 1,01 \times 10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ,  $Q_{Fe} = 1,39 \text{ eV}$   
értékeket kaptam.
- b) legnagyobb diffúziós együtthatójú vasdús környezet csak néhány százalékban van jelen a mintákban, ezért a diffúziós hosszát alapvetően a félakkora diffúziós együtthatójú fcc környezet határozza meg. Az L1<sub>0</sub> komponensben a diffúziós együttható a vizsgált 500–800 K hőmérséklettartományban 2 nagyságrenddel kisebb, mint az fcc-ben, azaz az Fe öndiffúziója a kristálytani *c*-irányban erősen gátolt.
- 4) 130 keV és 400 keV energiájú He-besugárzásokhoz hozzárendeltem az 1410 K, illetve 1000-1500 K hipotetikus hőkezelési hőmérsékleteket, amelyekben az adott energiájú besugárással azonos mértékű diffúziós keveredés történik.
- 5) Az NR- és SMR-módszerrel ugyanazon mintán meghatározott diffúziós hosszak látszólagos különbözőségét a kétfajta kísérletben használt nyaláb lenyomatának különbözőségével magyaráztam. A cm-es szélességű nyaláblenyomat NR esetén kiátlagolja a határfelületek laterális vastagságmodulációit, ami látszólag nagyobb kezdeti diffúziós keveredési tartományt és részben lecsökkent Bragg-csúcsokat eredményez. Az effektus lényegesen kisebb az SMR-mérésnél, ahol a röntgennyaláb csupán 0,2 mm széles [MD4].
- 6) Az 1) és 2) tézispontokban leírt alapkutatási eredmények alkalmazásképpen a mágneses tárolásban jelentős – merőleges mágneses anizotrópiájú mintázatot sikerült létrehoznom. Átlagosan 200 nm átmérőjű SiO<sub>2</sub>-gömbökből álló monoréteg-maszk használatával FePd-rétegben 100 keV vas, illetve 35 keV neon adott besugárzási fluenciartományában a maszkra jellemző periodikus mintázat jött létre [MD5].
- 7) Elektronagyús (EGE) valamint MBE leválasztással készült nikkelfilmek Ni<sup>+</sup> sajátionnal történő besugárzásának hatásai méréseim szerint jelentősen függenek a növesztés módjától. Az EGE-minták tulajdonságai (koercitív erő, belső feszültség, mágneses anizotrópia) sokkal távolabb állnak az egyensúlyi értékektől. EGE-mintában a koercitív erő és a belső feszültség 300 Oe, illetve 1,41 GPa, szemben az MBE-s minták 16 Oe, illetve 0,31 GPa értékeivel. MBE-s mintáknál a belső feszültség előjelet is vált, húzóból nyomófeszültséggé alakul. Kapcsolatot találtam a belső feszültség és a két és négyfogatású mágneses anizotropia között. [KZ].

- 8) A 7) tézispontban leírt alapkutatási eredmények alkalmazásaképpen Fe/Si mágneses neutron szupertükrökben vizsgáltam a rétegszerkezetben visszamaradt, egyben technológiai problémát jelentő belső feszültség és a funkcionális mágneses és neutronoptikai tulajdonságok összefüggéseit. A rétegekészítéskor 1,76 GPa nagyságú belső feszültséget 500 keV  $\text{He}^+$ -ionbesugárzással technológiailag megfelelő szintre sikerült csökkenteni. A rétegfeszültség 60, illetve 80 %-os csökkenésének ára viszont az, hogy a Fe/Si szupertükrök reflektivitása a kritikus szögnel rendre 17, illetve 24 %-kal csökken, miközben a reflektált nyaláb polarizációs hatásfoka 2 illetve 4 %-kal romlik [MD6].
- 9) A 2) tézispontban is leírt, a réteprofilok diffúziós kisimulásával kapcsolatos ismeretek gyakorlati hasznosításaképpen, erősen csökkentett felharmonikus intenzitású, polarizáló neutronmonokromátort sikerült készítenem. Háromféle, a megfelelő ipari berendezésen is előállítható rétegszerkezet profiljának növesztés alatti, illetve utólagos (ionbesugárzás általi) alakításával a magasabb rendű Bragg-reflexiók együttes intenzitását 22 %-ról 2,2 %-ra csökkentettem anélkül, hogy az első Bragg-csúcsban a reflektált intenzitás jelentősen csökkent volna. A tükrök polarizációs hatásfokában egyes esetekben növekedést tapasztaltam. Aperiodikus szerkezetek alkalmazása monokromáló tükrök tervezésében az irodalomban eddig nem leírt újszerű megoldás [MD7].

## VIII A bírálók javaslatait tartalmazó átfogalmazott tézispontok

- 1) MgO(001) hordozóra molekulanyaláb-epitaxia (MBE) módszerrel növesztett, ~81 %-ban L<sub>10</sub>-szerkezetbe rendeződött epitaxiális FePd rétegeket He<sup>+</sup> ionokkal besugározva megállapítottam, hogy
  - a) A nagy rendparaméter-tartományban ( $S \approx 0,9$ ) a kristályszerkezet-átalakulás nyomán bekövetkezett mágneses szerkezetváltozások a <sup>57</sup>Fe Mössbauer-spektrumokban már olyan kis ionbesugárzási fluenciáknál is érzékelhetők, amelyeknél más módszerek esetén még nem. Az irodalommal összhangban három elkülöníthető hiperfinomtér-eloszlást találtam, amelyek a tetragonális L<sub>10</sub>, az fcc fázisban lévő köbös és egy „vasban gazdag” lokális Fe-környezeteinek feleltethetők meg [MD1],[KA].
  - b) Összevetve a rácsállandók, illetve az L<sub>10</sub> komponens kvardupólusfelhasadása besugárzási fluenciától való függését, a minta síkjára merőleges nyomó-, és a minta síkjában ható húzófeszültség jelenlétére következtettem [MD1].
- 2) 60, 130 és 400 keV energiájú He<sup>+</sup>-ionokkal besugárzott rendezett és rendezetlen izotópperiodikus [<sup>57</sup>FePd/<sup>nat</sup>FePd]<sub>10</sub> rétegek szinkrotron-Mössbauer-reflektometriai (SMR) és neutronreflektometriai (NR) méréseiből [MD2] megállapítottam, hogy a fent említett Fe-környezetek más-más ionkeveredési effektív diffúziós együtthatóval rendelkeznek, és e környezetek térfogatarányának változása figyelhető meg az átlagos diffúziós együttható változásában. Meghatároztam e környezetek effektív diffúziós hosszainak fluenciafüggését az alkalmazott három He<sup>+</sup>-besugárzási energiára és ebből megállapítottam, hogy az L<sub>10</sub> fázis kristálytani c-irányában az ionkeveredési diffúzió erősen gátolt. A Fe öndiffúziója ebben az irányban döntően a vasban gazdag és az fcc környezeteken keresztül történik.
- 3) (<sup>57</sup>FePd/<sup>nat</sup>FePd) izotópperiodikus epitaxiális, különböző hőmérsékleteken és hőntartási idővel hőkezelt multirétegeken felvett SMR, illetve NR-görbék illesztéséből az alábbi megállapításokra jutottam:
  - a) A szerkezetileg inhomogén FePd minták diffúziója nem írható le egyetlen diffúziós állandó alkalmazásával. Az általam használt modell a teljes rendszer diffúziós állandóját a különböző vaskörnyezetek egyedi diffúziós állandóinak a komponensek



koncentrációjával súlyozott összegeként határozza meg. A modellből ily módon az egyes Fe-környezetek (krisztallográfiai *c*-irányra vonatkozó) preexponenciális tényezőire és diffúziós aktiválási energiáira [MD3],  $D_{L10}^0 = (5,76 \pm 0,35) \cdot 10^{-14} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ,  $Q_{L10} = (1,82 \pm 0,38) \text{ eV}$ ,  $D_{fcc}^0 = (1,32 \pm 0,45) \cdot 10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ,  $Q_{fcc} = (1,48 \pm 0,26) \text{ eV}$ ,  $D_{Fe}^0 = (1,01 \pm 0,61) \cdot 10^{-13} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  és  $Q_{Fe} = (1,39 \pm 0,23) \text{ eV}$  értékeket kaptam. Fentiekből láthatóan az L1<sub>0</sub> környezet krisztallográfiai *c*-irányában a vas öndiffúziója az fcc környezethez képest erősen gátolt.

- b) Az L1<sub>0</sub>, fcc és vasban gazdag FePd-környezetek keveredési mértékének összehasonlításával a 130 keV és 400 keV energiájú He<sup>+</sup>-besugárzások, valamint 500–800 K hőmérséklettartományban végzett hőkezelések alapján meghatároztam azokat a hipotetikus hőkezelési hőmérsékleteket (130 keV esetén 1410 K, míg 400 keV esetén 1000–1500 K), amelyek az adott energiájú besugárzásokkal azonos idejű hőkezelések azonos mértékű diffúziós keveredést okoznának.
- c) Az NR- és SMR-módszerrel ugyanazon mintán meghatározott diffúziós hosszak látszólagos különbözőségét a kétfajta kísérletben használt nyaláb lenyomatának különbözőségével magyaráztam. A cm-es szélességű nyaláblenyomat NR esetén kiátlagolja a határfelületek laterális vastagságmodulációit, ami látszólag nagyobb kezdeti diffúziós keveredési tartományt és részben lecsökkent Bragg-csúcsokat eredményez. Az effektus lényegesen kisebb az SMR-mérésnél, ahol a röntgennyaláb csupán 0,2 mm széles [MD4].
- 4) Az 1) és 2) tézispontokban leírt alapkutatási eredmények alkalmazásaképpen – a mágneses tárolásban jelentős – merőleges mágneses anizotrópiájú mintázatot sikerült létrehoznom. Átlagosan 200 nm átmérőjű SiO<sub>2</sub>-gömbökből álló monoréteg-maszok használatával FePd-rétegben 100 keV vas, illetve 35 keV neon adott besugárzásai fluenciatartományában a maszkra jellemző periodikus mintázat jött létre [MD5].
- 5) Elektronágyús (EGE) valamint MBE leválasztással készült nikkelfilmek Ni<sup>+</sup> sajátiónnal történő besugárzásának hatásai méréseim szerint jelentősen függenek a növesztés módjától. Az EGE-minták kiindulási tulajdonságai (koercitív erő, belső feszültség, mágneses anizotrópia) jelentősen eltérnek a tömbi (egyensúlyi) értékektől, lényegesen jobban, mint azt az MBE párologtatott mintáknál tapasztaltam. Az EGE-mintákban a

koercitív erőre és a belső feszültségre növesztés után 300 Oe, illetve 1,41 GPa értékek adódtak, szemben az MBE-s minták 16 Oe, illetve 0,31 GPa értékeivel. A besugárzás hatására a belső feszültségek mindkét esetben relaxálódtak, de az MBE-s mintáknál a  $10^{16}$  ion/cm<sup>2</sup> fluenciánál még előjelet is váltottak, azaz a húzófeszültség nyomófeszültséggé alakult át. Kapcsolatot találtam a belső feszültség és két és a négyfogású mágneses anizotrópia között. [KZ].

- 6) Az 5) tézispontban leírt alapkutatási eredmények alkalmazásaképpen Fe/Si mágneses neutron szupertükrökben vizsgáltam a rétegszerkezetben visszamaradt, egyben technológiai problémát jelentő belső feszültség és a funkcionális mágneses és neutronoptikai tulajdonságok összefüggéseit. A rétegekészítéskor 1,76 GPa nagyságú belső feszültséget 500 keV He<sup>+</sup>-ionbesugárzással technológiailag megfelelő szintre sikerült csökkenteni. A rétegfeszültség 60, illetve 80 %-os csökkenésének ára viszont az, hogy a Fe/Si szupertükrök reflektivitása a kritikus szögnél rendre 17, illetve 24 %-kal csökken, miközben a reflektált nyaláb polarizációs hatásfoka 2 illetve 4 %-kal romlik [MD6].
- 7) A 2) tézispontban is leírt, a rétegprofilok diffúziós kisimulásával kapcsolatos ismeretek gyakorlati hasznosításaképpen, erősen csökkentett felharmonikus intenzitású, polarizáló neutronmonokromátort sikerült készítenem. Háromféle, a megfelelő ipari berendezésen is előállítható rétegszerkezet profiljának növesztés alatti, illetve utólagos (ionbesugárzás általi) alakításával a magasabb rendű Bragg-reflexiók együttes intenzitását 22 %-ról 2,2 %-ra csökkentettem anélkül, hogy az első Bragg-csúcsban a reflektált intenzitás jelentősen csökkent volna. A tükrök polarizációs hatásfokában egyes esetekben növekedést tapasztaltam. Aperiodikus szerkezetek alkalmazása monokromáló tükrök tervezésében az irodalomban eddig nem leírt újszerű megoldás [MD7].

### VIII.1 A tézispontokhoz tartozó közlemények

[MD1] D. G. Merkel, M. Major, A. Németh, Sz. Sajti, F. Tanczikó, L. Bottyán, Z.E. Horváth, J. Waizinger, S. Stankov, A. Kovács; „Modification of local order in FePd films by low energy He<sup>+</sup> irradiation”; J Appl Phys 104: 013901 (2008)

[KA] A Kovács, D.G. Merkel, F. Tanczikó, S. Stankov, Y. Hirotsu, L. Bottyán; „He<sup>+</sup> ion irradiation-induced disordering in L1<sub>0</sub>-FePd thin films: Ion fluence dependence”; Scripta Mater 58: 635-638 (2008)

[MD2] D. G. Merkel, A. Kovács, F. Tanczikó, Sz. Sajti, M. Major, Cs. Fetzter, R. Ruffer, S. Stankov and L. Bottyán: “Self-Diffusion of Iron in L1<sub>0</sub> FePd films Upon He-irradiation“ <http://arxiv.org/abs/1109.4742>

[MD3] D. G. Merkel, Sz. Sajti, F. Tanczikó, M. Major, Cs. Fetzter, A. Kovács, A. Rühm, J. Major, R. Ruffer and L. Bottyán: “Self-Diffusion of Iron in L1<sub>0</sub> FePd film - as revealed by reflectometric methods“ <http://arxiv.org/abs/1109.4751>

[MD4] DG Merkel, Sz Sajti, Cs Fetzter, M. Major, J Major, R Ruffer, A Rühm, S Stankov, F Tanczikó, L Bottyán; “Isotope-periodic multilayer method for short self-diffusion paths – a comparative neutron and synchrotron Mössbauer reflectometric study of FePd alloys”; J Phys Conf Ser 211, 012029 (2010)

[MD5] D. G. Merkel, F. Tanczikó, Z. Zolnai, N. Nagy, G. Vértesy, J. Waizinger , L. Bommer and L. Bottyán; “Magnetic patterning perpendicular anisotropy FePd alloy films by masked ion irradiation”; J. Appl. Phys. 109, 124302 (2011)

[KZ] K. Zhang, K. P. Lieb, D.G. Merkel, M. Uhrmacher, N. Pilet, T. Ashworth, and H. J. Hug; ”Ion-induced magnetic texturing of Ni films, (Domain structure and strain)”; Nucl Instr Meth B 257,379 (2007)

[MD6] D.G. Merkel, Z.E. Horváth, D.E. Szöcs, R. Kovács-Mezei, G. Gy. Kertész and L. Bottyán;” Stress relaxation in Fe/Si neutron supermirrors by He<sup>+</sup> irradiation”; Physica B, 406, 3238 (2011)

[MD7] D.G. Merkel, B. Nagy, Sz. Sajti, E. Szilágyi, R. Kovács-Mezei and L. Bottyán, „Tayloring neutron optical performance of Fe/Si multilayers” <http://arxiv.org/abs/1109.4737>

## IX Köszönetnyilvánítás

Mindenekelőtt témavezetőmnek, Bottyán Lászlónak szeretnék köszönetet mondani a munkámhoz nyújtott önzetlen segítségéért. Köszönettel tartozom Major Jánosnak, Nagy Dénes Lajosnak, a munkámhoz adott hasznos útmutatásokért, tanácsokért. Külön szeretném megköszönni Sajti Szilárdnak a kiértékelésekben, Endrőczy Gábornak, és Nagy Bélának a berendezés építésekben nyújtott segítségét, Szilágyi Editnek, és Tunyogi Árpádnak pedig a mintákon végzett RBS méréseket. Külön köszönet illeti Kovácsné Bogdán Csillát a  $^{57}\text{Co}(\alpha\text{-Fe})$  Mössbauer-források elkészítéséért és Zolnai Zsoltot, Kovács Andrást és Lars Bommert a mikroszkópos mérések elvégzéséért. A reflektometria mérésekben való közreműködésért Adrian Rühmnek, Klaus-Peter Liebnek és Kuhn Zangnak a göttingai együttműködésért mondok köszönetet. Szeretném megköszönni továbbá Fetzer Csabának Mössbauer-mérésekben nyújtott segítségét, Fenyves Józsefnek és Bodai Ferencnek a technika háttér megteremtéséhez történő hozzájárulását. Waizinger Józsefnek, Németh Attilának és Vértesi Gábornak a mintabesugárzásokért, Tanczikó Ferencnek és Kertész Gábornak pedig az MBE-s mintakészítésben való közreműködését mondok köszönetet. Végül, de nem utolsósorban, megköszönöm szüleimnek, hogy mindenben támogattak és segítettek.

## X Hivatkozások

---

- [1] [http://nobelprize.org/nobel\\_prizes/physics/laureates/2007/index.html](http://nobelprize.org/nobel_prizes/physics/laureates/2007/index.html)
- [2] International Union of Crystallography, Nemzetközi Krisztallográfiai Unió. Más helyen „Strukturbericht” illetve „Structure Reports” nevezéktannak is hívják.
- [3] M. Brockmann, S. Miethaner, R. Onderka, M. Köhler, F. Himmelhuber, H. Regensburger, F. Bensch, T. Schweinböck, and G. Bayreuther, *J. Appl. Phys.* 81, 5047 (1997)
- [4] G.A. Müller, „Ion-beam induced changes of magnetic and structural properties in thin Fe films” disszertáció, Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultaten der Georg-August-Universität zu Göttingen (2003)
- [5] C. Kittel, *Rev. Mod. Phys.* 21, 541 (1949)
- [6] S. Chikazumi, *Physics of Ferromagnetism*, Clarendon Press, Oxford (1997)
- [7] A. Hubert and R. Schäfer, *Magnetic Domains, The Analysis of Magnetic Microstructures*, Springer Verlag (2000)
- [8] S. Chikazumi, *Physics of Magnetism*, John Wiley & Sons, Inc., New York, London, Sydney (1964)
- [9] E. C. Stoner, *Proc. Roy. Soc. A* 154, 656 (1936)
- [10] R. M. Bozorth, *Ferromagnetism*, Van Nostrand, New York (1951), 441. oldal
- [11] R. E. Watson, and A. J. Freeman, *Phys. Rev.* 123, 2027 (1961)
- [12] E. Fermi, *Z. Phys.* 60, 320 (1930)
- [13] D. Sander, *Rep. Prog. Phys.* 62, 809 (1999)
- [14] U. Gradmann, *Magnetism in Ultrathin Transition Metal Films*, in *Handbook of Magnetic Materials*, Elsevier, Amsterdam (1993)
- [15] G. H. O. Daalderop, *Phys. Rev. B* 50, 9989 (1994)
- [16] M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. den Broeder, and J. J. de Vries, *Rep. Prog. Phys.* 59, 1409 (1996)

- 
- [17] R. F. Pearson, in „Experimental Magnetism”, Vol. I. Eds., G. M. Kalvius, R. S. Tebble, (John Wiley & Sons, Ney York), (1979) 138 oldal
- [18] J.L. Dormann, D. Fiorani, E. Tronc, *Adv. Chem. Phys.* 98, 283 (1997)
- [19] J. Giber, J. Gyulai, K. Vargáné Josepovits és L.P. Bíró, „Diffúzió és implantáció szilárdtestekben”, Műegyetmi kiadó, Budapest (1997)
- [20] Á. Lakatos, „Diffúzió és diffúzió-kontrolált jelenségek vizsgálata fém/félvezető nanorétegekben SNMS technikával”, Doktori értekezés, Debreceni Egyetem (2011)
- [21] M. Nastasi, J. W. Mayer and J. K. Hirvonen, *Ion-Solid Interactions*, Cambridge University Press, Cambridge (1996)
- [22] G. S. Was, *Prog. Surf. Sci.* 32, 211 (1990)
- [23] W. Bolse, *Mat. Sci. Eng.* R12, 53 (1994)
- [24] H. H. Andersen, *Appl. Phys.* 18, 131 (1979)
- [25] F. Seitz, and J. S. Koehler, *Solid State Phys.* 2, 305 (1956)
- [26] Y. T. Cheng, *Mat. Sci. Rep.* 5, 45 (1990)
- [27] M. Nastasi, J.W.Mayer and J.K.Hirvonen *Ion-Solid Interactions*, University Press, Cambridge (1996) 297. oldal
- [28] B.Y. Tsaur, S.S. Lau, Z.L.Liau and J.W. Mayer *Thin Solid Films* 63, 31. (1979)
- [29] J.W. Mayer, S.S. Lau, B.Y. Tsaur, J.M. Poate and J.K. Hirvonen, *Ion Implantation Metallurgy* ( AIME, Warrendale Phyladelphia) (1980) 37. oldal
- [30] J. Kerr, *Rep. Brit. Assoc.* 5, 85 (1876)
- [31] Faraday M., *Phil. Trans. Roy. Soc.* 136, 1 (1846)
- [32] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*, Pergamon Press, Oxford, (1980)
- [33] L. Wenzel, A. Hubert, V. Kamberski, *J. Magn. Mat.* 175,205 (1997)
- [34] A.J. Dianoux, G. Lander, *Neutron Data Booklet*, Grenoble (2001)
- [35] *Phys. Rev. B* 'X-ray and Neutron scattering from rough surfaces' V38 N4 P2297

- 
- [ 36 ] J. Daillant A. Gibaud (Eds.) „X-ray and Neutron reflectometry: Principles and Applications”, Springer, New York(1999)
- [37] V.F. Sears’Neutron Optics’, Oxford Press, Oxford (1989)
- [38] X. Zhou S. Chen ’Theoretical foundation of X-ray and neutron reflectometry’ Phys. Reports V257 p223 (1995)
- [39] W. Williams ’Polarized Neutrons’, Oxford Press, Oxford (1989)
- [ 40 ] A. Wildes ’Polarizer-analyzer correction problem in neutron polarization analysis experiments’ Rev. Sci. Inst. V70 p4241 (1999)
- [41] H. Frauenfelder, The Mössbauer effect W.A. Benjamin Inc. New York, 1963.
- [42] G.K. Wertheim, Mössbauer Effect, Principles and Applications, Academic Press, New York, 1964
- [ 43 ] V.I. Goldanskij, R.H. Herber, Chemical Applications of Mössbauer Spectroscopy, Academic, New York, 1968
- [44] Ju. Kagan, Effect Messzbauera, Izd. Inozstranoj Lityeraturi, Moszkva, (1962)
- [45] N.N. Greenwood, T.C. Gibbs, Mössbauer Spectroscopy, Chapman and Hall Ltd., London, 1971
- [46] F.Tanczikó, “A mágnesezettség irányának meghatározása elliptikusan poláros rezonáns fotonokkal”, Doktori értekezés, KFKI/Eötvös Loránd Tudományegyetem Budapest (2011)
- [47] WinNORMOS [R. Brand, J. Lauer D. M. Herlach, J. Phys. F, 13, 675 (1983)]
- [48] N. Planckaert, „Nuclear resonant scattering of sychrotron radiation applied to magnetic systems under extreme conditions”, KU Leuven, Doktori értekezés (2009)
- [49] E. Gerda, R. Ruffer, H. Winkler, J.P. Hannon., Phys. Rev. Lett. 54, 835 (1985)
- [50] R. Röhlberger, Nuclear Condensed Matter Physics with Synchrotron Radiation, Springer (2004)
- [51] E. Gerda and H. deWaard, eds., Hyperfine Interactions 123/124 (1999)
- [52] L. Deák, L. Bottyán, D.L. Nagy, Hyp. Int. 92, 1083 (1994)

- 
- [53] L. Deák, L. Bottyán, D. L. Nagy, H. Spiering, Phys. Rev. B.53, 6158 (1996)
- [54] L. Bottyán, L. Deák, J. Dekoster, E. Kunnen, G. Langouche, J. Meersschart, M. Major, D. L. Nagy, H. D. Rüter, E. Szilágyi and K. Temst, J. Magn. Magn. Mat. 240, 514 (2002)
- [55] L. Deák, G. Bayreuther, L. Bottyán, E. Ggerdau, J. Korecki, E.I. Kornilov, H.J. Lauter, O. Leupold, D.L. Nagy, A.V. Petrenko, V.V. Pasyuk-Lauter, H. Reuther, E. Richter, R. Röhlberger, E. Szilágyi, J. Appl. Phys. 85, 1 (1999)
- [56] D.L. Nagy, L. Bottyán, L. Deák, B. Degroote, J. Dekoster, O. Leupold, M. Major, J. Meersschart, R. Ruffer, E. Szilágyi, A. Vantomme, Hyp. Int. 141 459. (2002)
- [57] D.K Aswal, A. N. Banerjee, J. Campbell, X. Cao, E. Cerri, K. K. Chattopadhyay, A. K. Debnath, M. Emamy, S. K. Gupta, N. Joshi, H. Kakiuchi, J. Kupsch, P. Leo, J. Li, H. Li, M. Mahta, R. S. McEntire, H. Ohmi, H. J. Roven, Y. L. Shen, J. V. Yakhmi, K. Yasutake, Materials Science Research Trends, Nova Science Publisher (2008) 53. oldal
- [58] P. S. Prevéy: X-ray diffraction residual stress techniques, Metal Handbook, 10 Metals Park, OH, American Society for Metals, 1986, pp.380-392
- [59] S. Rubin, T.O. Passell and E. Bailey, Analytical Chemistry 29, 736 (1957)
- [60] J.R. Tesmer and M. Nastasi, Eds. Handbook of Modern Ion Beam Materials Analysis. Materials Research Society, Pittsburgh, Pennsylvania,1995
- [61] L. Reimer Transmission Electron Microscopy, Springer, Heidelberg (1989)
- [62] D.B.Williams, C.B. Carter, Transmission Electron Microscopy. Plenum Press, New York, London (1998)
- [63] M. Shiojiri, High Resolution Transmission Electron Microscopy of Ceramic Materials in Electron Microscopy, Vol 1 Budapest, A. Csanádi, P. Röhlich, D. Szabó, eds. 217-226
- [64] A. Csanády, E. Kálmán, G. Konczos, Bevezetés a Nanoszerkezetű Anyagok Világába ELTE Eötvös kiadó, Budapest (2009)
- [65] K. Urban, The New Paradigm of Transmission Electron Microscopy. MRS Bull, 32, 946-952
- [66] G. Binnig, C. F. Quate, Ch Gerber, Phys. Rev. Lett. 56 (9) 930 (1996)



- 
- [67] G. Binnig, *Physica Scripta* Vol. T19, 53-54 (1987)
- [68] R.F. Bunshah, in: R.F. Bunshah (ed.): *Handbook of Deposition Technologies for Films and Coatings*, Noyes Publications, New Jersey, 1994, 4. fejezet
- [69] J.R. Arthur, *Surface Science*, 500 (2002) 189
- [70] J.A. Thornton, J.E. Greene in: R.F. Bunshah (ed.): *Handbook of Deposition Technologies for Films and Coatings*, Noyes Publications, New Jersey, 1994, 5. fejezet
- [71] K. Wasa, S. Hayakawa: *Handbook of Sputter Deposition Technology*, Noyes Publications, New Jersey, 1992.
- [72] D.L. Beke, G.A. Langer, M. Kis-Varga, A. Dudas, P. Nemes, L. Daróczi, Gy. Kerekes, Z. Erdélyi, *Vacuum*, 50, (1998) 373
- [73] D. Clemens, Th. Krist, P. Schubert-Bischoff, J. Hoffmann, F. Mezei, *Phys. Scripta* 50, (1994) 195.
- [74] F. Mezei, *Commun. Phys.* 1 (1976) 81.
- [75] K. B. Blodgett and I. Langmuir, *Phys. Rev.* 51, 964 (1937)
- [76] M. E. Diaz and R. L. Cerro, *Physicochemistry and Hydrodynamics of Langmuir-Blodgett Depositions* (VDM Verlag, Saarbrücken, Germany, 2008)
- [77] W. Stoiber, A. Fink, and E. J. Bohn, *J. Colloid Interface Sci.* 26, 62 (1968)
- [78] A. L. Greer and F. Spaepen, *Synthetic Modulated Structures*, Academic, New York, (1985) p. 419
- [79] T. Mizoguchi, S. Tanabe, and M. Murata, *J. Magn. Magn. Mater.* 126, (1993) 96
- [80] M.A. Andreeva, N.G. Monina and S. Stankov *Moscow University Physics Bulletin* 63, 132 (2008)
- 81] Sz. Szilárd, [www.fs.kfki.hu](http://www.fs.kfki.hu)
- [82] J.F. Ziegler, J.P. Biersack and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids* (Pergamon) SRIM code: [www.srim.org](http://www.srim.org)
- [83] R.L. Edwards, „The magnetic properties of evaporated nickel and iron films” *Phys. Rev.* 29, 321 (1927)

- 
- [84] W. Gavin Williams, Polarized Neutrons, Clarendon Press, Oxford, 1988.
- [85] C.F. Majkrzak, L. Passel, Acta Crystallogr. A 41, (1985) 41.
- [86] T. Krist, S. J. Kennedy, T. J. Hicks and F. Mezei, Physica B 241–243, (1998) 82.
- [87] V.A. Ul'yanov, P. Böni, V.N. Khamov, S.P. Orlov, B.G. Peskov, N.K. Pleshanov, V.M. Pusenkov, A.F. Schebetov, A.P. Serebrov, P.A. Sushkov, and V.G. Syromyatnikov, Physica B 297, (2001) 136
- [88] U. Welzel, J. Ligot, P. Lamparter, A. Vermeulen, E. Mittemeijer, J. Appl. Crystallogr. 38, (2005) 1
- [89] M. Erko, T. Idir, T. Krist and A. G. Michette, eds., Modern Developments In X-ray and Neutron Optics, Springer (2008) p. 371
- [90] A. Teichert, T. Krist, F. Mezei, Physica B 385–386, (2006) 1262
- [91] I. Dézsi, Cs. Fetzter, I. Szűcs, J. Dekoster, A. Vantomme, M. Caymax, Surf. Sci. 599, (2005) 122
- [92] M. Fanciulli, A. Zenkevich and G. Weyer, Appl. Surf. Sci. 123/124, (1998) 207.
- [93] Properties of Isotopes Relevant to Mössbauer Spectroscopy,  
<http://www.medc.dicp.ac.cn/Resources-isotopes/Resource-Fe.php>
- [94] A.A. van Well, V.O. de Haan, H. Fredrikze, and D. Clemens, Physica B 283, (2000) 282
- [95] A. K. Freund, Nucl. Instrum. Methods 124, 93 (1975)
- [96] T.D. Shen, Y.L. Wu, M.X. Quan, J.T. Wang, and Z.Q. Hu, Mater. Lett. 17, 258 (1993).
- [97] B.M. Clemens, Phys. Rev. B 33, (1986) 7615
- [98] J. Padiyath, J. Stahn, M. Horisberger, and P. Böni, Appl. Phys. Lett. 89, (2006) 113123
- [99] V.G. Syromyatnikov, A.F. Schebetov, D. Lott, A.P. Bulkin, N.K. Pleshanov and V.M. Pusenkov, Nucl. Instr. and Meth. A 634, (2011) S126
- [100] J. Padiyath, a\_ J. Stahn, M. Horisberger and P. Böni, Appl. Phys. Lett. 89, 113123 (2006)
- [101] Davies R H, Dinsdale A T, Gisby J A, Robinson J A J, Martin S M, CALPHAD, 2002, 26(2), pp. 229-271

- 
- [102] N. Miyata, H. Asami, T. Misushima, and K. Sato, *J. Phys. Soc. Jpn.* 59, (1990) 2987
- [103] B. Zhang and W. A. Soffa, *Scr. Metall. Mater.* 30, (1994) 683
- [104] M. R. Visokay and R. Sinclair, *Appl. Phys. Lett.* 66, (1995) 1692
- [105] H. Shima, K. Oikawa, A. Fujita, K. Fukamichi, K. Ishida, and A. Sakuma, *Phys. Rev. B* 70, (2004) 224408
- [106] O. Ersen, V. Parasote, V. Pierron-Bohnes, M. C. Cadeville, and C. Ulhaq-Bouillet, *J. Appl. Phys.* 93, (2003) 2987
- [107] T. Klemmer, D. Hoydick, H. Okumura, B. Zhang and W.A. Soffa, *Scripta Metal. Mater.* 33, 1793 (1995)
- [108] V. A. Tsurin, A. E. Ermakov, Yu. G. Lebedev, and B. N. Filipov, *Phys. Stat. Sol.* 33, 325 (1976)
- [109] V.A. Tsurin, E.E. Yurchikov, A.Z. MenÕshikov, *Sov. Phys.State* 17, 1942 (1976)
- [110] V. Gehanno, P. Auric, A. Marty, and B. Gilles, *J. Magn. Magn. Mater.* 188, (1998) 310
- [111] WinNORMOS [R. Brand, J. Lauerm D. M. Herlach, *J. Phys. F*, 13, 675 (1983)]
- [112] J. Fillon, D. Calais, *J. Phys. Chem. Solids*, 38, (1977) 81
- [113] M. Allalen, T. Mehaddene, H. Bouzar, *J. Phys.: Condens. Matter* 19, (2007) 036218
- [114] T. R. Mattsson, A. E. Mattson *Phys. Rev. B* 66, 214110 (2002)
- [115] M. Rennhofer, B. Sepiol, M. Sladeczek, D. Kmiec, S. Stankov and G. Vogl *Phys. Rev. B* 74, (2006) 104301
- [116] Y. Nosé T. Ikeda, H. Nakajima, H. Numakura, *Defect and Diffusion Forum*, 237-240, 450 (2005)
- [117] J. Major, A. Vorobiev, A. Rühm, R. Maier, M. Major, M. Mezger, M. Nülle and H. Dosch, G.P. Felcher, P. Falus, T. Keller and R. Pynn *Rev. Sci. Inst.* 80, 123903 (2009)
- [118] M. Delheusy, J. Major, A. Rühm és A. Stierle, *J. Mater. Res* 102, 913 (2011)
- [119] E. Gerdau, R. Ruffer, H. Winkler, W. Tolksdorf, C.P. Klages, and J.P. Hannon, *Phys. Rev. Lett.* 54, (1985) 835
- [120] B.E. Warren, *X-ray Diffraction* p. 208 (1990)

- 
- [121] R. Delhez et al. *J. Phys E: Scientific Instr*, 10, (8). 784 (1997)
- [122] Z. Su and P. Coppens, *Acta Cryst.* A53, 749-762 (1997) and C. Kim, I. Novozhilova, and P. Coppens. (<http://harker.chem.buffalo.edu/group/ptable.html>)
- [123] V. F. Sears and S. A. Shelly, *Acta Cryst.* A47, 441 (1991)
- [124] V. Gehanno, C. Revenant-Brizard, A. Marty, and B. Gilles, *J. Appl. Phys.* 84, 2316 (1998).
- [125] V. Gehanno, A. Marty, B. Gilles, and Y. Samsan, *Phys. Rev.* B55, 12552 (1997).
- [126] R. Arenal de la Concha, I. Schuster, D. Halley, A. Marty, and P. Bayle-Guillemaud, *J. Phys.* IV 12, Pr6–25 (2002).
- [127] D. G. Merkel, F. Tanczikó, Sz. Sajti, M. Major, A. Németh, L. Bottyán, Z. E. Horváth, J. Waizinger, S. Stankov, and A. Kovács, *JAP* 104, 013901 (2008)
- [128] D. Halley, B. Gilles, P. Bayle-Guillemaud, R. Arenal, A. Marty, G. Patrat and Y. Samson *Phys. Rev.* B 70, 174437 (2004)
- [129] A. Cebollada, D. Weller, J. Sticht, G. R. Harp, R. F. C. Farrow, R. F. Marks, R. Savoy and J. C. Scott, *Phys. Rev. B.* 50, 5 (1994)
- [130] D.B. Williams, C.B. Carter in “Transmission Electron Microscopy: A Textbook for Materials Science” Springer (2004)
- [131] A. Kovács, a, D.G. Merkel, F. Tanczikó, S. Stankov, Y. Hirotsua and L. Bottyán *Scripta Materialia* 58, 635 (2008)
- [132] Sz. Sajti and H. Spiering, [www.fs.kfki.hu](http://www.fs.kfki.hu)
- [133] S. Matteson, B.M. Paine, M.G. Grimaldi, G. Mezey and M.-A. Nicolet *Nucl. Instrum & Meth.* 182/183, 43 (1981)
- [134] C.T. Rettner, S. Anders, J.E.E. Baglin, T. Thomson and B.D. Terris, *Appl. Phys. Letters* 80, 279 (2002)
- [135] B.D. Terris, D. Weller, L. Folks, J.E.E. Baglin, A.J. Kellock, H. Rothuizen and P. Vettiger, *J. Appl. Phys.* 87, 7004 (2000)
- [136] C. Chappert, H. Bernas, J. Ferré, V. Kottler, J. -P. Jamet, Y. Chen, E. Cambril, T. Devolder, F. Rousseaux, V. Mathet and H. Launois, *Science* 280, 1919 (1998)

- 
- [137] S. Sun, E. E. Fullerton, D. Weller and C. B. Murray, *IEEE Trans. Magn.* 37, 1239 (2001)
- [138] K. Kakizaki, Y. Yamada, Y. Kuboki, H. Suda, K. Shibata and N. Hiratsuka, *J. Magn. Mater.* 272, 2200 (2004)
- [139] M. T. Reetz and W. Helbig, *J. Am. Chem. Soc.* 116, 7401 (1994)
- [140] T. Hyeon, *Chem. Commun.* 8, 927 (2003)
- [141] T. Thomson, B. D. Terris, M. F. Toney, S. Raoux, J. E. E. Baglin, S. L. Lee and S. Sun, *J. Appl. Phys.* 95, 6738 (2004)
- [142] Z. Zolnai, A. Deák, N. Nagy, A. L. Tóth, E. Kótai, and G. Battistig, *Nucl. Instr. and Meth. B* 268, 79 (2010)
- [143] M. Abes, J. Venuat, D. Muller, A. Carvalho, G. Schmerber, E. Beaurepaire, A. Dinia, and V. Pierron-Bohnes, *J. Appl. Phys.* 96, 7420 (2004)
- [144] T. Devolder, C. Chappert and H. Bernas, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* 249, 452 (2002)
- [145] K.A. Blodgett, I. Langmuir, *Phys. Rev.* 51 (1937) 964.
- [146] G. Q. Li, H. Takahoshi, H. Ito, H. Saito, and S. Ishio, T. Shima and K. Takanashi, *J. Appl. Phys.* 94, 5672 (2003)
- [147] G.Q. Li, H. Saito, S. Ishio, T. Shima, K. Takanashi, Z. Xiong, *J. Magn. Mater.* 315 126 (2007)
- [148] A. Deák, E. Hild, A. L. Kovács and Z. Hórvölgyi, *Phys. Chem. Chem. Phys.* 9 6359 (2007)
- [149] P. Mulvaney, L. M. Liz-Marzán, M. Giersig, and T. Ung, *J. Mater. Chem.* 10 1259-1270 (2000)
- [150] J. Jensen, M. Skupinski, K. Hjort, and R. Sanz, *Nucl. Instr. and Meth. B* 266 3113-3119 (2008)