

MASTER

Metallische multilagen : röntgendiffractie, magnetische anisotropie en kritisch gedrag

Bloemen, P.J.H.

Award date: 1989

Link to publication

Disclaimer

This document contains a student thesis (bachelor's or master's), as authored by a student at Eindhoven University of Technology. Student theses are made available in the TU/e repository upon obtaining the required degree. The grade received is not published on the document as presented in the repository. The required complexity or quality of research of student theses may vary by program, and the required minimum study period may vary in duration.

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain

Technische Universiteit Eindhoven Afdeling der Technische Natuurkunde Vakgroep Vaste Stof

Metallische Multilagen

röntgendiffractie, magnetische anisotropie en kritisch gedrag

> P.J.H. Bloemen augustus 1989

Verslag van een afstudeeronderzoek verricht in de groep Magnetisme van het Philips Natuurkundig Laboratorium in het kader van een samenwerkingsverband tussen deze groep en de groep Coöperatieve verschijnselen van de T.U.E.

Afstudeer hoogleraar	:	Prof. dr. ir. W.J.M. de Jonge
Afstudeer begleider	:	Dr. Ir. F.J.A. den Broeder

Voorwoord

Sinds 1984 bestaat er, op het gebied van de metallische multilagen een samenwerkingsverband tussen de groep Magnetisme van het Philips Natuurkundig Laboratorium (Nat. Lab.) en de groep Magnetische Ordeningsverschijnselen van de vakgroep Vaste Stof van de afdeling Technische Natuurkunde van de T.U.E.. Dit afstuderen was een continuering van deze samenwerking. Het verslag dat nu voor u ligt beschrijft een onderzoek van ruim 8 maanden op het Nat. Lab..

Het onderzoek heeft zich geconcentreerd op de röntgendiffractie (hoofdstuk 3), de magnetische anisotropie en in mindere mate op het kritsche gedrag (hoofdstuk 4) van metallische multilagen. Hoofdstuk 3, paragraaf 4.1 en paragraaf 4.2 kunnen onafhankelijk van elkaar gelezen worden. Het verdient wel aanbeveling om vooraf hoofdstuk 2 en de eerste twee alinea's van hoofdstuk 1 te lezen.

Tot het hier beschreven werk hebben een aantal mensen bijgedragen. Mijn dank gaat speciaal uit naar Willem Hoving en Kees Jager voor de preparatie van de multilagen; Dick Kuiper die mij vertrouwd maakte met de diffractometer; Jan Bernards en Peter van Engelen voor het gebruik van hun magnetometer; Gerard Poodt voor de temperatuurafhankelijke magnetisatiemetingen; Ronald van Rijn voor zijn hulp bij en het gebruik van zijn tekenprocedures; Coen Swüste niet alleen voor het doen van ordeningstemperatuurberekeningen maar ook, evenals Honny de Gronckel, voor de nuttige gesprekken. Hiervoor ook dank aan Wim de Jonge, die overigens de organisator en stimulator van dit onderzoek was. Tot slot wilde ik Frits den Broeder bedanken voor zijn uitstekende begeleiding.

Samenvatting

Metallische multilagen zijn dunne films waarin lagen van twee verschillende metalen elkaar periodiek afwisselen.

In dit onderzoek zijn Co/Ir-, Co/Pd- en Co/Pt-multilagen bestudeerd. Van de diverse preparaten is via röntgendiffractie-metingen de multilaagperiode en de oriëntatie van de kristal-assen ten opzichte van de filmnormaal bepaald. De diffractieexperimenten zijn uitgevoerd in een zodanige geometrie dat de verstrooiingsvector loodrecht op het filmvlak stond. Hierdoor kon geen onderscheid gemaakt worden tussen hcp- en fcc-structuren. De belangrijkste kenmerken van de diffractogrammen kunnen met een eenvoudig een-dimensionaal model begrepen worden. Het is echter niet mogelijk dit model gedetailleerd te fitten aan de diffractiepatronen en zodoende de roosterconstantes van de twee metalen te bepalen.

Van de Co/Ir- en de Co/Pd-multilagen is, door meting van de magnetisatie als functie van het aangelegde veld, de magnetische anisotropie bepaald. De anisotropie blijkt beschreven te kunnen worden in termen van een volume- en een oppervlakteanisotropie.

Bij de Co/Ir-multilagen is de volumebijdrage binnen de experimentele nauwkeurigheid gelijk aan de vormanisotropie. De oppervlakte-anisotropie is van de orde 0.8 mJ/m². Bij cobaltlagen van 6 en 8 Å worden lagere anisotropie-energiën gevonden dan verwacht. Dit verschil wordt toegeschreven aan het bestaan van Co-eilanden in plaats van een situatie dat de Co-atomen zich in aaneengesloten vlakke lagen bevinden.

Bij de Co/Pd-multilagen is de invloed op de anisotropie bestudeerd van het type substraat waarop de multilagen zijn aangebracht en de temperatuur waarbij de depositie heeft plaats gevonden. De oppervlakte-anisotropie blijkt voor de op mica gedeponeerde multilagen hoger te zijn dan voor de op glas gedeponeerde multilagen. Een verklaring hievoor ontbreekt nog. Er wordt ook een hogere oppervlakte-anisotropie gevonden voor multilagen gegroeid bij 200 °C in vergelijking met multilagen gegroeid bij kamertemperatuur. Dit verschil wordt verklaard door ervan uit te gaan dat de gevormde grensvlakken gladder zijn naarmate de depositietemperatuur hoger is. De waarde van de oppervlakte-anisotropie varieert van 0.7 mJ/m^2 voor de mica 200 °C preparaten, tot 0.4 mJ/m^2 voor de glas 20 °C preparaten. De volume bijdrage die van de orde -0.9 MJ/m^3 is, hangt nauwelijks af van het soort substraat en de depositietemperatuur.

Van de Co/Pt-multilagen is de temperatuurafhankelijkheid van de magnetisatie gemeten bij variërende Pt-dikte. De kritische temperatuur neemt af met toenemende Pt-dikte. Er wordt aangenomen dat dit veroorzaakt wordt door een indirecte exchange-interactie tussen de cobaltlagen. Een eerste aanzet tot een model dat dit gedrag moet gaan beschrijven, geeft hoopvolle resultaten.

Inhoudso	pgave
----------	-------

Hoofdstuk 1	Inleiding	1
Hoofdstuk 2	Preparatie en structuur	
2.1 Een 2.2 Prep	kwalitatieve beschrijving van multilagen aratie	6 10
Hoofdstuk 3	Röntgendiffractie	
3.1 Inlei	ding	14
3.2 Een eendimensionaal model		14
3.3 De experimenten.		23
3.4 De resultaten 23		25

Hoofdstuk 4 Magnetische eigenschappen

4.1 De magnetische anisotropie van Co/Ir en Co/Pd multilagen	
4.1.1 Inleiding	32
4.1.2 De magnetische anisotropie van een dunne laag	33
4.1.3 Bijdragen in de magnetische anisotropie	36
4.1.4 De experimenele bepaling van de anisotropie	46
4.1.5 Resultaten en discussie	51
4.2 De magnetisatie als functie van de temperatuur	59
4.2.1 Inleiding	59
4.2.2 Model	61
4.2.3 Het experiment	68
4.2.4 Resultaten en suggesties	70
Hoofdstuk 5 Conclusies en aanbevelingen	75
5.1 Röntgendiffractie	75
5.2 Magnetische anisoptropie	
5.3 Temperatuur afhankelijk gedrag	77

blz

Appendices

1 De afleiding van het XRD intensiteitsprofiel.	82
2 Het gedrag van het kwadraat van de Airy functie.	85
3 De bepaling van de modulatieperiode.	86
4 Mean field model.	87

Hoofdstuk 1 Inleiding.

Het tijdperk van "atomic engineering", dat wil zeggen het op atomaire schaal manipuleren van de structuur en samenstelling van vaste stoffen, is aangebroken en heeft al een beslissende rol gespeeld bij de ontwikkeling van de vaste stof laser en hoge snelheid electronische devices.

Het zal duidelijk zijn dat "atomic engineering" ook belangrijk is bij de bestudering van magnetisme. Magnetische momenten, exchange interacties en anisotropiën, hangen af van de ruimtelijke omgeving van het atoom.

Door de recente ontwikkelingen in de opdamptechnieken is het nu mogelijk geworden om atomen laag voor laag op te dampen en zodoende ultradunne films te maken, bestaande uit een periodieke stapeling van een discreet aantal atomaire vlakken van een materiaal A op vlakken van een materiaal B, zie figuur 1.1.. Er kunnen dunne films gegroeid worden met modulatieperiodes die het overgangsgebied opspannen van drie naar twee-dimensionaal gedrag in electronische, supergeleidende en magnetische eigenschappen. De beste resultaten (betreffende de groei) zijn ge-



Figuur 1.1. Een schematische weergave van een multilaag. Een multilaag is een dunne film met een totale dikte van ongeveer 0.3 μ m en is opgebouwd uit lagen van twee metalen die elkaar periodiek afwisselen. De laagdiktes kunnen varieren van 2 tot 100 Å. D wordt de modulatie ofwel multilaagperiode genoemd.

boekt in die gevallen waarbij de twee materialen dezelfde kristalstructuur en bijna identieke roosterparameters hebben. Een alom bekende combinatie van materialen met deze eigenschappen vormen de twee halfgeleiders AlAs en GaAs (zelfde kristalstructuur en een verschil in roosterconstante van 0.1 %). Van deze combinatie is zelfs de succesvolle synthese van monolaag-monolaag superroosters gerapporteerd [1].

De technieken die ontwikkeld zijn bij de groei van halfgeleidende films en die, tot de daar behaalde successen leiden, zijn overgenomen bij de groei van metallische multilagen. De huidige activiteit op het gebied van de metallische multilagen is echter geen uitvloeisel van de halfgeleider technologie maar is een gevolg van het werk van Hilliard en medewerkers [2]. Zij besloten namelijk metallische multilagen te groeien om zodoende systematisch de diffusie tussen twee metalen te kunnen bestuderen.

Tegenwoordig wordt vaak cobalt gecombineerd met een edelmetaal (bijv. Co/Au : verschillende kristalstructuur, roosterconstante verschil 14 %). Als een van de metalen namelijk magnetisch is (Co, Fe, Ni of Gd), zijn multilagen interessant voor het bestuderen van magnetische eigenschappen in het bijzonder de oppervlakteanisotropie. Met de term anisotropie wordt in dit verband bedoeld dat er een voorkeursrichting voor de magnetisatie bestaat.

De genoemde oppervlakte-anisotropie, een gevolg van het verlies van de driedimensionale symmetrie aan de grensvlakken, kan zoals later aan de orde zal komen, ervoor zorgen dat de voorkeursrichting gelijk wordt aan de richting loodrecht op het filmvlak. We spreken dan kortweg van films of multilagen met een loodrechte magnetische anisotropie. Door deze eigenschap zijn de films niet alleen fundamenteel gezien interessant, ook uit technologisch oogpunt staan ze tegenwoordig veel in de belangstelling. Hierbij moet vooral gedacht worden aan de loodrechte of verticale magnetische en magneto-optische recordingtechnieken, waarmee hogere informatiedichtheden bereikt kunnen worden dan met de conventionele longitudinale recording. De algemeen geaccepteerde media voor verticale recording zijn tot op heden dunne magnetische films bestaande uit een Co-Cr legering of Ba-ferriet. Deze materialen hebben zelf al een intrinsieke loodrechte anisotropie van magnetokristallijne oorsprong. De multilaag, waarbij de loodrechte anisotropie zoals gezegd, een gevolg is van het voorkomen van grensvlakken, is dus een heel nieuw type en kan misschien toegepast worden in de volgende generatie van magnetische recording devices. Dit technologisch aspect vormde, samen met de fundamentele aspecten, de basis voor een gemeenschappelijke aandacht uit industrieële en universitaire hoek voor de multilagen.

Dit heeft in 1984 geleid tot het in het voorwoord genoemde samenwerkingsverband.

Bij het onderzoek in het algemeen houdt men zich bezig met een aantal problemen waaronder: de grootte van het locale magnetische moment van het grensvlak atoom, de grensvlakbijdrage aan de magnetische anisotropie, het temperatuur afhankelijke gedrag van van de magnetisatie van dunne lagen en de koppeling tussen de magnetische lagen. De structuur van de lagen speelt in meer of mindere mate een rol bij deze problemen.

Ter bestudering van de problemen wordt gebruik gemaakt van een grote verscheidenheid aan experimentele technieken. Ze kunnen onderverdeeld worden in twee hoofdcategorieen. Tot de eerste categorie behoren de experimenten waarin de structuur bestudeerd wordt. De tweede categorie experimenten concentreren zich op de electrische, mechanische en magnetische eigenschappen. Veel werk van het eerste type is gedaan met röntgendiffractie (XRD) maar andere technieken zoals transmissie electronenmicroscopie (TEM) worden steeds vaker toegepast. Experimenten



Figuur 1.2. a) Een voorbeeld van een multilaag rontgendiffractiepatroon. b) Twee magnetisatiemetingen, een met het magneetveld loodrecht (\bot) en een met het magneetveld evenwijdig (\parallel) aan het filmvlak.

van het tweede type zijn, wat het samenwerkingsverband betreft, tot nu toe beperkt gebleven tot het magnetische vlak te weten: magnetisatiemetingen met behulp van een vibrating sample magnetometer (VSM) of met een Faraday-balans, koppelmetingen, ferromagnetische resonantie (FMR), kernspinresonantie (NMR) en Mössbauerspectroscopie. De laatste twee technieken geven ook informatie over de structuur en zouden dus even goed bij de eerste categorie ingedeeld kunnen worden.

In het afstudeeronderzoek zijn Co/Ir, Co/Pd en Co/Pt multilagen onderzocht. Naast XRD-experimenten is via VSM metingen de anisotropie van de Co/Ir en Co/Pd multilagen bestudeerd. Van de Co/Pt multilagen is de koppeling tussen de Co-lagen onderzocht door de temperatuurafhankelijkheid van de magnetisatie bij vaste Co-laagdikte als functie van de Pt dikte te meten.

Een voorbeeld van een XRD-patroon is weergegeven in figuur 1.2a. Het kenmerkende van multilaag diffractiepatronen is dat er geen pieken zijn toe te kennen aan de twee composietmaterialen; de ligging van de pieken wordt bepaald door de grootte van de multilaagperiode.

Een voorbeeld van een VSM-meting is te zien in figuur 1.2b. Uit het feit dat de multilaag gemakkelijker (d.w.z. met een kleiner veld) te verzadigen is, als het magneetveld loodrecht op het oppervlak staat, wordt geconcludeerd dat de multilaag een loodrechte anisotropie heeft. Het oppervlak tussen de loodrechte en de in vlak magnetisatie curve wordt gedefinieerd als de anisotropie energie K. Uit metingen van K als functie van de Co-laagdikte t_{CO} blijkt dat K een bijdrage bevat die evenredig is met $1/t_{CO}$. Dit is de al eerder genoemde oppervlakte-anisotropie.

Het verslag waarin bovenstaande aspecten uitvoerig aan de orde zullen komen, is als volgt opgebouwd: in hoofdstuk 2 zal, naast een bespreking van de belangrijkste aspecten van de preparatietechniek (MBE), een meer uitgebreidere beschrijving worden gegeven van de multilagen. De hoofdstukken 3 en 4 zijn gericht op de karakterisatie van de multilagen.

Hoofdstuk 3 zal gewijd zijn aan de röntgendiffractie. Het bestaat uit een theoretisch deel waarin een een-dimensionaal model gepresenteerd wordt en een experimenteel deel waarin de verwerking van de metingen en de uiteindelijke resultaten besproken worden.

Hoofdstuk 4 handelt over het magnetische gedrag en is opgesplitst in twee delen. Het eerste deel betreft de anisotropie van het Co/Ir en het Co/Pd systeem. Bij afwezigheid van een goede theorie wordt van de anisotropie een fenomenologische beschrijving gegeven. Aan de hand hiervan zullen de resultaten besproken en geïnterpreteerd worden. In het tweede deel zullen de resultaten van de magnetisatiemetingen als functie van de temperatuur aan de Co/Pt-multilagen aan de orde komen. Om deze resultaten te kunnen verklaren, is het noodzakelijk het gedrag te kennen van *gekoppelde* dunne magnetische lagen. Hiervoor bestaat nog geen model. Een aanzet tot zo'n model zal in dit tweede deel worden gedaan.

Het verslag wordt besloten met hoofdstuk 5 waarin de belangrijkste resultaten en conclusies nog eens worden samengevat. Tevens zullen een aantal aanbevelingen ten aanzien van toekomstig onderzoek gedaan worden.

Hoofdstuk 2 Preparatie en structuur.

2.1 Een kwalitatieve beschrijving van multilagen.

In de inleiding is al een schematische voorstelling gegeven van een multilaag. In deze paragraaf zal een meer gedetailleerde beschrijving worden gegeven.

De naam multilagen is een verzamelnaam voor alle structuren waarin dunne lagen van verschillend materiaal elkaar periodiek afwisselen. Er zijn verschillende soorten. Bij de klassificatie kan men onderscheid maken tussen de chemische orde en de structurele orde. Dit onderscheid zal duidelijk worden gemaakt aan de hand van extremen waarbij het ene type orde bijna perfect kan zijn terwijl het andere niet hoeft te bestaan. Bijvoorbeeld, een chemisch gemoduleerde film kan gemaakt zijn onder zodanige condities dat dit resulteert in amorfe lagen van elk materiaal maar met chemisch scherpe grensvlakken. De film heeft dan een hoge mate van chemische orde maar is op atomair niveau niet geordend. Omgekeerd kan een film bestaande uit in elkaar oplosbare materialen gegroeid worden als een perfect éénkristal; door interdiffusie zal de concentratie echter geleidelijk verlopen, in plaats van een abrupte verandering van 100 % van de ene component naar 100 % van de andere. De film

Verondersteld dat de chemische orde hoog is, lijkt het redelijk multilagen te klassificeren op basis van structurele orde. Zoals schematisch is weergegeven in figuur 2.1.1. zijn er drie typen van structurele orde. Het eerste type betreft de orde



Figuur 2.1.1. Overzicht van de verschillende typen orde [3].

binnen de individuele lagen (intralayer order). Een amorfe laag heeft een lage mate van structurele orde terwijl bij kristallijne lagen de orde hoog is. Het tweede type orde is de orde tussen de lagen (interlayer order). Deze mate van orde is hoger voor een structuur waarbij de multilaagperiode minder fluctueert. Het derde type is de laterale orde en is alleen van toepassing op kristallijne lagen. Deze orde is perfect voor epitaxiaal gegroeide multilagen. Dit zijn dus in feite eenkristallen. Een multilaag waarbij de kristallieten willekeurig georiënteerd zijn in de laterale richting heeft een lage mate van laterale orde. Deze situatie komt het meest voor, we spreken dan van multilagen die polykristallijn zijn met een zekere textuur. Textuur betekent dat de kristallieten een bepaalde voorkeursoriëntatie ten opzichte van de filmnormaal hebben. Bij de groei van multilagen wordt de bindingsenergie tussen de lagen namelijk gemaximaliseerd door die kristalgroei-oriëntaties te selecteren waarvoor de in-vlak oppervlaktes per atoom van de twee componenten het dichtst bij elkaar liggen. Dit zal worden toegelicht aan de hand van een voorbeeld waarbij de groei van een Co/Pd-multilaag wordt beschouwd.

Er wordt bijvoorbeeld begonnen met Pd te groeien op een amorf substraat. Metalen groeien op amorfe substraten bij voorkeur met hun dichtst gepåkte vlakken evenwijdig aan het substraatoppervlak. In het geval van fcc Pd zijn dit dus de (111)-vlakken. Wordt op het Pd vervolgens Co aangebracht dan zal dit aannemende dat het Co de hcp-structuur aanneemt, groeien in de [00.1] oriëntatie. Dit is name-



Figuur 2.1.2. a) Epitaziale structuur; overal in het preparaat hebben de kristalassen dezelfde orientatie, b) polykristallijne structuur; de kristalassen loodrecht op de filmnormaal zijn willekeurig t.o.v. elkaar georienteerd, c) amorfe structuur; er is geen enkele correlatie tussen de orientatie der kristalassen van de verschillende kristallieten [4].

lijk de oriëntatie waarbij de in-vlak oppervlakte van per Co-atoom het minst verschilt met de in-vlak oppervlakte per Pd-atoom. Wordt op het Co weer Pd aangebracht dan zal dit weer groeien in de [111]-oriëntatie. Bij voortzetting van dit proces krijgen we een multilaag bestaande uit een hoop kristallieten waarin Pd-lagen met een [111] textuur afgewisseld worden met Co-lagen met een [00.1] textuur. De [00.1]ofwel de c-assen van het Co zijn dus voor alle kristallieten loodrecht op het filmvlak gericht, de a-assen maken echter willekeurige hoeken met elkaar. Figuur 2.1.2. waarin 'n Co-laag in een epitaxiale, polykristallijne resp. amorfe multilaag is weergegeven, verduidelijkt dit nog eens.

Het zal duidelijk zijn dat in het algemeen na selectie van de groei-oriëntaties, de in-vlak oppervlaktes per atoom van de twee metalen nog steeds van elkaar verschillen. Als dit verschil niet te groot is kunnen de lagen gedwongen worden precies op elkaar te passen door in elke laag een spanning te introduceren. De elastische energie die hiermee gepaard gaat is evenredig met het volume. Als een van de lagen steeds dikker wordt gemaakt zal de elastische energie toenemen. Op een gegeven moment wordt er een kritische dikte t_c bereikt waarboven het energetisch gunstig is geworden om zogenaamde "misfit"-dislocaties te creëren. Deze dislocaties (met een totale energie evenredig aan het oppervlak) relaxeren namelijk een deel van de spanning. Bij de kritische dikte vindt dus een overgang plaats tussen twee essentiëel verschillende situaties. De eerste situatie $(t < t_c)$ is geïllustreerd in figuur 2.1.3a.



Figuur 2.1.3. a) multilaag met coherente grensvlakken, b) multilaag met incoherente grensvlakken a.g.v. dislocaties [5].

Er is een coherent grensvlak gevormd door het ene blok met een druk- en het andere met een trekspanning te belasten. (Met een coherent grensvlak wordt bedoeld dat alle grensvlak-atomen dezelfde relatieve posities ten opzichte van elkaar hebben en dat de laterale netvlakken door lopen). In de tweede situatie ($t>t_c$: figuur 2.1.3b) is het grensvlak door de aanwezigheid van dislocaties incoherent.

Het is bij de bestudering van de magnetische eigenschappen van belang om van deze effecten op de hoogte te zijn. In het geval van de Co/edelmetaal-multilagen bijvoorbeeld, zal door het feit dat de edelmetaalatomen groter zijn dan de Co-atomen, hoogstwaarschijnlijk het Co-rooster opgerekt worden. Dit oprekken verlaagt de locale symmetrie en kan daardoor een belangrijke invloed hebben op de magnetische eigenschappen.

2.2. Preparatie

De laatste 10 jaar is behoorlijk veel werk verricht op het gebied van kunstmatig gelaagde structuren. Er worden verschillende preparatietechnieken gebruikt. Enkele voorbeelden zijn: physical vapor deposition, chemical vapor deposition, molecular beam en liquid phase epitaxie.

De meest gebruikte techniek is molecular beam epitaxie (MBE) waarover Cho en Arthur [6] een uitgebreid overzichtsartikel hebben geschreven. Het is een ultrahoog vacuüm (UHV) opdamptechniek waarmee het mogelijk is dunne films te maken met zeer gladde oppervlakken en goed gedefinieerde filmdiktes, belangrijke eisen die men aan een multilaag kan stellen. Het succes van MBE is dan ook te danken aan het feit dat de techniek de eigenschappen heeft om aan deze eisen tegenmoet te kunnen komen.

De techniek is gebaseerd op de reactie van thermische bundels van atomen en moleculen (molecular beams) met een substraat. Atomen of moleculen die het substraat of groeioppervlak treffen, worden geadsorbeerd om vervolgens te migreren naar locaties met een grotere bindingsenergie, gewoonlijk de randen van structuurstappen (zie figuur 2.2.1). Hier nemen ze min of meer permanent hun plaats in in de kristalstructuur. Dit twee-dimensionale groeiproces resulteert zodoende in atomair gladde grensvlakken.

Naast deze eigenschap is bij MBE niet alleen de groeisnelheid laag, hetgeen gunstig is voor de diktecontrole, ook de depositietemperatuur kan relatief laag zijn. Een lage depositietemperatuur minimaliseert interdiffusie effecten waardoor het mogelijk is abrupte grensvlakken te maken. De depositietemperatuur mag echter ook weer niet te laag zijn, anders kan er geen oppervlaktediffusie plaats vinden



Figuur 2.2.1. Illustratie bij het depositieproces. Het raster representeert het substraat, de cirkels stellen atomen voor. De atomen a t/m d bevinden zich op locaties met verschillende bindingsenergie. De atomen b en d hebben een grotere bindingsenergie dan de atomen a resp. c [7]. waardoor de atomen op de plaats blijven zitten waar ze het oppervlak treffen. Een voorbeeld hiervan is weergegeven in figuur 2.2.2 a. waar de substraattemperatuur zo laag is gedacht dat niet-kristallijne structuren ontstaan.





Figuur 2.2.2. a) Vorming van een amorfe structuur door de te lage depositietemperatuur. b) De depositietemperatuur is hoog genoeg om oppervlaktediffusie mogelijk te maken. Er wordt een kristallijne strutuur gevormd [7].

In tabel 2.2.1. zijn de zojuist genoemde aspecten nog eens samen gevat.

Tabel 2.2.1.

multilaag eisen	MBE kenmerken
hoge kwaliteit films	ultrahoge vacuüm omgeving
dunne lagen	lage groeisnelheid
gladde grensvlakken	planair groeiproces
abrupte grensvlakken	lage depositie temperatuur

Multilaag versus Molecular Beam Epitaxie

In figuur 2.2.3. is een deel van de MBE-opstelling sterk vereenvoudigd weergegeven. De bronnen van de molecuulbundels zijn verhitte ovens waaruit de elementen kunnen ontsnappen. Als verhittingsmechanisme is in dit geval gekozen voor bombardement met een electronenbundel.

De gelaagdheid wordt verkregen door de bundels van de twee bronnen afwisselend te onderbreken via een shutter. De depositiesnelheid (gewoonlijk in de orde van 1 Å/s) wordt gecontroleerd door de vermogensregelaar van het electronenkanon,



Figuur 2.2.3. Schematische weergave van een electronenbundel verdamper. Substraat en bundelgeometrie.

samen met een kwartskristal monitor, op te nemen in een regelkring. (Het kwartskristal heeft de eigenschap dat de resonantiefrequentie via een bekend verband varieert met de opgedampte hoeveelheid massa).

De stikstofschermen zijn geplaatst omdat ze zo effectief zijn in het invangen van eventuele gasvormige onzuiverheden. Bovendien voorkomen ze dat onzuiverheden ontgassen van oppervlakken die anders verwarmd zouden worden. Door deze voorziening, maar voornamelijk door de lage achtergronddruk tijdens het depositieproces ($p < 10^{-9}$ mbar), zijn de gegroeide films zoals gezegd van hoge kwaliteit. Als er bijvoorbeeld met 1 Å/s een preparaat gegroeid wordt met de samenstelling: 1000 Å $Pd + 50 \times (4 \text{ Å Co} + 12 \text{ Å Pd})$, dan zal er ongeveer een hoeveelheid onzuiverheden overeenkomend met één monolaag, over het hele preparaat verdeeld zijn.

Opmerking: Voordat de eigenlijke multilaag gergroeid wordt, wordt gewoonlijk het substraat eerst bedekt met een onderlaag (1000 Å Pd in dit geval). Dit wordt gedaan om ervoor te zorgen dat de multilaag wordt aangebracht op een oppervlak waarvan de atomen gerangschikt zijn volgens de gewenste textuur. Er worden namelijk vaak amorfe substraten gebruikt. Fcc-metalen die hierop worden aangebracht groeien dan niet direct in een perfecte dichtste bolstapeling ([111]-textuur). "Het duurt even" voordat de gewenste textuur zich ontwikkeld heeft.

Hoofdstuk 3 Röntgendiffractie.

3.1 Inleiding

Voor betrouwbare studies van de magnetische eigenschappen is het altijd noodzakelijk om vooraf de kwaliteit van de multilaag te karakteriseren en de structuur te verifieeren. Röntgendiffractie (XRD) is een geschikte niet-destructieve methode om dit te doen.

De voor ons belangrijkste informatie die met XRD over de multilagen verkregen kan worden betreft de grootte van de multilaagperiode, de soort en de kwaliteit van de textuur en hiermee samenhangend de kristalstructuur. Hoe deze structurele informatie uit de diffractiepatronen is af te leiden zal beschreven worden in dit hoofdstuk.

Het hoofdstuk is als volgt ingedeeld: paragraaf 3.2 is gewijd aan de theorie; er wordt een eenvoudig een-dimensionaal kinematisch model geschetst, waarmee de kenmerken van het XRD-patroon van een multilaag begrepen kunnen worden. In paragraaf 3.3 zal de experimentele opzet geschetst worden. Het hoofdstuk wordt afgesloten met papragraaf 3.4 met daarin een kritische beschouwing van de resultaten.

3.2 Een een-dimensionaal model.

In deze paragraaf zal een een-dimensionaal model gepresenteerd worden waarmee de belangrijkste kenmerken van de multilaag-röntgendiffractiepatronen begrepen kunnen worden. Segmüller en Blakeslee [8] hebben dit model in 1972 voor het eerst beschreven en gebruikt ter berekening van piekintensiteiten van GaAs/GaAs_{1-x}P_x superroosters. Omdat bij dit model vrij gemakkelijk de invloed van diverse grootheden op het diffractiepetroon is te traceren en omdat de meer geavanceerde modellen [9-11] weinig inzichtelijk zijn, komt in deze paragraaf het model uitgebreid aan de orde. Voordat we hiermee beginnen laten we de voor een multilaag specifieke eigenschappen van het XRD-patroon de revue passeren.

Een belangrijk kenmerk van een multilaag XRD-patroon is het optreden van reflecties bij hoeken 2 Θ kleiner dan 10°, zie figuur 3.2.1 f. Kristallen bestaande uit één materiaal, maar ook legeringen waarbij de componenten op een willekeurige manier zijn gemengd, vertonen hier namelijk geen pieken. De diffractiepatronen bij hoge hoeken vertonen ook een gedrag dat karakteristiek is voor multilagen. Dit gedrag bespreken we aan de hand van een aantal diffractiepatronen van Nb/Cu



multilagen met verschillende modulatieperiodes, figuur 3.2.1 a t/m e.

Figuur 3.2.1. (a)-(e) Hoge hoek diffractiepatronen van Nb/Cu-multilagen met verschillende modulatieperiodes [9]. De Nb en de Cu lagen zijn even dik (D/2). De typische reflecties aan bulkkristallen van Nb en Cu zouden bij $2\Theta = 43.4$ resp. $2\Theta = 38.4$ graden liggen. (f) Lage hoek diffractiepatroon van een Co/Ir-multilaag.

De liggingen van de pieken blijken zowel voor hoge als lage hoek te voldoen aan de wet van Bragg: $L\lambda=2D\cdot\sin\Theta$ met D de multilaagperiode, λ de golflengte van de röntgenstraling en 2 Θ de hoek waarover de verstrooiing plaats vindt. Aan iedere piek kan een orde L toegekend worden.

Als de multilaagperiode lang is vertoont het diffractiepatroon bij hoge hoeken twee groepjes pieken (figuur 3.2.1a). Het groepje dat het sterkst in intensiteit is, is geconcentreerd rond de positie die overeenkomt met de netvlakafstand van het zwaarste metaal, in dit geval Nb. Het tweede groepje is geconcentreerd rond de positie die overeenkomt met de netvlakafstand van het andere metaal (Cu). De pieken binnen ieder groepje liggen op grond van de wet van Bragg op een onderlinge afstand van $\Delta(\sin\Theta)=\lambda/2D$.

Bij korte multilaagperiode (figuur 3.2.1 d en e) wordt het diffractiepatroon gekenmerkt door een centrale piek tussen de posities waar normaal de reflecties van de twee zuivere materialen zouden liggen. De orde L van deze piek is gelijk aan het aantal atomaire vlakken per multilaagperiode. De piek is verder symmetrisch omgeven door satellieten (met onderlinge afstand $\Delta(\sin\Theta)=\lambda/2D$). Zowel bij lange als korte multilaagperiode kan er geen bepaalde piek toegekend worden aan één van de composietmaterialen, dat wil zeggen aan een in dit voorbeeld typische Nb of Cu vlakkenafstand.



Figuur 3.2.2. Schematische weergave van een perfecte multilaag opgebouwd uit de materialen a en b. De horizontale lijnen stellen de atomaire vlakken voor. Dit zijn bijvoorbeeld (111)-vlakken als a

Dit gedrag is niet geheel onverwacht en is een standaardverschijnsel bij diffractie aan multilagen.

Met het nu volgende model zal dit gedrag verklaard worden. Het model dat een relatie zal geven tussen de intensiteit en de hoek Θ , gaat uit van een multilaag bestaande uit twee materialen a en b. De grensvlakken worden perfect glad verondersteld en er wordt aangenomen dat er geen interdiffusie heeft plaats gevonden tussen de twee materialen, met andere woorden er wordt uitgegaan van een volkomen abrupte overgang van materiaal a naar materiaal b. De afstanden tussen de vlakken in de materialen a en b worden gesteld op d_a respectievelijk d_b. Bij de overgang van materiaal a naar b wordt een gemiddelde afstand van $\frac{1}{2}(d_a+d_b)$ genomen, zie figuur 3.2.2. (In het geval van een Co/Ir-multilaag met [111] textuur is d_a dus de afstand tussen de Co hcp (00.2) vlakken of de Co fcc (111) vlakken (afhankelijk welke structuur het cobalt heeft aangenomen) en d_b de afstand tussen de Ir fcc (111) vlakken.) Verder wordt aangenomen dat een modulatieperiode een geheel aantal atomaire vlakken $n=n_a+n_b$ bevat. Hierin zijn n_a en n_b het aantal vlakken per bilaag van materiaal a respectievelijk b (n_a en n_b zijn ook geheel). Voor de multilaagperiode geldt: $D=n_ad_a+n_bd_b$.

In appendix 1 wordt onder deze aannamen de volgende uitdrukking afgeleid voor de intensiteit I als functie van de hoek Θ :

$$I(\Theta) = L(\Theta) \cdot F^{2}(\Theta)$$
(3.1)

met

$$L(\Theta) = \frac{1 + \cos^2 2\Theta}{\sin 2\Theta} \cdot \sin \Theta$$
 (3.2)

en

$$F^{2}(\Theta) = \left[\frac{\sin \pi \ell n N}{\sin \pi \ell n}\right]^{2} \cdot \left\{ f_{a}^{2} \left[\frac{\sin \pi \ell n_{a} d_{a}/d_{0}}{\sin \pi \ell d_{a}/d_{0}}\right]^{2} + f_{b}^{2} \left[\frac{\sin \pi \ell n_{b} d_{b}/d_{0}}{\sin \pi \ell d_{b}/d_{0}}\right]^{2} + 2f_{a}f_{b}\cos \pi \ell n \left[\frac{\sin \pi \ell n_{a} d_{a}/d_{0}}{\sin \pi \ell d_{a}/d_{0}}\right] \cdot \left[\frac{\sin \pi \ell n_{b} d_{b}/d_{0}}{\sin \pi \ell d_{b}/d_{0}}\right] \right\}$$
(3.3)

waarin:

N het aantal keren is dat de bilaag herhaald wordt $d_0 = (n_a d_a + n_b d_b)/(n_a + n_b); nd_0 = D$ (3.4a) $\ell = 2d_0 \sin \Theta / \lambda$ (3.4b)

 f_a en f_b zijn de verstrooiingsfactoren van materiaal a resp. b

De functie $L(\Theta)$ varieert langzaam met Θ zie figuur 3.2.3a. Het is de term $F^2(\Theta)$ die zorgt voor de karakteristieke eigenschappen van het multilaag-diffractiepatroon. Het gedrag van deze term zal nu nader worden bekeken. (Voor een goed begrip is het nuttig het gedrag te kennen van de functie (sin N α /sin α)², zie hiervoor eventueel appendix 2).



Figuur 3.2.3. (a) De Lorentz polarizatiefactor (3.2), (b) de Bragg-term, (c) de modulatieterm en (d) de intensiteit als functie van $d=\lambda/2\sin\Theta$. Langs de verticale assen zijn de eenheden wille-keurig.

De eerste term: $(\sin \pi \ln N/\sin \pi \ln)^2$ varieert als functie van Θ het snelst en veroorzaakt de Bragg-pieken ofwel de satellieten, figuur 3.2.3b. De term vertoont namelijk maxima als ℓ -n geheel is:

$$l \cdot \mathbf{n} = \mathbf{k} \qquad \mathbf{k} \in \mathbb{I} \tag{3.5}$$

Door gebruik te maken van (3.4) volgt eenvoudig dat dit equivalent is met de wet van Bragg:

$$2\mathrm{Dsin}\Theta = \mathrm{k}\lambda \tag{3.6}$$

De ligging van de pieken is hiermee dus verklaard.

De term tussen de accolades is een modulatieterm die een aantal pieken uit de Bragg-term selecteert. De term vertoont een monomode als n_a en n_b klein zijn, zie figuur 3.2.4a en 3.2.3c en een bimode als n_a en n_b groot zijn, zie figuur 3.2.4b.



Figuur 3.2.4. De modulatieterm vertoont een monomode bij dunne lagen (n_a en n_b klein) en een bimode bij dikke lagen (n_a en n_b groot).

Mathematisch is dit als volgt in te zien. De term

$$f_a^2 \left[\frac{\sin \pi \ell n_a d_a / d_0}{\sin \pi \ell d_a / d_0} \right]^2$$
(3.7)

heeft hoofdmaxima als $\pi \ell d_a/d_0 = k\pi$, dus als $2d_a \sin\Theta = k\lambda$. Met andere woorden,

deze functie is gepiekt rond de Bragg-reflectie $d=d_a$ (k=1) van het pure materiaal a. (Een analoog verhaal geldt voor de term met f_b^2 .) Als nu n_a en n_b groot zijn (lange multilaagperiode), zijn de pieken van de modulatieterm rond d_a en d_b smal (eigenschap 4 appendix 2) en resulteren zodoende in een bimode. Bij kleine n_a en n_b (korte multilaagperiode) zijn de pieken breed en overlappen elkaar grotendeels hetgeen één brede totaalpiek oplevert, de zogenaamde monomode. (De mengterm $2f_a f_b \cos \pi \ell n...$ heeft weinig invloed op bovenstaand gedrag. De grootte van deze term is een maat voor de overlap tussen de twee pieken). Dit verklaart waarom bij grote D twee groepjes satellieten te zien zijn en bij kleine D maar een groepje. Dat er bij grote D in totaal meer satellieten optreden dan bij kleine D is een gevolg van het feit dat bij kleine D de Bragg-pieken verder van elkaar liggen (onderlinge afstand $\Delta(\sin\Theta)=\lambda/2D$) waardoor er maar een gering aantal pieken geselecteerd kan worden. De evolutie van het XRD-patroon van het bimode-gedrag bij lange multilaagperiode (figuur 3.2.1a) naar het monomode-gedrag bij korte multilaagperiode (figuur 3.2.1e) begrijpen we nu.

De bespreking van het model zal vervolgd worden aan de hand van figuur 3.2.5



Figuur 3.2.5. Voorbeeld van een experimenteel diffractiepatroon opgenomen bij lage hoek (links) en bij hoge hoek (rechts). De Si(400) piek is afkomstig van het substraat. Het brede piekje bij d=1.9 Å wordt veroorzaakt door pure Ir en of Co-kristallietjes die met hun (200) resp. (10.1) vlakken loodrecht op de groeirichting zijn georienteerd. De andere pieken zijn een gevolg van de multilaagstructuur. Zie de tekst voor een verklaring van de nummering.

waarin het lage- en hoge- hoek deel van het diffractiepatroon van een Co/Ir multilaag is weergegeven. Er zijn drie groepjes satellieten te zien, een bij lage hoek en twee bij hoge hoek. Aan ieder groepje is een geheel getal toegekend: 0 voor lage hoek, 1 voor hoge hoek en 2 voor nog hogere hoek. Verder zijn binnen elk groepje de satellieten genummerd zoals aangegeven. Deze manier van nummeren komt voort uit de vergelijking waaraan de piekliggingen voldoen, vergelijking (3.5) dus. In deze vergelijking kan ℓ ·n alleen maar geheel zijn als geldt:

$$\ell = j_{\pm} \frac{m}{n} \qquad j \in \mathbb{N}, \ m \in \mathbb{Z}$$
(3.8)

met $l \cdot n = k$ krijgen we voor de orde k van de satellieten:

$$\mathbf{k} = \mathbf{j} \cdot \mathbf{n} \pm \mathbf{m} = \mathbf{j} \cdot (\mathbf{n}_{a} + \mathbf{n}_{b}) \pm \mathbf{m}$$
(3.9)

De plaats wordt bepaald door invullen van (3.9) in (3.6):

$$2\mathrm{Dsin}\Theta = \left[\mathbf{j} \cdot (\mathbf{n_a} + \mathbf{n_b}) \pm \mathbf{m}\right] \cdot \lambda \tag{3.10}$$

j is nu het nummer van het satellietgroepje en m is het nummer dat binnen een groepje een bepaalde satelliet aanwijst. De piek met m=0 wordt de hoofd-Braggpiek of de centrale piek genoemd. De hoofd-Braggpiek van j=1 treedt dus op als

$$2\mathrm{Dsin}\Theta = (\mathrm{n_a} + \mathrm{n_b})\lambda \tag{3.11}$$

of met behulp van 3.4a als

$$2d_0 \sin \Theta = \lambda \tag{3.12}$$

en ligt dus op een plaats die overeenkomt met een eerste orde reflectie aan een gemiddeld rooster met vlakkenafstand d_0 . Deze reflectie ligt dus tussen de plaatsen waar normaal de zuivere materiaalreflecties liggen. Verder is de orde gelijk aan het aantal vlakken per multilaagperiode $k=n_a+n_b$.

Het is duidelijk dat er bij hoge hoek zowel plus-(m>0) als min-(m<0) satellieten zijn. Voor lage hoek (j=0) zijn er alleen plus-satellieten, de min-satellieten kunnen bij gebruik van een diffractometer niet gemeten worden. Het hoekbereik in figuur 3.2.5 is beperkt tot een interval waarin de j=0, de j=1 en de j=2 satellieten liggen. Dit is gedaan omdat de satellieten bij nog hogere hoek (j≥3) niet meer waarneembaar zijn. De intensiteit neemt namelijk sterk af met toenemende j hetgeen een een gevolg is van de afname van de verstrooiingsfactoren f_a en f_b met Θ . Voor het relatief kleine hoekinterval waarin het j=1 groepje satellieten ligt veranderen f_a en f_b nauwelijks. (De verandering is alleen significant bij de overgang van het ene groepje naar het andere: $j \rightarrow 0 \rightarrow 1 \rightarrow 2...$).

De verstrooiingsfactoren hebben nog een ander effect. Als we het hoge hoek deel van figuur 3.2.5 beschouwen dan valt op dat er een asymmetrie bestaat in de intensiteiten tussen de plus- en de min-satellieten en dat de centrale piek (m=0) niet noodzakelijk de meest intense piek is. Deze asymmetrie wordt natuurlijk veroorzaakt door het asymmetrisch zijn van de modulatieterm wat op zijn beurt weer een gevolg is van het verschil in verstrooiende vermogens $f_a \neq f_b$, het verschil in roosterconstante $d_a \neq d_b$ en het eventuele verschil in n_a en n_b . Immers een maat voor de hoogte van deelpiek a van de modulatieterm is $f_{a}^2 n_a^2$ ((3.7) gecombineerd met eigenschap 5 uit appendix 2). Uit $d_{Co} < d_{Ir}$; $f_{Co} < f_{Ir}$ en $n_{Co} < n_{Ir}$ concluderen we dus dat de satellieten aan de lage d-kant het minst intens moeten zijn ($d=\lambda/2\sin\Theta$). Dit is in overeenstemming met figuur 3.2.5. In het monomode geval is de hoogste piek overigens vrijwel altijd de hoofd-Braggpiek. In dit geval liggen de +1 en -1 satellieten namelijk in de flanken van de modulatiefunctie, zie figuur 3.2.1 e.

Hiermee besluiten we de bespreking van het model. We kunnen constateren dat met dit eenvoudige model het basisgedrag van de multilaag XRD-patronen begrepen kan worden. Een gedetailleerde confrontatie van diffractiepatronen berekend volgens dit model met experimentele diffractiepatronen wordt uitgesteld tot paragraaf 3.4. Eerst zal in grote lijnen besproken worden hoe de experimentele diffractogrammen verkregen zijn.

3.3 De experimenten.

De röntgendiffractie resultaten zijn verkregen met een Philips poeder diffractometer in de Θ -2 Θ scan mode, zie figuur 3.3.1.



Figuur 3.3.1. Een schematische weergave van de rontgendiffractie-opstelling in de $\Theta - 2\Theta$ geometrie. De röntgenstraling treft het preparaat onder een hoek Θ . De intensiteit van de over een hoek 2Θ verstrooide straling wordt gemeten door een detector. Door het preparaat te draaien wordt Θ gevarieerd, de detector beweegt gelijktijdig mee.

De door de bron geleverde Cu K_{α}-straling (λ =1.542 Å) treft het preparaat onder een hoek Θ . De intensiteit van de over een hoek 2 Θ verstrooide straling wordt gemeten door een detector. Een meting waarbij gelijktijdig het preparaat en de detector gedraaid worden levert de intensiteit als functie van Θ , het zogenaamde diffractogram.

In de geometrie zoals geschetst in figuur 3.3.1 leveren de diffractiepieken alleen informatie over de orde in de gelaagdheid en de soort textuur maar niet over de kwaliteit van de textuur. Deze kan namelijk een spreiding vertonen. Bijvoorbeeld in het geval dat we met een [111] textuur te maken hebben, spreidt de [111]-as rond de filmnormaal. Informatie van deze aard wordt verkregen uit de zogenaamde rockingcurve. Deze curve wordt als volgt opgenomen: preparaat en detector worden eerst ingesteld op 'n Bragg-reflectie, figuur 3.3.2a. Vervolgens wordt het preparaat gedraaid waarbij de detector in z'n uitgangspositie blijft staan, figuur 3.3.2b. Het resultaat is een curve zoals weergegeven in figuur 3.3.2c: de rocking-curve.





Figuur 3.3.2. Illustratie bij de tot stand koming van de rocking curve.

(a) Er wordt ingesteld op een Bragg-reflectie; kristallieten van type 2 voldoen aan de Braggconditie. (b) Het preparaat wordt gedraaid over een hoek α , de detector blijft staan. Type 2 kristallieten voldoen nu niet meer aan de Bragg-conditie, type 1 kristallieten die een hoek α met de filmnormaal maken wel. Door Θ te varieren van 0 tot $2\Theta_{\rm B}$ wordt de rocking curve verkregen (c).

De intensiteit behoort in het ideale geval dat alle kristallieten met hun [111]-assen perfect loodrecht op het filmoppervlak georiënteerd zijn, nul te zijn als $\Theta \neq \Theta_B$, immers dan wordt niet aan de Bragg-conditie voldaan. Het zal duidelijk zijn dat een intensteit $\neq 0$ voor $\Theta = \Theta_B - \alpha$ veroorzaakt wordt door kristallietjes waarvan de [111]assen een hoek α maken met de film-normaal (voor deze kristallietjes treedt de Bragg-conditie namelijk op als $\Theta = \Theta_B - \alpha$). De breedte van de rocking-curve op halve hoogte (FWHM) is dus een goede maat voor de kwaliteit van de textuur. De rocking-curves kunnen verder nog gebruikt worden bij het zoeken naar de optimale groeicondities. De verdeling van de korreloriëntaties is namelijk erg gevoelig voor de temperatuur, de groeisnelheid [12] en het soort substraat.

3.4 Resultaten.

In deze paragraaf zullen de uitkomsten van de experimenten beschouwd worden. Aan de hand van een voorbeeld zal besproken worden hoe de diffractiepatronen geïnterpreteerd worden en welke informatie eruit gehaald kan worden. Hierna zal voor één multilaag het volgens het model uit paragraaf 3.2 berekende diffractogram vergeleken worden met het experimentele diffractogram. De paragraaf zal afgesloten worden met een samenvatting van de resultaten. Hierbij komen de tot dan toe nog niet besproken resultaten van de rocking curves ook aan de orde.

Zowel Co/Ir- als Co/Pd- als Co/Pt-multilagen dienden met XRD gekarakteriseerd te worden om vervolgens gebruikt te kunnen worden voor onderzoek naar de magnetische eigenschappen. In figuur 3.4.1 is als voorbeeld nog eens het hoge en lage hoek diffractiepatroon weergegeven van een Co/Ir-multilaag met samenstelling $35\times(20 \text{ Å Co}+44 \text{ Å Ir})$. Uit het feit dat er bij lage hoek ($\Theta < 10^{\circ}$) satellieten optreden



Figuur 3.4.1. Voorbeeld van een experimenteel diffractiepatroon opgenomen bij lage hoek (links) en bij hoge hoek (rechts). De Si(400) piek is afkomstig van het substraat. Het brede piekje bij d=1.9 Å wordt veroorzaakt door pure Ir en of Co-kristallietjes die met hun (200) resp. (10.1) vlakken loodrecht op de groeirichting zijn georienteerd. De andere pieken zijn een gevolg van de multilaagstructuur.

kan direct geconcludeerd worden dat de multilaag inderdaad een chemisch periodieke structuur heeft. Lage-hoek patronen geven namelijk alleen informatie over de "grove" structuren dat wil zeggen structuren met grote herhalingsafstanden. In het geval van multilagen worden bij lage hoek dus alleen de multilaagperiodes "gezien" maar niet de kleine herhalingsafstanden d_a en d_b in de verschillende componentlagen. Dit laatste is wel, doch op indirecte wijze, het geval bij de hoge hoek patronen.

Daar d_a en d_b rechtstreeks bepaald worden door de kristalstructuren van de componentlagen, moet voor informatie betreffende deze structuren, de hoge hoek ($\Theta > 20^{\circ}$) XRD-patronen beschouwd worden. Het optreden van satellieten bij hoge hoek vertelt ons dat de multilaag kristallijn is, dat wil zeggen het is in ieder geval geen structuur waarbij zowel het Co als het Ir amorf zijn.

De multilaagperiode wordt nu bepaald uit een kleinste kwadraten-aanpassing van de satellietposities bij hoge en lage hoek, aan de Bragg-wet (zie eventueel appendix 3).

Uit het feit dat de hoge-hoek satellieten rond de (111) fcc reflectie van Ir (d=2.216 Å) en de (00.2) hcp of (111) fcc reflectie van Co (d=2.035 Å) liggen, samen met de wetenschap dat de modulatiefunctie alleen ongelijk aan nul is rond de posities die corresponderen met de afstand tussen de vlakken evenwijdig aan het filmvlak, concluderen we verder dat de multilaag gegroeid is met een zodanige textuur, dat de [111] as van Ir en de [00.1] hcp of [111] fcc as van Co evenwijdig zijn aan de groeirichting. Welke structuur de Co-lagen hebben (hcp of fcc) kan niet bepaald worden met XRD in de geometrie zoals die hier gebruikt is (figuur 3.3.1). In deze geometrie wordt de ligging van de pieken namelijk bepaald door de afstanden tussen de vlakken loodrecht op de filmnormaal (de (111) en/of (00.2) vlakken). Aangezien de afstand tussen twee (00.2) hcp Co vlakken even groot is als de afstand tussen twee (111) fcc Co vlakken, is hcp Co niet te onderscheiden van fcc Co.

Met kernspinresonantietechnieken (NMR) kan echter wel een uitspraak worden gedaan omtrent de structuur van het Co. Co-kernen in een kubische omgeving hebben namelijk een andere resonantiefrequentie dan Co-kernen in een hexagonale omgeving.

NMR-spectra kunnen ook aanwijzigen geven over het al dan niet opgerekt zijn van het Co-rooster [13]. Met XRD in de gebruikte geometrie is dit helaas niet goed mogelijk. De roosterconstantes van de twee materialen kunnen dan niet rechtstreeks bepaald worden. We hebben namelijk de volgende vergelijkingen:

٦

$$D/d_0 = n_a + n_b \tag{3.13}$$

$$\mathbf{t_a} = \mathbf{n_a} \mathbf{d_a} \tag{3.14}$$

$$D-t_a = n_b d_b \tag{3.15}$$

Hierin is de modulatie-periode D bekend uit de satellietposities. De gemiddelde vlakken-afstand d_0 is ook bekend. De centrale satelliet die optreedt bij d_0 , kan namelijk gemakkelijk geïdentificeerd worden. (Het is de piek die het dichtst ligt bij \tilde{d}_0 waarbij \tilde{d}_0 een redelijke benadering voor d_0 is, die verkregen wordt door in (3.4a) voor d_a en d_b de bulkwaarden en voor n_a en n_b de tijdens depositie ingestelde waarden in te vullen). De dikte t_a wordt normaal gesproken bepaald via chemische analyse. Dit gebeurt echter te onnauwkeurig zodat we in feite dus 3 vergelijkingen hebben met 5 onbekenden : t_a , n_a , n_b , d_a en d_b . Oplossen van d_a en d_b hieruit is dus niet mogelijk.

Het is tot nu toe ook niet mogelijk om d_a en d_b te bepalen door gebruik te maken van de extra informatie die opgesloten ligt in de piekintensiteiten. Dit zal duidelijk worden na de nu volgende vergelijking van het model met het experiment. Hierbij is namelijk geprobeerd diffractogrammen berekend met het model te fitten aan experimentele diffractogrammen.

Ter vergelijking is in figuur 3.4.2 (blz 28), naast het j=1 deel van het experimentele diffractiepatroon uit figuur 3.4.1. (getrokken lijn), het volgens de vergelijkingen (3.1) t/m (3.3) uit paragraaf 3.2 berekende patroon (gestippelde lijn) opgenomen. Om een zo goed mogelijke overeenstemming te bereiken tussen de breedte van de pieken berekend volgens het model en de breedte van de experimentele pieken is voor N, 3 genomen in plaats van 35 (het aantal multilaagperiodes van het sample).

Dit heeft de volgende reden: de multilaag is opgebouwd uit kristallieten welke ten opzichte van elkaar zijn verschoven. Omdat deze relatieve verplaatsingen groot zijn vergeleken met de golflengte van de röntgenstraling kunnen er geen faserelaties bestaan tussen de straling verstrooid door de diverse kristallieten. De multilaag is zodoende een verzameling onafhankelijk van elkaar verstrooiende kristallieten. De breedte van de pieken hangt rechtstreeks van N af via de Scherrer formule:

$$\Delta(2\Theta) = 2 \left[\frac{\ln 2}{\pi} \right]^{1/2} \cdot \lambda / D \, N \cdot \cos \Theta_{B}$$
(3.16)



Figuur 3.4.2. Een vergelijking tussen een experimenteel diffractiepatroon (getrokken lijn) en een volgens het model berekend diffractiepatroon waarbij voor de roosterconstanten de bulkwaarden zijn genomen.

(welke eenvoudig afgeleid kan worden door eigenschap 4 appendix 2 toe te passen op de Bragg-term). Hierin is $\Delta(2\Theta)$ de breedte op halve hoogte, van de piek gelegen bij $\Theta_{\rm B}$. Omdat de kristallieten onafhankelijk van elkaar verstrooien is het duidelijk dat dat de breedte der pieken bepaald wordt door het gemiddelde aantal multilaagperiodes per kristalliet ofwel de gemiddelde afmeting der kristallieten in de groeirichting (ook wel coherentielengte genoemd) en niet de totale dikte van het sample (35 multilaagperiodes). De breedte van de experimentele pieken leverde via (3.16) een coherentielengte DN van 200 Å hetgeen met N=3 het beste overeen komt (D=64 Å).

Wat de andere parameters betreft zijn voor d_{Co} en d_{Ir} zijn de bulkwaarden genomen. Verder zijn n_{Co} en n_{Ir} zodanig gekozen dat enerzijds de experimentele periode D zo dicht mogelijk benaderd werd met $n_{Co}d_{Co} + n_{Ir}d_{Ir}$ en anderzijds de verhouding n_{Co}/n_{Ir} zo dicht mogelijk lag bij de verhouding die bij de depositie ingesteld was. Zoals te zien komen de posities van de satellieten van het model en het experiment niet met elkaar overeen. Dit kan twee oorzaken hebben.

Een eerste hangt samen met de "lattice mismatch". De Ir-atomen in de (111) fcc vlakken liggen verder van elkaar dan de Co-atomen in de (111) fcc of (00.2) hcp vlakken. Het is dus aannemelijk dat via oprekking van het Co-rooster evenwijdig aan deze vlakken er een contractie plaats vindt loodrecht op deze vlakken. De (111) fcc of (00.2) hcp Co-vlakken komen hierdoor dichter bij elkaar te liggen waardoor d_{Co} in een multilaag kleiner is ten opzichte van d_{Co} in een bulk Co-kristal. Voor Ir geldt het omgekeerde. Daar d_{Co} en d_{Ir} via $D = n_{Co}d_{Co} + n_{Ir}d_{Ir}$ rechtstreeks invloed hebben op de satelliet-posities is geprobeerd deze posities te fitten door d_{Co} en d_{Ir} te variëren. Hierbij is $d_{Co} - d_{Ir}$ zoveel mogelijk konstant gehouden op $(d_{Co} - d_{Ir})_{bulk}$ omdat hiervoor de relatieve intensiteiten al vrij goed overeen kwamen, zie figuur 3.4.2. Het beste resultaat met betrekking tot de posities én de intensiteiten, weergegeven in figuur 3.4.3, werd bereikt door d_{Co} en d_{Ir} van hun bulkwaarden 2.035 en



Figuur 3.4.3. Een vergelijking tussen een experimenteel diffractiepatroon (getrokken lijn) en een volgens het model berekend diffractiepatroon waarbij de satellietposities gefit zijn door variatie van de vlakkenafstanden.

2.216 Å te verlagen tot 2.016 respectievelijk 2.201 Å. De posities van de satellieten komen nu goed overeen. Het is echter gevaarlijk om de conclusie te trekken dat we nu ook de roosterconstantes van het Co en het Ir kennen. Naast het feit dat het resultaat dubieus is door de afname van d_{Ir} in plaats van een op grond van de
"lattice-mismatch" verwachte toename, worden de posities van de satellieten zoals gezegd ook nog door een tweede factor beïnvloed.

Deze factor vindt z'n oorzaak in het niet perfect zijn van de opdampmethode. Bij de depositie is het nog niet mogelijk om aan de hand van RHEED-oscillaties te bekijken of een atoomlaag al dan niet af is. Tot op heden wordt het moment waarop er omgeschakeld moet worden van het ene element naar het andere geschat met behulp van de informatie afkomstig van de kwartskristal-monitoren. Dit gebeurt vrij onnauwkeurig omdat de opdampsnelheid (~1Å/s) te hoog is (de shutter hoeft maar een fractie van een seconde te laat dicht te gaan om ervoor te zorgen dat er bijvoorbeeld 1/10-de monolaag te veel wordt opgedampt). Bovendien behoeft de dichtheid van het metaal in de multilaag niet gelijk te zijn aan de dichtheid van de metaallaag op de kwartsoscillator. Het is dus waarschijnlijk dat een multilaagperiode niet uit een geheel aantal, maar uit een gebroken aantal vlakken bestaat. Het geschetste model is dan in principe niet meer geldig. Bisanti et al. [14] bewijzen echter dat de ligging der satellieten nog steeds voldoet aan vergelijking (3.10) waarin n_a en n_b en daarmee ook de orde dus gebroken getallen mogen zijn. Ook Window [15] en Draaisma [4] komen tot deze conclusie. Het zal duidelijk zijn dat de plaats van de satellieten nu ook gefit kan worden door variatie van na en nb. Dit kan echter niet binnen het model zoals geschetst in dit hoofdstuk. Dit model berust immers op de aaname dat n_a en n_b geheel zijn. Een "fit" waarbij zowel d_{Co}en d_{Ir} als ook n_{Co}en n₁ variëren is dan ook niet uitgevoerd.

Al met al kunnen we concluderen dat het "overall" gedrag redelijk door het model wordt beschreven. De verschillen in intensiteiten moeten aan de grofheid van het model worden toegeschreven. Naast het in de berekening niet meenemen van de Ir-onderlaag en de aanwezigheid van kristallietjes met een andere textuur (denk bijvoorbeeld aan Ir kristallietjes met een (200) oriëntatie, figuur 3.2.5) werd er namelijk uitgegaan van perfecte grensvlakken. In werkelijkheid kunnen deze diffuus en ruw zijn. Door deze grofheid is het niet mogelijk de experimentele patronen te fitten, laat staan dat de roosterconstantes eruit bepaald kunnen worden. De meer verfijnde modellen [9-11] brengen deze factoren in rekening. Stearns [11] bijvoorbeeld doet uitspraken over grensvlakdiktes en de roosterconstantes. Haar model houdt echter geen rekening met de mogelijkheid dat het aantal vlakken per modulatieperiode gebroken kan zijn.(Dit geldt voor bijna alle modellen). Bij de waarden van de roosterafstanden die zij berekent moeten dus vraagtekens geplaatst worden. Het nadeel van de meeste van deze modellen is bovendien dat er geen nette analytische uitdrukkingen uit volgen waaruit rechtstreeks de invloed van bepaalde parameters afgelezen kan worden. Verder veranderen de verfijningen de belangrijkste conclusies, verkregen met het eenvoudige en directe model, niet.

Tot slot van deze paragraaf zal in het kort een overzicht van de XRD-resultaten van de Co/Ir de Co/Pt en de Co/Pd-multilagen worden gegeven. Zowel de lageals hoge-hoek XRD-patronen tonen aan dat de multilagen in alle gevallen een chemisch gemoduleerde structuur hebben met een modulatieperiode die goed overeenkomt met de tijdens depositie ingestelde periode. Zie hiervoor als voorbeeld figuur 3.4.4 waarin voor de Co/Ir-multilagen de met XRD bepaalde modulatieperiode is



Figuur 3.4.4. Een vergelijking tussen de bij depositie ingestelde modulatieperiode en de gerealiseerde periode bepaald via rontgendiffractie.

uitgezet tegen de ingestelde. Uit de hoge hoek metingen volgt verder dat de multilagen een [111] textuur bezitten. Van de Co/Ir- en de Co/Pd-multilagen is de kwaliteit van de textuur bepaald. Uit de rocking-curves van de Co/Ir-multilagen blijkt dat FWHM varieert van 11° tot $23^{\circ}\Theta$. Dit is niet ongewoon voor metallische multilagen; Gyorgy et al. vinden vergelijkbare waarden [12]. Het kan echter beter. De waarden van FWHM van de Co/Pd-multilagen varieert van $3^{\circ}\Theta$ voor de op mica opgedampte multilagen tot $9^{\circ}\Theta$ voor de op glas opgedampte multilagen. Dit verschil wordt toegeschreven aan het feit dat glas amorf is terwijl mica éénkristallijn is.

Hoofdstuk 4 Magnetische eigenschappen.

In dit hoofdstuk zullen de multilagen gekarakteriseerd worden naar hun magnetische eigenschappen.

In paragraaf 4.1 zal de magnetische anisotropie van de Co/Ir en de Co/Pd multilagen aan de orde komen. Hierbij zal de invloed op de anisotropie van de temperatuur waarbij de depositie heeft plaats gevonden, het type substraat waarop de multilagen zijn aangebracht en de dikte van het niet-magnetische metaal bestudeerd worden.

Paragraaf 4.2 is gewijd aan de temperatuurafhankelijkheid van de magnetisatie van de Co/Pt multilagen. Deze afhankelijkheid is bij vaste Co-laagdikte onderzocht als functie van de Pt-tussenlaagdikte met als doel informatie te verwerven over een eventuele interactie tussen de Co-lagen.

4.1 De magnetische anisotropie van Co/Ir en Co/Pd multilagen.

4.1.1 Inleiding

Als de energie van een bepaald materiaal afhangt van de richting van de magnetisatie, dan spreken we over magnetische anisotropie. Een van de markantste eigenschappen van oppervlakte- en grensvlakmagnetisme en dus ook van multilagen, is de anisotropie veroorzaakt door de verlaging van de symmetrie in de omgeving van de grensvlak-atomen. (Een aantal buren van het grensvlak-atoom zijn vervangen door vreemde atomen). Deze anisotropie, als eerste voorspeld door Néel [16], wordt oppervlakte-anisotropie genoemd.

Bij een dunne film zal de magnetisatie in het algemeen bij voorkeur in het vlak van de film liggen. De magnetostatische energie, dat wil zeggen de energie van de magnetisatie in z'n eigen demagnetiserend veld, is dan minimaal. Dit staat bekend als vormanisotropie. Maken we de film echter ultradun (in de orde van 10 Å) dan blijkt experimenteel dat de magnetisatie loodrecht op de film kan gaan staan. De invloed van de grensvlakken ten opzichte het volume, is dan in zodanige mate toegenomen dat de oppervlakte-anisotropie energie (evenredig met het oppervlak) de vormanisotropie (evenredig met het volume) heeft overwonnen. Bij deze laatste redenering is aangenomen dat de oppervlakken een loodrechte voorkeursrichting bevorderen. Dit hoeft niet altijd zo te zijn. Van Fe(110)/W(110) multilagen [17], Ni(111) oppervlakken en Ni(111)/metaal grensvlakken [18], zijn in-vlak anisotropieën gerapporteerd. Van de Co/edelmetaal multilagen zijn tot nu toe alleen loodrechte oppervlakte-anisotropieën gemeten (een overzicht t/m 1987 wordt gegeven door Gradmann [19]). Voor de Fe/Pd multilagen van Draaisma [20] is dit ook het geval, hoewel er hier geen loodrechte voorkeursrichting optreedt doordat de vormanisotropie te sterk is om overwonnen te kunnen worden door de oppervlakte-anisotropie via het dunner maken van de Fe-lagen. (Om een loodrechte voorkeursrichting te creëeren zou de Fe-laag theoretisch dunner dan een monolaag moeten worden, hetgeen fysisch niet mogelijk is).

Een en ander zal duidelijker worden in de volgende paragrafen waarin de magnetische anisotropie fenomenologisch beschreven zal worden. Een fundamenteel begrip van de oppervlakte-anisotropie ontbreekt zelfs nog voor ideaal vlakke oppervlakken, theoretische berekeningen blijken tot nu toe onbetrouwbaar te zijn.

Het hoofdstuk bestaat wat betreft het deel dat gewijd is aan de anisotropie nog uit vier paragrafen. In paragraaf 4.1.2 zal het gedrag van de magnetische anisotropie als functie van de Co-laagdikte beschreven worden. De hierbij optredende bijdragen zullen in paragraaf 4.1.3 behandeld worden (de oppervlakte- en vormanisotropie zijn niet de enige bijdragen).In paragraaf 4.1.4 zal bekeken worden hoe en uit welke experimenten de parameters bepaald kunnen worden die de magnetische anisotropie kwantificeren. De resultaten zullen in paragraaf 4.1.5 beproken en geïnterpreteerd worden.

4.1.2 De magnetische anisotropie van een dunne laag.

In deze paragraaf wordt het gedrag beschreven van de anisotropie-energie per eenheid van volume van een dunne magnetische film als functie van de dikte van deze film.

De anisotropie-energie K_{at} van een atoom definieren we als het verschil in energie tussen de toestand waarin het magnetisch moment van dit atoom loodrecht op de film gericht is $E_{at}(\Theta = 0)$ en de toestand waarin dit moment evenwijdig aan het filmvlak gericht is $E_{at}(\Theta = \pi/2)$.

$$K_{at} = E_{at}(\Theta = \pi/2) - E_{at}(\Theta = 0)$$
(4.1)

Omdat de omgeving van een atoom aan het oppervlak anders is dan de omgeving van een atoom in de film, zullen de anisotropie-energieën van deze atomen van elkaar verschillen, figuur 4.1.1. Stel dat de momenten aan het oppervlak een loodrechte voorkeursrichting hebben $(K_{at}>0)$ en dat de momenten in de film een in-vlak voorkeursrichting hebben $(K_{at}<0)$. Er zal dan géén situatie optreden waarbij de



Figuur 4.1.1. Zijaanzicht van een magnetische laag. Door de exchange-interactie staan alle magnetische momenten \vec{m} in dezelfde richting. Van twee atomen is deze richting door middel van pijlen weergegeven. De hoek Θ is op deze manier gedefinieerd.

momenten aan het oppervlak loodrecht op en gelijktijdig de momenten in de film evenwijdig aan, het oppervlak gericht zijn. De isotrope exchange-interactie zorgt er namelijk voor dat alle momenten gelijk gericht zijn: óf alle momenten staan loodrecht op het filmvlak óf ze liggen allemaal in het het filmvlak. Welke situatie optreedt wordt bepaald door het positief of negatief zijn van de som over alle momenten i van $K_{at,i}$.

Als we aannemen dat de anisotropie-energie van een oppervlakte-atoom per eenheid van oppervlak K_s^* bedraagt en dat de anisotropie-energie van alle niet oppervlakte-atomen per eenheid van volume K_v bedraagt, dan kunnen we voor de anisotropie energie K per volume-eenheid, van een film met oppervlak A, volume V, dikte t en met een onderlinge afstand d tussen de atomaire vlakken, de volgende vergelijking opschrijven:

$$K = \frac{K_v(V-2 \cdot A \cdot d) + 2 \cdot K_s^* \cdot A}{V}$$
(4.2)

Dit is equivalent met de som van de anisotropie-energieën van alle atomen in de

film gedeeld door het volume van de film. Voor K geldt dus weer

$$\mathbf{K} = \mathbf{E}(\Theta = \pi/2) - \mathbf{E}(\Theta = 0) \tag{4.3}$$

waarin E nu de hoekafhankelijke energie per volume eenheid van de totale film is. De term $K_v \cdot (V-2 \cdot A \cdot d)$ in (4.2) representeert de anisotropie-energie van de nietgrensvlak atomen. $2 \cdot K_s^* \cdot A$ is de anisotropie energie van de grensvlak-atomen. Herrangschikken van de termen in vergelijking (4.2) geeft (met $V = A \cdot t$):

$$K = K_v + \frac{2(K_s^* - d \cdot K_v)}{t}$$

$$(4.4)$$

definieren we een oppervlakte-anisotropie K_s door $K_s = K_s^* - d \cdot K_v$ dan krijgen we:



$$K = K_v + \frac{2K_s}{t}$$
(4.5)

Figuur 4.1.2. Voorbeeld van de anisotropie als functie van de Co-laagdikte. Het betreft hier Co/Pd-multilagen.

Meting van K als functie van t en vervolgens uitzetten van K·t tegen t moet dus een rechte opleveren met een helling K_v en een asafsnijding van $2K_s$. In de praktijk blijkt dit inderdaad het geval te zijn (zie als voorbeeld figuur 4.1.2). Met de definitie van (4.3) betekent een positieve K een voorkeursrichting loodrecht op de film en een negatieve K een voorkeursrichting evenwijdig aan de film. In het voorbeeld van figuur 4.2.1. klapt de voorkeursrichting dus om bij een Co-laagdikte van 13 Å.

Opmerking: de uit de afsnijding bepaalde K_s is dus niet gelijk aan de aan de anisotropie-energie per oppervlakte-eenheid van de grensvlak-atomen, maar is gelijk aan het verschil in anisotropie-energie tussen een bulk- en een grensvlak-atoom. Dit is logisch: als de anisotropie-energie van een grensvlak- en een bulk-atoom hetzelfde zijn ($K_s = 0$) mag er geen 1/t-term optreden, grens- en bulk-atomen zijn dan immers niet van elkaar te onderscheiden.

4.1.3 Bijdragen in de magnetische anisotropie.

De belangrijkste bijdragen in de magnetische anisotropie, die vertegenwoordigd kunnen zijn in de bulkterm K_v en de oppervlakte term K_s , zijn:

1) De kristalanisotropie ook wel magnetokristallijne anisotropie genoemd 2) De vormanisotropie en 3) de spanningsanisotropie.

In deze paragraaf zal begonnen worden deze bijdragen achtereenvolgens te behandelen. Voor een meer uitgebreide behandeling wordt verwezen naar Chikazumi [21], Cullity [22] of Néel [16]. Na de behandeling zullen de bijdragen samengevat worden. De paragraaf zal besloten worden met een nadere beschouwing van de oppervlakte-anisotropie.

1) De kristalanisotropie.

Het blijkt dat kristallen in bepaalde richtingen gemakkelijker te magnetiseren zijn dan in andere richtingen. Als er een veld wordt aangelegd in een bepaalde richting dan moet er arbeid verricht worden om de magnetisatie weg te draaien uit z'n voorkeursrichting. De energie E die hiermee gepaard gaat wordt de kristalanisotropie-energie genoemd. De energie is afhankelijk van de richting van de magnetisatie $\vec{M} = M_s \vec{\alpha}$ ten opzichte van de kristalassen. Hierin is $\vec{\alpha}$ een eenheidsvector in de richting van de magnetisatie: $\vec{\alpha} = (\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3)$. In het algemeen kan E dus geschreven worden als een machtreeksontwikkeling in de spincomponenten α_1 t/m α_3 ook wel richtingscosinussen genoemd:

$$\mathbf{E} = \sum_{\mathbf{k} \ \mathbf{l} \ \mathbf{m}} \mathbf{K}_{\mathbf{k}\mathbf{l}\mathbf{m}} \cdot \boldsymbol{\alpha}_{\mathbf{1}}^{\mathbf{k}} \boldsymbol{\alpha}_{\mathbf{2}}^{\mathbf{l}} \boldsymbol{\alpha}_{\mathbf{3}}^{\mathbf{m}}$$
(4.6)

hierin zijn K_{klm} de anisotropieconstanten, k,l en m zijn gehele getallen. De uitdrukking moet invariant zijn onder de symmetrie-operaties van de betreffende kristalstructuur.

Voor een kubisch kristal blijken na toepassing van deze operaties en de invariantie-eis, dat alle termen lager dan de 4^e orde verdwijnen.Voor de bulkanisotropie geldt zodoende:

$$\mathbf{E}^{\text{cub}} = \mathbf{K}_{1}(\alpha_{1}^{2}\alpha_{2}^{2} + \alpha_{1}^{2}\alpha_{3}^{2} + \alpha_{2}^{2}\alpha_{3}^{2}) + \mathbf{K}_{2}(\alpha_{1}^{2}\alpha_{2}^{2}\alpha_{3}^{2}) + \dots$$
(4.7)

In de praktijk blijkt dat twee termen meer dan voldoende zijn om de experimenten te beschrijven. (Hogere orde termen worden steeds kleiner).

Voor een hexagonaal kristal dat een lagere symmetrie heeft dan een kubisch kristal, blijkt dat de eerste niet verdwijnende term van de 2^e orde is:

$$E^{hex} = K_1(\alpha_1^2 + \alpha_2^2) + K_2(\alpha_1^2 + \alpha_2^2)^2$$
(4.8)

Dit is equivalent met de uitdrukking:

$$\mathbf{E}^{\text{hex}} = \mathbf{K}_1 \cdot \sin^2 \Theta + \mathbf{K}_2 \cdot \sin^4 \Theta \tag{4.9}$$

zoals eenvoudig is in te zien via $\alpha_1 = \cos\phi \cdot \sin\Theta$ en $\alpha_2 = \sin\phi \cdot \sin\Theta$. Hierin zijn Θ en ϕ de normale bolhoeken; Θ is dus de hoek tussen de magnetisatie \vec{M} en de c-as. Voor een hcp-film met [00.1] textuur is deze hoek tevens gelijk aan de hoek tussen \vec{M} en de filmnormaal.

De vergelijkingen (4.7) en (4.8) gelden voor de bulkatomen. In het geval van hcp Co levert de kristalanisotropie dus een bijdrage van K_1+K_2 in de volume-anisotropie K_v (vergelijking 4.9 invullen in 4.3). Voor fcc Co met een [111] textuur is het wat moeilijker om de volumebijdrage uit te drukken in K_1 en K_2 . Hiervoor moet (4.7) omgeschreven worden in termen van Θ en ϕ . Het blijkt dat $K_v = -K_1/12 - K_2/27$. Met behulp van de experimentele waarden van K_1 en K_2 (hcp Co $K_1 = 0.41$ MJ/m³, $K_2 = 0.10$ MJ/m³ [23]; fcc Co $K_1 = -0.09$ MJ/m³ $K_2 = -0.02$ MJ/m³ [24]) krijgen we voor hcp [00.1] Co en fcc [111] Co volumebijdragen van 0.51 MJ/m³ resp. -0.0082 MJ/m³. Bij de oppervlakte-anisotropie energie van hcp en fcc films is de eerste niet verdwijnende term, net als bij bulk hcp, van de tweede orde en kan dus beschreven worden met:

$$\mathbf{E} = \mathbf{K}_{\mathbf{s}} \cdot \sin^2 \Theta \tag{4.10}$$

Deze uitdrukking is geldig voor oppervlakken waarvan de normaal een n-voudige rotatie as is met n>2 [25]. Néel was de eerste die met een fenomenologische theorie waarden voor de anisotropiekonstante K_s voorspelde. De basis van Néel's theorie is de veronderstelling dat de anisotropie energie beschreven kan worden in termen van veranderingen in de energie van een atomair paar. Hierbij wordt de energie van een bepaald atoom geschreven als een som van paarinteracties met de naaste buuratomen:

$$\mathbf{w} = \sum_{\mathbf{i}} \mathbf{g}(\mathbf{r}_{\mathbf{i}}) \cdot \left[\cos^2 \phi_{\mathbf{i}} - \frac{1}{3}\right] \tag{4.11}$$

Hierin is ϕ_i de hoek tussen de richting van het magnetisch moment en de verbindingslijn tussen het beschouwde atoom (A) en de i-de buur (B), zie figuur 4.1.3.



Figuur 4.1.3. De definitie van de parameters in Neel's model. De spins \vec{S}_i en \vec{S} zijn gelijk gericht door de (isotrope) exchange-interactie. A is het atoom waarvan de anisotropie-energie berekend wordt, B is naaste buur nummer i

g is een functie die afhangt van de afstand r_i tussen atoom A en het i-de buuratoom.

Bij de paarinteracties in (4.11) is de meest sterke interactie, de exchange interactie, niet meegenomen. Deze hangt namelijk alleen af van de hoek tussen de naaste buurspins en niet van de oriëntatie van de spins ten opzichte van hun bindingsrichting. De exchange-interactie kan dus geen aanleiding geven tot anisotropie. De magnetische dipool-dipool interactie wordt hierbij ook buiten beschouwing gelaten. Hierover later meer.

Néel voert de sommatie in (4.11) bij een aantal kubische structuren uit, zowel voor een bulk- als een oppervlakte-atoom. Voor een oppervlakte-atoom blijkt dat de uitkomst afhangt van de oriëntatie van de magnetisatie ten opzichte van het oppervlak én van de oriëntatie van het oppervlak ten opzichte van de kristal-assen. In de meeste gevallen neemt de energie w, omgerekend per oppervlakte eenheid de eenvoudige vorm aan gegeven door vergelijking (4.10). K_s hangt, zoals gezegd, af van het soort oppervlak en is in Néel's model nul voor kristaloppervlakken waarvan de atomen geen naaste buren in het oppervlak hebben. Voorbeelden hiervan zijn (111)sc, (100)bcc en (111)bcc oppervlakken.

Voor een bulkatoom vindt hij de eerste term van vergelijking (4.7), waarbij de numerieke waarde van K₁ in het algemeen verwaarloosbaar klein is ten opzichte van de waarden die hij voor de oppervlakte-anisotropie vindt. De grootte-orde van de anisotropiekonstanten die hij vindt zijn in overeenstemming met de experimenten, echter aan de precieze waarden moet getwijfeld worden. Er kleven namelijk een aantal bezwaren aan Néel's theorie. Doordat er alleen interacties worden beschouwd tussen de magnetische atomen zou K_s ongeacht het edelmetaal hetzelfde moeten zijn voor alle Co/edelmetaal grensvlakken. Dit is in strijd met de experimenten. Ks hangt klaarblijkelijk af van de electrostatische omgeving van het grensvlakatoom. Naast dit bezwaar en het bezwaar dat de theorie volledig klassiek is, neemt hij aan dat een atoom net onder de oppervlaktelaag weer de bulk-eigenschappen heeft. Dit zal in werkelijkheid niet zo zijn, ook de electronenstructuur van dit atoom zal veranderd zijn. De afleiding in de vorige paragraaf van de anisotropie-energie als functie van de Co-laagdikte die gebaseerd is op deze aanname (alle niet-grensvlakatomen hebben dezelfde anisotropie-energie), is dus ook niet correct. We zouden er ons zelfs over mogen verbazen dat de metingen door relatie (4.5) zo goed beschreven worden.

2) De vormanisotropie.

Voor een niet-bolvormig sample hangt de magnetostatische (zelf) energie af van de richting van de magnetisatie. Het is de energie van de magnetisatie in z'n eigen demagnetiserend veld. Als het ferromagnetisch lichaam als een magnetisch continuüm beschouwd wordt met een uniforme magnetisatie \vec{M} , dat wil zeggen de discreetheid van het kristalrooster wordt genegeerd en er wordt verondersteld dat er geen domeinen aanwezig zijn, dan kan voor deze energie de volgende betrekking worden opgeschreven :

$$E_{\rm D} = -\frac{1}{2}\mu_0 \int \vec{\mathbf{M}} \cdot \vec{\mathbf{H}}_{\rm D} \, \mathrm{d}\mathbf{v} \tag{4.12}$$

hierin wordt geïntegreerd over het volume van het lichaam, \vec{H}_D is het demagnetiserend veld gegeven door:

$$\vec{H}_{\rm D} = -\vec{N} \cdot \vec{M} \tag{4.13}$$

waarbij \ddot{N} de demagnetisatie-tensor voorstelt. Voor een dunne film in de geometrie zoals geschetst in figuur 4.1.4 is \ddot{N} diagonaal met $N_z = 1$; $N_x = N_y = 0$; Verder geldt



Figuur 4.1.4. Dunne film geometrie. De z-as is langs de filmnormaal gekozen. De z en y-assen liggen in het filmvlak.

 $\vec{M} = (M_x, M_y, M_s \cos\Theta), \ \vec{H}_D = (0, 0, -M_s \cos\Theta).$ Hierin is M_s de verzadigingsmagnetisatie. Via (4.12) krijgen we voor de demagnetisatie-energie per eenheid van volume:

$$E_{\rm D} = \frac{1}{2}\mu_0 M_{\rm s}^2 \cos^2\Theta = -\frac{1}{2}\mu_0 M_{\rm s}^2 \sin^2\Theta + \frac{1}{2}\mu_0 M_{\rm s}^2 \tag{4.14}$$

De hoek-onafhankelijke term $\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$ wordt altijd weg gelaten omdat deze toch niet bijdraagt in de anisotropie, dus:

$$E_{\rm D} = -\frac{1}{2}\mu_0 M_{\rm s}^2 \sin^2\Theta \tag{4.15}$$

In de continuümbeschouwing bezitten dus alle atomen, zowel de bulk- als de grensvlak-atomen, dezelfde vormanisotropie-energie per volume eenheid. De vormanisotropie geeft dus geen bijdrage in K_s maar alleen een bijdrage in K_v .

In werkelijkheid is de film natuurlijk geen continuüm maar een verzameling atomen gerangschikt op een discreet kristalrooster. De vraag rijst nu of deze discreetheid kan leiden tot verschillen in magnetostatische energie tussen atomen aan het oppervlak en atomen midden in de film, met andere woorden kan de discreetheid aanleiding geven tot een K_s -bijdrage van magnetostatische aard en zo ja, hoe groot is deze K_s -bijdrage dan. Het antwoord op deze vraag zou eigenlijk beantwoord moeten kunnen worden door rigoreus met bandstructuurberekeningen de anisotropie als functie van de filmdikte te bepalen. Hierover is in de literatuur nog niet gerapporteerd.

Een model dat niet helemaal exact is, maar dat een stuk dichter bij de werkelijkheid staat dan de continuümbenadering, is het model waarbij de magnetische film beschouwd wordt als een verzameling discrete puntdipolen (de uitgebreidheid van de atomen wordt dus genegeerd). Het magnetische veld $\vec{B}_{dip}(\vec{r})$ van een discrete dipool als functie van de plaats ten opzichte van die dipool is goed bekend. De magnetostatische energie van een dipool i in het veld van dipool j is daarmee ook bekend en wordt gegeven door :

$$\mathbf{E}_{ij} = -\vec{\mathbf{m}} \cdot \vec{\mathbf{B}}_{dip}(\vec{\mathbf{r}}_{ij}) \tag{4.16}$$

Hierin is \vec{r}_{ij} de verbindingsvector tussen dipool i en j. De totale magnetostatische energie van een dipool i kan dus uitgerekend worden door sommatie van E_{ij} over alle andere dipolen j. Draaisma et al. [26] hebben deze sommatie uitgevoerd. De uitkomst blijkt af te hangen van de kristalstructuur én van de plaats van de dipool in de film. Voor een [100]bcc film wordt gevonden dat de magnetostatische energie van een oppervlakte-atoom 23 % lager is dan $\frac{1}{2}\mu_0M_s^2$. Hoe dieper het atoom zich in de laag bevindt hoe kleiner de afwijking van $\frac{1}{2}\mu_0M_s^2$. Voor een atoom in de tweede laag (net onder het oppervlak dus) bedraagt het verschil nog maar 2%. Voor fcc[111] en hcp[00.1] films zijn deze effecten nog subtieler. Voor een oppervlakte-atoom bijvoorbeeld, is de afwijking maar 7% in plaats van 23%. Hoewel de magnetostatische anisotropie-energie van laag tot laag varieert, blijkt deze van de hele film als functie van de filmdikte toch zeer goed te voldoen aan¹:

$$\mathbf{K}^{\mathbf{d}}_{\mathbf{v}} = \mathbf{K}^{\mathbf{d}}_{\mathbf{v}} + \frac{2\mathbf{K}^{\mathbf{d}}_{\mathbf{s}}}{\mathbf{t}} \tag{4.17}$$

Dit is niet verwonderlijk omdat de magnetostatische energie zeer snel konstant wordt voor de meer naar binnen gelegen lagen. De bijdrage in K_s is echter verwaarloosbaar ten opzichte van de magnetokristallijne bijdrage (die van de orde 0.5 mJ/m^2 is). Voor fcc[111] en hcp[00.1] films bijvoorbeeld, wordt namelijk een dipool-dipool-bijdrage in K_s berekend van 0.00867 mJ/m^2 . Dit is overigens ook beduidend kleiner dan de nauwkeurigheid waarmee K_s bepaald kan worden.

Samenvattend kunnen we concluderen dat de discreetheid van het rooster wat betreft de magnetostatische bijdrage in de anisotropie verwaarloosd kan worden; de bijdrage in K_v is $\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$ en de grensvlakbijdrage is nul.

3) De spanningsanisotropie via magnetostrictie.

Als een ferromagnetisch lichaam in een magnetisch veld wordt gebracht zullen er in het rooster extra spanningen optreden die gepaard gaan met een verandering van de afmetingen van dit lichaam. Dit effect wordt magnetostrictie genoemd en is net als de kristalanisotropie hoofdzakelijk een gevolg van de spinbaan-interactie.

De interactie tussen de electronenbanen en het rooster via het kristalveld is vrij sterk; de oriëntaties van de banen zijn gefixeerd ten opzichte van het rooster. Als er nu een extern veld wordt aangelegd om de spins of magnetische momenten te draaien dan zal er een zekere weerstand ondervonden worden omdat de spin aan de baan gekoppeld is en de baan op zijn beurt weer aan het rooster. De energie die nodig is om de spins toch te roteren is juist gelijk aan de energie die nodig is om de spinbaan-koppeling te doorbreken en is tevens gelijk aan de kristal-anisotropieenergie.

Stel nu eens dat de spinbaan-koppeling zo groot is, dat als de spins roteren, de banen mee roteren. Beschouw een aantal atomen in een domein; de spins zullen in

¹De superscripts "d" duiden aan dat het hier alleen demagnetisatiebijdragen betreft.

een richting staan bepaald door de kristalanisotropie (figuur 4.1.5 a)



Figuur 4.1.5. Physisch beeld van magnetostrictie. De punten representeren de atoomkernen, de pijltjes stellen de magnetische momenten voor en de ovale lijnen "omsluiten" de electronen. a) Momenten in een domein gericht in hun voorkeursrichting. b) Door de momenten te draaien met een veld komen de atoomkernen verder van elkaar te zitten.

Als er een veld loodrecht op de spins wordt aangelegd, roteren de spins en de banen over 90°. De atoomkernen komen hierdoor verder van elkaar te zitten ($\Delta 1/1$ is door de in werkelijkheid zwakke spinbaan-koppeling van de orde 10⁻⁵ en niet zo overdreven als in de figuur). Een verandering van de richting van de magnetisatie veroorzaakt dus een spanning. Omgekeerd kan een spanning de voorkeursrichting van de magnetisatie veranderen. We hebben dan te maken met spanningsanisotropie. De hiermee gepaard gaande magneto-elastische energie voldoet aan [27]:

$$E_{me} = B \cdot \epsilon \cdot \sin^2 \Theta \tag{4.18}$$

Hierin is B een bekende (materiaal afhankelijke) magneto-elastische konstante, ϵ is de oprekking $\Delta 1/1$ en $\frac{1}{2}\pi$ - Θ is de hoek tussen de magnetisatie en de oprek-richting.

Bij Co/edelmetaal multilagen is de oprekking een gevolg van de "lattice mismatch" tussen het cobalt en het edelmetaal. De afstanden tussen de Co-atomen (a_{co}) in de hcp (00.1) vlakken en de afstanden tussen de edelmetaalatomen (a_{nm}) in de (111) vlakken zijn niet aan elkaar gelijk :

$$\eta = \frac{(\mathbf{a}_{co} - \mathbf{a}_{nm})}{\mathbf{a}_{nm}} \neq 0 \tag{4.19}$$

Zoals we in paragraaf 2.1 gezien hebben zal het Co-rooster zich, beneden een kritische dikte t_c , volledig aanpassen aan het edelmetaalrooster. De hierdoor opgerekte Co-laag wordt dan pseudomorf genoemd en heeft coherente grensvlakken. ϵ is in dit geval dan gelijk aan $-\eta$. Uit (4.18) volgt dan dat de magnetostrictie een volumebijdrage in de anisotropie levert van $-\mathbf{B} \cdot \eta$.

Voor Co/Pd-multilagen (η = -0.09, bulk Co: B= 5·10⁷ J/m³) betekent dit een aandeel in K_v ter grootte van 4.5 MJ/m³. Dit is onwaarschijnlijk hoog en is nog nooit gemeten. Aannemende dat het model en de grootte-orde van B juist zijn moeten we concluderen dat deze situatie bij Co/Pd-multilagen niet optreedt, met andere woorden de kritische dikte moet kleiner zijn dan 2 Å (monolaag). De Co/Pd-multilagen zijn op grond van dit model dus nooit pseudomorf, er zijn altijd dislocaties aanwezig en t is altijd groter dan t_c. Dit geldt in principe voor alle Co/edelmetaalmultilagen omdat de lattice-mismatch" per Co-edelmetaal-combinatie niet veel verschilt.

In de niet-coherente situatie relaxeren de dislocaties zoals gezegd een deel van de spanning. Chappert et al. [27] leiden af dat er een fractie t_c/t van de spanning $-\eta$ over blijft:

$$\epsilon = -\eta \cdot \mathbf{t_c/t} \tag{4.20}$$

Uit het 1/t-gedrag van de spanningsanisotropie, dat verkregen wordt door (4.20) in te vullen in (4.18), volgt dat boven t_c de magnetostrictie een bijdrage levert in de oppervlakte-anisotropie K_s van $-\frac{1}{2}B\eta t_c$ en geen bijdrage in K_v . Voor Co/Pd bedraagt deze bijdrage 0.45 mJ/m² (voor t_c is 2 Å genomen).

Samenvatting

De mogelijke bijdragen in de magnetische anisotropie van een multilaag zijn hiermee behandeld. We vatten de bijdragen nog eens samen.

Voor incoherente multilagen gebaseerd op hcp Co met [00.1] textuur geldt de volgende uitdrukking voor de anisotropie-energie per eenheid van volume:

$$E/V = \left\{ K_{1} - \frac{1}{2}\mu_{0}M_{s}^{2} + \frac{2K_{s}}{t} \right\} \sin^{2}\Theta + K_{2}\sin^{4}\Theta$$
(4.21)

Hierin bevat K_s zowel een magnetokristallijne als een magneto-elatische bijdrage. Met de definitie van K door (4.3) volgt:

$$K = K_1 + K_2 - \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2 + \frac{2K_s}{t}$$
(4.22)

 $K_1 = 0.41 \text{ MJ/m}^3$, $K_2 = 0.1 \text{ MJ/m}^3$, $-\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2 = -1.23 \text{ MJ/m}^3$. K_s is onbekend, hierover dadelijk meer. Voor een coherente multilaag met [00.1] hcp Co-lagen geldt

$$K = K_1 + K_2 - \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2 - B \cdot \eta + \frac{2K_s}{t}$$
(4.23)

De magneto-elastische bijdrage is dus verhuisd van K_s naar K_v . Deze situatie treedt waarschijnlijk dus niet op.

Voor incoherente en coherente multilagen met fcc Co in een [111] textuur, gelden ook de vergelijkingen (4.22) respectievelijk (4.23). K_1+K_2 moet dan wel weggelaten worden. De magnetokristallijne bijdrage $-K_1/12-K_2/27 = -0.0068$ MJ/m³ is namelijk verwaarloosbaar ten opzichte van de demagnetisatiebijdrage.

De oppervlakte-anisotropie.

Tot slot van deze paragraaf zal de oppervlakte-anisotropie nader worden beschouwd.

De oppervlakte-anisotropie kan, zoals we gezien hebben opgebouwd zijn uit een magnetokristallijne en een magneto-elastische bijdrage. Voor de magnetokristallijne bijdrage doet Bruno [28] een voorspelling. Op grond van berekeningen met Néel's model komt hij tot een waarde van 0.84 mJ/m². Over de juistheid van deze waarde bestaat onzekerheid gezien de bezwaren die tegen dit model gemaakt kunnen worden.

De magneto-elastische bijdrage $-\frac{1}{2}B\eta t_c$ is onbekend doordat t_c onbekend is. Bovendien is het nog maar de vraag of voor B de bulkwaarde van cobalt genomen mag worden. Naast deze onzekerheden hebben nog twee andere factoren een belangrijke invloed op K_s.

De eerste betreft diffusie. Het is niet ondenkbaar dat er beetje Co in het andere metaal diffundeert waardoor aan het grensvlak een legering onstaat. Draaisma et al. [29] laten met behulp van een model gelijkend op dat van Néel zien, dat door het "random" karakter van de omgeving van de Co-atomen, K_s kleiner wordt.

De tweede factor betreft de ruwheid van het grensvlak. Ook deze factor reduceert K_s. Bruno [28] leidt af dat bij aanwezigheid van terrassen ter lengte ξ en kraters ter diepte 2σ (zie figuur 4.1.6), de K_s gereduceerd wordt met:

$$\frac{\Delta K_{\rm s}}{K_{\rm s}} = -\frac{2\sigma}{\xi} \tag{4.24}$$



Figuur 4.1.6. Laag ter dikte t met een oppervlakteruwheid bepaald door een gemiddelde kraterdiepte 2σ en een terraslengte ξ .

Dit wordt veroorzaakt door de stap-atomen die een in-vlak voorkeursrichting hebben. De reductie kan gemakkelijk 10% bedragen ($\xi = 50$ Å, $\sigma = 2.5$ Å).

Omdat al deze factoren niet gescheiden kunnen worden en bovendien niet precies of helemaal niet bekend zijn, is het niet mogelijk harde uitspraken te doen omtrent de oppervlakte-anisotropie.

Hiermee sluiten we de behandeling van de diverse bijdragen in de anisotropie af. In de volgende paragraaf zal besproken worden hoe de totale anisotropie gemeten wordt.

4.1.4 De experimentele bepaling van de anisotropie.

De magnetische anisotropie kan met verschillende experimentele technieken bepaald worden. De meest gangbare methodes zijn koppelmetingen, ferromagnetische resonantie metingen en magnetisatiemetingen. Bij dit onderzoek is alleen de laatste methode gebruikt.

De magnetisatiemetingen zijn verricht met een zogenaamde "vibrating sample magnetometer" (VSM). Dit is een instrument waarmee het magnetische moment van een sample via een inductieve methode bepaald kan worden. Het instrument is vrij gevoelig, er kunnen momenten mee gemeten worden van $1.0.10^{-6}$ Am². Omdat multilagen in het algemeen zeer weinig magnetisch materiaal bevatten (vaak minder dan 50 μ g) is deze gevoeligheid een minimale vereiste.

In figuur 4.1.7 is een VSM schematisch weergegeven. Het sample is bevestigd aan een langwerpige houder (niet aangegeven in de figuur) die zodanig is opgehangen dat het preparaat zich tussen de twee polen van een electromagneet bevindt. De



Figuur 4.1.7. Schematische weergave van een VSM.

houder wordt door een luidspreker met een frequentie van 80 Hz in verticale richting op en neer bewogen. De amplitude van de trilling die het sample uitvoert wordt continu gemeten via een piëzo-electrisch element en wordt door terugkoppeling naar de luidspreker zo constant mogelijk gehouden. De acht "pick-up" spoelen die zich ook tussen de magneetpolen bevinden, leveren door de veranderende magnetische flux, een inductiespanning die evenredig is met de component van het magnetisch moment in de richting van het magnetisch veld.

Ter bepaling van de anisotropie van een multilaag wordt twee keer een meting van het magnetisch moment als functie van het aangelegde veld gedaan: een meting waarbij de multilaag met het filmvlak loodrecht op het veld geöriënteerd is $M_{\perp}(B)$ en een meting waarbij het filmvlak evenwijdig aan het veld is $M_{\parallel}(B)$. De energie die nodig is om een materiaal vanuit zijn gedemagnetiseerde toestand in een verzadigde toestand te brengen is gelijk aan:

$$\mathbf{E} = \int_{0}^{\mathbf{m}_{s}} \mu_{0} \mathbf{H}_{a} \mathrm{dm}$$
(4.25)

hierin is m het magnetisch moment van het preparaat gemeten in de richting van het extern aangelegde magneetveld H_a en m_s is het verzadigingsmoment. Deze energie is gelijk aan het oppervlak tussen de M(H)-kromme en de M-as. Het oppervlak ingesloten tussen de $M_{\perp}(H)$ en de $M_{\parallel}(H)$ kromme is dus het verschil in energie tussen de toestand waarin het preparaat loodrecht gemagnetiseerd is en de toestand waarin het sample in-vlak gemagnetiseerd is, met andere woorden dit oppervlak is gelijk aan de anisotropie-energie $K \cdot V$ (V is het sample-volume). Dit is juist als er geen domeinen zijn en er dien ten gevolge ook geen hysterese is. We vinden dan voor een hcp [00.1] Co film, op grond van vergelijking (4.22), een waarde voor het oppervlak gegeven door:

$$K \cdot V = \left[K_1 + K_2 - \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2 + \frac{2K_s}{t} \right] \cdot V$$
 (4.26)

Dit is in overeenstemming met de klassieke theorie waarin de magnetisatiecurves recht toe recht aan worden uitgerekend onder de aaname dat er geen domeinen aanwezig zijn, met andere woorden dat het magnetisatieproces alleen plaats vindt via rotatie van de uniforme magnetisatie (Chikazumi [21]).

De resultaten van deze theorie zijn voor de situatie dat de multilaag een loodrechte anisotropie heeft (K>0) weergegeven in figuur 4.1.8. De loodrechte curve verzadigt bij het demagnetiserende veld $\mu_0 M_s$:



Figuur 4.1.8. Magnetisatie als functie van het aangelegde veld berekend in het geval van een loodrechte voorkeursrichting zonder rekening te houden met hysterese en domeinen.

$$M_{\perp} = \begin{cases} \mu_0 H \text{ voor } |H| \le M_s \\ M_s \text{ voor } |H| > M_s \end{cases}$$
(4.27)

De in-vlak curve verzadigt bij het anisotropieveld $H_{A1} + H_{A2}$:

waarbij:

$$H_{A1} = \frac{2[K_1 + 2K_s/t]}{\mu_0 M_s}; \quad H_{A2} = \frac{4K_2}{\mu_0 M_s}$$
(4.29)

Met behulp van (4.27) en (4.28) is eenvoudig na te rekenen dat voor de oppervlakken A₁ en A₂ geldt:



$$A_1 = K_1 + K_2 - \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2 + \frac{2K_s}{t}; \quad A_2 = \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$$
 (4.29)

Figuur 4.1.9. Een loodrechte en een in-vlak magnetisatiecurve. De anisotropie wordt bepaald uit het oppervlak tussen deze twee curves. Hierbij wordt de hysterese gemiddeld. De curve die niet verzadigd is wordt geeztrapoleerd.

Meting van de magnetizatiecurves van multilagen met verschillende Co-laagdiktes t en vervolgens $A_1 \cdot t = K \cdot t$ uitzetten tegen t moet dan een rechte opleveren met helling $K_v = K_1 + K_2 - \frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$ en een asafsnijding $2K_s$.

In de praktijk spelen domeinen wel een rol, er treedt bijna altijd hysterese op. De anisotropie-energie wordt dan benaderd door het oppervlak dat verkregen wordt door de takken van de hystereselussen te middelen, zie figuur 4.1.9.

We kunnen ons nu afvragen of we op deze manier ook echt de anisotropie-energie hebben bepaald. De vorm van de magnetisatiecurves wordt namelijk niet alleen door de anisotropie bepaald, maar ook door de aanwezige domeinstructuren. Als illustratie hoeven we maar figuur 4.1.9 te beschouwen waarin de magnetizatiecurves zijn weergegeven van een Co/Pd-multilaag met een Co-laagdikte van 4 Å. De loodrechte curve verzadigt, in tegenstelling tot figuur 4.1.8 en vergelijking (4.27), bij een veld dat duidelijk kleiner is dan het demagnetiserende veld van een dunne Co-laag: $\mu_0 M_s = 1.76$ T.

Draaisma et al. [30] en Kooy et al. [31] hebben dit overigens ook theoretisch aangetoond. Volgens hun berekeningen hangt het veld waar de loodrechte curve verzadigt, af van de dikte t van de magnetische laag en van de domeinwand-energie σ_{w} . In figuur 4.1.10 zijn voor verschillende waarden van t/τ ($\tau = \sigma_{w}/\frac{1}{2}\mu_{0}M_{s}^{2}$) enkele loodrechte magnetisatiecurves weergegeven [30]. Voor dunne magnetische lagen is de magnetostatische energie (gelijk aan het oppervlak tussen de loodrechte kromme en



Figuur 4.1.10. De invloed van de dikte t en de gereduceerde domeinwandenergie τ op de loodrechte magnetisatiecurve volgens Draaisma [30] (loodrechte voorkeursrichting, geen hysterese maar wel domeinen).

de M-as) dan dus niet meer gelijk aan $\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$, maar hij is kleiner.

Het is niet aannemelijk dat de in-vlak magnetisatiecurve door domeineffecten precies even veel naar links opschuift, dat het oppervlak tussen de twee krommes gelijk blijft aan $K \cdot V$. Het magnetisatieproces in de situatie dat het veld loodrecht op het filmvlak gericht is, verschilt namelijk essentieel van het magnetisatieproces met het veld evenwijdig aan de film. In het eerste geval vindt het magnetisatieproces immers plaats via verplaatsing van de domeinwanden, terwijl dit in het andere geval plaats vindt via rotatie van de magnetisatie.

Het is dus niet zeker dat de bepaling van de anisotropie uit de VSM-metingen, van multilagen met een loodrechte anisotropie op de juiste manier gebeurt. Deze onzekerheid wordt nog eens versterkt door het feit dat, bij FMR-metingen door Luykx [32] aan multilagen met een loodrechte voorkeursrichting, het resonantiesignaal van momenten met een loodrechte voorkeursrichting, afwezig blijkt te zijn. Het rotatiediagram van deze multilagen heeft namelijk een vorm die hoort bij momenten met een in-vlak vookeursrichting.

Omdat er nog geen model is ontwikkeld dat kan aangeven hoe en in welke mate domeineffecten, de grootte van het oppervlak tussen de loodrechte en de in-vlak magnetisatiecurve beïnvloeden, zijn de metingen geïnterpreteerd als ware er geen sprake van domeinen.

4.1.5 Resultaten en discussie

Er zijn VSM-metingen verricht aan Co/Ir en Co/Pd-multilagen. De anisotropie is bepaald op de manier zoals beschreven in de vorige paragraaf. De resultaten van deze twee systemen zullen achtereenvolgens besproken worden.

De Co/Ir-multilagen

Ten einde de invloed van het substraat op de magnetische anisotropie te kunnen onderzoeken, zijn de Co/Ir-multilagen aangebracht op substraten van glas en geoxideerd silicium. Om ook informatie te krijgen omtrent een mogelijke afhankelijkheid van de iridium-laagdikte, zijn per substraat twee series multilagen met Irlaagdiktes van 24 respectievelijk 44 Å opgedampt. Binnen iedere serie zijn de Colaagdiktes gevarieerd zoals aangegeven in onderstaande tabel. De depositie van de multilagen heeft plaats gevonden bij kamertemperatuur met een depositiesnelheid van 1 Å/s en is vooraf gegaan door depositie van een startlaag van 200 Å Ir.

Tabel 4.1.1.

serie nr.	t _{Ir} [Å]	substraat	t _{Co} [Å]		
1 2	24 24	glas geoxideerd Si	4 8 12 16 20 40 4 8 12 16 20 40		
34	44 44	glas geoxideerd Si	$\begin{array}{cccccccccccccccccccccccccccccccccccc$		

De anisotropieën zijn weergegeven in de grafieken a en b van figuur 4.1.11. In grafiek a zijn de metingen van serie 1 en 2 en in grafiek b zijn de metingen van serie 3 en 4 opgenomen. Dit is gedaan omdat binnen de series 1 en 2 respectievelijk 3 en 4



Figuur 4.1.11. De anisotropie K maal t als functie van t voor Co/Ir-multilagen met een Ir-laagdikte van a) 24 Å en b) 44 Å.

tussen de twee substraten geen noemenswaardige verschillen optraden wat betreft de röntgendiffractogrammen en de anisotropieën. Als er in een grafiek twee meetpunten bij dezelfde Co-laagdikte staan, dan corresponderen deze dus met de twee verschillende substraten. De anisotropiewaarden van het ene substraat lagen niet systematisch hoger of lager dan de overeenkomstige waarden van het andere substraat, vandaar dat er geen onderscheid in de symboolnotatie is gemaakt. De twee series bij de Ir-laagdikte van 24 Å geven, na een kleinste kwadratenaanpassing waarbij de punten met $t_{Co} = 4$ en 8 Å niet zijn meegenomen, een volumebijdrage K_v van -1.16 MJ/m³ en een K_s van 0.76 mJ/m². De afwijking van de 4 en 8 Å punten zal dadelijk aan de orde gesteld worden.

Indien de demagnetisatiebijdrage $-\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$ gelijk is aan -1.23 MJ/m^3 is er een magnetokristallijne bijdrage van 0.07 MJ/m³. Omdat de kristalanisotropie van zuiver hcp Co 0.51 MJ/m³ bedraagt, is het aannemelijk dat slechts een klein deel van de Co-atomen een hcp-omgeving hebben en dat het overgrote deel zich in de fcc-structuur bevindt. Dit is, voor het sample met 40 Å Co per multilaagperiode, bevestigd met kernspinresonantie-experimenten verricht op de T.U.E. door de Gronckel et al. [33], zie figuur 4.1.12.

Wat de waarde van K_s betreft hebben we in paragraaf 4.1.3. gezien dat er geen betrouwbare theorie is waarmee de oppervlakte-anisotropie van perfect scherpe en gladde grensvlakken voorspeld kan worden. Verder kunnen interdiffusie en oppervlakte-ruwheid een belangrijke rol spelen. We weten niet in welke mate ze optreden. Kortom, we kunnen geen harde conclusies trekken uit de K_s waarde. We vermoeden echter wel dat er van oppervlakte-ruwheid sprake is. Deze kan namelijk, indien aanwezig, verantwoordelijk zijn voor de lage anisotropiewaarden van de preparaten met 4 en 8 Å Co. Bij de dikkere lagen waar de gemiddelde kraterdiepte niet groter



Figuur 4.1.12. NMR-spectrum. De intensiteit als functie van het magnetische veld ter plekke van de Co-kernen. Het signaal wordt voornamelijk bepaald door de fcc-fase aangegeven met de pijl [33].

is dan de Co-laag dik is, wordt de oppervlakte-anisotropie weliswaar gereduceerd door de stap-atomen maar hij blijft toch nog aanzienlijk doordat de atomen in de kraters ook nog een oppervlakte-anisotropie hebben, zie figuur 4.1.13 a. In het geval



Figuur 4.1.13. a) Ruwheid bij dikke lagen leidt alleen maar tot toevoeging van een aantal stapatomen. Het aantal oppervlakte-atomen met loodrechte anisotropie blijft gelijk. b) Ruwheid bij dunne lagen leidt tot eilandvorming en daarmee tot een dratische vermindering van het aantal oppervlakte-atomen met loodrechte anisotropie.

van dunne lagen zijn bij dezelfde ruwheid, de kraters dieper dan de Co-laag dik is. Hierdoor onstaan eilanden van Co, zie figuur 4.1.13 b. Tussen deze eilanden ontbreekt nu het cobalt dat bij dikkere lagen nog voor oppervlakte-anisotropie zorgt. Het essentieële verschil tussen de dikke en de dunne lagen is dus gelegen in het feit dat bij dikke lagen de totale oppervlakte loodrecht op de filmnormaal hetzelfde is als bij perfect gladde lagen maar dat bij dunne lagen deze oppervlakte kleiner is. Er zijn bij dunne lagen dus extra minder atomen met een loodrechte voorkeursrichting waardoor de anisotropie extra laag uitvalt.

De preparaten met een Ir-laagdikte van 44 Å gedragen zich blijkens figuur 4.1.11. niet wezenlijk verschillend dan de 24 Å Ir preparaten. De volumebijdrage $K_v = -1.27 \text{ MJ/m}^3$ is binnen de experimentele nauwkeurigheid (5%) gelijk aan de demagnetisatiebijdrage. Dit doet weer vermoeden dat het cobalt zich in de fcc structuur bevindt. Verder wijkt de oppervlakte-anisotropie, in dit geval 0.81 mJ/m², niet significant af van de waarde die geldt bij $t_{Ir} = 24$ Å (de nauwkeurigheid van K_s wordt ook op 5% geschat). De oppervlakte-anisotropie lijkt dus voor diktes in de orde van 20 Å en groter niet af te hangen van de Ir-laagdikte. Dit is in overeenstemming met metingen van de Gronckel et al. [13] die voor Co/Pd-multilagen vonden dat de anisotropie boven een Pd-dikte van 10 Å nagenoeg konstant was.

De Co/Pd-multilagen

Het onderzoek aan deze multilagen was erop gericht te bekijken in welke mate de anisotropie beïnvloed wordt door: A) de depositietemperatuur, B) het al dan niet epitaxiaal zijn van de multilagen en C) de Pd-dikte.

Hiertoe zijn multilagen opgedampt met negen Co-laagdiktes :2, 4, 6, 8, 10, 12, 14, 16 en 20 Å in combinatie met twee depositietemperaturen: 20 en 200° C, twee substraten: mica en glas en twee Pd laagdiktes: 11 en 22 Å. De 1000 Å Pd onderlaag waarop de multilagen zijn opgedampt, is altijd aangebracht bij 450 °C. In totaal zijn er dus 2×2×2 series van 9 preparaten gemaakt.

Van elke serie is via VSM-metingen de anisotropie K als functie van de Co-laagdikte t bepaald. In de figuren 4.1.14 a t/m h is voor de 8 series, K \cdot t uitgezet tegen t. De getrokken lijnen zijn de kleinste kwadraten aanpassingen door de punten. De waarden voor K_v en K_s die hieruit volgen zijn samengevat in tabel 4.1.2.

substraat	T _s [°C]	t _{Pd} [Å]	K _v [MJ/m ³]	K _s [mJ/m²]	serie
mica	200	11	-0.92	0.74	a
mica	200	22	-0.91	0.73	c
mica	20	11	-0.91	0.58	b
mica	20	22	-0.75	0.51	d
glas	200	11	$-0.86 \\ -0.71$	0.56	e
glas	200	22		0.61	g
glas	20	11	-0.86	0.40	f
glas	20	22	-0.87	0.42	h

Tabel 4.1.2.







Figuur 4.1.14. De magnetische anisotropie K vermenigvuldigd met de Co-laagdikte t als functie van deze dikte, voor de Co/Pd-multilaagseries a t/m h..

De absolute K_v -waarden liggen beduidend lager dan de absolute magnetostatische bijdrage van $\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$ ter groote van 1.23 MJ/m³. We zijn geneigd om dit verschil toe te schrijven aan een magnetokristallijne anisotropie van cobalt dat zich in de hcpfase bevindt. We moeten hier zeer voorzichtig mee zijn. De K_v -waarden zijn namelijk voor een groot deel bepaald uit multilagen met dunne Co-lagen en een loodrechte voorkeursrichting. In paragraaf 4.1.4. hebben we gezien dat voor zulke multilagen ten gevolge van domeineffecten de interpretatie van de resultaten dubieus wordt. Naast aanvullende VSM-metingen bij dikkere Co-lagen (t>20 Å) die de K_v en K_s -bepaling betrouwbaarder maken, zijn NMR-experimenten bij de dunne lagen (t<12 Å) wenselijk om zodoende, via een bepaling van de Co-structuur, het physische beeld completer te maken.

Uit de absolute waarden van K_s kunnen om al genoemde redenen geen conclusies getrokken worden. Wel kunnen er uitspraken gedaan worden omtrent de relatieve waarden.

Vergelijken we de series a,c met b,d en e,g met f,h dan blijkt overduidelijk dat een depositietemperatuur van 200 °C tot aanzienlijk hogere waarden voor de oppervlakte-anisotropie leidt dan een depositietemperatuur van 20 °C. Het ligt voor de hand dat de oorzaak hiervan is terug te voeren op het depositieproces. Tijdens het groeien van de multilaag zullen de atomen aan het oppervlak een hogere beweeglijkheid hebben naarmate de substraattemperatuur hoger is, ze diffunderen gemakkelijker over het oppervlak. Het is niet onwaarschijnlijk dat dit leidt tot de vorming van gladdere oppervlakken. Aangezien met gladdere oppervlakken een hogere oppervlakte-anisotropie correspondeert is dit dus een mogelijke verklaring.

Beschouwen we de Pd-dikte afhankelijkheid bij constante T_s en hetzelfde substraat dan constateren we, evenals bij de Co/Ir-multilagen, dat K_s binnen de experimentele nauwkeurigheid, hetzelfde is voor de beschouwde niet-magnetische tussenlaagdiktes. Voor K_v geldt dit ook, behalve voor de combinaties b,d en e,g. Een verklaring voor het afwijken van deze combinaties ontbreekt nog.

Vergelijken we de series a,c met e,g of b,d met f,h, dan constateren we, dat voor mica de K_s groter en de K_v kleiner is, dan voor glas. Het is bekend dat multilagen op mica nagenoeg epitaxiaal groeien terwijl de op glas aangebrachte multilagen polykristallijn worden. Een aanwijzing dat dit ook hier het geval is, vormt het feit dat de coërcitieve velden² van de loodrechte magnetisatiecurves, van de op mica opgedampte multilagen, beduidend kleiner zijn dan de coërcitieve velden van de op glas opgedampte multilagen. Het is echter niet duidelijk waarom het al of niet epitaxiaal zijn van de multilagen, de K_v en de K_s kunnen beïnvloeden.

De scherpere oriëntatie van de kristallieten op mica in vergelijking tot glas kan niet verantwoordelijk zijn voor de verschillen in K_v en K_s . Het verschil in FWHM van de rocking-curves van mica en glas is hiervoor te klein (3[°] respectievelijk 9[°]).

Het is wel mogelijk dat het verschil in anisotropie, veroorzaakt wordt door de, op grond van domeineffecten, mogelijk foute interpretatie.

²Het coërcitief veld is het veld waar de magnetisatie nul wordt.

4.2. De magnetisatie als functie van de temperatuur.

4.2.1. Inleiding

Bij meting van de verzadigingsmagnetisatie M van Co/Pt-multilagen als functie van de temperatuur T blijkt dat de Curie-temperatuur T_c^3 afhangt van de Ptdikte. Een voorbeeld van zo'n meting is weergegeven in figuur 4.2.1.. De Co-laagdikte is hierbij constant gehouden op 4 Å (2 monolagen). Zoals te zien neemt de



Figuur 4.2.1. De relatieve magnetisatie M(T)/M(T=77) als functie van de temperatuur van een aantal Co/Pt-multilagen met verschillende Pt-diktes. De Co-laagdikte van deze multilagen bedraagt 4 Å.

³Dit is de temperatuur waarboven geen "long range order" optreedt, de magnetisatie is daar nul.

Curie-temperatuur af als de Pt-dikte toeneemt. Voor Pt-diktes boven 27 Å is geen Pt-dikte-afhankelijkheid meer waar te nemen. We vragen ons af waar dit gedrag vandaan komt.

Het is bekend dat twee-dimensionale systemen (2d systemen) zonder anisotropie niet ordenen dat wil zeggen $T_c=0$. Ook is bekend dat bij dunne magnetische lagen met anisotropie, de Curie-temperatuur afneemt als de laagdikte afneemt. Zie figuur 4.2.2 waarin een aantal M(T)-krommes staan, berekend door Döring [34] voor



Figuur 4.2.2. De relatieve magnetisatie van een aantal dunne films ter dikte D als functie van de op $T_{\rm C}(D=\infty)$ genormeerde temperatuur, volgens Doring [34].

een aantal verschillende laagdiktes D (D is het aantal atomaire magnetische lagen). De Curie-temperatuur neemt dus af naarmate het systeem meer en meer op een twee-dimensionaal systeem gaat lijken. Dit is ook het geval bij de Co/Pt-multilagen (figuur 4.2.1) als we aannemen dat er een interactie bestaat tussen de Co-lagen die afneemt met de afstand tussen de lagen. Een toenemende Pt-dikte betekent dan immers dat het systeem overgaat van een stel gekoppelde Co-lagen (een drie-dimensionaal systeem) naar een stel ongekoppelde lagen (een verzameling geïsoleerde bij benadering twee-dimensionale systemen) met een lagere Curie- ofwel ordeningstemperatuur.

Met deze redenering kunnen we kwalitatief het verband tussen de ordeningstemperatuur en de Pt-dikte begrijpen. Overigens, het afnemen van de ordeningstemperatuur met toenemende Pt-dikte, kan niet verklaard worden door een, met de Pt-dikte veranderende anisotropie. De Gronckel et al. [13] vonden voor Co/Pd-multilagen namelijk een anisotropie die *toenam* met de Pd-dikte. Dit zou, aangezien de ordeningstemperatuur hoger is naarmate er meer anisotropie is, een toename betekenen van T_c met t_{p_t} , in plaats van de waargenomen afname.

Omdat de onderzoek naar het temperatuurgedrag zich nog in een pril stadium bevindt en omdat in de literatuur tot nu toe weinig of geen aandacht is besteedt aan het probleem van gekoppelde 2d of bijna 2d systemen, is er op dit moment nog geen model beschikbaar dat dit verband tussen T_c en t_{Pt} kwantitatief beschrijft. Voor het analoge probleem, dat van gekoppelde één-dimensionale systemen, is echter wel een model beschikbaar. In een aanzet tot een model ter beschrijving van ons systeem, laten we ons dan ook leiden door daar gebruikte methoden. Hieraan zal de nu volgende paragraaf gewijd zijn.

4.2.2. Model.

In de literatuur is veel werk verricht op het gebied van zwak gekoppelde 1d systemen. De modellen die men daar hanteert zijn vaak gebaseerd op een bepaalde benaderingsmethode. Het betreft een mean field benadering. In de aanzet tot een model dat zwak gekoppelde 2d of bijna 2d systemen moet gaan beschrijven, maken we gebruik van deze benadering. We zullen de mean field benadering introduceren via een bespreking van het gekoppelde ketenprobleem.

Beschouw een aantal gekoppelde ketens die evenwijdig aan elkaar in een vlak liggen, zie figuur 4.2.3.. We gaan ervan uit dat we binnen de keten te maken hebben



Figuur 4.2.3. Schematische weergave van een "simple square" twee-dimensionaal rooster. De beschouwde ketens lopen horizontaal. n is het ketennummer, i is het positienummer in de keten en J en J' zijn de interactiesterktes in de ketens en tussen de ketens.

met S $=\frac{1}{2}$ Ising-spins⁴die alleen naaste-buur exchange-interacties met elkaar hebben.

⁴Er worden $S = \frac{1}{2}$ Ising spins genomen omdat hier relatief gemakkelijk mee gerekend

De Hamiltoniaan ziet er dan als volgt uit:

$$\mathcal{H} = -2J\sum_{n,i} S_{n,i}^{z} S_{n,i+1}^{z} - 2J^{,} \sum_{n,i} S_{n,i+1,i}^{z} - \sum_{n,i} g\mu_{B} HS_{n,i}^{z}$$
(4.30)

De eerste term beschrijft de naaste-buur exchange-interacties in de keten. J is de intraketen interactie sterkte. Er wordt gesommerd over alle spins dat wil zeggen over de ketenindex n en binnen de keten over de positie-index i. De tweede term beschrijft de interacties tussen de ketens. J' is de interketen exchange. De laatste term representeert de Zeeman-energie van alle spins. Hierin is $\mu_{\rm B}$ het Bohrmagneton, g is de Landé-factor en H het interne magnetische veld in de z-richting.

Ter bepaling van de ordeningstemperatuur T_c worden de interketen-interacties behandeld binnen een mean field benadering (de intraketen interacties worden exact behandeld). Dit betekent niets anders dan dat de interacties van een bepaalde keten met zijn omgeving vervangen worden door een gemiddeld effectief veld. Bij het zoeken naar dit veld wordt de operator $S_{n+1,i}^z$ vervangen door zijn verwachtingswaarde $\langle S^z \rangle$. De Hamiltoniaan gaat nu, na het laten vallen van de index n, over in de Hamiltoniaan van het probleem van een een-dimensionale keten in een effectief veld van $g\mu_B H + 2z'J' \langle S^z \rangle$

$$\mathcal{H} = -2J\sum_{i} S_{i}^{z} S_{i+1}^{z} - \sum_{i} \left\{ g\mu_{B} H + 2z' J' < S^{z} \right\} S_{i}^{z}$$
(4.31)

Hierin is z' het aantal naaste buur ketens, in ons geval 2. $2z'J' < S^z >$ is het gemiddelde veld op een gegeven spin ten gevolge van de naaste-buur ketens. In appendix 5 wordt nu de volgende uitdrukking voor de ordeningstemperatuur afgeleid:

$$\frac{fJ'}{Ng^2\mu_B^2} \cdot \chi_{1d}(T_c) = 1$$
(4.32)

Hierin is χ_{1d} de susceptibiliteit in veld nul van een geïsoleerde keten, N het aantal spins per keten en f is gedefinieerd door f= 2z'. Scalapino et al. [35] komen overigens ook tot uitdrukking (4.32).

We hebben dus via de mean field benadering het 2d-Ising probleem teruggebracht tot een 1d-Ising probleem. Alleen χ_{1d} hoeft maar uitgerekend te worden. Deze is echter voor het 1D Ising-probleem bekend en wordt gegeven door [36]:

$$\chi_{1d \text{ Ising}} = N \frac{(g\mu_B)^2}{kT} \cdot e^{J/kT}$$
(4.33)

Wordt (4.33) ingevuld in (4.32) dan krijgen we een vergelijking waaruit eenvoudig de benadering voor T_c kan worden bepaald.

Het probleem voor het geval H = 0 is echter door Onsager [37] exact opgelost. De exacte T_c wordt impliciet gegeven door:

$$\sinh(J/kT_c) \cdot \sinh(J'/kT_c) = 1 \tag{4.34}$$

We hebben nu dus de mogelijkheid om te bekijken hoe goed de mean field benadering de werkelijkheid beschrijft. Hiertoe wordt de Curie-temperatuur als functie van J'/J uitgerekend volgens de benaderingsmethode en volgens Onsager's oplossing. De resultaten zijn weergegeven in figuur 4.2.4 (waar verticaal eigenlijk niet T_c maar



Figuur 4.2.4. De ordeningstemperatuur als functie van J'/J. De getrokken lijn is de ezacte oplossing volgens vergelijking (4.34). De gestippelde lijn is de benadering volgens het mean field model. Verticaal staat de genormeerde ordeningstemperatuur kT_c/J uit.

 kT_c/J uit staat). De getrokken lijn representeren de exacte T_c -waarden volgens (4.34) terwijl de gestippelde lijn een weergave is van de benaderde T_c -waarden volgens (4.32) en (4.33). Hierbij is voor f de waarde 4 genomen. De benadering geeft dus te hoge waarden voor T_c . Dit is niet verwonderlijk, het is namelijk algemeen bekend dat mean field benaderingen de ordeningstemperatuur overschatten. Om de exacte T_c -waarden beter te benaderen moet de benaderingsmethode gemodificeerd worden.

Dit zou bijvoorbeeld kunnen gebeuren door de benaderde T_c -waarden T_{ca} te schalen naar de exacte waarden T_{ce} via een vermenigvuldigingsfactor. Na vermenigvuldiging van $T_{ca}(J'/J)$ met $T_{ce}(J'/J=1)/T_{ca}(J'/J=1)$ blijkt echter dat de benaderingen bij kleine J'/J veel lager liggen dan de exacte waarden (een resultaat dat triviaal is als we figuur 4.2.4. beschouwen en opmerken dat de hellingen van beide curves veel van elkaar verschillen).

Een geschiktere methode methode is het aanpassen van f in vergelijking (4.32). Nemen we voor f een factor 8 lager dan de waarde die f volgens de mean field theorie behoort te hebben (f=1/2 in plaats van 4), dan krijgen we een verrassend goede overeenstemming tussen de exacte en de benaderde waarden, zie figuur 4.2.5.. Zowel



Figuur 4.2.5. Evenals figuur 4.2.4. met dit verschil dat de benadering nu berekend is door f een factor 8 lager te nemen dan de waarde die f op grond van de normale mean field benadering hoort te hebben.

de exacte curve als de benadering gaan in de J'=0 limiet (ongekoppelde ketens) naar $T_c=0$. De exacte curve doet dit natuurlijk omdat 1d-Ising ketens niet ordenen. De benadering doet dit omdat het product $J'\chi$ in de J'=0 limiet volgens vergelijking (4.32) gelijk moet blijven aan een konstante ongelijk aan nul. Bij J'=0 is dit alleen mogelijk als χ naar ∞ gaat hetgeen volgens (4.33) alleen bij T=0 gebeurt.

Ilet een factor 8 lager nemen van f dan de mean field theorie voorschrijft, is verder nog toegepast op twee andere situaties. De eerste is weer een koppeling van 1d-Ising ketens maar nu niet tot een 2d-Ising vlak maar tot een 3d "simple cubic" kristal. De tweede situatie is de koppeling van 2d-Ising vlakken tot dit zelfde "simple cubic" Ising-kristal.

In figuur 4.2.6. zijn de resultaten weergegeven voor de koppeling van de ketens (f = 1). De exacte Curie-temperatuur van het 3d-Ising sc kristal waarbij in alle richtingen de exchange-interactie hetzelfde is (J'=J), wordt gegeven door Domb [38]: $T_c = 2.34$. Deze temperatuur, aangegeven in de figuur met een blokje op de J'/J = 1lijn, wordt zoals te zien vrij redelijk benaderd met f = 1. De curve voor f = 8 (z'=4) geeft weer zoals te verwachten een overschatting. Bij J'=J komt hij namelijk uit



Figuur 4.2.6. De genormeerde ordeningstemperatuur als functie van J'/J berekend met een model waarbij de interketen interacties binnen een mean field theorie worden behandeld. f=8: vier buurketens, f=1: aangepast mean field model.
bij $T_c = 8.94$.

De resultaten bij de koppeling van de 2d-Ising vlakken zijn weergegeven in figuur 4.2.7. Ze zijn verkregen door voor de susceptibiliteit in vergelijking (4.32) de susceptibiliteit van het 2d-Ising vlak in te vullen. (Deze wordt susceptibiliteit wordt gegeven door Domb [38] in de vorm van een hoge temperatuur reeksontwikkeling). De normale mean field benadering (f=4) overschat de Curie-temperatuur bij J'/J = 1 met een factor 5.84/2.34. De curve met f = 1/2 geeft weer beduidend betere resultaten. Het is duidelijk dat door variatie van f overeenstemming kan worden bereikt met de exacte T_c die hoort bij J'= J. Voor f= 0.74 is dit het geval. De bijbehorende curve is weergegeven met de getrokken lijn. In de J' = 0 limiet naderen de curves de exacte Curie-temperatuur die hoort 2d-Ising bij een vlak: $kT_c/J = 1/\ln(1+\sqrt{2}) \approx 1.13$. (Dit is de waarde waarbij de getrokken curve uit figuur 4.2.5. de J'/J = 1 lijn snijdt).



Figuur 4.2.7. De genormeerde ordeningstemperatuur berekend als functie van J'/J. De intervlak interacties zijn binnen een mean field model behandeld. f = 4: twee buurvlakken, $f = \frac{1}{2}$ en f = 0.74 zijn aangepaste benaderingen.

Daar in deze aangepaste mean field theorie het beginpunt (J'=0) en het eindpunt (J'=J) goed benaderd worden, zal voor de tussenliggende waarden van J'/J de benadering ook vrij redelijk zijn. De ordeningstemperatuur zal namelijk een monotoon stijgende functie van J'/J zijn.

We hebben dus nu een middel om bij een gegeven Curie-temperatuur de bijbehorende verhouding J'/J te bepalen. Meting van de Curie-temperatuur als functie van de afstand tussen de vlakken (de Pt-dikte in ons geval) geeft dan direct de plaatsafhankelijkheid van J'/J. In figuur 4.2.8. is aangegeven hoe dit grafisch zou



Figuur 4.2.8. Grafische constructie van J'/J als functie van de afstand d tussen de lagen (c) uit de meetpunten vam kT_c/J als functie van de Pt-dikte (b) via het aangepaste mean field model (a).

kunnen gebeuren. De volgende stap is deze afhankelijkheid te verbinden met de fysica. We moeten bekijken of de afhankelijkheid overeen komt met een al bekende interactie. Een belangrijke kandidaat is bijvoorbeeld de RKKY-interactie (genoemd naar Ruderman, Kittel, Kasuya en Yosida). Dit is een indirecte exchange-interactie tussen magnetische ionen via een wisselwerking met de vrije ladingsdragers.

Zover is het onderzoek echter nog lang niet gevorderd. Eerst moet bekeken worden of het begin- en het eindpunt $(kT_c/J \text{ bij } J'/J = 0 \text{ respectievelijk } 1)$ van het 2d-Ising model redelijk overeenkomen met het begin- en het eindpunt van het experiment (kT_c/J bij t_{Pt} groot respectievelijk kT_c/J van bulk cobalt). Het is goed mogelijk dat dit niet het geval is. We hebben immers te maken met cobalt waarbij de intralaag interacties waarschijnlijk beter beschreven kunnen worden met een Heisenberg-model. Het Ising-model is namelijk alleen van toepassing op systemen met een sterke anisotropie hetgeen hier niet het geval is. De magnetische anisotropie valt namelijk in het niet bij de exchange-interactie J. Voor cobalt is J in de orde van 155 K [39] terwijl een anisotropie-energie van 1 MJ/m³ overeen komt met 0.8 K.

Het voorgaande mean field model is ook toegepast op de koppeling van Heisenbergvlakken tot een 3d Heisenberg-kristal. Het behoeft geen toelichting dat het principe hetzelfde is. Numrieke problemen maakten het echter onmogelijk de resultaten hiervan te presenteren.

Hiermee besluiten we deze paragraaf. In de volgende twee paragrafen zal aan de orde komen hoe de temperatuurafhankelijke magnetisatiemetingen zijn uitgevoerd. De resultaten zullen besproken worden. Het is duidelijk dat het nog niet mogelijk is om hieraan, op een gedetailleerd niveau, conclusies te verbinden.

4.2.3 Het experiment.

In figuur 4.2.9 is de opstelling waarmee de magnetisatie als functie van de temperatuur gemeten wordt, schematisch weergegeven. Het preparaat dat zich tussen de polen (8) van een electromagneet (0-1.5 T) bevindt, wordt via de stookregeling van de oven (6) op een bepaalde temperatuur gebracht. De momentmeting die nu plaats vindt, is gebaseerd op het Faraday-balans principe. Een konstante veldgradiënt ter plekke van het preparaat, veroorzaakt door de gradiëntspoelen (7), oefent een kracht uit op het preparaat en het emmertje (5) in verticale richting. Deze kracht wordt gekompenseerd met een electronische balans en vervolgens omgerekend naar de grootte van het magnetische moment m via de formule

$$\mathbf{F}_{\mathbf{z}} = \mathbf{m} \cdot \frac{\partial \mathbf{B}_{\mathbf{x}}}{\partial \mathbf{z}} \tag{4.34}$$

waarin $\partial B_x/\partial z$ de bekende konstante veldgradiënt is. Dit wordt bij vaste temperatuur heraald voor een aantal verschillende aangelegde velden. Door de zo verkregen meetpunten wordt een rechte getrokken en vervolgens geëxtrapoleerd naar nul veld,

. .



Figuur 4.2.9. Schematische weergave van de Faraday-balans opstelling. (1) electronische balans, (2) kwartsdraad, (3) thermokoppel, (4) emmertje, (5) preparaat, (6) oven, (7) gradientspoelen, (8) hoofdveld spoelen, (9) kraan om (stikstof) gas te laten ontsnappen. Op het hoofdveld dat gericht is langs de z-as is een veldgradient aangebracht in de z-richting.

zie figuur 4.2.10. De asafsnijding van de verticale as geeft zodoende het spontane magnetische moment gecorrigeerd voor para- en diamagnetische bijdragen van het emmertje en het preparaat. Hierbij dient nog opgemerkt te worden dat de meting



Figuur 4.2.10. Faraday-balans meting van de magnetisatie als functie van het veld en de temperatuur. Extrapolatie van de meetpunten bij vaste temperatuur naar veld nul geeft de spontane magnetisatie bij die temperatuur.

alleen maar uitgevoerd kan worden met één relatieve oriëntatie van het magneetveld ten opzichte van het prepaat. Deze oriëntatie wordt bepaald door de easy-as van het preparaat. Het emmertje is namelijk vrij roteerbaar opgehangen waardoor het moment zich kan richten langs het aangelegde veld. Dit betekent voor multilagen met dunne magnetische lagen (4 à 6 Å) met loodrechte anisotropie, dat er gemeten wordt met het magneetveld loodrecht op het filmoppervlak. Daar deze multilagen in deze geometrie verzadigen bij een veld kleiner dan 0.5 T (zie bijvoorbeeld figuur 4.1.9), meten we de verzadigingsmagnetisatie.

4.2.4 Resultaten en suggesties.

Er zijn metingen zijn uitgevoerd aan Co/Pt-multilagen in een temperatuurgebied van 77 tot 600 K.

Metingen bij nog hogere temperaturen worden onbetrouwbaar omdat daar de multilaagstructuur verandert door diffusie van cobalt in platina of omgekeerd.

Om te kontroleren of dit niet al eerder gebeurt is het volgende experiment uitgevoerd: Er wordt begonnen het preparaat af te koelen tot 100 K. Vervolgens worden een aantal meetpunten met toenemende temperatuur genomen tot 350 K. Hierna wordt afgekoeld tot 100 K en wordt er opnieuw gemeten maar nu tot een temperatuur van 400 K. Dit afkoelen en meten tot een temperatuur die hoger is dan de vorige eindtemperatuur, is in totaal vijf keer gedaan. De resultaten zijn weergegeven in figuur 4.2.11. Hieruit blijkt dat tot 450 K alle veranderingen reversibel zijn. Pas boven 500 K treden lichte irreversibele veranderingen op. De metingen zijn dus zeker betrouwbaar tot 450 K.

De Co/Pt-multilagen die onderzocht zijn, zijn opgedampt onder UHV-condities met een depositiesnelheid van 1 Å/s en een substraattemperatuur van 20 °C. De onderlaag bestond uit een 1000 Å Pd laag. In onderstaande tabel is aangegeven om welke preparaten het gaat.



Figuur 4.2.11. Experiment om te controleren of het M(T)-gedrag niet een gevolg is van structuurveranderingen (interdiffusie bijvoorbeeld).

Tabel 4.2.1.



Figuur 4.2.12. Relatieve magnetisatie als functie van de temperatuur en de platinalaagdikte. De cobaltlaagdikte is vast gehouden op 4 Å in (a) op 6 Å in (b) en op 8 Å in (c). De meting in (c) bij een Pt-dikte van 54 Å is onbetrouwbaar.

In figuur 4.2.12 a,b en c zijn de magnetisatiemetingen van de series 1,2 resp. 3 weergegeven. Verticaal is de relatieve magnetisatie uitgezet dat wil zeggen het magnetische moment van het betreffende preparaat bij de gegeven temperatuur, gedeeld door het moment bij T = 77 K. Deze schaling is toegepast omdat de preparaten binnen iedere serie verschillende hoeveelheden cobalt bevatten.

De Pt-dikte afhankelijkheid is al besproken in paragraaf 4.2.1. Zoals uit figuur 4.2.12 blijkt speelt de Co-laagdikte ook een rol. Bij een Co-laagdikte van 6 Å liggen de magnetisatiecurves van de 9 en 18 Å Pt-diktes dichter bij elkaar dan dit het geval is bij de overeenkomstige 4 Å Co-multilagen. Dit is in overeenstemming met onze intuïtie. We verwachten namelijk dat de invloed van de Pt-dikte afneemt als de Co-dikte toeneemt (een geïsoleerd bulk Co-kristal zal hetzelfde temperatuurge-drag vertonen als twee bulk-kristallen gescheiden door een dun laagje platina). De serie met 8 Å Co spreekt dit echter tegen. Hier blijkt de Pt-dikte afhankelijkheid over een groter dikte gebied een rol te spelen. Het is niet duidelijk waarom dit zo is (De meting bij $t_{pt} = 54$ Å is onbetrouwbaar, uit XRD-experimenten blijkt dat de multilaagstructuur van dit preparaat van slechte kwaliteit is).

Modelberekeningen zijn zoals gezegd nog niet uitgevoerd. Er kunnen dus geen conclusies getrokken worden. Wel kunnen een aantal suggesties gedaan worden ten aanzien van toekomstig onderzoek.

Beschouwen we figuur 4.2.12 a dan is duidelijk dat indien men de interlaagkoppeling J' als functie van de afstand wil bepalen, er extra meetpunten nodig zijn tussen de Pt-diktes 9 en 18 Å. Verder is het ten behoeve van een nauwkeurige bepaling van T_c , wenselijk meetpunten te hebben die dichter bij T_c liggen. De thermische stabiliteit van de multilagen legt echter beperkingen op aan het meetgebied. De Co-houdende multilagen zijn dus eigenlijk ongelukkige systemen om een interlaaginteractie te bestuderen. Wellicht zijn op Ni gebaseerde multilagen beter geschikt. Bulk Ni heeft namelijk een lagere Curie-temperatuur dan bulk Co (627 K resp. 1388 K) waardoor er in het geval van Ni-multilagen bij relatief hogere temperaturen (ten opzichte van T_c) gemeten kan worden zonder buiten het stabiliteitsgebied te komen. Dit wat betreft het magnetische element.

Opdat het modelsysteem (dunne magnetische lagen gescheiden door niet-magnetische lagen) in de praktijk zo goed mogelijk geraliseerd wordt, dient het andere element ook echt niet-magnetisch te zijn. Pt en Pd zijn in dit opzicht dus minder geschikt door hun polariseerbaarheid⁵. Op het eerste gezicht lijkt Ni/Ag dus een

⁵Als Pt- of Pd-atomen in contact komen met een magnetisch element kan er een magnetisch moment op deze atomen geïnduceerd worden.

ideale combinatie (Ag kan niet gepolariseerd worden). Het spreekt van zelf dat er wel bekeken moet worden of Ni/Ag-multilagen zich goed laten groeien. Het is belangrijk dat er ook werkelijk dunne Ni-lagen gevormd worden. Eilandvorming kan namelijk een belangrijke invloed hebben op de ordeningstemperatuur. Als de eilanden kleine afmetingen hebben, kan de correlatielengte⁶"vast lopen" tegen de eilandgrenzen. Aangezien de susceptibiliteit kleiner wordt naarmate de correlatielengte kleiner wordt [36], neemt de ordeningstemperatuur (via (4.33)) ook af.

⁶dit is een lengte waarover de richtingen van de spins nog een bepaalde correlatie met elkaar hebben, de Jonge et al. [40].

Hoofdstuk 5 Conclusies en aanbevelingen

Er is onderzoek gedaan aan Co/Ir-, Co/Pd- en Co/Pt-multilagen. In dit hoofdstuk zullen de belangrijktste resultaten en conclusies samengevat worden. Tevens zullen enkele aanbevelingen gedaan worden. Omwille van de overzichtelijkheid is het hoofdstuk opgedeeld in drie paragrafen. De eerste paragraaf is gewijd aan de röntgendiffractie-experimenten, de tweede aan de magnetische anisotropie en de derde en laatste beterft het temperatuurafhankelijke gedrag.

5.1 Röntgendiffractie

De multilagen zijn gekarakteriseerd met behulp van röntgendiffractie-experimenten. Met een eenvoudig en inzichtelijk een-dimensionaal model kunnen de belangrijkste kenmerken van de multilaagdiffractiepatronen begrepen worden. Omdat het model uit gaat van een geïdealiseerde multilaag (een discreet aantal atomaire vlakken per multilaagperiode, perfect gladde en scherpe grensvlakken en een over het hele preparaat constante multilaagperiode) is het niet mogelijk de diffractiepatronen gedetailleerd te fitten en zodoende de roosterconstantes van de twee composietmatalen te bepalen.

Door de voor breking gecorrigeerde wet van Bragg te schikken naar de satellietposities bij lage en hoge hoek, kan de multilaagperiode bepaald worden. Deze blijkt goed overeen te komen met de tijdens depositie ingestelde periode. Uit de hoge hoek diffractiepatronen blijkt verder dat de multilagen gegroeid zijn met hun dichtst gepakte vlakken evenwijdig aan het filmvlak. Dit komt wat de fcc edelmetalen Ir, Pd en Pt betreft overeen met een [111]-textuur. Voor het cobalt betekent dit een hcp [00.1]- of een fcc [111]-textuur.

Omdat de XRD-experimenten zijn uitgevoerd in de geometrie dat de verstrooiingsvector loodrecht op het filmvlak staat, was het niet mogelijk onderscheid te maken tussen cobaltlagen met een hcp [00.1]- en een fcc [111]-textuur. Het is dus nuttig om in de toekomst experimenten uit te voeren in een andere geometrie. Voor polykristallijne multilagen is dit echter moeilijk, daar maar een kleine fractie van de kristallitieten aan de Bragg-conditie zullen voldoen. De intensiteiten zullen hierdoor laag en misschien zelfs niet meetbaar zijn. Voor epitaxiaal gegroeide multilagen biedt het meten in een andere geometrie betere perspectieven.

5.2 Magnetische anisotropie

Van de Co/Ir- en de Co/Pd-multilagen is door meting van de magnetisatie als functie van het aangelegde veld, de magnetische anisotropie bepaald. De anisotropieenergie van de cobaltlagen blijkt beschreven te kunnen worden met een bijdrage die evenredig is met het volume van de laag en een bijdrage die evenredig is met het oppervlak van de twee grensvlakken. Er is nog geen betrouwbare theorie opgesteld waarmee de oppervlakte-anisotropie berekend kan worden. Zelfs voor de situatie dat de magnetische lagen perfect gladde en scherpe grensvlakken hebben, blijkt dit tot nu toe niet mogelijk. Bij de interpretatie van experimentele waarden spelen bovendien een aantal onbekende factoren waaronder de ruwheid en de diffuusheid van de grensvlakken, een belangrijke rol.

De Co/Ir-multilagen zijn met 1 Å/s opgedampt bij kamertemperatuur op substraten van glas en geoxideerd silicium. De anisotropiën bleken niet af te hangen van het soort substraat. Evenmin zijn er significante verschillen geconstateerd tussen de multilagen met Ir-laagdiktes van 24 en 44 Å.

De volumebijdrage van de diverse preparaten blijkt binnen de experimentele nauwkeurigheid gelijk te zijn aan de vormanisotropie. Hieruit zou geconcludeerd kunnen worden dat het cobalt de fcc-structuur heeft aangenomen. De oppervlakteanisotropie is van de orde 0.8 mJ/m^2 .

Bij cobaltlaagdiktes van 6 en 8 Å worden lagere anisotropie-energiën gevonden dan op grond van de relatie $K = K_v + 2K_s/t$ verwacht mag worden. Deze afwijking wordt verklaard door aan te nemen dat het cobalt zich niet in nette aaneengesloten vlakke lagen bevindt, maar dat er zich eilanden van cobalt hebben gevormd.

De Co/Pd-multilagen zijn opgedampt met 1 Å/s zowel bij kamertemperatuur als bij 200 °C op substraten van glas en mica. Ook hier worden geen duidelijke en systematische verschillen gevonden tussen de anisotropiën van multilagen met Pddiktes van 11 en 22 Å.

De op mica aangebrachte multilagen worden geacht epitaxiaal te zijn. Uit de experimenten blijkt dat deze multilagen een hogere oppervlakte-anisotropie bezitten dan de overeenkomstige, op glas aangebrachte multilagen. Een verklaring hiervoor ontbreekt nog.

Voor multilagen gegroeid bij kamertemperatuur worden lagere anisotropiën

gevonden dan de op hetzelfde substraat bij 200 °C gegroeide multilagen. Dit verschil wordt verklaard door ervan uit te gaan dat de bij 200 °C gevormde grensvlakken gladder zijn dan de grensvlakken gevormd bij kamertemperatuur.

De numerieke waarden voor de oppervlakte-anisotropie varieeren van 0.7 mJ/m² voor de mica 200 °C preparaten tot 0.4 mJ/m² voor de glas 20 °C preparaten. De volumebijdragen die van de orde -0.9 MJ/m³ zijn, hangen nauwelijks af van het soort substraat en de depositietemperatuur en duiden op een intrinsieke anisotropie corresponderend met een loodrechte voorkeursrichting. Cobalt dat zich voor een deel in de hcp-fase bevindt zou hiervoor verantwoordelijk kunnen zijn. Kernspinresonantie-experimenten zouden deze uitspraak kunnen onderbouwen of weerleggen.

Met het trekken van conclusies van welke aard dan ook, uit anisotropiewaarden bepaald met een VSM, moeten we overigens zowie zo voorzichtig zijn. Er betsaat namelijk nog onduidelijkheid over de invloed van domeinen op het oppervlak tussen de loodrechte en de in-vlak magnetisatiecurve. Bovendien komen, bij dunne cobaltlagen waarvan bekend is dat domeinen een belangrijke rol spelen, de met ferromagnetische resonantie bepaalde anisotropiewaarden niet overeen met de via de VSM bepaalde anisotopiewaarden. Hier ligt dus nog een stuk theoretisch werk.

5.3 Temperatuurafhanklijk gedrag

Van Co/Pt-multilagen opgedampt met 1 Å/s bij kamertemperatuur op substraten van glas en geoxideerd silicium, is de magnetisatie als functie van de temperatuur gemeten. Uit het feit dat bij vaste cobaltlaagdikte de magnetisatie sneller daalt met toenemende temperatuur naarmate de cobaltlagen door een dikkere platinalaag gescheiden worden, wordt geconcludeerd dat er een interactie tussen de cobaltlagen bestaat.

Er is nog geen model dat dit gedrag kwantitatief kan beschrijven. Wel zijn er tot een aanzet van zo'n model berekeningen gedaan aan gekoppelde Ising-ketens en Ising-vlakken. Het blijkt dat deze systemen zich relatief goed laten beschrijven met een model waarbij de interketen- respectievelijk de intervlak-interacties behandeld worden binnen een aangepaste mean field benadering. Bij gegeven ordeningstemperatuur is het mogelijk de verhouding tussen de inter- en intralaag-interactiesterkte te berekenen.

De toekomst moet uitwijzen of met dit model, kwantitatief het gedrag van de ordeningstemperatuur als functie van de niet-magnetische tussenlaagdikte, beschreven kan worden. Wat dit aangaat is het Co/Pt-multilaagsysteem eigenlijk niet geschikt. Cobalt heeft het nadeel van een relatief hoge Curie-temperatuur waardoor de meetpunten, omwille van thermische stabiliteit van de multilaag, niet dicht genoeg bij de Curietemperatuur liggen om deze nauwkeurig te kunnen bepalen. Platina heeft als nadeel dat het polariseerbaar is waardoor het systeem waar we aanrekenen - magnetische lagen gescheiden door niet-magnetische lagen - niet de werkelijkheid is.

Ter toetsing van het model zijn Ni/Ag-multilagen wellicht beter geschikt. Ni omdat het een lagere Curie-temperatuur heeft dan Co en Ag omdat dit niet polariseerbaar is.

Referenties

- Terauchi H., Sekimoto S., Kamigaki K., Sakashita H., Sano N., Kato H. en Nakayama M., J. Phys. Soc. Jpn. 54(1985)4576
- Hilliard J.E. (1979). In Modulates Structures, edited by J.M. Cowley, J.B.
 Cohen, M.B. Salamon and B.J. Weunsch, p 407. AIP Conf. Proc. 53, Amer.
 Inst. Phys. New York.
- [3] Fujii Y., in *Metallic superlattices*, edited by T. Shinjo and T. Takada (Elsevier, Amsterdam, 1987),p 34.
- [4] Draaisma H.J.G., proefschrift TUE (1988)
- [5] McWhan D.B., in Synthetic Modulated Strutures, edited by L.L. Chang and B.C. Giessen (Academic, Orlando, FL, 1985), p 47.
- [6] Cho A.Y., Arthur J.R., Prog. Solid State Chem. 10(1975)157
- [7] Barbee T.W., Jr, in Synthetic Modulated Strutures, edited by L.L. Chang and B.C. Giessen (Academic, Orlando, FL, 1985), p 318-319.
- [8] Segmüller A., Blakeslee A.E., J. Appl. Cryst. 6(1973)19
- [9] Schüller I.K., Phys. Rev. Lett. 44(1980)1597
- [10] Mitura Z., Mikolajczak P., J. Phys. F: Met. Phys. 18(1988)183
- [11] Stearns M.B., Phys. Rev. B 38(1988)8109
- [12] Gyorgy E.M., et al., Phys. Rev. 25(1982)6739
- [13] de Gronckel H.A.M., Appl. Phys. A (in press)
- Bisanti P., Brodsky M.B., Felcher G.P., Grimditch M. en Sill L.R., Phys. Rev. B 35(1987)7813
- [15] Window B., J. Appl. Phys. 63(1988)1080
- [16] Néel L., J. Phys. et le Rad. 15(1954)225
- [17] Gradmann U., J. Magn. Magn. Mat. 54-57(1986)733
- [18] Gradmann U., Bergholtz R., IEEE Trans. on Magn. 20(1984)1840
- [19] Gradmann U., in Landolt-Börnstein (New Series III/19g)
- [20] Draaisma H.J.G., den Broeder F.J.A., de Jonge W.J.M., J. Magn. Magn. Mat. 66(1987)351
- [21] Chikazumi S., Physics of Magnetism (Wiley & Sons, New York, 1964)
- [22] Cullity B.D., Introduction to Magnetic Materials (Addison-Wesley Reading, MA, 1972)
- [23] Kittel C., Rev. Mod. Phys. 21(1949)541
- [24] Rodbell D.S., J. Phys. Soc. Japan 17(1962)313s, J. Appl. Phys. 33(1962)1126
 Physics 1(1965)279
- [25] Gradmann U., Korecki J., Waller G., Appl. Phys. A 39(1986)101

- [26] Draaisma H.J.G., de Jonge W.J.M., J. Appl. Phys 64(1988)3610
- [27] Chappert C., Bruno P., J. Appl. Phys. 64(1988)5736
- [28] Bruno P., J. Phys. F: Met. Phys. 18(1988)1291
 J. Appl. Phys. 63(1988)3479
- [29] Draaisma H.J.G., den Broeder F.J.A. en de Jonge W.J.M.,
- [30] Draaisma H.J.G., de Jonge W.J.M., J. Appl. Phys. 62(1987)3318
- [31] Kooy C., Enz U., Philips Res. Rep. 15(1960)7
- [32] Luykx M.P.M., afstudeerverslag TUE (1988)
- [33] de Gronckel H.A.M., Bienert W., private communications.
- [34] Döring W., Z. Naturf. 16a(1961)1146
- [35] Scalapino D.J., Imry Y., Pincus P., Phys. Rev. B 11(1975)2042
- [36] Stanley H.E., Introduction to Phase Transitions and Critical Phenomena (Clarendon Press, Oxford, 1971)
- [37] Onsager L., Phys. Rev. 65(1944)117
- [38] Domb C., in Phase transitions and critical phenomena, edited by C. Domb and M.S. Green (Academic Press, London, New York, 1974), dl. 3.
- [39] Tannenwald P.E., Weber R., Phys. Rev. 121(1961)715
- [40] de Jonge W.J.M., Kopinga K., Voortgezette Vaste Stof Fysica A (dictaat T.U.E.)
- [41] Cullity B.D., *Elements of X-ray diffraction* (Addison-Wesley, 1978)
- [42] Azároff L.V., Elements of X-ray Crystallography (McGraw-Hill, New York, 1968), p 193
- [43] Guinier A., X-ray Diffraction (Freeman and Company, 1963)
- [44] Miceli P.F., Neumann D.A., Zabel H., Appl. Phys. Lett. 48(1986)24

Appendices

Appendix 1. De afleiding van de XRD intensiteits formule.

In deze appendix wordt een afleiding gegeven van het röntgendiffractieprofiel van een multilaag met een rechthoekig concentratieprofiel. Een rechthoekig concentratieprofiel betekent automatisch dat de beschouwde multilaag een geheel aantal vlakken per modulatiepriode heeft (zie ook figuur 3.2.2) en dus commensurabel is (zie voor het begip "commensurabel" Draaisma's proefschrift [4]).

Als röntgenstraling met een golflengte λ onder een hoek Θ invalt op de multilaag zullen de atomen in de vlakken de straling verstrooien. Bij verstrooiing over een hoek 2Θ zal het faseverschil tussen golven afkomstig van het k-de en het nulde vlak $2\pi(2x_k\sin\Theta)/\lambda$ bedragen. Hierin is x_k de afstand van het k-de vlak ten opzichte van het nulde vlak. Voor de structuurfactor van een multilaag bestaande uit N bilagen (en dus uit nN atomaire vlakken) kunnen we dus schrijven:

$$\mathbf{F} = \sum_{k=0}^{nN-1} \mathbf{f}_k \cdot \exp[2\pi \mathbf{i} \mathbf{s} \mathbf{x}_k]$$
(1)

met $s = \frac{2 \sin \Theta}{\lambda}$ en f_k het verstrooiend vermogen van vlak k; dit is het verstrooiend vermogen van de in vlak k liggende atomen gecorrigeerd voor het aantal atomen per oppervlakte eenheid. Het is eenvoudig in te zien dat de som in (1) te schrijven is als een product van twee sommen. De eerste som F_{bil} is de som over één bilaag. (Het is in feite de structuurfactor van een bilaag). De tweede som F_{mod} is een som van fasefactoren.

$$\mathbf{F} = \mathbf{F}_{mod} \cdot \mathbf{F}_{bil} \tag{2}$$

Dat F zo geschreven kan worden is een rechtstreeks gevolg van het feit dat de overeenkomstige vlakken in twee opeenvolgende bilagen dezelfde verstrooiende vermogens hebben en dat ze bovendien een vast faseverschil t.o.v. elkaar hebben (van $2Dsin\Theta/\lambda$). In feite is de commensurabiliteit dus de oorzaak.

$$F = F_{bil} + \exp[2\pi i \cdot 2D\sin\Theta/\lambda] \cdot F_{bil} + \exp[2\pi i \cdot 2 \cdot 2D\sin\Theta/\lambda] \cdot F_{bil} + \dots$$
$$\dots + \exp[2\pi i \cdot (N-1) \cdot 2D\sin\Theta/\lambda] \cdot F_{bil}$$

waarin

$$F_{\text{bil}} = \sum_{k=0}^{n-1} f_k \cdot \exp[2\pi i s x_k]$$
(4)

(3)

Buiten haakjes halen van F_{bil} in (3) geeft automatisch vergelijking (2) waarbij voor F_{mod} dus geldt:

$$F_{mod} = \sum_{\substack{k=0\\k=0}}^{N-1} \exp[2\pi i k \cdot 2D \sin \Theta / \lambda]$$
$$= \sum_{\substack{k=0\\k=0}}^{N-1} \exp[2\pi i k \ell n]$$
(5)

met $\ell = \frac{2d_0 \sin\Theta}{\lambda}$ en $d_0 n = D$. F_{bil} kan herschreven worden tot:

$$F_{bil} = f_{a} \cdot \sum_{k=0}^{n_{a}-1} \exp[2\pi i \ell d_{a}/d_{0}] + f_{b} \cdot \exp[2\pi i \ell \tilde{d}/d_{0}] \cdot \sum_{k=0}^{n_{b}-1} \exp[2\pi i \ell d_{b}/d_{0}]$$
(6)

met $\tilde{d} = (n_a-1)d_a + \frac{1}{2}(d_a+d_b)$. Via de relatie:

$$\sum_{k=0}^{N-1} \exp[ik\alpha] = \exp[i(N-1)\alpha/2] \cdot \frac{\sin(N\alpha/2)}{\sin(\alpha/2)}$$
(7)

kunnen (5) en (6) vereenvoudigd worden tot (8) en (9):

$$F_{mod} = \exp[i(N-1)\pi\ell n] \cdot \frac{\sin \pi \ell n N}{\sin \pi \ell n}$$
(8)

$$F_{bil} = \exp[i(n_a - 1)\pi \ell d_a/d_o] \cdot \left\{ f_a \frac{\sin \pi \ell n_a d_a/d_o}{\sin \pi \ell d_a/d_o} + f_b \exp[i\pi \ell n] \frac{\sin \pi \ell n_b d_b/d_o}{\sin \pi \ell d_b/d_o} \right\}$$
(9)

Ter berekening van F^2 worden voor het gemak een aantal nieuwe symbolen ingevoerd:

$$\alpha = (N-1)\pi \ell n; \quad \beta = (n_a - 1)\pi \ell d_a/d_0; \quad \gamma = \pi \ell n;$$

$$M = \frac{\sin \pi \ell n N}{\sin \pi \ell n}; \quad A = \frac{\sin \pi \ell n_a d_a/d_0}{\sin \pi \ell d_a/d_0}; \quad B = \frac{\sin \pi \ell n_b d_b/d_0}{\sin \pi \ell d_b/d_0}$$
(10)

We krijgen dan:

$$\begin{split} F_{mod} &= e^{i\alpha} \cdot M; \ F_{bil} = e^{i\beta} \cdot \left\{ f_a \cdot A + f_b e^{i\gamma} \cdot B \right\} \\ F &= e^{i\left(\alpha + \beta\right)} \cdot M \left\{ f_a \cdot A + f_b e^{i\gamma} \cdot B \right\} \\ F^2 &= F \cdot F^* = M^2 \left\{ f_a \cdot A + f_b e^{i\gamma} \cdot B \right\} \cdot \left\{ f_a \cdot A + f_b e^{-i\gamma} \cdot B \right\} \\ &= M^2 \left\{ f_a^2 \cdot A^2 + f_b^2 \cdot B^2 + 2 f_a f_b \cos(\gamma) \cdot A \cdot B \right\} \end{split}$$

uitgeschreven met de symbolendefinities van (10) geeft dit de af te leiden uitdrukking van vergelijking (3.3):

$$F^{2}(\Theta) = \left[\frac{\sin \pi \ell n N}{\sin \pi \ell n}\right]^{2} \cdot \left\{ f_{a}^{2} \left[\frac{\sin \pi \ell n_{a} d_{a}/d_{0}}{\sin \pi \ell d_{a}/d_{0}}\right]^{2} + f_{b}^{2} \left[\frac{\sin \pi \ell n_{b} d_{b}/d_{0}}{\sin \pi \ell d_{b}/d_{0}}\right]^{2} + 2f_{a}f_{b}\cos \pi \ell n \left[\frac{\sin \pi \ell n_{a} d_{a}/d_{0}}{\sin \pi \ell d_{a}/d_{0}}\right] \cdot \left[\frac{\sin \pi \ell n_{b} d_{b}/d_{0}}{\sin \pi \ell d_{b}/d_{0}}\right] \right\}$$
(3.3)

De intensiteit $I(\Theta)$ volgt uit:

$$I(\Theta) = L(\Theta) \cdot F^2(\Theta)$$

met

$$L(\Theta) = \frac{1 + \cos^2 2\Theta}{\sin 2\Theta} \cdot \sin \Theta$$

 $1+\cos^22\Theta$ is de polarisatiefactor (dit is de hoekafhankelijkheid van de, door een versnelde electrische lading, uitgezonden straling). $1/\sin 2\Theta$ is de Lorentzfactor [41] en sin Θ is een geometrische factor die in rekening brengt dat het aantal röntgenquanten die het preparaat treffen, afhangt van de stand van het preparaat ten opzichte van de bundel. (Het preparaat ligt volledig in de bundel).

Appendix 2 Het gedrag van $(\sin N\alpha/\sin\alpha)^2$.

In deze appendix wordt het gedrag beschreven van de functie $(\sin N\alpha/\sin\alpha)^2$. Voor het geval N=6 is in onderstaande figuur de grafiek weergegeven.



Belangrijkste kenmerken:

1) Hoofdmaxima als $\alpha = \mathbf{k} \cdot \pi$

2) Tussen twee hoofdmaxima bevinden zich N-2 submaxima op de posities gegeven door:

$$\alpha = \frac{(2i+1)}{2N} \cdot \pi + \mathbf{k} \cdot \pi \quad i=1,2,\dots,N-2 \quad \mathbf{k} \in \mathbb{I}$$

3) Tussen twee hoofdmaxima bevinden zich N-1 minima op de posities gegeven door:

$$\alpha = \mathbf{i} \cdot \frac{\pi}{\mathbf{N}} + \mathbf{k} \cdot \pi \quad \mathbf{i} = 1, 2, \dots, \mathbf{N} - 1 \quad \mathbf{k} \in \mathbb{Z}$$

4) N bepaalt de breedte van de pieken. Voor een schatting van de breedte op halve hoogte (FWHM) kan gebruik worden gemaakt van de volgende benadering [42]:

$$\left[\frac{\sin N\alpha}{\sin \alpha}\right]^2 \simeq N^2 \exp[-N^2 \alpha^2/\pi]$$
(1)

De functie in het rechterlid heeft dezelfde hoogte én oppervlakte als functie in het linkerlid. Voor de breedte op halve hoogte volgt met deze benadering:

$$(\Delta \alpha)_{\rm FWHM} = \frac{2}{N} \cdot (\pi \cdot \ln 2)^{1/2}$$
⁽²⁾

5) De hoogte van de hoofdpieken is N^2 .

Appendix 3 De bepaling van de modulatieperiode D.

In deze appendix wordt beschreven hoe de modulatieperiode D bepaald wordt rekening houdend met de breking van de röntgenstraling aan het oppervlak.



Schematische tekening ter illustratie van de breking. De golflengte en de hoek in het materiaal verschillen met de golflengte en de hoek in lucht. Dit is aangegeven door middel van de accenten.

In principe kan D bepaald worden door van alle waargenomen pieken i de orde L_i uit te zetten tegen $\sin\Theta_i$. Dit zou in het ideale geval (zonder breking) volgens de wet van Bragg een rechte moeten opleveren met helling $\lambda/2D$. Als de punten $(L_i,\sin\Theta_i)$ uitgezet worden blijkt echter dat ze systematisch afwijken van de beste rechte door deze punten. Dit wordt veroorzaakt door breking aan het oppervlak. De invalshoek Θ is niet gelijk aan de hoek in het kristal; de Bragg-wet is hierdoor niet

meer geldig en zal gecorrigeerd moeten worden. De gemodificeerde vorm wordt afgeleid in [42] en wordt gegeven door:

$$\sin^2\Theta = (\lambda/2D)^2 \cdot L^2 + 2\delta \tag{1}$$

Hierin is δ de afwijking van de brekingsindex n van 1: $n = 1-\delta$ Sin² Θ uitzetten tegen L² geeft via een kleinste kwadraten-aanpassing D en δ . Opmerking: De op deze manier bepaalde δ blijkt voor de Co/Ir-multilagen maximaal 30% af te wijken van de "theoretische" waarde berekend volgens Micelli [44] met:

$$\delta = (t_{Co}/D) \cdot \delta_{Co} + (t_{Ir}/D) \cdot \delta_{Ir}$$
⁽²⁾

waarin δ_i gegeven wordt door Guinier [43]

$$\delta_{i} = \frac{\lambda^{2}}{2\pi} \cdot N_{i} f_{i}^{2} \cdot r_{e}$$
(3)

met i = Co, Ir; N_i het aantal atomen per kubieke cm; $r_e = 2.818.10^{-15}$ m. $f_{Co} = 27$ en $f_{Ir} = 77$.

Appendix 4 Mean field model.

In deze appendix wordt binnen een mean field benadering een vergelijking afgeleid waaraan de ordeningstemperatuur voldoet.

De afleiding die volledig analoog loopt aan de afleiding van De Jonge et al [40], wordt gedaan voor een drie-dimensionaal Heisenberg systeem maar is, zoals we dadelijk zullen zien, door verwaarlozing van de details van interacties (middeling), ook geldig voor Ising systemen. Beschouw de volgende Hamiltoniaan:

$$\mathcal{H} = -2J \sum_{\langle ij \rangle} \vec{S}_{i} \cdot \vec{S}_{j} - \sum_{j} g\mu_{B} \vec{H} \cdot \vec{S}_{j}$$
(1)

<ij> geeft aan dat er alleen over naaste buren wordt gesommeerd. In het mean field model wordt een subsysteem gekozen waarbinnen de interacties exact worden behandeld. De interacties met de omgeving worden vervangen door een gemiddeld effectief veld. In dit geval kiezen we als subsysteem één spin. Bij het zoeken naar een gemiddeld veld worden van de overgebleven spins in het systeem, S_{jx} en S_{jy} gelijk aan nul genomen terwijl S_{jz} gelijk wordt gesteld aan de verwachtingswaarde $\langle S_z \rangle$. De Hamiltoniaan van het subsysteem wordt nu gegeven door

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{i} &= -2J \sum_{j_{nn}} S_{iz} \langle S_{z} \rangle - g\mu_{B} H_{o} S_{iz} \\ &= -\left[2z'J \langle S_{z} \rangle + g\mu_{B} H_{o} \right] S_{iz} \end{aligned} \tag{2}$$

waarin z' het aantal naaste buren is van spin i, j_{nn} is de sommatie over de naaste buren. De responsie op het effectieve veld gegeven door:

$$H = H_{o} + \frac{2z'J \langle S_{z} \rangle}{g\mu_{B}}$$
(3)

waarin het subsysteem zich bevindt is bekend en is niets anders dan de magnetisatie van het subsysteem in dit veld:

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}(\mathbf{H}) \tag{4}$$

Eisen we dat de responsies van alle spin (of subsystemen) gelijk zijn, dat geldt voor de magnetisatie M van het totale systeem, bestaande uit N spins (of subsystemen):

$$M = Ng\mu_{B} < S_{z} >$$
(5)

Definiëren we een mean-field parameter λ door

$$\lambda = \frac{2z'J}{Ng^2\mu_B^2}$$
(6)

Dan gaat (3) over in

$$H = H_{o} + \lambda M \tag{7}$$

In combinatie met (4) is dit een impliciete vergelijking voor de magnetisatie van het totale systeem. We zoeken nu naar niet-triviale oplossingen van (7) met $H_0 = 0$. De functie in het linkerlid van (7) stijgt lineair met H (en start in de oorsprong M = H = 0). De functie in het rechterlid start ook in de oorsprong en neemt ongeacht

welk subsysteem het betreft, degressief met H toe. Dit laatste volgt uit het feit dat de vrije energie G een concave functie van H is [36] en omdat voor M geldt

$$\mathbf{M} = - \begin{bmatrix} \frac{\partial \mathbf{G}}{\partial \mathbf{H}} \end{bmatrix}_{\mathrm{T}}$$
(8)

De kritische temperatuur waarbij er net wel of net geen niet-triviale oplossing is, is dus die temperatuur waarbij de afgeleide naar H van de functie in het rechterlid van (7) gelijk is aan de afgeleide naar H van de functie in het linkerlid. Met andere woorden de ordeningstemperatuur voldoet aan :

$$1 = \lambda \chi \tag{9}$$

Hierbij is gebruik gemaakt van

$$\chi = \lim_{\mathbf{H}, \mathbf{M} \to 0} \left[\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial \mathbf{H}} \right]_{\mathbf{T}}$$
(10)

Combinatie van de vergelijkingen (6) en (9) levert de af te leiden betrekking voor de ordeningstemperatuur:

$$\frac{2 z' J}{Ng^2 \mu_B^2} \chi(T_c) = 1$$
(11)

In het geval waarbij het subsysteem bestaat uit één spin wordt wordt na oplossen van (2) voor de magnetisatie gevonden (zie [40]):

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}_{\mathbf{0}} \mathbf{B}_{\mathbf{s}}(\mathbf{x}) \tag{12}$$

waarin:

$$M_o = Ng\mu_B S = M(T=0, H=0)$$
 (13)

$$x = g\mu_{\rm B} {\rm HS/kT}$$
(14)

 $B_s(x)$ is de Brillouin-functie, die in de buurt van de oorspong M = H = 0 te benaderen is door

$$B_{s}(x) = \frac{S+1}{3S}x$$
(15)

Door

$$\chi = \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial \mathbf{H}} = \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial \mathbf{x}} \cdot \frac{\partial \mathbf{x}}{\partial \mathbf{H}} = \mathrm{Ng}\mu_{\mathrm{B}} \mathbf{S} \cdot \frac{\mathbf{S}+1}{\mathbf{3}\mathbf{S}} \cdot \frac{\mathbf{g}\mu_{\mathrm{B}}\mathbf{S}}{\mathbf{k}\mathrm{T}}$$
(16)

in te vullen in (11) volgt de bekende mean-field benadering voor de ordeningstemperatuur:

$$T_{c} = \frac{2z'JS(S+1)}{3k}$$
(17)

Op dezelfde manier wordt de ordeningstemperatuur bepaald voor de voor ons interessante gevallen dat het subsysteem een Ising-keten of een Ising-vlak is. Voor de susceptibiliteit in (11) moet dan de susceptibiliteit van een Ising-keten respectievelijk Ising-vlak worden ingevuld.