

Kapitel 5

Ferromagnetische Resonanz von $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$

Das magnetische Verhalten von dünnen Schichten unterscheidet sich aufgrund ihrer zweidimensionalen Struktur vom dreidimensionalen Festkörper. Das magnetische Verhalten von Nickel-Filmen auf Metalloberflächen wurde von einigen Gruppen ausführlich untersucht (siehe [72–75]). In diesem Kapitel beschäftigen wir uns mit dem Übergang von Film zu Teilchen, bei dem die magnetischen Eigenschaften von ein und demselben System als Film und auch als Teilchen untersucht worden sind. Ein solcher direkter Vergleich ist für das bessere Verständnis des magnetischen Verhaltens der Teilchen von entscheidender Bedeutung. Dieser Vergleich wird im folgenden am Beispiel des Systems Nickel auf $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ behandelt.

5.1 Winkelabhängigkeit der Resonanzspektren

Über die Winkelabhängigkeit der FMR-Spektren ist es möglich, die effektive magnetische Anisotropie direkt zu messen. In Abbildung 5.1 sind exemplarisch die FMR-Spektren einer 13.2 \AA Ni-Bedeckung auf $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ für verschiedene Winkel abgebildet. Ni-Deponate wurden bei Zimmertemperatur aufgebracht und ohne weitere Behandlung direkt gemessen. Das verwendete Koordinatensystem bei diesem Experiment ist ebenfalls in der Abbildung dargestellt. Dabei ist der polare Winkel θ der Winkel zwischen der Oberflächennormalen und der Richtung des statischen magnetischen Felds. Der azimutale Winkel φ ist stets 90° (vgl. die Geometrie in Abb. 5.1), da die azimutale Drehung der Probe nicht möglich ist.

Das Spektrum für $\theta = 90^\circ$ weist ein Resonanzfeld von $H_0 = 377 \text{ G}$ auf. Dabei wurde das Resonanzfeld durch den Wendepunkt des Signals bestimmt. Mit abnehmendem Winkel verschiebt sich die Resonanzposition zum höheren Feld und erreicht bei $\theta = 0^\circ$ den höchsten

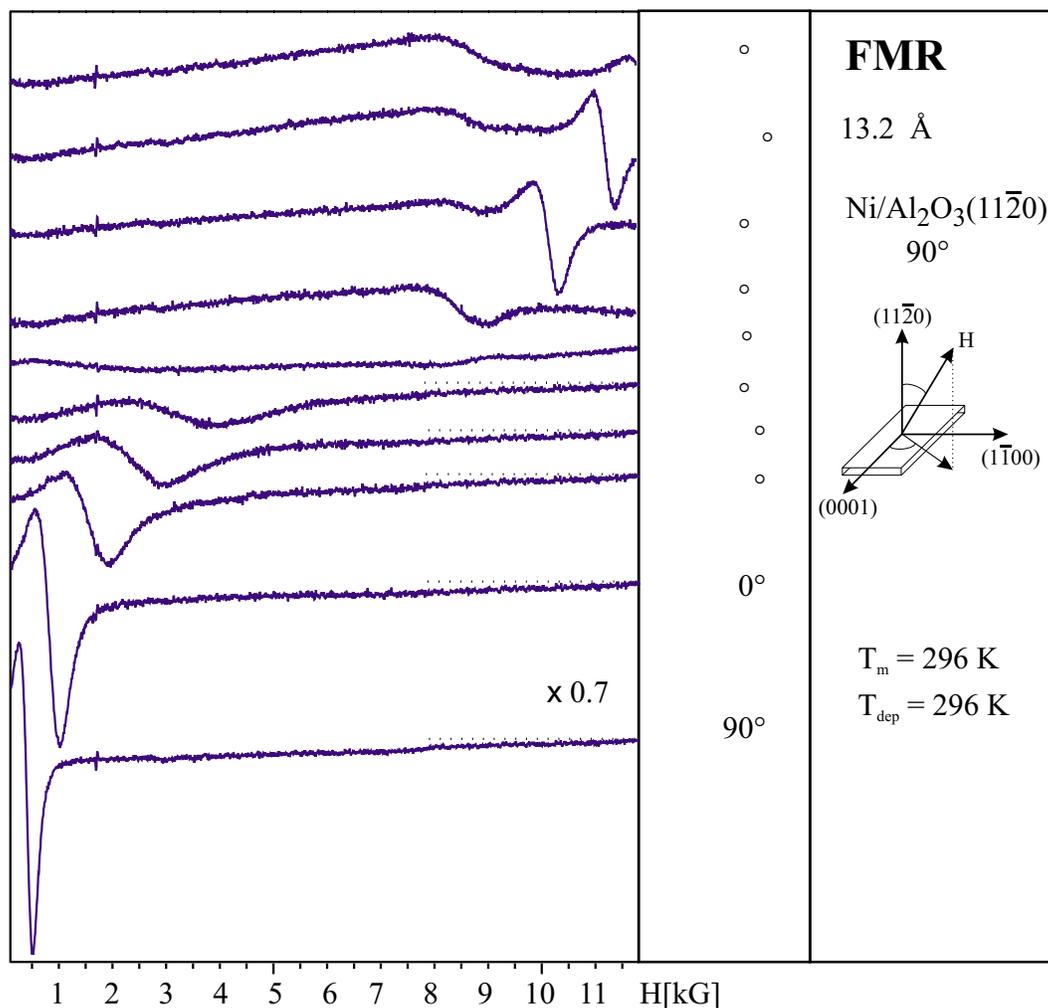


Abbildung 5.1: Winkelabhängigkeit der FMR-Spektren für 13.2 Å Ni auf der Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0)-Oberfläche.

Wert. Die Signale bis 11800 G sind im Meßbereich des Spektrometers. Wählt man den Winkel θ größer als 90°, so beobachtet man eine analoge Verschiebung der Resonanzlinie zum höheren Feld, die bis 180° symmetrisch zur abgebildeten verläuft. Somit liegt ein Minimum des Resonanzfeldes bei $\theta = 90^\circ$ vor, d.h., wenn das äußere Magnetfeld parallel zur Kristalloberfläche verläuft, und ein Maximum für senkrechte Geometrie.

Man erkennt zwischen $\theta = 0^\circ$ bis 5° ein zweites Signal bei etwa 8 kG, das sich innerhalb der oben genannten Winkel nicht verschiebt. Das zweite Signal wurde experimentell reproduziert und existiert auch nach dem Tempern. Die Herkunft dieses Signals konnte bisher nicht geklärt werden. In der vorliegenden Arbeit befassen wir uns mit der Charakterisierung

des Hauptsignals.

Die *peak-to-peak*-Linienbreite ΔH_{pp} bei $\theta = 90^\circ$ beträgt 250 G. Dies ist ein typischer Wert für einen Ni-Film guter Qualität [76]. Die FMR-Linienbreite wird in der Literatur üblicherweise in folgender Form ausgedrückt [76]:

$$\Delta H_{pp}(\omega) = \Delta H_{inhom} + \Delta H_{hom} = \Delta H_{inhom} + \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{G}{\gamma^2 M} \omega, \quad (5.1)$$

wobei die experimentelle Linienbreite $\Delta H_{pp}[\omega]$ von Peak zu Peak der abgeleiteten Lorentzförmigen Absorptionslinie gemessen wird. ΔH_{inhom} beschreibt die inhomogene Verbreiterung, die beispielsweise durch Probenimperfectionen verursacht ist (wobei angenommen wird, daß diese unabhängig von Mikrowellenfrequenz ω sind), und ΔH_{hom} die intrinsische Linienbreite, die in einer perfekten Probe auftritt. Der Ursprung des Dämpfungsmechanismus ist die Spin–Bahn-Wechselwirkung. Wie angezeigt kann ΔH_{hom} durch den Gilbert-Dämpfungsfaktor G und die Magnetisierung M ausgedrückt werden.

Die experimentell gemessene Linienbreite ΔH_{hom} für Ni im Festkörpervolumen ist 130 G [77]. In der Literatur wird die FMR-Linienbreite als ein Maß für die Qualität des Films diskutiert. Bubendorff et al. haben anhand von AFM- und FMR-Experimenten für Ni-Filme gezeigt, daß die FMR-Linienbreite direkt mit der Topographie korreliert ist [78]. Die schmalste FMR-Linienbreite eines Ni-Filmes auf Cu(001) mit vergleichbarer Dicke (etwa 6 ML) beträgt etwa 250 G [76], die als ein Film guter Qualität bezeichnet wurde. Dieses Experiment wurde bei $T = 0.6 T_c$ und einer Mikrowellenfrequenz von 9 GHz gemessen.

Normalerweise kann man die strukturelle Ordnung des Films auch mit anderen Methoden wie z.B. LEED messen. Es ist darauf hinzuweisen, daß der Film kein LEED-Bild zeigt. Das kann zum einen bedeuten, daß der Film keine langreichweitige Ordnung besitzt, die durch Rauigkeit der Oberfläche hervorgerufen werden kann. Zum anderen kann dies auf experimentelle Schwierigkeiten, die mit der Aufladung der Probe zu tun haben, zurückgeführt werden. Da von diesem Film auch kein Auger-Spektrum aufgenommen werden kann, ist ein solches Experiment ein weiteres Indiz zur Aufladung der Probe durch das Auftreffen von Elektronen.

Nach dem Tempern, wobei der Film aufbricht und sich große Teilchen bilden (siehe SEM-Daten), erkennt man neben den LEED-Spots des Substrats auch solche von Ni. Zusätzlich ist es möglich, ein Auger-Spektrum aufzunehmen.

Es gibt Hinweise auf den metallischen Charakter der Oberfläche des Saphirs [59, 61, 62]. Diese Beobachtungen legen die Vermutung nahe, daß mögliche Oberflächenbänder für die Leitung zuständig sind. Sobald die Oberfläche komplett bedeckt ist, werden diese Oberflächenbänder mit Ni-Atomen gesättigt. Deshalb findet kein Ladungstransport statt.

Aufgrund unseres Probenaufbaus hat der Ni-Film keinen Kontakt zur Masse, so daß die Elektronen nicht über den Film abfließen können und zur Aufladung der Probe führen.

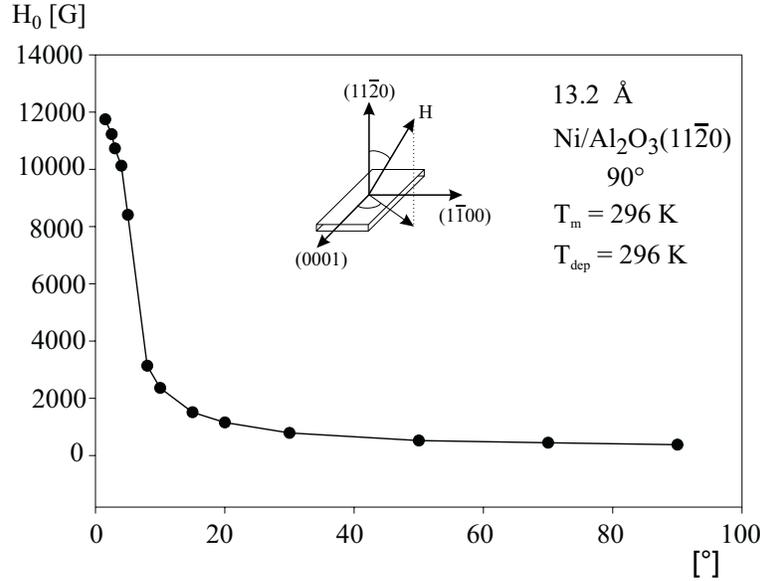


Abbildung 5.2: Winkelabhängigkeit des Resonanzfeldes H_0 vom Polar-Winkel θ für 13.2 Å Ni.

Es wurde bisher über die FMR-Linienbreite berichtet. Um die Ursache der magnetischen Anisotropie zu verstehen, befassen wir uns mit der Resonanzposition der winkelabhängigen Messung. Abbildung 5.2 zeigt eine Auftragung des Resonanzfeldes H_0 als Funktion des Winkels θ für 13.2 Å Ni. Als charakteristisches Maß für die Größe der Anisotropie soll an dieser Stelle das effektive Anisotropiefeld H_a eingeführt werden, das als Differenz der beiden Extremwerte definiert ist: $H_a = H_0(0^\circ) - H_0(90^\circ)$. Die Analyse der Resonanzgleichung ergibt, daß die Richtung, bei der das Resonanzfeld H_0 ein Minimum einnimmt, eine leichte Achse der Magnetisierung ist [16]. Dies bedeutet, daß in dieser Konfiguration das Anisotropiefeld parallel zum äußeren Magnetfeld H ist und somit die Resonanzgleichung bei kleinerem angelegten Feld erfüllt ist. Da man in der Auftragung H_0 gegen θ zwischen 0° und 180° nur ein Minimum für die Orientierung des Feldes entlang der Oberfläche sieht, spricht man von einer uniaxialen *out-of-plane*-Anisotropie. Diese favorisiert den obigen Überlegungen zufolge eine Magnetisierung, die parallel zur Kristallebene liegt.

Dieser Auftragung entnimmt man, daß das effektive Anisotropiefeld H_a für die 13.2 Å-Belegung etwa 11.4 kG beträgt. Es stellt sich die Frage: Was ist die Ursache für eine so große *out-of-plane*-Anisotropie? Der erste Beitrag zur Anisotropie ist die Form-Anisotropie, die für einen Film eine Magnetisierung in der Kristallebene favorisiert. Das Anisotropiefeld

für einen unendlich ausgedehnten Film ist $4\pi M$. Zur Berechnung des Resonanzfeldes unter Einbeziehung der Form-Anisotropie wurde der übliche Ansatz nach Kittel (siehe z.B. [16]) angewandt. Das Resultat der Berechnung zeigt, daß der Beitrag der Form-Anisotropie zur effektiven Anisotropie $H_a = H_0(0^\circ) - H_0(90^\circ) = 7890$ G ist, wobei die Volumenwerte von $M = 485$ G bei $T = 296$ K und $g = 2.183$ (siehe Tab. 2.1) eingesetzt wurden. Der berechnete Wert ist nur Zweidrittel des Experimentellen.

Als Ursache für die verbleibende Anisotropie ist eine Vielzahl von physikalischen Effekten möglich. Hier sind beispielsweise neben kristallinen oder Oberflächenbeiträgen auch Spannungen aufgrund der Gitterfehlpassung zwischen Ni und der Substrat-Oberfläche als Quelle zusätzlicher Anisotropie zu nennen. Die magnetokristalline Anisotropie des Ni-Volumenkristalls kann nicht die Ursache dieser Differenz sein. Zum einen ist die magnetokristalline Anisotropie eines Ni-Volumenkristalls (fcc) bei Raumtemperatur mehr als eine Größenordnung kleiner als die Differenz zwischen dem experimentellen Wert und dem Beitrag der Form-Anisotropie. Zum anderen hat fcc-Ni eine leichte Achse der Magnetisierung in die (111)-Richtung. Geht man von einem Wachstum des Films in (111)-Richtung aus, eine Annahme, die durch die Beobachtung gestützt wird, daß das System nach dem Tempern auf hohe Temperaturen das hexagonale LEED-Bild der Ni(111)-Orientierung aufweist, so sollte das beobachtete effektive Anisotropiefeld durch diesen Beitrag verringert sein.

An dieser Stelle soll der Einfluß einer *in-plane*-Anisotropie auf das starke effektive Anisotropiefeld diskutiert werden. Eine Spannung im Ni-Film kann eine Änderung der *in-plane*-Anisotropie verursachen und damit das gemessene Anisotropiefeld beeinflussen. Eine Zunahme der *in-plane*-Anisotropie wurde für Ni(111) auf metallischen Unterlagen z.B. W(110) beobachtet [79]. In dem Fall konnte die *in-plane*-Anisotropie als Folge der spannungsinduzierten Änderung der magnetischen Anisotropie erklärt werden.

Da die Gitterkonstanten des Substrats und von Ni nicht gleich sind, kommt ein Misfit zustande. Die nicht getemperte Probe zeigt kein LEED-Bild (siehe oben). Dagegen weist die Probe nach dem Tempern eine hexagonale Anordnung der LEED-Spots auf (siehe Abb. 5.7). Es läßt sich auf eine Struktur von Ni(111) mit der Gitterkonstante des Nickels im Volumen schließen (siehe unten). Da das LEED-Signal empfindlich gegenüber der atomaren Ordnung der obersten Atomlagen ist, bedeutet dies, daß die oberen Atomlagen die Gitterkonstante des Nickels im Volumen haben. Während die unteren Atomlagen des Films durch Wechselwirkung mit dem Substrat verspannt sind, sind die oberen Atomlagen in den atomaren Abständen des Nickels im Volumen des Festkörpers relaxiert.

Die Tatsache, daß $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ eine rechteckige Oberflächen-Einheitszelle hat, führt zu unterschiedlichen Spannungen im Ni-Film in (0001)- und $(1\bar{1}00)$ - Richtung in der Filme-

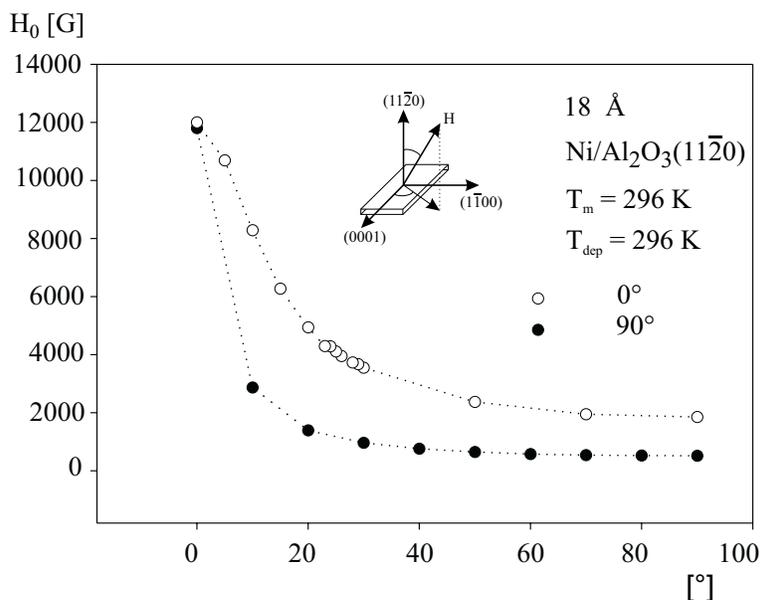


Abbildung 5.3: Resonanzfeld in Abhängigkeit vom polaren Winkel θ für zwei verschiedene Proben mit unterschiedlichen *in-plane*-Anisotropien.

bene. Mit der Annahme, daß Ni im Falle der nicht getemperten Probe die gleiche Orientierung (111) hat, wird der Misfit zwischen Ni und dem Substrat abgeschätzt. Der Misfit in (1 $\bar{1}$ 00)-Richtung des Substrats beträgt etwa -11% (Ausdehnung der Deponate gegen das Substrat) und in (0001)-Richtung etwa -0.5% . Aufgrund der unterschiedlichen Abstände kommt es zu unterschiedlichen Spannungen.

Diese unterschiedlichen Spannungen können wir nicht direkt messen. Dagegen kann die *in-plane*-Anisotropie mittels FMR gemessen werden, da die unterschiedlichen Spannungen in der Filmebene die magnetische Anisotropie beeinflussen. Man erwartet deshalb unterschiedliche *in-plane*-Anisotropien entlang der (1 $\bar{1}$ 00)-Richtung ($\varphi = 90^\circ$) und (0001)-Richtung ($\varphi = 0^\circ$). Wenn das äußere Feld parallel zur Filmebene angelegt wird ($\theta = 90^\circ$), sollte man für diese zwei Proben unterschiedliche Resonanzfelder erwarten. Dagegen, wenn das äußere Feld senkrecht zur Filmebene angelegt wird ($\theta = 0^\circ$), sollte der Unterschied im Resonanzfeld verschwinden, da in diesem Fall das Resonanzfeld nicht von der *in-plane*-Anisotropie beeinflusst wird.

Um das näher zu untersuchen, wurden zwei Kristalle gleicher Orientierung verwendet, die azimuthal um 90° gegeneinander gedreht sind. Die Proben wurden gleich präpariert und jeweils mit 18 \AA Ni bei Raumtemperatur bedeckt und direkt gemessen. In Abbildung 5.3 wurde das Resonanzfeld in Abhängigkeit vom polaren Winkel θ für beide Kristalle

aufgetragen. Während das effektive Anisotropiefeld $H_a = H_0(0^\circ) - H_0(90^\circ)$ für $\varphi = 90^\circ$ einen Wert von 11286 G hat, beträgt dasjenige für $\varphi = 0^\circ$ 10148 G. Man erkennt, daß das Resonanzfeld bei $\theta = 0^\circ$ für beide fast gleich ist, während sich die Resonanzfelder bei $\theta = 90^\circ$ um 1338 G unterscheiden. Dies entspricht der Erwartung bei einem System mit der *in-plane*-Anisotropie, wenn das äußere Feld senkrecht zur Oberfläche ($\theta = 0^\circ$) angelegt ist.

5.2 Bedeckungsabhängigkeit der Resonanzspektren

Die Oberflächen-Anisotropie soll als eine mögliche Ursache des starken effektiven Anisotropiefeldes untersucht werden. Dies erfolgt im Rahmen des gängigen Modells eines zweidimensionalen Films. Dazu sind bedeckungsabhängige Messungen erforderlich. Im folgenden werden die Bedeckungsabhängigkeit der FMR-Linienbreite und das Anisotropiefeld diskutiert.

In der Literatur wurde die Linienbreite verschiedener magnetischer dünner Schichten (z.B. Ni/Cu(001) und Ni/W(110)) in Abhängigkeit der Bedeckung mittels FMR untersucht. Diese wurden in [80] zusammengefaßt. Dabei zeigen verschiedene Systeme ein Minimum der Linienbreite der FMR-Signale in Abhängigkeit von der Schichtdicke. Dabei kann der Anstieg der Linienbreite als eine inhomogene Verbreiterung verstanden werden.

In Abbildung 5.4 oben ist die Bedeckungsabhängigkeit der FMR-Linienbreite des Systems Ni/Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0) bei Raumtemperatur dargestellt. Dabei liegt das Magnetfeld parallel zur Filmebene. Mit steigender Bedeckung von 9 Å auf 24 Å nimmt die Linienbreite zunächst von 630 G auf 250 G ab. Mit weiterer Zunahme der Bedeckung steigt die Linienbreite auf 320 G und bleibt dann fast konstant, so daß ein Minimum bei 14.4 Å beobachtet wird.

Hier muß man zwischen dem clusterartigen Verhalten bei kleiner Schichtdicke und dem filmartigen Verhalten bei großer Schichtdicke unterscheiden. Während die Linienbreite oberhalb von 13.2 Å vergleichbar mit der von gut geordneten Filmen ist, ist sie unterhalb dieser Schichtdicke deutlich vergrößert. Dies kann man dadurch verstehen, daß das System für kleinere Bedeckungen aus individuellen Teilchen besteht, die je eine individuelle Resonanzbedingung erfüllen. Aufgrund der unterschiedlichen Größe und Form der Teilchen in einem solchen Ensemble läßt sich leicht einsehen, daß die Linienlagen für die verschiedenen Teilchen unterschiedlich sind, beispielsweise, weil die Form der Teilchen und damit der Beitrag der Form-Anisotropie variiert. Das gemessene Spektrum ist nun die Überlagerung aller dieser individuellen Resonanzen, was natürlicherweise zu einer deutlichen Verbreiterung des beobachteten Spektrums führt. Diese wurde zur Verdeutlichung in

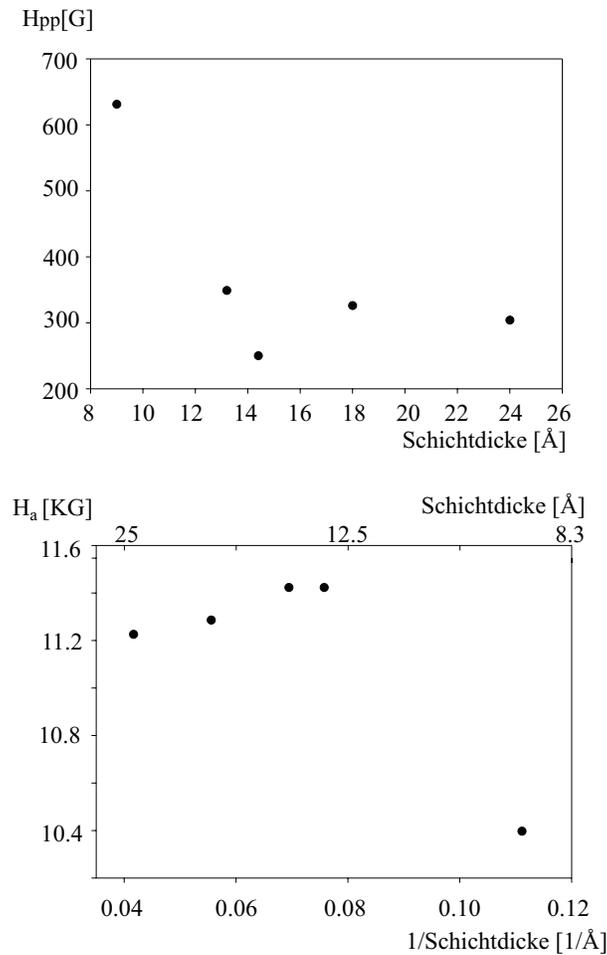


Abbildung 5.4: Oben) Bedeckungsabhängigkeit der FMR-Linienbreite von Ni/Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0) mit $\varphi = 90^\circ$ bei Raumtemperatur und nicht getempert. Unten) Das effektive Anisotropiefeld als Funktion der reziproken Schichtdicke ($1/d$) von der Ni/Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0)-Oberfläche.

Abb. 5.5 schematisch dargestellt. Dabei wurde angenommen, daß das äußere Feld parallel zur Substratebene angelegt ist.

Neben der Linienbreite gibt es auch eine starke Änderung in der magnetischen Anisotropie in Abhängigkeit von der Schichtdicke. In Abb. 5.4 unten ist das effektive Anisotropiefeld als Funktion der reziproken Schichtdicke ($1/d$) von Ni/Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0) aufgetragen. Diese zeigt keinen linearen Zusammenhang und weist ein Maximum bei etwa 13.2 Å auf. Das Anisotropiefeld der clusterartigen Deponate bei 9 Å (etwa 10400 G) ist deutlich niedriger als das der filmartigen Deponate. In dem Bereich der filmartigen Deponate oberhalb der 13.2 Å sinkt das Anisotropiefeld von etwa 11420 G bei 13.2 Å auf etwa 11220 G bei 24 Å.

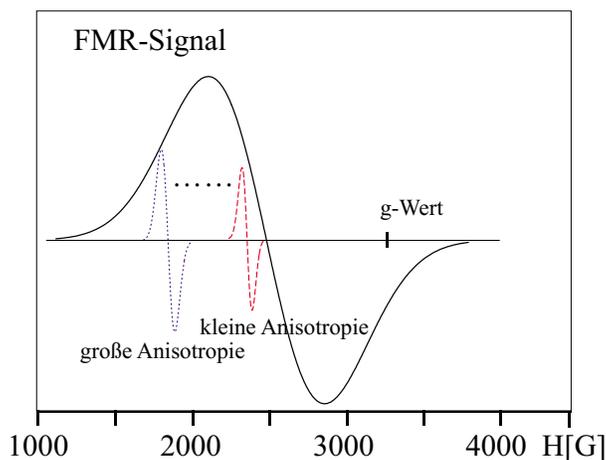


Abbildung 5.5: Schematische Darstellung zur Entstehung einer FMR-Linie für ein Ensemble von Teilchen.

An Ober- und Grenzflächen ist die Koordinationszahl und somit die Symmetrie reduziert, was nach Néel [24] Oberflächen-Anisotropien verursacht. Phänomenologisch werden die Anisotropiekonstanten K_i in einen dickenabhängigen Volumenbeitrag K^V und einen Oberflächenbeitrag K^S aufgeteilt [81]:

$$K_i = K_i^V + \frac{2K_i^S}{d}, \quad i = 2, 4, \quad (5.2)$$

wobei d die Schichtdicke ist. Der Faktor 2 in der Gleichung faßt Grenz- und Oberflächen-Anisotropie zusammen, wobei in erster Näherung angenommen wird, daß beide gleich groß sind. Wenn K_i als Funktion von $1/d$ linear ist, kann man die Volumen- und die Oberflächen-Anisotropie separieren: Aus der Steigung bestimmt man K_i^S und aus dem Achsenabschnitt K_i^V .

Aus dem hier komplizierten Verhalten ist eine Separation der Volumen- und Oberflächen-Anisotropie nicht möglich. Allerdings ist die Schichtdickenabhängigkeit des Anisotropiefeldes als eine mögliche Konkurrenz zwischen Volumen- und Oberflächen-Anisotropie zu diskutieren. Mit steigender Schichtdicke steigt das Verhältnis Volumen/Oberfläche der Deponate. Damit gewinnt die Volumen-Anisotropie gegenüber der Oberflächen-Anisotropie an Einfluß. Mit der Annahme, daß die Volumen-Anisotropie gleich der magnetokristallinen des volumenartigen Kristalls ist, ist die Abnahme des effektiven Anisotropiefeldes als Funktion der Schichtdicke oberhalb einer Schichtdicke von etwa 13.2 \AA zu verstehen, da das magnetokristalline Anisotropiefeld von Ni im Volumen in der Größenordnung von 100 G ist (siehe Kap. 2).

Die starke Zunahme des Anisotropiefeldes zwischen 9 Å und 13.2 Å-Belegung läßt sich durch eine Zunahme der Form-Anisotropie verstehen. Da in diesem Bereich die Cluster zu einem dünnen Film zusammenwachsen, nimmt das Aspektverhältnis (h/r) ab. Dies führt zu einer Zunahme der Form-Anisotropie (siehe Kap. 2).

5.3 Einfluß des Temperns

Bisher wurde eine spannungsinduzierte Anisotropie als ein wesentlicher Beitrag zur Anisotropie angenommen. Um diese Hypothese zu testen, sollte man versuchen, die Spannung des Films abzubauen. Das Tempern des Systems auf erhöhte Temperatur ist oft eine Möglichkeit, um Spannungen eines epitaktischen Systems zu verringern. Die Probe mit einer 13.2 Å Ni-Belegung wurde sukzessiv auf 720 K und 870 K getempert. Zunächst werden die morphologischen, strukturellen und magnetischen Ergebnisse vorgestellt und anschließend werden ihre Zusammenhänge diskutiert.

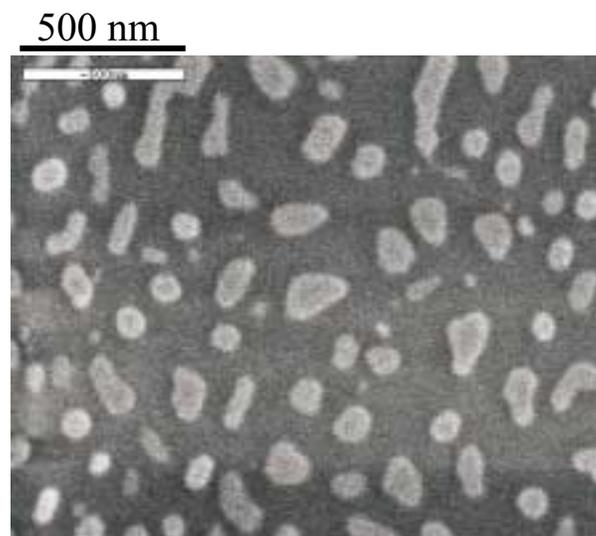


Abbildung 5.6: *Scanning Electron Microscopy*-Aufnahme einer mit 13.2 Å Ni bedeckten Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0)-Oberfläche nach dem Tempern auf 720 K.

Abbildung 5.6 zeigt *ex-situ*-SEM (Scanning Electron Microscopy)-Aufnahmen einer mit 13.2 Å Ni bedeckten Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0)-Oberfläche nach dem Tempern auf 720 K. Man erkennt die Bildung großer Teilchen nach dem Tempern. Aus den Aufnahmen kann man abschätzen, daß 25 % der Substratfläche mit Ni-Teilchen bedeckt ist. Da die bedampfte Menge von Ni und die bedeckte Substratfläche bekannt sind, wird aus den SEM-Bilder eine mittlere

Teilchenhöhe von 5 nm bestimmt. Mit dieser Höhe kann man mit Hilfe der SEM-Bilder das Aspektverhältnis (h/r) bestimmen. Das Aspektverhältnis zeigt eine Wertspanne von 1:5 zu 1:20. Diese Werte werden später zur Diskussion der FMR-Daten benutzt. Es war nicht möglich, die Existenz einer sehr dünnen Nickeloxid-Schicht auf dem Saphir auszuschließen.

Das sukzessive Temporn von 720 K auf 870 K hat nach Auger-Daten nur einen geringfügigen Einfluß auf die freigelegte Substratfläche. Es ist möglich, aus dem Vergleich der Auger-Intensitäten des Sauerstoffsignals des sauberen und mit Ni bedampften Substrates die Bedeckung abzuschätzen [36]. Dazu wurde die mittlere freie Weglänge der Auger-Elektronen des Sauerstoffs aus dem Substrat durch Ni beachtet [67]. Die Abschätzung zeigt, daß 32 % der Substratfläche mit Ni-Teilchen bedeckt ist. Dieser Wert ist konsistent mit den SEM-Daten.

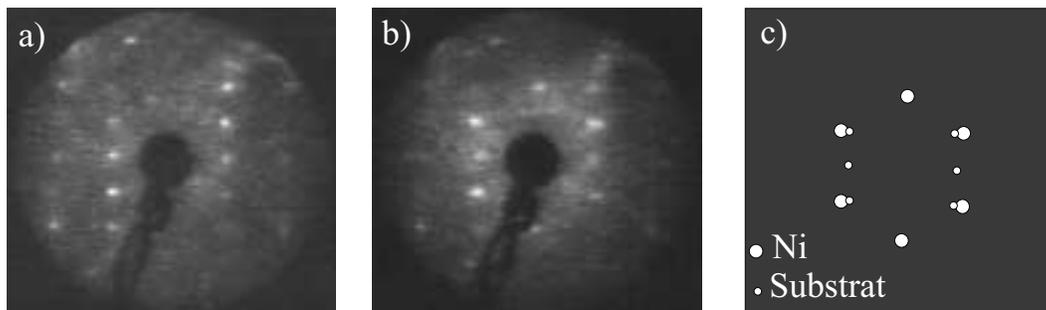


Abbildung 5.7: LEED-Bilder der $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ -Oberfläche (271 eV). a) Reine Oberfläche. b) Bedeckt mit 13.2 Å Ni nach dem Temporn (870 K, 10 min). Neben den Spots der rechteckigen Oberflächen-Einheitszelle des Substrats erkennt man zusätzliche Spots von Ni(111). c) Schematische Darstellung von b).

Abbildung 5.7.a zeigt eine LEED-Aufnahme des sauberen $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$. Man erkennt die rechteckige Oberflächen-Einheitszelle des Substrats. Nach dem Aufbringen von Ni und Temporn sieht man auf der LEED-Aufnahme die zusätzlichen Spots von Ni (siehe Abb. 5.7.b). Das LEED-Bild zeigt nicht nur die Ni(111)-Reflexe, sondern auch die Reflexe des Substrats. Diese Aufnahme wurde zur Verdeutlichung in Abb. 5.7.c schematisch dargestellt. Das LEED-Bild zeigt eine hexagonale Anordnung der Spots bezüglich Ni. Daraus läßt sich auf eine Struktur von Ni(111) schließen. Hier wurden die atomaren Abstände von $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ aus [56] angenommen, deren azimutales Längenverhältnis mit unseren Ergebnissen (siehe Kap. 4) übereinstimmt. Eine einfache Auswertung der LEED-Aufnahmen nach dem Temporn zeigt, daß die Größe der Ni-Einheitszelle im Rahmen der Meßgenauigkeit mit der des Volumens übereinstimmt.

Abbildung 5.8 zeigt eine Winkelserie der FMR-Spektren einer 13.2 Å-Belegung nach

dem Tempern auf 720 K. Die Spektren wurden bei Raumtemperatur gemessen. Die magnetischen Daten wie beispielsweise die Magnetisierung und FMR-Linienbreite hängen von der Meßtemperatur sowie der Curie-Temperatur (T_c) des Systems ab. Die Curie-Temperatur ist von der Teilchengröße abhängig. Deshalb wird hier die relative Meßtemperatur als Verhältnis der Meßtemperatur zu der Curie-Temperatur angegeben. Da die Curie-Temperatur (T_c) dieser Probe etwa 570 K beträgt, gilt $T/T_c = 0.52$. Die Abhängigkeit der Curie-Temperatur von der Teilchengröße wird im Kap. 8 ausführlich diskutiert. Das Tempern verursacht eine starke Änderung der FMR-Spektren im Vergleich zu den nicht getemperten Spektren. Das Resonanzfeld bei paralleler Orientierung des magnetischen Feldes ($\theta = 90^\circ$) verschiebt sich nach dem Tempern auf 720 K von 370 G auf 1920 G, und die Linienbreite steigt von 250 G auf 740 G. Das effektive Anisotropiefeld ($H_a = H_0(0^\circ) - H_0(90^\circ)$) sinkt von etwa 11.4 kG auf 4 kG. Man erkennt, daß die Linienform des Spektrums bei $\theta = 0^\circ$ stark von einer Lorentz-Linie abweicht, der angegebene Wert ist die Mitte zwischen Maximum und Minimum. Diese Abweichung der Linienform von der Lorentz-Linie kann an der Clusterbildung beim Tempern liegen. Bei weiterem Tempern auf 870 K zeigen die FMR-Spektren nur eine leichte Zunahme des Anisotropiefeldes und der Linienbreite.

Wie oben diskutiert: Durch die Clusterbildung steigt die Linienbreite des FMR-Signals. Die Anisotropie wird auch durch Clusterbildung aufgrund der geometrischen Gestalt der Cluster beeinflusst. Deshalb wird die Abhängigkeit des Resonanzfeldes für die senkrechte ($\theta = 0^\circ$) und die parallele Orientierung ($\theta = 90^\circ$) von der Teilchenform im folgenden genauer diskutiert. In Kap. 2 wurde diese Abhängigkeit gezeigt. Hier soll zur Veranschaulichung diese Abhängigkeit für die zwei speziellen Aspektverhältnisse ($h/r = 1/20$ und $h/r = 1/5$) gezeigt werden (siehe Abb. 5.9).

Die Abweichung des Resonanzfeldes vom g-Wert ist für die senkrechte ($\theta = 0^\circ$) und die parallele Orientierung ($\theta = 90^\circ$) nicht gleich. Wie man der Abb. 5.9 entnehmen kann, ist die Differenz des Resonanzfeldes in senkrechter Orientierung bei einer Änderung des Aspektverhältnisses stärker als in paralleler Orientierung. Während die Differenz im Resonanzfeld in der parallelen Orientierung nur 160 G ist, erreicht die Differenz im Resonanzfeld in der senkrechten Orientierung 920 G. In diesem Sinne ist die Zunahme der Linienbreite bei der senkrechten Orientierung im Vergleich zur parallelen Orientierung zu interpretieren. Außerdem sieht man eine von der Lorentz-Linie abweichende Linienform, die bei senkrechter Orientierung stärker ausgeprägt ist.

Aus der Differenz des Resonanzfeldes bei der senkrechten und parallelen Orientierung ($H_a = H_0(0^\circ) - H_0(90^\circ)$) kann die Form-Anisotropie der Teilchen verschiedener Aspektverhältnisse berechnet werden. Die berechnete Form-Anisotropie bezüglich verschiedener

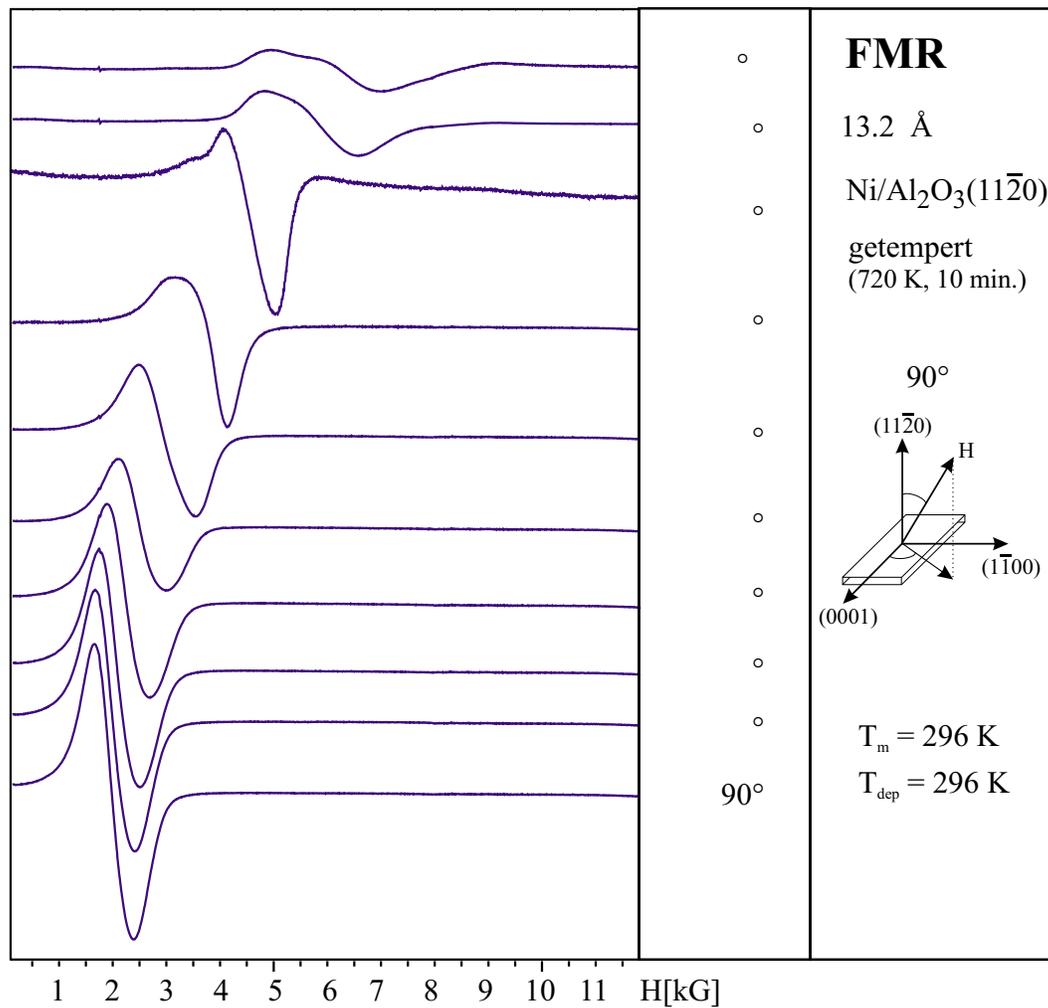


Abbildung 5.8: Winkelabhängigkeit der FMR-Spektren für 13.2 Å Ni auf der Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0)-Oberfläche nach dem Tempern.

Aspektverhältnisse zwischen 1/5 und 1/20 zeigt eine Wertspanne zwischen 5320 G und 7590 G.

Es ist an dieser Stelle notwendig, das experimentelle Anisotropiefeld mit der berechneten Form-Anisotropie zu vergleichen. Diese erfolgt für den Ni-Film bei der nicht getemperten Probe (siehe Abschnitt 5.1) und auch für Ni-Teilchen nach dem Tempern der Probe. Während beim Ni-Film das berechnete Form-Anisotropiefeld (7890 G) viel kleiner ist als das experimentelle Anisotropiefeld (etwa 11.4 kG), ist das berechnete Form-Anisotropiefeld nach dem Tempern und Teilchenbildung (5320–7590 G) viel größer als das experimentelle Anisotropiefeld (etwa 4 kG). Im Falle von Ni-Film kann der Unterschied zwischen der

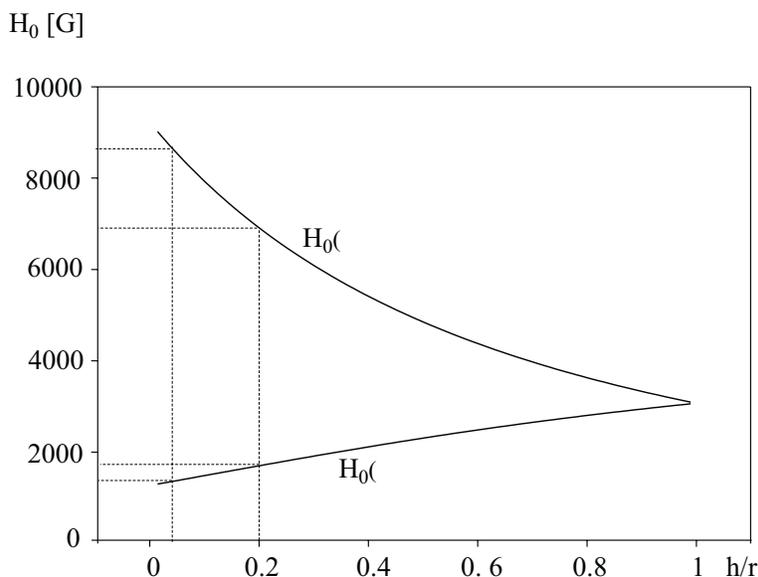


Abbildung 5.9: Resonanzfeld des ferromagnetischen Ni-Teilchens als Funktion der Teilchenform (h/r) für die senkrechte ($\theta = 0^\circ$) und parallele ($\theta = 90^\circ$) Orientierung des äußeren Feldes zu der Substratebene (siehe Kap. 2). Für $h/r = 1/20$ und $h/r = 1/5$ wurden die entsprechenden Resonanzfelder in zwei Orientierungen gezeichnet.

effektiven Anisotropie und der Form-Anisotropie aufgrund der Diskussion im Abschnitt 5.1 auf eine spannungsinduzierte Anisotropie zurückgeführt werden. Da das effektive Anisotropiefeld, das die Summe aus verschiedenen Anisotropie-Beiträgen ist, größer als das Form-Anisotropiefeld ist, bedeutet dies, daß diese spannungsinduzierte Anisotropie auch (wie das Form-Anisotropiefeld) eine Magnetisierung in der Kristallebene favorisiert.

Man erkennt, daß auch nach dem Tempern das Form-Anisotropiefeld allein nicht ausreicht, um das experimentelle Anisotropiefeld zu verstehen. Da dieses kleiner ist als das berechnete Form-Anisotropiefeld, das eine Magnetisierung in der Kristallebene favorisiert, sollte ein zusätzlicher Anisotropie-Beitrag existieren, der eine leichte Achse der Magnetisierung senkrecht zur Kristallebene besitzt. Aufgrund der LEED-Aufnahmen zeigt das System strukturell eine (111)-Orientierung, was für Ni eine leichte Achse der Magnetisierung senkrecht zur Kristallebene bedeutet. Somit handelt es sich hier um zwei konkurrierende Anisotropie-Beiträge, zum einen das Form-Anisotropiefeld, das eine Magnetisierung in der Kristallebene favorisiert, zum anderen ein Beitrag, der eine leichte Achse der Magnetisierung senkrecht zur Kristallebene besitzt. Dadurch zeigt das effektive Anisotropiefeld einen verringerten Wert gegenüber dem berechneten Form-Anisotropiefeld. Eine Magnetisierung parallel zur Kristallebene zeigt in diesem Fall, daß die Form-Anisotropie der dominierende

Anisotropie-Beitrag ist. Im nächsten Abschnitt wird die Ursache des hier beobachteten Anisotropie-Beitrags anhand einer Messung bei tiefer Temperatur näher diskutiert.

5.3.1 Spin-Reorientierung

Abbildung 5.10 zeigt die Winkelabhängigkeit der FMR-Spektren für die obige Präparation (13.2 Å Ni-Belegung nach dem Tempern), die hier bei 120 K aufgenommen wurden. Im Vergleich zu den Spektren, die bei Raumtemperatur aufgenommen wurden, beobachtet man deutliche Unterschiede. Das Resonanzfeld bei $\theta = 90^\circ$ verschiebt sich von $H_0(90^\circ) = 1920$ G zum tieferen Feld auf $H_0(90^\circ) = 1680$ G, und die Linienbreite nimmt von 740 G auf 890 G zu. Bei der Beobachtung der Spektren fällt auf, daß mit abnehmendem Winkel θ sich das Resonanzfeld zum tieferen Feld verschiebt und den kleinsten Wert 370 G erreicht. Man erkennt auch zwischen $\theta = 20^\circ$ und $\theta = 0^\circ$ ein weiteres Signal. Der Ursprung dieses Signals ist noch nicht geklärt. Im folgenden befassen wir uns mit der Winkelabhängigkeit des Hauptsignals. Eine Auftragung der Winkelabhängigkeit der Resonanzfelder für diese Temperaturen ist in Abbildung 5.11 dargestellt. Das Minimum des Resonanzfeldes ist ein Maß für die Orientierung der leichten Achse der Magnetisierung. Während für $T_m = 296$ K das Minimum des Resonanzfeldes bei $\theta = 90^\circ$ erscheint, liegt es für $T_m = 120$ K bei $\theta = 0^\circ$. Das bedeutet, bei Abkühlung findet eine Reorientierung der Magnetisierung von einer parallelen zur senkrechten Orientierung zur Oberfläche statt. Wärmt man die Probe wieder auf, beobachtet man eine reversible Reorientierung der Magnetisierung. Darüber hinaus ist anzumerken, daß alle Resonanzlagen der Spektren bei 120 K unterhalb des g-Wertes von Ni (entspricht einem Resonanzfeld von 3070 G) liegen. Eine Analyse der Resonanzgleichung zeigt, daß eine *in-plane*-Anisotropie eine Verschiebung der Resonanzlagen unterhalb des g-Wertes verursachen kann.

Die Reorientierung der Magnetisierung, die in der Literatur *spin reorientation transition* (SRT) der Magnetisierung genannt wird, wurde früher für dünne magnetische Filme einiger Übergangsmetalle beobachtet [82]. Dieser SRT-Effekt wurde schichtdickenabhängig und auch temperaturabhängig untersucht. Das System fct-(tetragonal verzerrt kubisch) Ni/Cu(001), das beide Abhängigkeiten aufweist, wurde von verschiedenen Gruppen untersucht [83, 84]. Es wurde festgestellt, daß eine Reorientierung der Magnetisierung als Funktion der Schichtdicke stattfindet. Die Erklärung dazu ist im wesentlichen die Konkurrenz zwischen Form-Anisotropie und magnetokristalliner Anisotropie. Unterhalb einer kritischen Schichtdicke von etwa 7 ML dominiert die Form-Anisotropie, und die Magnetisierung liegt in der Filmebene. Oberhalb dieser Schichtdicke überwiegt die magnetokristalline Anisotropie. Es kommt zu einem Reorientierungsübergang, und die Magneti-

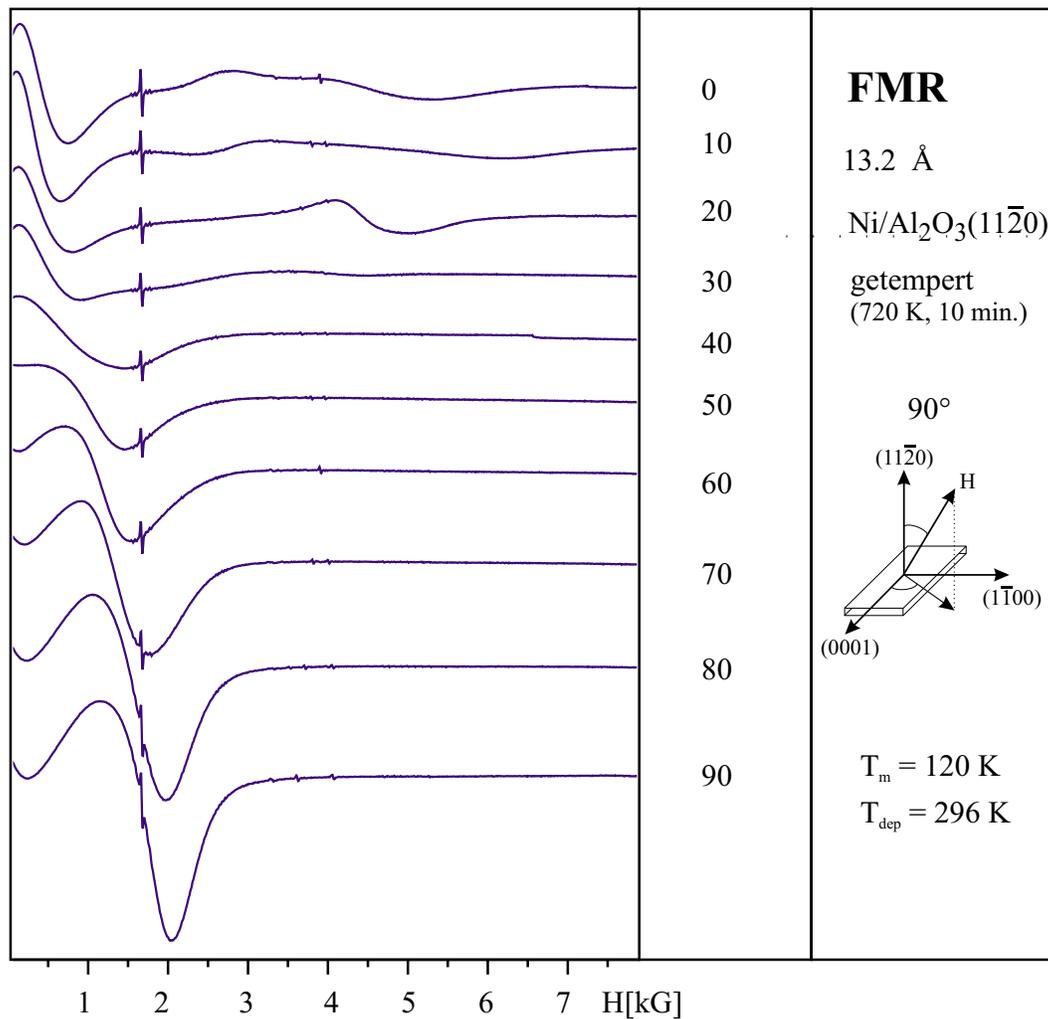


Abbildung 5.10: Winkelabhängigkeit der FMR-Spektren für 13.2 Å Ni auf der Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0)-Oberfläche nach dem Tempern, gemessen bei 120 K.

sierung steht senkrecht. Eine kombinierte FMR- und MOKE-Studie zeigt eine Änderung der Richtung der Magnetisierung für fct-Ni/Cu(001) von parallel bei tiefer Temperatur zu senkrecht bei hoher Temperatur [85]. Die temperaturabhängige Umorientierung der Magnetisierung beschränkt sich auf einen Schichtdickenbereich von 7 – 10 ML [80]. Beim System Ni/Al₂O₃(11 $\bar{2}$ 0) findet dieser Reorientierungsübergang in umgekehrter Weise statt. Dies ist auf die Orientierung der Ni(111)-Teilchen mit einer leichten Achse senkrecht zur Oberfläche zurückzuführen. Um diese temperaturabhängige Reorientierung zu beschreiben, muß man die Temperaturabhängigkeit der magnetokristallinen Anisotropie und der Form-Anisotropie vergleichen. Die Form-Anisotropie ist über die Magnetisierung tempera-

turabhängig. Die Form-Anisotropie steigt bei einer Temperaturabnahme von 293 K auf 120 K nur um 10 % , während man eine größere Änderung der magnetokristallinen Anisotropie erwartet, die die Form-Anisotropie überwindet (siehe Kap. 2).

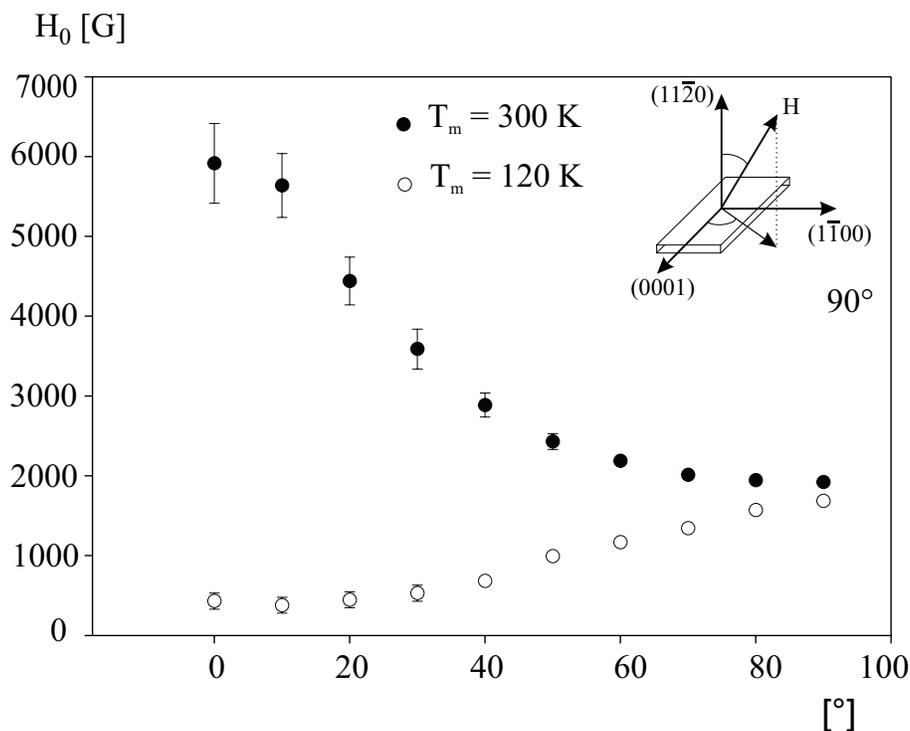


Abbildung 5.11: Winkelabhängigkeit der Resonanzfelder für zwei Temperaturen.

Es stellt sich nun die Frage, warum die magnetokristalline Anisotropie sich so stark temperaturabhängig ändern soll, während die Spin–Bahn-Wechselwirkung als Ursache der magnetokristallinen Anisotropie nicht temperaturabhängig ist [6]. Die strukturelle Relaxation bzw. Spannung verändert die Anisotropie durch Spin–Bahn-Wechselwirkung, die sensitiv auf kleine Änderungen der Abstände zwischen nächsten Nachbarn ist [86].

Dieser Effekt, der in der Literatur als Magnetostriktion bekannt ist, wurde beispielsweise von Freeman et al. theoretisch behandelt [87]. Dabei wurden die Magnetostruktionskonstanten der Übergangsmetalle (bcc-Fe, fcc-Co und Ni) im Volumen mittels *ab-initio*-Methoden berechnet. Es wird gezeigt, daß die magnetokristalline Anisotropie eine lineare Funktion der Spannung im Kristallgitter ist. Für ein im Volumen kubisches Metall erwartet man eine Änderung der Gitterkonstante, wenn eine Spannung senkrecht (z-Richtung) ausgeübt wird. Dabei wurde das Volumen konstant gehalten. Es wurde theoretisch ein linearer Zusammenhang zwischen magnetokristalliner Anisotropie und der Änderung der

Gitterkonstante festgestellt, so daß die magnetokristalline Anisotropie für fcc-Ni im Volumen (im Gegensatz zum Fe und Co) mit der Abnahme der Länge durch die Spannung in der z-Richtung (eine senkrechte Kontraktion) zunimmt.

Die oberen Atomlagen zeigen die Gitterkonstante des Nickels im Volumen (siehe LEED), während die unteren Atomlagen durch Wechselwirkung mit dem Substrat gegenüber dem Volumenkristall ausgedehnt sind. Bei Raumtemperatur liegt die Magnetisierung aufgrund der Form-Anisotropie und einer durch Spannung induzierten Anisotropie (Ausdehnung) in der Kristallebene. Die natürliche Richtung der leichten Achse der Magnetisierung für Ni(111) steht senkrecht zur Oberfläche. Eine Reduzierung der Temperatur führt zur Kontraktion des Kristallgitters derart, daß die magnetokristalline Anisotropie aufgrund der starken Temperaturabhängigkeit die Form-Anisotropie und durch Spannung induzierte Anisotropie überwinden kann und die Magnetisierung senkrecht steht. In dem Temperaturbereich sind die lineare Kontraktion von Substrat (-0.1296%) und Ni (-0.1224%) sehr klein [88]. Das bedeutet, daß die Einheitszelle von Ni in jeder Richtung der Koordinaten (x,y,z) um 5×10^{-3} Å relaxiert. Diese Relaxation reicht aus, um die leichte Richtung der Magnetisierung in die natürliche (111)-Richtung von Ni(111) zu drehen.

Es stellt sich nun die Frage, in welchem Schichtdickenbereich der Spin-Reorientierungsübergang zu beobachten ist. Dazu wurde dieser Effekt in der Abhängigkeit von der Schichtdicke untersucht. Es wurden jeweils die entsprechenden Mengen Ni deponiert. Nach dem Tempern der Probe auf 720 K wurden FMR- bei Zimmertemperatur und 120 K sowie Auger- und LEED-Messungen durchgeführt. Die Auger-Ergebnisse wurden in Abschnitt 4.2.2 diskutiert.

Bis zu einer nominellen Schichtdicke von 5 Å zeigen die getemperten Ni-Teilchen kein LEED-Bild, da die Teilchen in diesem Schichtdickenbereich klein sind. Dann, mit steigender Schichtdicke, erkennt man sehr schwache LEED-Spots, und schließlich oberhalb von 9 Å erkennt man eine deutliche hexagonale Symmetrie im LEED (siehe Abschnitt 5.3), die auf eine langreichweitige Ordnung oberhalb 9 Å hinweist. Die winkelabhängigen FMR-Spektren für die Bedeckungen oberhalb von 9 Å, aufgenommen bei 120 K, zeigen mit der Abnahme des Winkels eine Verschiebung des Wendepunktes des Signals zum tieferen Feld. Das zeigt einen SRT an. Es wurde festgestellt, daß der Spin-Reorientierungsübergang (SRT) nur oberhalb einer Schichtdicke von 9 Å beobachtet wird. Die FMR-Spektren der getemperten Proben unterhalb von 9 Å Ni-Belegung zeigen eine komplexe Linienform. Die bei 120 K aufgenommenen Spektren werden mit der Abnahme des Winkels so breit, daß man keine Struktur in den Spektren feststellen kann.

Diese experimentellen Ergebnisse kann man so zusammenfassen: Die großen Ni-Teilchen

auf $\text{Al}_2\text{O}_3(11\bar{2}0)$ zeigen eine Umorientierung der Magnetisierung in Abhängigkeit von der Temperatur. Diese Teilchen sind von der Größenordnung 50–100 nm und weisen eine kristalline Struktur auf. Die kleinen Teilchen zeigen nach dem Tempern eine komplexe FMR-Linienform, so daß man keine Umorientierung der Magnetisierung feststellen kann.

