

Zusammenfassung

Die vorliegende Dissertation beschäftigt sich mit magnetischen Strukturen und Phasenübergängen in dünnen und ultradünnen Filmen der schweren Lanthanidmetalle Dy und Ho. Diese wurden untersucht mittels konventioneller, resonanter und resonanter magnetischer Röntgenstreuung. Durch die Entwicklung neuer Methoden im Bereich resonanter magnetischer Streuung im weichen Röntgenbereich konnten in dieser Arbeit Filme in einem bislang nicht erreichten Dickenbereich untersucht werden, in dem Finite-Size-Effekte beobachtet werden können. Die Hauptergebnisse dieser Arbeit umfassen die Entwicklung und den Aufbau eines ultrahochvakuumtauglichen Zweikreisdiffraktometers, die erste detaillierte und quantitative Charakterisierung des resonanten Streuprozesses an den M_V Absorptionskanten von Lanthaniden und die Anwendung der Methode auf dünne und ultradünne Filme. Die vorliegende Arbeit untersucht die magnetische Struktur dünner Ho Filme, die Schichtdickenabhängigkeit der magnetischen Ordnungstemperatur in helikalen Antiferromagneten, kritische Phänomene in Verbindung mit zweidimensionalem Magnetismus und die Charakterisierung des tiefenabhängigen magnetischen Profils während des Phasenübergangs erster Ordnung von der ferromagnetischen in die antiferromagnetische Phase in Dy Filmen.

Für die besonderen Ansprüche der Experimente im weichen Röntgenbereich wurde ein UHV-taugliches Diffraktometer entwickelt und gebaut, welches die *in-situ* Präparation epitaktisch dünner Filme erlaubt. Untersucht wurden Lanthanidmetallfilme, die sowohl *in-situ* auf einem W(110) Substrat präpariert wurden, als auch *ex-situ* mittels Molekularstrahlepitaxie gewachsene, zwischen Y Lagen eingebettete, Filme. Die *in-situ* gewachsenen Filme zeigen eine hohe Qualität, mit magnetischer und kristalliner Kohärenz über die gesamte Filmdicke und mit Mosaikbreiten vergleichbar denen von qualitativ hochwertigen Volumeneinkristallen. Die einfache Struktur dieser Filme erlaubt eine detaillierte und quantitative Beschreibung der gemessenen Reflektivitäten. Es wurden sowohl die optischen Parameter mittels eines dynamischen Modells im Bereich der M_V Absorptionskante, erforderlich für weitere quantitative Analysen, als auch die Absolutbeträge der zirkulardichroischen und lineardichroischen Beiträge zur resonanten Streuamplitude quantitativ bestimmt. An der M_V Resonanz wurde eine Streuamplitude von bis zu $200 r_0$ gefunden, welche in dieser Größenordnung von Hannon *et al.* [Phys. Rev. Lett. **61**, 1245 (1988)] vorhergesagt wurde. Dies entspricht einer resonanten Erhöhung des magnetischen Streuquerschnitts um sieben Größenordnungen und eröffnet eine Vielzahl neuer Möglichkeiten zur Untersuchung dünner Filme und Systeme mit magnetischen Ionen in verdünnter Konzentration. Ein Vergleich

zwischen der resonanten magnetischen Streuung im weichen Röntgenbereich mit magnetischer Neutronenstreuung, durchgeführt an denselben Proben, demonstriert eindrucksvoll die Sensitivität und das enorme Potential dieser neuen Methode.

Mithilfe der starken resonanten Erhöhung des magnetischen Signals wurde die Dickenabhängigkeit der magnetischen Struktur und der Ordnungstemperatur dünner Ho Filmen untersucht bis zu einer Filmdicke von 10 atomaren Lagen, eine Dicke die der magnetischen Periodenlänge entspricht. Es stellte sich heraus, dass die magnetische Struktur von Filmen, die dünner als etwa 15 atomare Lagen sind, stark von der endlichen Dicke des Kristalls und von den Eigenschaften der Grenzflächen beeinflusst wird. Während Ho Filme auf W(110) zu einer mehr ferromagnetischen Ausrichtung der magnetischen Momente benachbarter Lagen tendieren, führt der Einfluss der Y Grenzschichten zu einer mehr antiferromagnetisch ausgerichteten Struktur in den MBE Filmen.

Während sich die magnetische Struktur beider Filmtypen beim Übergang zu dünnen Filmen unterscheidet, zeigt die Ordnungstemperatur beider Systeme im Wesentlichen dieselbe Schichtdickenabhängigkeit. In der vorliegenden Arbeit konnte gezeigt werden, dass die Absenkung der magnetischen Ordnungstemperatur mit der Filmdicke sich qualitativ vom bekannten Verhalten von Ferromagneten unterscheidet: Deren T_C folgt dem Skalengesetz

$$\frac{T_C(\infty) - T_C(d)}{T_C(\infty)} = b \cdot d^{-\lambda},$$

während T_N von langperiodischen antiferromagnetischen Strukturen beschrieben werden kann durch

$$\frac{T_N(\infty) - T_N(d)}{T_N(d)} = b' \cdot (d - d_0)^{-\lambda'},$$

mit einer Offsetdicke d_0 , welche als minimale Dicke verstanden werden kann, die benötigt wird um die antiferromagnetische Struktur zu bilden. Diese phänomenologische Gleichung konnte in Zusammenarbeit mit einem Theoretiker mit Hilfe einer Mean-Field Rechnung verstanden werden. Diese Rechnung zeigt darüber hinaus einen linearen Zusammenhang der Offsetdicke mit der magnetischen Periodenlänge des zugehörigen Volumensystems.

Durch die hohe Empfindlichkeit resonanter magnetischer Streuung an den M_V Kanten der Lanthanide konnte an den ultradünnen Ho Filmen magnetisch kritische Streuung oberhalb der Ordnungstemperatur über einen weiten Temperaturbereich gemessen werden. Die Daten zeigen eine starke Evidenz, dass diese Filme einen dimensional Übergang in dem Bereich zeigen, in dem die magnetische Ordnungstemperatur und die magnetische Struktur signifikant von der des Volumen Kristalls abweicht. Dieser Übergang zeigt sich im ausgedehnten Temperaturintervall kurzreichweitiger magnetischer Ordnung, sowie im qualitativ unterschiedlichen Verhalten der magnetischen Korrelationslänge parallel und senkrecht zur Probenoberfläche. Der Dickenbereich, in dem der 3D \rightarrow 2D Übergang stattfindet, liegt zwischen 16 und 11 atomaren Lagen und steht offenbar in Beziehung zur magnetischen Periodenlänge des zugehörigen Volumensystems.

Eine weitere neue Anwendung der resonanten Streuung im weichen Röntgenbereich nutzt die starke Variation der mittleren freien Weglängen der Photonen an starken Ab-

sorptionskanten. Die daraus resultierende Variierbarkeit der Informationstiefe wurde ausgenutzt, um tiefenabhängige Profile der magnetischen Struktur während des Phasenübergangs erster Ordnung zwischen der ferromagnetischen und der helikal antiferromagnetischen Phase in Dy/W(110) Filmen zu untersuchen. Dabei handelt es sich um ein System, welches sich durch zwei unterschiedliche Grenzflächen auszeichnet, und dadurch einen verzögerten Phasenübergang innerhalb eines Temperaturintervall von etwa 35 K aufweist. Während im konventionellen Röntgenbereich die magnetische Struktur tiefenintegriert charakterisiert wurde, konnte mittels der variierbaren Tiefenempfindlichkeit resonanter Streuung im weichen Röntgenbereich direkt das Wachstum der helikal antiferromagnetischen Domäne beobachtet werden. Mit den unabhängig bestimmten optischen Parametern von Dy Metall konnte das magnetische Tiefenprofil und die Entwicklung der magnetischen Struktur quantitativ aus temperaturabhängigen Reflektivitätsmessungen bei verschiedenen Photonenenergien bestimmt werden. Es konnte gezeigt werden, dass die ferromagnetische Struktur an der W/Dy Grenzfläche stabilisiert wird, während die helikale Struktur im Wesentlichen ausgehend von einer komplexeren magnetischen Struktur im Oberflächenbereich zur W/Dy Grenzfläche wächst.

Die Empfindlichkeit von Streuexperimenten im weichen Röntgenbereich auf magnetische Strukturen, wie in dieser Arbeit gezeigt wurde, eröffnet neue Möglichkeiten komplexe magnetische Strukturen und Korrelationen in dünnen Filmen zu untersuchen und dies sogar in Verbindungen, in denen die magnetischen Ionen nur verdünnt vorliegen. Angesichts der Vielzahl exotischer magnetischer Strukturen und Eigenschaften, die man schon allein unter den elementaren Lanthanidmetallen findet, ist die vorliegende Arbeit erst der Beginn einer detaillierten und systematischen Untersuchung von Finite-Size Effekten und von Einflüssen von Grenzflächen auf komplexe magnetische Strukturen. Während diese Dissertation auf Lanthanidmetalle fokussiert ist, ist resonant magnetische Röntgenstreuung im weichen Röntgenbereich nicht nur auf $4f$ Systeme beschränkt. Starke dipolerlaubte Resonanzen im weichen Röntgenbereich findet man auch bei den $3d$ und $5f$ Übergangselementen. Die zugehörigen Wellenlängen sind bestens geeignet für Streuung an periodischen Strukturen im Nanometerbereich. Deshalb besitzt diese Methode ein außerordentliches Potential für die magnetische und strukturelle Charakterisierung künstlicher Systeme wie Multilagen, lateral strukturierte Materialien oder sonstige Nanostrukturen. Auch bietet die variierbare Eindringtiefe der Photonen neue Möglichkeiten zur Charakterisierung magnetischer Strukturen an Grenzflächen.

Neben dem stark erhöhten magnetischen Streuquerschnitt und der starken Variation der Eindringtiefe der Photonen über die Resonanz, die in dieser Arbeit ausgenutzt wurden, gibt es noch spektroskopische Informationen, welche detaillierte Rückschlüsse auf die elektronische Struktur des Systems zulassen. Dies qualifiziert resonante weiche Röntgenstreuung in besonderer Art und Weise, um Ordnungsphänomene in Verbindung mit speziellen elektronischen Zuständen zu untersuchen wie beispielsweise Ladungs- und orbitale Ordnung, welche für das Verständnis hochkorrelierter Systeme wichtig sind.