

**Magnetic properties of exchange-coupled
antiferromagnetic/ferromagnetic multilayers
studied by Polarized Neutron Reflectometry
and Low Temperature Nuclear Orientation**

Inauguraldissertation
zur Erlangung der Doktorwürde
des Fachbereichs Physik
der Freien Universität Berlin

vorgelegt von
Marita Gierlings
aus Mönchengladbach

November 2002

Gutachter:

1. Prof. Dr. D. Riegel
2. Prof. Dr. W. D. Brewer

Tag der Disputation: 29. Jan. 2003

Contents

1	Introduction	1
2	Some general aspects of exchange bias (EB)	7
3	Preparation and structure of the samples	11
3.1	Experimental setup of the MBE chamber	11
3.2	Preparation of Co/CoO and Co/Au/CoO multilayer systems . .	16
3.3	In-situ characterization via AES, LEED, STM	17
3.4	Ex-situ characterization via X-ray diffraction and TEM	22
3.5	Summary of the structural analysis	24
4	Magnetic properties of the layer systems measured by SQUID magnetometry	27
4.1	Introduction	27
4.2	SQUID magnetometry	29
4.3	Results and discussion	31
4.3.1	Investigations of Co/Au/CoO trilayer systems	31
4.3.2	Investigations of a [Co/CoO/Au] ₂₀ multilayer	35
4.4	Conclusion and summary of the SQUID results	38
5	Magnetization reversal processes in EB systems investigated via Polarized Neutron Reflectometry (PNR)	41
5.1	Introduction	41
5.2	Polarized Neutron Reflectometry	42
5.2.1	Scattering theory	43
5.2.2	Experimental setup of the V6 reflectometer at the HMI .	52
5.3	Experiments, results and discussion	54
5.3.1	Motivation	54
5.3.2	Specular scattering with spin analysis on a [Co/CoO/Au] ₂₀ EB-multilayer	55

5.3.3	Off-specular (diffuse) scattering from structural and magnetic inhomogeneities	64
5.4	Conclusion and summary of the PNR results	75
6	Exploration of the applicability of Low Temperature Nuclear Orientation (LTNO) to EB-systems and related systems	77
6.1	Introduction	77
6.2	Some general aspects about hyperfine fields	79
6.3	The LTNO method	84
6.3.1	Interaction of the nuclear moments with the hyperfine field	84
6.3.2	γ -radiation emitted by oriented nuclei	86
6.3.3	Thermometry via oriented nuclei	92
6.4	Experimental setup	92
6.4.1	Cooling by $^3\text{He}/^4\text{He}$ dilution refrigeration	92
6.4.2	Experimental procedure	94
6.5	Motivation, results and discussion	100
6.5.1	Motivation	100
6.5.2	Induced nuclear ^{198}Au magnetization in a 0.5 nm thick spacer located in $FM/Au/FM$, $AFM/Au/AFM$ and $FM/Au/AFM$ trilayers	101
6.5.3	$FM/spacer/FM$: γ -ray anisotropies of ^{60}Co and ^{198}Au in $\text{Co}(16.4\text{ nm})/\text{Au}(x)/\text{Co}(16.4\text{ nm})$ with $x = 0.5\text{ nm}$. . .	104
6.5.4	$AFM/spacer/AFM$: γ -ray anisotropies of ^{60}Co and ^{198}Au in $\text{CoO}(2\text{ nm})/\text{Au}(x)/\text{CoO}(2\text{ nm})$ with $x = 0.5, 0.75\text{ nm}$	104
6.5.5	$FM/spacer/AFM$: γ -ray anisotropies of ^{60}Co and ^{198}Au in $\text{Co}(16.4\text{ nm})/\text{Au}(x)/\text{CoO}(2\text{ nm})$ with $x = 0.5, 0.75, 1.25\text{ nm}$	110
6.5.6	Magnetization reversal in a $Co/Au/CoO$ EB trilayer measured by the nuclear probe isotopes ^{60}Co and ^{198}Au . . .	118
6.6	Conclusions and summary of the LTNO results	119
7	Summary	125
8	Appendix	131
8.1	n_j -Symbols	131
8.2	Nuclear constants relevant for this work	134

Zusammenfassung

Gegenstand dieser Arbeit sind die magnetischen Eigenschaften verschiedener Co/CoO und Co/Au/CoO *Exchange Bias* (EB) Multilagensysteme und verwandter Schichtsysteme. *Exchange Bias* ist eine induzierte unidirektionale magnetische Anisotropie. Diese Anisotropie kann in einer ferromagnetischen Schicht unter dem Einfluß einer benachbarten antiferromagnetischen Schicht induziert werden, wenn das Schichtsystem in Anwesenheit eines äußeren Feldes präpariert wird, bzw. unter die Néeltemperatur des Antiferromagneten gekühlt wird. Der EB-Effekt macht sich durch eine Hysteresekurve bemerkbar, deren Zentrum von der 0-Feld-Achse verschoben ist.

Die hier untersuchten Mehrschichtsysteme wurden mittels Molekularstrahl-epitaxie hergestellt. Als Substrate dienten sowohl Wasserstoff-passiviertes Silizium, H-Si(111), als auch Saphir, Al₂O₃(0001). Die etwa 2 nm dünnen CoO-Schichten wurden durch eine spezielle *in-situ*-Oxidations-Methode präpariert [GR00a].

Die strukturelle Analyse der Proben erfolgte durch verschiedene *in-situ* und *ex-situ* Methoden (AES, LEED, STM und Röntgenbeugung, TEM). STM-Messungen zeigen die granulare Struktur sowohl der Co als auch der ultradünnen CoO-Schichten. Die fcc(111)-orientierten, rund oder elliptisch geformten Körner besitzen einen Durchmesser von 10-20 nm, abhängig vom verwendeten Substrat. TEM-Messungen wiederum bestätigen die weitgehende Trennung der einzelnen Schichten im Multilagensystem voneinander. Ferner haben TEM-Messungen an einem [Co/CoO/AU]₂₀-System gezeigt, daß die einzelnen Schichten eine Welligkeit aufweisen, die sich von unten (Substrat) bis oben durch die Multilagenstruktur zieht.

Mit der Kenntnis der strukturellen Eigenschaften wurden die magnetischen Eigenschaften der Proben mit komplementären Meßmethoden untersucht.

Die magnetischen Meßtechniken, die angewendet wurden, waren SQUID-Magnetometrie, Reflektometrie mit polarisierten Neutronen (PNR) und Tief-Temperatur-Kern-Orientierung (LTNO). Zunächst wurden die Magnetisierungskurven der zu untersuchenden EB-Systeme mit dem SQUID-Magnetometer aufgenommen. Auf diese Weise wurden die mit dem EB-Effekt verbundenen

magnetischen Eigenschaften bestimmt, also z.B. das EB-Feld (Verschiebung der Hysteresekurve) und die Koerzitivfelder.

Ein Hauptziel dieser Arbeit war die Erforschung der Magnetisierungs-umkehrprozesse in einem $[\text{Co}/\text{CoO}/\text{Au}]_{20}$ -Mehrschichtsystem. Dieses Schichtsystem stellt ein Beispiel für die Systemklasse der granularen EB-Systeme dar, das durch seine außergewöhnlich starke unidirektionale Anisotropie gekennzeichnet ist. SQUID-Messungen an dem Multilagensystem und einem vergleichbaren, einfachen Co/CoO-Zweilagensystem haben zuvor gezeigt, daß die charakteristischen Eigenschaften in dem Multilagensystem im wesentlichen erhalten bleiben. Die asymmetrische Form der Magnetisierungskurven dieser Systeme lassen bereits vermuten, daß die Ummagnetisierungsprozesse auf entgegengesetzten Seiten der Hystereseschleife durch unterschiedliche Prozesse bestimmt werden.

Darüber hinaus ist die Untersuchung mit polarisierten Neutronen zur Charakterisierung der Ummagnetisierungsprozesse besonders geeignet. Diese Meßmethode ist nicht nur auf strukturelle und magnetische Periodizitäten senkrecht zur Probenebene empfindlich, sondern auch auf Drehungen der Magnetisierung in der Probenebene.

Die vorliegenden PNR Untersuchungen an dem $[\text{Co}/\text{CoO}/\text{Au}]_{20}$ Multilagensystem zeigen einen drastischen Unterschied der Ummagnetisierungsprozesse auf entgegengesetzten Seiten der Hysteresekurve, wenn sich die Probe im EB-Zustand befindet. Ist die Probe nicht im EB-Zustand ($T=300$ K), so werden die Ummagnetisierungsprozesse durch Rotationsprozesse der Magnetisierungsvektoren in der Probenebene bestimmt. Befindet sich die Probe jedoch im EB-Zustand ($T=10$ K), so ist nur der Ummagnetisierungsprozess bei wachsenden Feldstärken, d.h. zurück zur ursprünglichen Pinning-Richtung, durch Rotationsprozesse gekennzeichnet. Auf dieser Seite der Hystereseschleife scheint der Antiferromagnet keinen nennenswerten Einfluß auf den Ummagnetisierungsprozess zu haben. Für sinkende Feldstärken dagegen, also weg von der ausgezeichneten Pinning-Richtung, wird der Ummagnetisierungsprozess von Domänenwand-Verschiebungen dominiert, wobei die Domänen im wesentlichen entweder parallel oder antiparallel zum äußeren Feld ausgerichtet sind. Im EB-Zustand beeinflußt der Antiferromagnet also lediglich den Magnetisierungs-umkehrprozess des Ferromagneten auf der Seite der Hysteresekurve, die entgegengesetzt der Richtung des Einkühlfeldes ist. Wird die Hysteresekurve ein zweites Mal durchlaufen, so ist auch die Magnetisierungs-umkehr auf dem abfallenden Hysteresezweig durch Rotationsprozesse bestimmt. Dieses Verhalten kann einem Training-Effekt zugeordnet werden. Zusätzliche qualitative Informationen lieferten erste off-spekuläre PNR Experimente, wobei die diffuse Streuung an strukturellen und magnetischen Inhomogenitäten detektiert wurde. Es zeigte sich, daß die Ummagnetisierungsprozesse, in denen

Rotationsprozesse die Hauptrolle spielen, von nennenswerter diffuser Streuung begleitet werden, die auf eine Verteilung von Domänen verschiedener Größe schließen läßt. Der Anteil der diffusen Streuung während des Ummagnetisierungsprozesses, der durch Domänenwand-Verschiebungen dominiert ist, ist dagegen deutlich geringer und auf Streuwinkel begrenzt, die vergleichsweise wenig von der spekulären Streuung abweichen. Dies deutet auf das Vorhandensein größerer Domänen hin. Die PNR Messungen haben dazu beigetragen, die Natur der asymmetrischen Ummagnetisierungsprozesse in dem vorliegenden granularen Schichtsystem besser zu verstehen.

Der zweite Schwerpunkt dieser Arbeit war die Erforschung der Anwendbarkeit der LTNO-Methode zur Untersuchung von Co/Au/CoO EB-Multilagensystemen und verwandten Schichtsystemen mit sehr dünnen Au-Schichtdicken von 0.5, 0.75 und 1.25 nm. LTNO ist eine Hyperfeinfeld-Technik, die auf die induzierte Magnetisierung der Atomkerne empfindlich ist. In den genannten Schichtsystemen dienten ^{198}Au Sonden zur Untersuchung der Au-Kernspin-Polarisation an den magnetischen Grenzflächen und ^{60}Co Sonden zur Untersuchung der Kernmagnetisierung im ferromagnetischen Co, bzw. antiferromagnetischen CoO. Ein wesentliches Ziel der LTNO Messungen war es, herauszufinden, wie sich das Au an den Grenzflächen zu den magnetischen Materialien verhält, wenn sich die Proben im EB-Zustand befinden. Die Dreilagensysteme wurden zuvor mit dem SQUID-Magnetometer vermessen. Der EB-Effekt wurde sowohl im Co als auch im Au an der Grenzfläche beobachtet. Die LTNO-Messungen haben gezeigt, daß die magnetischen Au-Kern-Momente an den Grenzflächen polarisiert sind. Während der Ummagnetisierungsprozesse folgen die Au-Kern-Momente an der Grenzfläche der Co-Magnetisierung.

In einem äußeren Feld von 500 mT, wenn das ferromagnetische Co gesättigt ist, wurden die Magnetisierungsachsen der Au-, bzw. Co-Kerne bestimmt. Wie erwartet, waren die magnetischen Co-Kernmomente entlang der Feldachse ausgerichtet. Dagegen waren die magnetischen Momente der Au-Kerne bezüglich der Feldrichtung im Mittel um etwa 21° verkippt. Diese Verkipfung konnte auf den Einfluß der antiferromagnetischen Grenzfläche zurückgeführt werden. Vergleichende Messungen an CoO/Au/CoO Schichtsystemen mit zwei AFM/Au Grenzflächen, bzw. an einem Co/Au/Co Schichtsystem mit zwei FM/Au Grenzflächen haben dies bestätigt. Im ersten Fall wurde eine starke Verkipfung der Au-Kern-Magnetisierung bezüglich der Feldachse beobachtet, während im Fall eines einfachen Co/Au/Co Schichtsystems die Kernmomente von Co und Au kollinear ausgerichtet waren. Im Unterschied zu konventionellen magnetischen Meßmethoden, wurde in dieser Arbeit am Beispiel der ^{198}Au -Sonden das Potential der LTNO Methode gezeigt, die Kernspin-Polarisation an den Grenzflächen zu magnetischen Materialien in gezielter Weise mikroskopisch zu beleuchten. Diese Methode ist daher gut geeignet für die Untersuchung

der Grenzflächen magnetischer Dünnschichtsysteme.