4.3. Magnetische Eigenschaften von ultradünnem Ni auf Pd

Bisher wurde eine Vielzahl von PAC-Untersuchungen zum Magnetismus am System ultradünnes Pd auf Ni-Einkristall durchgeführt und in [Potzger 01], [Potzger 02] sowie in dieser Arbeit vorgestellt.

In diesem Kapitel werden PAC-Messungen und Ergebnisse präsentiert, die sich auf magnetische Eigenschaften von ultradünnem Ni auf einem Pd-Einkristall beziehen.

4.3.1. Änderung der magnetischen Anisotropie durch extreme Gitterdehnung

In diesem Experimenten werden ultradünne (1-6 ML) Ni-Schichten auf Pd aufgedampft. Da Ni ein kleineres atomares Volumen hat als Pd, wird erwartet, dass die aufgedampften ultradünnen magnetischen Ni-Filme mit einem im Vergleich zum Ni-Einkristall stark gedehntem Gitterparameter aufwachsen und damit veränderte magnetische Eigenschaften haben. Einer der wichtigsten Forschungsaspekte betrifft die magnetische Anisotropie, die es möglich machen könnte, Speichersysteme mit senkrechter Magnetisierung herzustellen [Hoagland 03].

Einem phänomenologischem Model zufolge [Jonge 94] soll das Minimum der magnetischen Anisotropie-Energie [E] die magnetische Richtung und damit den Winkel θ zur Flächennormalen definieren. Die Abb. (4.3.1._1) zeigt schematisch die Situation, wie sie für eine dünne Schicht auf einem Einkristall vorliegen könnte (Querschnitt).



Abb. 4.3.1._1: Schematische Darstellung: Einkristall mit verspanntem dünnen Film (Querschnitt).

Die Anisotropie-Energie [E] für sehr dünne Schichten (etwa 10 ML) lässt sich näherungsweise beschreiben durch:

$$E = -K_{eff} \cos^2 \theta \qquad \text{mit} \qquad (Gl. 4.3.1_1)$$

$$K_{eff} = K_v + K_{me} + 2K_s/d$$
 (Gl. 4.3.1_2)

Dieses Gleichungssystem beschreibt zwei minimale Energiezustände: bei $\theta = 0^{\circ}$ und bei $\theta = 90^{\circ}$. Hierbei steht K_{eff} für die effektive Anisotropie-Energie. Wenn K_{eff} positiv ist (E ist minimal bei $\theta = 0^{\circ}$), tritt eine Magnetisierung senkrecht zur Oberfläche auf (Abb 4.3.1. 1); ist K_{eff} negativ (E ist minimal bei $\theta = 90^{\circ}$), liegt eine Magnetisierung in der Kristallebene vor. Die Größe Keff setzt sich aus drei Anteilen zusammen. Der erste Anteil, die Formanisotropie $K_v = - \mu_0 M_s^2/2$, beschreibt den Einfluss des Volumens und ist definitionsgemäß negativ. Für das Ni-Volumenmaterial kann gesetzt werden: $M_s = 552$ kA/m. Der zweite Anteil – die magnetoelastische Anisotropie Kme - hängt von Verspannungen im Kristallgitter ab. Wenn es eine Ausdehnung in der Ebene gibt, ist Kme positiv und dominant. Der dritte Teil, die Oberflächenanisotropie 2Ks/d, ist dem Oberflächenanisotropie-Koeffizienten Ks proportional und der Schichtdicke d des Ni-Films umgekehrt proportional. Im Unterschied zu Fe- und Co-Schichten auf unmagnetischem Substrat ist K_s für die Ni-Schicht negativ [Bland 94]. Wenn die Ni-Schicht dünn ist, ist der letzte der Summanden groß und dominant, und es kann für die Schichten eine Richtung der spontanen Magnetisierung erwartet werden, die in der Ebene liegt. Wenn jedoch die Ni-Schicht dick genug ist, wird der letzte Anteil klein und die Magnetisierungsrichtung wird senkrecht zur Oberfläche stehen. Da die ersten beiden Summanden Kv und Kme ebenfalls von der Schichtdicke abhängen, zeigt sich, dass Keff mit der Schichtdicke d nicht monoton steigt, sondern nach Erreichen einer gewissen Dicke d₀ K_{eff} wieder abnimmt und negativ wird. Damit geht die Magnetisierung wieder zurück in die Parallele zur Kristallebene, genau wie beim Ni-Einkristall. In Tabelle (Tab. 4.3.1. 1) sind die Ergebnisse früherer Experimente zur Richtungsbestimmung der Magnetisierung dünner Filme für die Systeme Ni/Cu(001) und Ni/Cu₃Au(001) zusammengestellt.

System		Ausdehnung		Magnetisierung	
		in Kristallebene		Senkrecht	
Ni/Cu(001)		Bis 8 ML	2,6 %	Nach 7 ML	
[Schulz94]					
Ni/Cu ₃ Au(001)		Erste 2 ML Ni	6,3 %	Nach 5 ML	
[Braun97]		Von 2 bis 6 ML 4 %			
Ni/Pd(001)	[Rizzi03]	Bis 6 ML	10,4 %	Nach ? ML	

Tab. 4.3.1._1: Ergebnisse zur Untersuchung der Magnetisierung in den Systemen Ni/Cu(001), Ni/Cu₃Au(001) und Fragestellung für das Ni/Pd(001) System

Die Grenze für die Magnetisierung senkrecht zur Oberfläche hängt über die magnetoelastische Anisotropie-Energie von der Gitterausdehnung des dünnen Films ab. Nach Überschreiten einer gewissen Anisotropie-Energie, die sich grob aus den Formeln 4.3.1_1 und 4.3.1_2 abschätzen lassen sollte, verändert sich die Richtung der Magnetisierung innerhalb weniger Monolagen von parallel zu senkrecht. Das Ziel des nachfolgend vorgestellten Experiments war das Ausnutzen der relativ großen Ni-Schichtausdehnung auf Pd(001), um schon bei sehr dünnen Schichten (< 5 ML) eine Magnetisierung des Ni-Films senkrecht zur Oberfläche zu erreichen und nachzuweisen.

4.3.1.1. Wachstum von Ni auf Pd(001)

Aus einem Experiment von Rizzi et al. [Rizzi03] ist bekannt, dass Ni-Atome auf einem Pd(001)-Einkristallen in den ersten 6 Monolagen den Gitterabstand vom Pd-Volumen (Abb. 4.3.1._2) annehmen. Aus den Gitterabständen in den Kristallen lässt sich damit die Ausdehnung des ultradünnen Ni-Films auf Pd(001) mit 10,4 % abschätzen.



Abb. 4.3.1._2: Schema der Strukturen von Ni und Ni/Pd(001) nach [Rizzi 03].

Der Ni-Film auf dem Pd-Einkristall (rechte Seite in Abb. 4.3.1._2) wurde wie folgt präpariert: Die Pd (001)-Oberfläche wurde bei einer Temperatur von 300 K mit 2 ML Ni bedeckt (Details des Verfahrens in Kap. 3). Die Bilder der LEED-Messung (Abb. 4.3.1._3) zeigen keine Überstruktur, woraus man schließen kann, dass die aufgebrachten Ni-Atome direkt auf den Gitterpositionen des Palladiums liegen.



Abb. 4.3.1._3: Die LEED – Messungen der Ni- und Ni/Pd(001)-Strukturen.

Diese LEED-Bilder gleichen den Bildern von Rizzi [Rizzi 03] und bestätigen, dass die gewünschte pseudomorphe Struktur erzeugt wurde.

4.3.1.2. Auswertung des R(t)-Spektrums und Diskussion der Ergebnisse

Für die Untersuchung dieses Systems wurden die PAC-Sonden ^{111m}Cd bei einer Temperatur von 40 K auf die 2 ML Ni/ Pd(001) Oberfläche aufgedampft. Aus den vorhergehenden Forschungen (vgl. Kap. 3) ist bekannt, dass die Diffusion der Cd-Probenatome auf der Pd (001)-Oberfläche erst bei einer Temperatur von 120 K beginnt. Folglich ist bei 40 K keine Diffusion zu erwarten, und die Adatom-Position wird eingenommen und beibehalten werden. Das PAC-Spektrum wurde in der Standart-Detektorgeometrie (vgl. Kap. 2) aufgenommen. Mit dem Auswerteprogramm DEPACK99 ist das R(t)-Spektrum in Abb. 4.3.1._4 angepast worden.



Abb. 4.3.1._4: Links: R(t)-Spektrum der Sonde ^{111m}Cd auf der 2 ML Ni/Pd (001)-Oberfläche, aufgenommen bei T = 40 K, rechts: das entsprechende fouriertransformierte Spektrum.

In der Tabelle 4.3.1._2 ist die Zusammenfassung der aus den Annpassungskurven gewonnen Parameter für die Cd Adatomposition auf Ni (2 ML)/ Pd (001) gegeben.

^{111m} Cd Adatom	Elektrischer Fel	Bhf			
Position	$V_{zz} [x \ 10^{21} \ V/m^2]$	η	β [°]	[Tesla]	Θ [°]
Ni (2 ML)/ Pd (001)	2.4 (3)	0.00(5)	5(5)	5.2 (5)	50 (5) °
Ni (001) [Voigt 90]	0.27 (5)	0	0	7.3 (2)	80 (5) °
Pd (001) [Fink 93]	2.8 (5)	0	0		



Die Annpassung an die Messdaten ergab, dass etwa 40 % der Sondenatome einen identischen Oberflächenplatz einnehmen. Da die Annpassung keine Asymmetrie für den EFG ergab ($\eta =$ 0) und der Winkel β nahe Null ist, wird der EFG als charakteristisch für ein Adatom angesehen. Unter Berücksichtigung der Messfehler ist der elektrische Feldgradient hier gleich dem von Cd auf einem Pd(001)-Einkristall. Das B_{hf} ist ca 30% kleiner als das Feld von Cd-Adatomen auf einem Ni(001)-Einkristall [Voigt 90]. Als überraschendes und wichtigstes Ergebnis zeigt sich, dass das magnetische Hyperfeinfeld der Cd-Adatome einen Winkel von 50° zur Oberflächennormalen aufweist. Unter der Voraussetzung, dass die Richtung des Hyperfeinfeldes mit der Richtung der Magnetisierung übereinstimmt, sind damit Voraussagen bestätigt, dass die Anisotropie der Magnetisierung aus der Oberfläche der Nickel-Schicht herausklappen kann. Die Tatsache, dass der Winkel weder 0° noch 90° beträgt, könnte ein Hinweis auf Beiträge zur Anisotropie vierter Ordnung sein. Diese lassen sich gewöhnlich beschreiben durch $K_4 cos^4 \theta$. Die Beiträge vierter Ordnung sind meistens klein und werden erst bei einer kritischen Filmdicke wichtig, wo der Beitrag zweiter Ordnung klein wird. Unter Berücksichtigung des Terms vierter Ordnung ergäbe sich bei $K_4/K_{eff} = 0.826$ ein Winkel von 50°. Aus Überlegungen dieser Art folgt, dass die kritische Dicke von Ni auf Pd in der Nähe von 2 Monolagen liegt. Eine alternative Erklärung des gemessenen Auslenkwinkels von 50° würde erfordern, dass ein Lage-bei-Lage Wachstum nicht vorliegt und Unsicherheiten in der Bestimmung der Struktur oder der Bestimmung der Dicke der Nickel-Schicht in der Messung zu einem gemittelten Winkel führte, der von den Extremwerten (0° bzw. 90°) abweicht. Zu dem jetzigen Zeitpunkt kann diese Möglichkeit nicht ausgeschlossen werden, und zur Klärung sind weitere Messungen mit weiteren Schichtdicken nötig.

Zur Absicherung dieses Ergebnisses stellen wir noch die folgende Überlegung an.

Die LEED–Aufnahmen zeigen, dass Ni Atome in 2 ML-Schichten auf Pd den gleichen Abstand in der Ebene haben wie Pd-Atome im Pd-Volumen. Der V_{zz}-Parameter belegt, dass die ^{111m}Cd-Probenatome sich in einer axialsymmetrischen Umgebung befinden ($\eta = 0$), aufgrund der Präparations- und Messtemperatur handelt es sich höchstwahrscheinlich um die Adatom-Position.

Nach den Theorien von [Mavropoulos03] und [Bellini04] hängt das magnetische Hyperfeinfeld B_{hf} im Fall von Cd hauptsächlich von der Spinpolarisation der 5s-Elektronen ab, verursacht durch die *sd*-Hybridisierung mit den nächsten Ni-Nachbarn. Wegen fehlender orbitaler Beiträge kann man erwarten, dass die Richtung vom B_{hf} der Cd-Probenatome kollinear zur Magnetisierungsrichtung der nächsten Ni-Nachbarn ist, wie es im Falle von Ag auf Fe auch nachgewiesen wurde [Phalet05].

Aus den Messungen an 2,5 ML Ni auf Re(0001) [Gradmann84] und 2 ML Ni auf W(110) [Baberschke96] ist bekannt, dass die Curie-Temperatur T_c dieser Ni-Schichten, die eine vergleichbar großer Gitteraufweitung wie im hier vorgestelltem System aufweisen, etwa 340 K beträgt. Der Ni-Einkristall hat im Vergleich dazu eine Curie-Temperatur von T_c = 630 K. Daraus lässt sich schließen, dass das System 2ML Ni/Pd(001) eine vergleichbare Curie-Temperatur-Wert von T_c = 340 haben sollte. Das System 2ML Ni/Pd(001) befindet sich bei der Messtemperatur T = 40 K folglich nahe der magnetischen Sättigung. Das gemessene Hyperfeinfeld B_{hf} von Cd-Adatomen auf einer 2 ML Ni-Schicht bei T = 40 K sollte dem Sättigungsfeld bei T = 0 K entsprechen.

Daraus folgt der Schluss, dass der Unterschied in den gemessenen Hyperfeinfeldern für die Adatomposition von Cd-Adatomen auf einer einkristallinen Ni(001)-Oberfläche im Vergleich zum 2ML Ni-Film auf Pd(001) - beide Messungen wurden bei etwa 40 K durchgeführt - nicht von der Temperatur sondern vielmehr von der Ausdehnung des Ni-Films verursacht wird.